HAL
open science

Piégeage et refroidissement d'ions exotiques pour la mesure de masse

Sylvain Henry

To cite this version:

Sylvain Henry. Piégeage et refroidissement d'ions exotiques pour la mesure de masse. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Louis Pasteur - Strasbourg I, 2001. Français. NNT : . tel-00002382

HAL Id: tel-00002382

https://theses.hal.science/tel-00002382v1

Submitted on 11 Feb 2003

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ LOUIS PASTEUR

THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ LOUIS PASTEUR

Discipline : Physique Nucléaire

par

Sylvain HENRY

Titre:

PIÉGEAGE ET REFROIDISSEMENT D'IONS EXOTIQUES POUR LA MESURE DE MASSE

Directeur de Thèse

David LUNNEY

Soutenue le 15 juin 2001 devant le Jury :

M.	**J. C. Sens**	Président
M.	**R. Béraud**	Rapporteur
M.	**A.C. Mueller**	Rapporteur
Mme	**C. Miehe**	
M.	**O. Naviliat**	

Résumé

Ce travail décrit la mise au point et l'exploitation d'un quadrupole à radiofréquence rempli de gaz pour la collection et le refroidissement rapide de faisceaux d'ions de basse énergie (10-100 keV). L'objectif de ce système est de réduire l'émittance du faisceau radioactif ISOLDE (avec un minimum de pertes) afin d'augmenter la sensibilité des deux spectromètres en ligne dédiés à la mesure de masse de haute précision : MISTRAL et ISOLTRAP. Chacun de ces dispositifs de refroidissement est porté à une haute tension dans le but de réduire l'énergie cinétique du faisceau injecté dans le quadrupole. Le dispositif de MISTRAL est prévu pour ré-accélérer le faisceau continu refroidi tandis que celui d'ISOLTRAP délivre des paquets d'ions de faible énergie ($\sim$3 keV) pour une injection et un refroidissement additionnel dans un piège de Penning. Ce mémoire de thèse décrit également les mesures de masse des isotopes de mercure déficients en neutrons ^{182,183}Hg effectuées avec le système nouvellement développé pour ISOLTRAP. Les mesures de masse de haute précision résultantes nous donnent une idée plus claire des énergies de liaison et de leurs corrélations avec les coexistences de formes connues dans cette région.

Table des matières

1 Mesure de masse : intérêts et applications **6**
1.1 Introduction 6
1.2 Enjeux de la mesure de masse 6
1.3 La situation des formules de masse 9
1.4 Les techniques de production des noyaux exotiques et de mesure de masse . 12
1.4.1 Production des noyaux exotiques 12
1.4.2 Méthodes de mesure de masse 13
1.5 L'expérience MISTRAL 15
1.5.1 Principe de fonctionnement 15
1.5.2 Bénéfice d'un système de refroidissement 18
1.6 L'expérience ISOLTRAP 21
1.6.1 Principe de fonctionnement 21
1.6.2 Bénéfice d'un nouveau système de collection 24
1.7 Comparaison des deux expériences 24

2 Les pièges électromagnétiques **26**
2.1 Introduction 26
2.2 Principe de piègeage des particules chargées 27
2.3 Le piège de Paul 29
2.3.1 Cas du piège à deux dimensions : Le filtre de masse 32
2.3.2 Le pseudo-potentiel 34
2.3.3 La charge d'espace 36
2.3.4 Les imperfections et le champ de fuite 37
2.4 Le piège de Penning 38
2.4.1 Les équations du mouvement 38
2.4.2 Le piège de Penning comme spectromètre de masse 42

3 L'émittance et le refroidissement **44**
3.1 La notion d'espace des phases 44
3.2 Ions dans un champ quadrupolaire à radiofréquence 47
3.3 Définition de la température 48
3.3.1 Approximation harmonique 49
3.3.2 Le mouvement réél 51

3.3.3 Le chauffage RF . . . 52
3.4 Les techniques de refroidissement des ions . . . 53
3.4.1 Le refroidissement résistif . . . 53
3.4.2 Le refroidissement stochastique . . . 53
3.4.3 Le refroidissement par laser . . . 54
3.4.4 Le refroidissement par électrons . . . 54

4 Le dispositif expérimental 55
4.1 Le système de refroidissement . . . 56
4.1.1 Le banc d'essais . . . 56
4.1.2 Le quadrupole linéaire à radiofréquence (RFQ) . . . 56
4.1.3 Le pompage différentiel . . . 61
4.1.4 L'électronique . . . 63
4.2 L'émittance-mètre . . . 64
4.2.1 Principe et caractéristiques techniques . . . 65
4.2.2 La mesure de l'émittance . . . 68

5 Les outils de simulation 69
5.1 Avant-propos . . . 69
5.2 Simulation du mouvement des ions . . . 69
5.2.1 Simulation de l'injection des ions dans le RFQ . . . 70
5.2.2 Simulation de l'extraction des ions du RFQ . . . 73
5.3 Simulation de l'interaction ions-gaz . . . 76
5.3.1 L'approche macroscopique . . . 78
5.3.2 Comparaison micro/macro . . . 82
5.3.3 Résultats . . . 83

6 Résultats expérimentaux 87
6.1 Introduction . . . 87
6.1.1 Les "observables" du dispositif expérimental . . . 87
6.1.2 La démarche expérimentale . . . 88
6.2 Les effets du potentiel axial . . . 89
6.3 Le piégeage des ions . . . 92
6.4 La transmission du système . . . 95
6.5 La durée de l'interaction ions-gaz . . . 97
6.6 Les mesures d'émittances . . . 99
6.6.1 Caractérisation du faisceau non refroidi . . . 99
6.6.2 L'émittance en présence de gaz d'hélium . . . 101
6.7 Conclusion . . . 102

7 Les mesures de masse avec l'expérience ISOLTRAP 104
7.1 Le système de collection et de refroidissement du faisceau . . . 105
7.1.1 Principe . . . 105

7.1.2 L'extraction et la réaccélération des ions 106
7.2 La trappe de nettoyage et de refroidissement 110
7.2.1 Principes 110
7.2.2 Réalisation 112
7.3 La trappe de mesure 114
7.3.1 Principes 114
7.3.2 Les erreurs de mesure 115
7.4 La prise de mesure de Juillet 99 118
7.4.1 Les enjeux de la mesure des Hg déficients en neutrons 118
7.4.2 Les conditions de production du faisceau d'ions 119
7.5 L'analyse des données pour les noyaux ^{182,183}Hg 119
7.5.1 Traitement des données obtenues 119
7.5.2 Résultats 121
7.6 L'évaluation des masses 121
7.6.1 Le ^{182}Hg et le ^{182}Au 124
7.6.2 Le ^{183}Hg 124
7.6.3 Bilan de l'évaluation 126
7.7 Discussion des résultats 127
7.7.1 Relation entre forme et énergie de liaison dans le noyau 128
7.7.2 Le cas des isotopes de mercure 129
7.7.3 Comparaison avec les modèles de masse 137

Introduction

Bien que l'étude de la structure nucléaire à travers les mesures d'énergie de liaison ait une longue histoire, elle continue aujourd'hui à jouer un rôle majeur grâce aux avancées technologiques de la spectrométrie de masse et la production de faisceaux exotiques. Des manifestations de la structure nucléaire telles que les fermetures de couche et l'apparition de noyaux halos peuvent par exemple être mises en évidence par des mesures de masses de haute précision. En particulier, deux expériences installées auprès du séparateur d'isotopes ISOLDE au CERN nous procurent aujourd'hui une grande quantité de données précises : le spectromètre à transmission et à radiofréquence MISTRAL et le spectromètre ISOLTRAP utilisant deux pièges de Penning. Tous deux seront décrits au cours du chapitre 1.

Aujourd'hui les caractéristiques des noyaux situés le long de la vallée de la stabilité, et en particulier leurs masses, sont relativement bien connus car ces noyaux sont facilement accessibles et ont une longue durée de vie. Le véritable enjeu de l'exploration expérimentale des noyaux de la charte se situe alors de plus en plus loin de la stabilité où l'on peut tester la validité des modèles nucléaire dans ces conditions extrêmes comme par exemple la continuité des nombres magiques. Cependant, du fait que les mesures de masse doivent être effectuées loin de la stabilité, là où les sections efficaces de production décroissent très rapidement, les spectromètres souffrent de limitations liées à leur sensibilité. Dans le cas de la spectrométrie de masse, le faisceau de noyaux exotiques produit a une certaine densité par unité d'aire, par unité d'énergie de transport et par unité de divergence angulaire (appelé densité dans l'espace des phases). Cette propriété, l'émittance du faisceau, est caractéristique de la source d'ions utilisé pour sa production et ne peut pas être modifiée en utilisant des moyens d'optique ionique conventionnels (comme nous le dit le théorème de Liouville). Les seuls moyens d'améliorer cette émittance (la diminuer) sont d'accélérer le faisceau, ce qui est incompatible avec les spectromètres de masse de haute précision, ou bien de réduire son entropie c'est-à-dire "refroidir" le faisceau. Ce concept sera développé au cours du chapitre 3.

Parmi les différentes techniques existantes pour le refroidissement de faisceaux, une d'entre elles, particulièrement intéressante pour les faisceaux d'ions exotiques de basse énergie (de type ISOLDE), est le refroidissement par gaz tampon. L'interaction des ions avec un gaz relativement inerte, neutre et léger (typiquement l'hélium) permet une thermalisation rapide des ions à la température du gaz. Cependant cette thermalisation s'accompagne

aussi d'une diffusion du faisceau et il en résulte au contraire une grande augmentation des dispersions spatiales et angulaires. Pour contrecarrer ce processus, l'interaction des ions avec le gaz doit se faire dans un environnement où le mouvement des particules chargées est contraint. Le chapitre 2 décrit l'utilisation de pièges électromagnétiques pour la création de ces forces de confinement et pour le guidage des ions à travers le gaz.

L'élaboration d'un tel dispositif est un problème assez complexe car il implique des conditions expérimentales souvent incompatibles comme les hautes tensions et la présence de gaz. Le domaine de pression en question, à la frontière entre les régimes d'écoulement moléculaire et laminaire, nécessite également une évaluation de la distribution des pression de gaz. La spécification de ce système de refroidissement a aussi demandé un travail de simulation des trajectoires ainsi que l'utilisation d'un modèle fiable décrivant l'interaction entre les ions et le gaz. Le chapitre 5 décrit les outils de simulation utilisés ainsi que le modèle d'interaction développé.

Le chapitre 4 est une description technique détaillée du système de refroidissement mis au point pour le spectromètre MISTRAL. Celui-ci consiste en un quadrupole à radiofréquence de 500 mm de longueur monté sur un banc d'essai à 10 kV qui lui délivre un faisceau d'éléments alcalins séparés en masses. Pour mettre en évidence les effets du gaz sur l'émittance du faisceau piégé il a également été développé un dispositif capable de mesurer les dispersions spatiale et angulaire appelé émittance-mètre. La description de cet instrument figure également dans le chapitre 4. Les résultats des mesure obtenus avec ces appareils feront l'objet du chapitre 6.

Durant cette thèse une période de six mois a été consacrée à une participation au développement du système de refroidissement d'ISOLTRAP. Si celui-ci est assez similaire à celui de MISTRAL dans sa conception, son utilisation diffère car il est également utilisé pour adapter le faisceau presque continu d'ISOLDE au mode pulsé à basse énergie (quelques keV) utilisé par ce spectromètre. Ce système a récemment été utilisé avec succès pour la mesure des isotopes déficients en neutrons $^{179-184}$Hg. Les descriptions du refroidisseur de faisceau et du spectromètre ISOLTRAP seront faites au cours du chapitre 7 où nous aborderons également les mesures des isotopes de mercure et leurs effets sur l'évaluation des masses dans cette région de la charte des noyaux.

Finalement la dernière partie de ce chapitre sera consacrée à une discussion sur les résultats obtenus sur la mesure des isotopes de mercure ($Z = 80$, $98 < N < 105$). Cette interprétation peut être considérée comme complémentaire à celle que S. Schwarz a développée dans sa thèse présentée à l'université Gutenberg de Mayence en 1999 [5]. Cette région de masse proche du nombre magique de protons $Z = 82$ mais située entre les fermetures de couche en neutrons $N = 82$ et 126 est caractérisée par de brusques changements de forme des noyaux mis en évidence par les variations du rayon de charge.

Chapitre 1

Mesure de masse : intérêts et applications

1.1 Introduction

Ce chapitre s'attachera à expliquer le rôle et les enjeux de la spectrométrie de masse pour la connaissance de la structure nucléaire. Un accent particulier sera mis sur les noyaux éloignés de la stabilité et sur les évolutions techniques, aussi bien dans le domaine des spectromètres eux-mêmes que des dispositifs de production de ces noyaux. La base de cette thèse étant le traitement de faisceaux dans les pièges à ions, et en particulier leur refroidissement, nous nous attarderons sur deux expériences consacrées aux mesures de masses qui ont besoin de refroidissement : MISTRAL et ISOLTRAP. Pour chacune d'entre elles nous expliquerons en quoi une mise en forme préalable du faisceau d'ions à mesurer peut être profitable à cette mesure.

1.2 Enjeux de la mesure de masse

La relation $\Delta E = \Delta mc^2$ nous indique que les masses atomiques sont directement liées aux énergies de liaison. Les variations de ces énergies de liaison en fonction du nombre de protons Z et de neutrons N peuvent être considérées comme une représentation globale de toutes les manifestations de la structure de la matière nucléaire (appariement, nombres magiques, déformations ou noyaux "halo").

L'unité de masse définie en physique nucléaire est exactement 1/12 de la masse d'un atome de ^{12}C. Exprimée en kg on a environ $1\,u = 1,6 \cdot 10^{-27}$kg. Plus pratiquement on exprime les masses en MeV car cela donne une correspondance directe entre la masse et l'énergie du système. A partir des mesures de masse d'un atome, on obtient un paramètre fondamental en physique nucléaire : l'énergie de liaison $B(Z,N)$ qui est définie comme la différence entre l'énergie de masse des constituants de l'atome et l'énergie de masse mesurée $m(Z,N)$:

$$B(Z,N) = Z \cdot m_{hydrogene} + N \cdot m_{neutron} - m(Z,N) \tag{1.1}$$

Il faut remarquer que les tables de masse ne donnent pas les masses des noyaux mais celles des atomes qui incluent à la fois la masse des électrons présents et leurs énergies de liaison. Ces énergies de liaison peuvent prendre des valeurs importantes par rapport aux précisions des mesures (elle est par exemple de 88 keV pour l'électron le plus lié du Pb).

L'histoire de la spectrométrie de masse a commencé au début du siècle avec la découverte de l'existence des isotopes $A = 20$ et 22 du néon par Thomson [20] en 1913. Par la suite, l'utilisation de spectrographes magnétiques [45] pour la mesure systématique d'un grand nombre d'atomes stables a permis de découvrir l'évolution des énergies de liaison des noyaux avec le nombre A. La quasi-constance de l'énergie de liaison par nucléon a mis en évidence quelques effets de base tel que le caractère à courte portée de l'interaction nucléaire. Par analogie avec la cohésion d'une goutte liquide, où le phénomène de saturation des forces d'interaction se manifeste aussi, Weiszaecker [1] a proposé en 1935 la première formule de masse qui permet de retrouver certaines propriétés du noyau. La formule semi-empirique de Bethe et Weiszaecker redonne notamment une énergie de liaison en accord avec l'expérience. Si ce modèle macroscopique reproduit remarquablement bien l'ensemble des masses atomiques, il présente cependant un comportement assez lisse relativement à la surface (N, Z) et ne rend pas compte des variations plus brutales qui sont observées. En particulier il ne reproduit pas les nombres magiques.

On peut se rendre compte de la non régularité de cette surface par l'étude de l'énergie de séparation d'un nucléon qui est l'énergie nécessaire pour enlever du noyau un proton (S_p) ou un neutron (S_n) et qui joue un rôle analogue à celui de l'énergie d'ionisation d'un atome. Pour s'affranchir de l'effet d'appariement entre deux nucléons et mettre en évidence d'autres effets il est toutefois plus judicieux de s'intéresser à l'énergie de séparation de deux nucléons que l'on peut définir par :

$$S_{2n} = B(Z,N) - B(Z,N-2) \;\; et \;\; S_{2p} = B(Z,N) - B(Z-2,N) \tag{1.2}$$

La figure 1.1, représentant l'évolution de l'énergie de séparation de deux neutrons, met en évidence des perturbations locales de la monotonie de ces courbes caractéristiques d'effets tels que la fermeture de couche ou les déformations du noyau. Sur cette figure on peut voir que l'échelle d'énergie de ces variations est de l'ordre du MeV. La masse totale des noyaux en question est de l'ordre de 100 GeV pour des noyaux dans la région $A = 100$. La comparaison nous indique que la mise en évidence de ces effets requiert une précision d'une part sur 10^5 et au moins un facteur 10 de plus est nécessaire pour en extraire des informations intéressantes.

Une étape supplémentaire dans la compréhension du noyau a été franchie avec la conception du modèle en couches. Au milieu du siècle on s'était déjà rendu compte que les noyaux

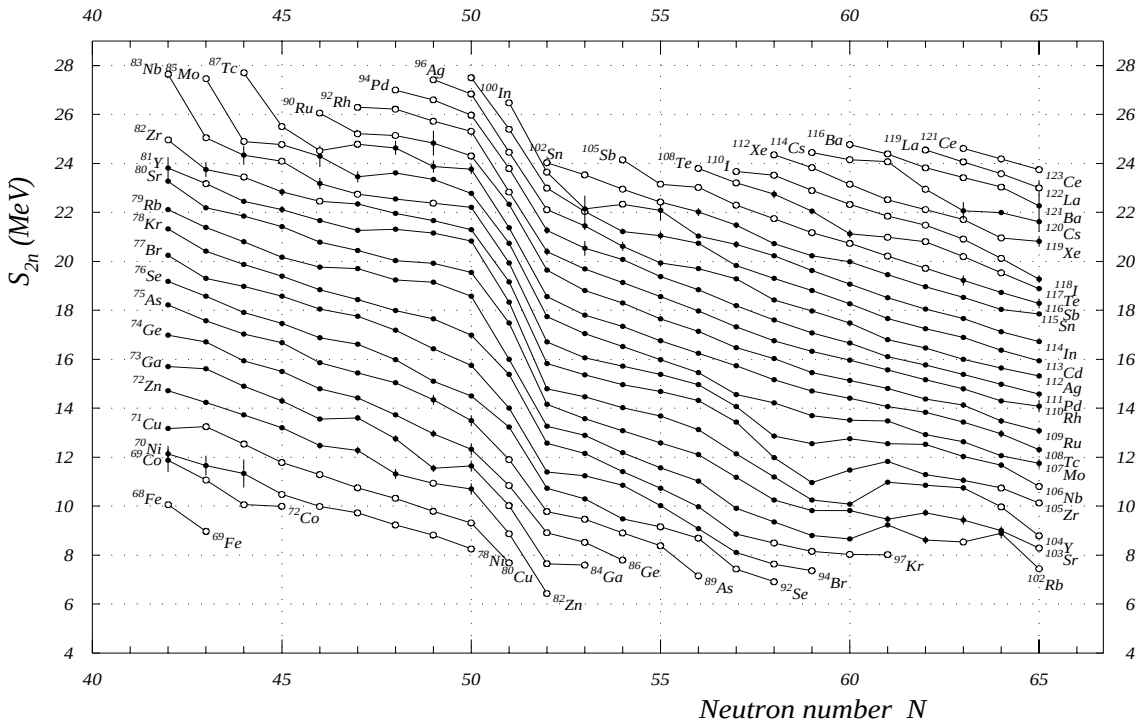

FIG. 1.1: *Représentation de l'énergie de séparation de deux neutrons en fonction du nombre de neutrons pour différents éléments. On peut se rendre compte de la chute des énergies de séparation au-delà du nombre magique $N = 50$ et du changement de monotonie des courbes au voisinage de la région de déformation entre Rb et Nb au delà de $N = 60$.*

ayant un nombre de protons ou de neutrons égal à 2, 8, 20, 50, 82 et 126 présentaient une énergie de liaison importante par rapport à leurs voisins. Par analogie avec la structure des électrons dans l'atome, l'existence de ces "nombres magiques" a conduit à l'idée que les nucléons du noyau sont aussi répartis en couches. Une corrélation avait d'ailleurs déjà été établie entre ces noyaux magiques et leurs abondances dans le système solaire. Les avancées de ce modèle ont été permises par l'hypothèse de la "particule indépendante". Il substitue au problème initial insoluble à $A = Z + N$ corps un problème à un corps en supposant que chaque nucléon se déplace dans un potentiel moyen $V(r)$ créé par les autres particules. Cela suppose évidemment l'existence d'un tel potentiel dans lequel les particules se déplacent librement sans interaction entre elles. Justifier ce passage de l'interaction nucléon-nucléon au potentiel moyen $V(r)$ constitue un problème essentiel toujours d'actualité et la capacité de ce potentiel à reproduire les nombres magiques connus permet de tester sa validité.

La démarche de ce modèle microscopique consiste alors à construire l'Hamiltonien de

chaque nucléon et d'en calculer les fonctions d'ondes via l'équation de Schrödinger. Un traitement par perturbations de cet Hamiltonien permet de prendre en compte le fait que le modèle en couches est une approximation imparfaite de la réalité. Ce traitement corrige au premier ordre cette approche en considérant les interactions résiduelles entres particules comme l'interaction spin-orbite. Ce modèle permet de retrouver une grande partie des nombres magiques et explique le spin et la parité des noyaux.

1.3 La situation des formules de masse

Les formules de masse utilisées aujourd'hui peuvent être classées en différentes catégories. A un extrême on peut placer les approches complètement empiriques qui ne se basent pas sur la nature de l'interaction nucléaire. Ces modèles dépendent, implicitement ou explicitement, d'un grand nombre de paramètres libres ajustés sur les données nucléaires expérimentales. On peut citer l'exemple de l'approche de Garvey-Kelson [46] où, à partir de considérations simples sur l'interaction nucléon-nucléon, on établit une relation entre les masses de noyaux voisins. Cette procédure contient un grand nombre de paramètres, qui sont les masses tabulées des noyaux, et se base sur une évolution lente du potentiel nucléaire avec le numéro atomique.

A un niveau plus fondamental, le modèle de la goutte liquide peut être qualifié de semi-empirique car il repose sur certaines caractéristiques de la matière nucléaire. Si l'on détermine les paramètres de la formule de Bethe et Weiszaecker par comparaison avec la table des masses d'Audi et Wapstra 1995 [26], on peut reproduire les variations des énergies de liaison avec une précision de 2 %. Ce résultat est tout à fait remarquable pour ce modèle semi-empirique qui utilise seulement 5 paramètres.

Depuis les 65 ans d'existence de cette approche, les effets résiduels non pris en compte ont, de diverses manières, été introduits sous la forme de corrections microscopiques greffées sur la base de la goutte liquide. Cette approche est connue sous le nom de "Macroscopique-Microscopique", elle essaie d'établir une co-existence entre le modèle de la goutte liquide d'une part et les effets microscopiques tels que le modèle en couches et l'appariement d'autre part. On peut citer en exemple de ces descriptions les modèles de Möller *et al* (Unified Macroscopic-Miscroscopic [71]), de Myers-Swiatecki (Thomas-Fermi [77]) et de Tachibana *et al* [74] qui sont représentés sur la figure 1.2. Les modèles de cette classe contiennent généralement une part plus ou moins grande de phénoménologie qui apparaît dans le nombre de paramètres utilisés (281 pour l'approche de Tachibana *et al*, 30 pour celle de Möller *et al*).

Une dernière catégorie plus fondamentale est constituée par les modèles purement microscopiques. Parmi ces approches on peut citer Hartree-Fock (HF) ou le modèle du Champ Moyen Relativiste (RMF). Elles sont toutes deux basées sur l'approximation du potentiel moyen et contiennent typiquement entre 5 et 20 paramètres pour décrire la force nucléaire. L'approche RMF, qui interprète l'interaction nucléon-nucléon en termes d'échange de mésons, repose sur la résolution de l'équation relativiste de Dirac. Elle peut être considérée comme plus fondamentale car le terme de l'interaction spin-orbite découle directement de

la résolution des équations. Toutefois les modèles purement microscopiques sont amenés à introduire des termes phénoménologiques pour être capables de produire une formule de masse performante. En exemple l'approche de Duflo-Zuker (basée sur le modèle en couches) qui est le modèle reproduisant le mieux les masses mesurées. Les calculs de deux versions de ce modèle sont reportés sur la figure 1.2, chacune comportant un nombre de paramètres différent (28 pour DZu1 [76]et 10 pour DZu2 [75]).

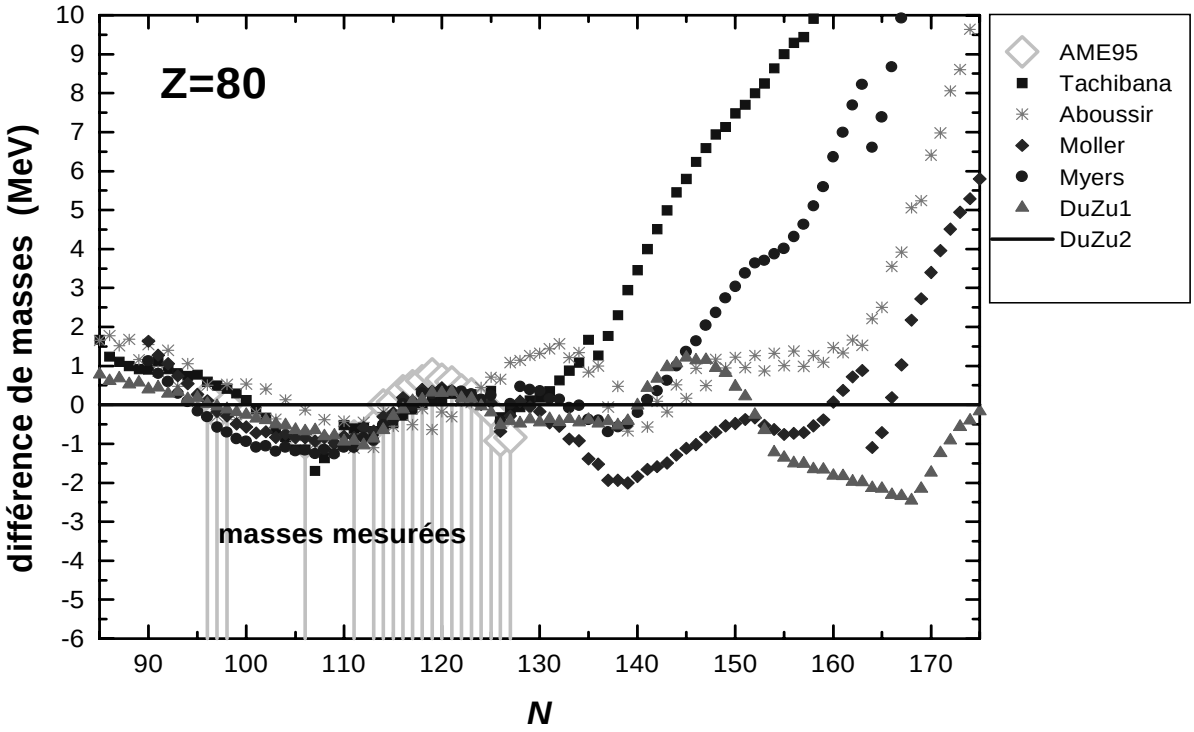

FIG. 1.2: *Comparaison des prédictions de différents modèles de masse. Cet écart est calculé relativement au modèle de Duflo-Zuker (DZu2). Ces calculs concernent des isotopes de mercure ($Z = 80$), N représente le nombre de neutrons.*

D'un point de vue expérimental les décennies suivant la conception du modèle de la goutte liquide ont été consacrées à des mesures de masses atomiques de plus en plus précises mettant à profit les améliorations techniques des appareillages de mesures. Ces études ont été principalement concentrées sur les noyaux stables ou de longue durée de vie. Pour les masses atomiques des noyaux stables les précisions relatives expérimentales obtenues, de l'ordre de 10^{-11}, sont bien meilleures que les prédictions des modèles théoriques. La mesure de masse de noyaux de plus en plus éloignés de la stabilité permet à chacun des modèles dont nous avons parlé de tester sa validité et d'ajuster ses paramètres pour reproduire au

mieux les valeurs mesurées. Pour illustrer ce problème la figure 1.2 montre les prédictions de quelques modèles de masse pour les isotopes de Hg (les valeurs connues expérimentalement sont représentées en comparaison). S'il apparaît que les contraintes expérimentales exercées sur ces modèles permettent de calculer des masses en relativement bon accord avec les mesures, les prédictions de ces modèles divergent fortement dès que l'on cherche à extrapoler.

Les enjeux de la connaissance de la masse des noyaux exotiques sont nombreux. Les calculs issus de HF ou RMF prédisent de forts changements de la structure de la matière nucléaire loin de la stabilité comme le changement des nombres magiques ou l'atténuation de la force de couplage spin-orbite ("quenching"). Ces effets ont des influences considérables sur la masse et la durée de vie des noyaux en question. A leur tour ces masses et ces durées de vie vont avoir une grande importance en astrophysique dans les processus de nucléosynthèse stellaire. En effet on explique la nucléosynthèse des éléments lourds (au delà du ^{56}Fe) par un processus de capture de neutrons qui sont insensibles à la répulsion coulombienne. On peut le décrire par la relation :

$$ {}^{A}_{Z}X + n \ \rightarrow {}^{A+1}_{Z}\ X + \gamma \tag{1.3} $$

Ce processus intervient surtout dans la phase explosive de l'étoile où le flux de neutrons est très important (processus-r). Lorsque l'on s'éloigne de la stabilité la capture de neutrons rentre en compétition avec le processus inverse (γ, n). Certains noyaux, situés à l'équilibre entre ces deux réactions, ont alors un grand rôle à jouer dans le processus de nucléosynthèse car ils permettent de peupler les isotopes $Z + 1$ par décroissance β^-. Ils sont connus sous le terme de points d'attente ("waiting-point"). La connaissance de ces noyaux et de leurs masses sont indispensables aux modèles d'astrophysique nucléaire qui sont actuellement incapables de reproduire fidèlement les abondances isotopiques. Dans ce domaine, de faibles variations de la masse peuvent avoir des conséquences spectaculaires sur les abondances. De même la position des "drip-lines", que l'on peut définir comme les lignes de partage entre noyaux liés et noyaux non liés en proton ($S_p \leq 0$) et en neutron ($S_n \leq 0$), est d'importance car ces lignes définissent les chemins de ces processus. D'un point de vue expérimental les noyaux proches de la drip-line en protons, plus faciles à produire, sont mieux connus.

Le fait de s'éloigner de la vallée de stabilité permet également d'étudier l'évolution des propriétés nucléaires, en particulier la masse, en fonction de l'isospin le long des lignes isobariques. L'analyse des différences de masses entre les états analogues d'un multiplet isobarique constitue un test très fin de l'indépendance de charge de l'interaction forte. Cette approche est à la base de l'équation de masse des multiplets isobariques (IMME [25]) qui établit une relation entre les masses d'un même multiplet d'isospin.

En conclusion on peut dire que le pouvoir prédictif des modèles nucléaires n'est actuellement pas satisfaisant compte tenu des besoins exprimés plus haut. La mesure de masses loin de la stabilité permet, en apportant des contraintes, de prolonger la zone de confiance que l'on peut accorder aux formules de masses. Certains noyaux mis en jeu, notamment

dans les processus-r, ont toutefois des sections efficaces de production tellement faibles qu'il n'est pas envisageable de les étudier en laboratoire. La recherche d'une véritable théorie de l'interaction nucléaire capable d'offrir des prédictions fiables est alors un travail important qui reste d'actualité.

1.4 Les techniques de production des noyaux exotiques et de mesure de masse

La mesure de la masse atomique de tous les noyaux stables ou quasi-stables (dont la durée de vie dépasse 10^9 ans) pouvait être considérée comme suffisament précise pour la physique nucléaire vers la fin des années 70 avec des précisions relatives de l'ordre de quelques 10^{-8}. Plus loin de la stabilité les principales données provenaient de mesures indirectes basées sur le bilan énergétique des décroissances β ou des réactions nucléaires. Les premières mesures directes de noyaux exotiques ont commencé avec le travail du groupe du CSNSM (Orsay) au PS du CERN puis en utilisant le dispositif ISOLDE au CERN également. Quand on veut parler des techniques de mesure de masse d'atomes instables il convient d'étudier en parallèle l'évolution des spectromètres de haute résolution et de grande stabilité et les techniques de production de faisceaux radioactifs.

1.4.1 Production des noyaux exotiques

Production en vol

Elle est basée sur les réactions nucléaires à haute énergie (très au delà de la barrière coulombienne) entre un faisceau d'ions lourds et une cible mince [27]. Les produits de réaction proviennent de la fragmentation du projectile et ont une énergie par nucléon comparable à celle du faisceau incident. Le principal avantage de cette méthode est que le faisceau secondaire est produit directement et permet d'accéder à la mesure de noyaux de très courte durée de vie. Son inconvénient majeur est la mauvaise qualité de ce faisceau (dispersion angulaire très large) qui réserve ce type de production aux expériences ayant une grande acceptance.

Production par la méthode ISOL (Isotope Separator On Line)

La réaction est induite par un faisceau primaire d'ions légers ou de protons sur des éléments lourds contenus dans une cible épaisse. Au contraire de la méthode en vol, les produits de réaction sont stoppés dans la cible et sont ensuite extraits, ionisés et accélérés à basse énergie (10-100 keV) puis triés en masse avec un séparateur électromagnétique. L'inconvénient de cette méthode est que les produits de réaction stoppés dans la cible (solide ou liquide) sont transportés vers la source par diffusion thermique. Ce processus de diffusion qui dépend des propriétés chimiques de chaque élément ainsi que de la taille et de la température de la cible peut être assez long et pénalise la sortie des espèces de

très courte durée de vie. Toutefois les faisceaux produits par cette technique sont de très bonne qualité (faible émittance) et permettent une manipulation plus fine des ions. Les ions analysés dans les expériences MISTRAL et ISOLTRAP sont produits par le dispositif ISOLDE qui utilise cette méthode dont un schéma de principe est donné sur la figure 1.3.

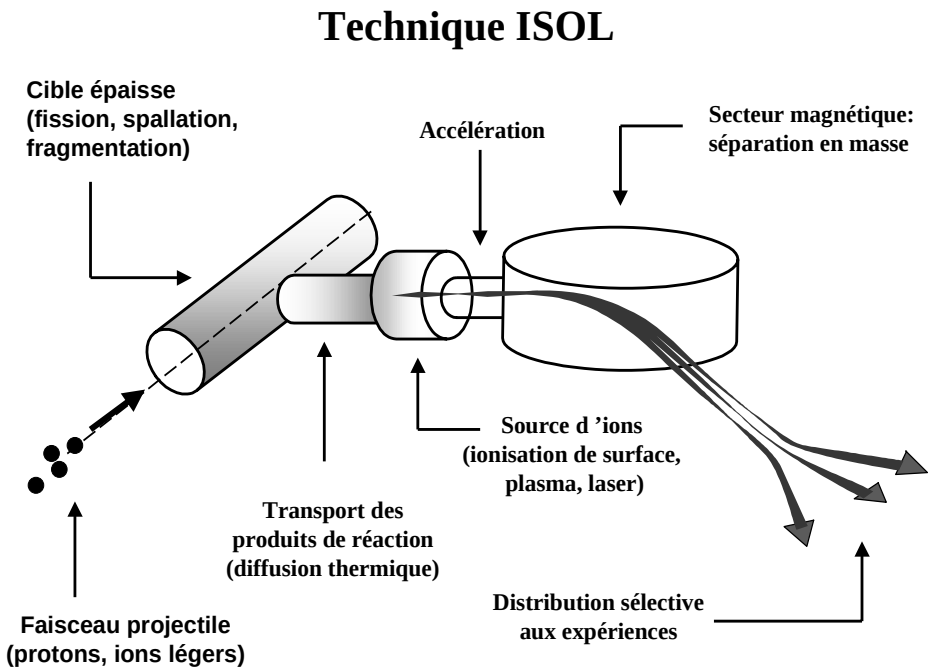

FIG. 1.3: *Explication schématique de la technique de production de faisceaux ISOL.*

1.4.2 Méthodes de mesure de masse

On peut séparer les techniques actuelles de mesure de masse en plusieurs catégories reposant sur des principes différents que nous allons décrire dans cette section. Il apparaît que les avantages et les inconvénients des deux méthodes de production citées précédemment conditionnent presque exclusivement les techniques de mesure de masse applicables à chaque type de faisceau.

Mesure indirecte par bilans de réactions

Les masses peuvent être dérivées des bilans énergétiques de réactions nucléaires ou de processus de décroissance. Par exemple dans une réaction à deux corps notée par $a(b,c)d$ les masses M des particules impliquées sont liées par la relation :

$$Q = M_a + M_b - M_c - M_d \tag{1.4}$$

où Q est l'énergie de réaction. Si l'on parvient à mesurer cette quantité et que trois des masses sont connues alors on peut déterminer la masse de la dernière particule. De manière similaire les réactions de décroissance radioactive permettent d'établir une relation entre la masse du noyau-père et celle du noyau-fils.

Dans le cas de la décroissance β ou de la capture électronique la situation est rendue plus complexe par le spectre continu d'énergie qui résulte de l'apparition du neutrino (β^+et capture électronique) et de l'anti-neutrino (β^-) dans la réaction. Il faut alors disposer d'une statistique suffisante pour déterminer l'énergie maximale de l'électron ou du positron émergent. La désintégration α étant quant à elle une transition discrète, les précisions obtenues sont meilleures.

On arrive ainsi à établir une relation entre la masse de tous les éléments d'une chaîne de désintégration. Lorsqu'une de ces masses est connue de manière absolue on fixe ainsi la masse de tous les autres éléments. Par exemple nous verrons dans le chapitre 7 que la mesure directe des isotopes de mercure ^{182,183}Hg, qui sont tous les deux sur une chaîne de désintégration, a une influence sur l'évaluation des masses de toute cette chaîne.

L'inconvénient majeur de cette méthode est que les produits de réaction peuvent parfois se trouver dans un état excité plutôt que dans l'état fondamental. De ce fait il est nécessaire de faire des mesures en coincidence avec des rayons γ pour établir le schéma complet de la réaction.

Mesure par temps de vol

Le principe repose sur la mesure du temps nécessaire pour parcourir une distance fixe. Deux exemples de dispositifs basés sur cette méthode sont TOFI (Time of Flight Isochronous) à Los Alamos [33] et SPEG (Spectromètre à Perte d'Energie) au GANIL [32]. Les limites en termes de précision de cette technique résident dans la résolution en temps des détecteurs ainsi que la longueur limitée de la base de temps de vol. Les pouvoirs de résolution obtenus sont de l'ordre de quelques 10^4 et dans ce cas une séparation isobarique ne peut être obtenue qu'avec une mesure complémentaire du nombre Z. L'application de cette méthode dans un cyclotron permet de rallonger cette base de temps de vol (par exemple le cyclotron SARA de Grenoble [34] ou l'expérience CSS2 au GANIL [31]). Ces dispositifs possèdent une large acceptance qui les prédestinent à être installés auprès de systèmes de production de type "IN-FLIGHT". Si les précisions obtenues sont limitées à quelques 10^{-6}, les durées de vie des ions analysés peuvent être très courtes et la sensibilité de ces instruments est très bonne ($0,1$ atome/seconde).

Mesure par détermination de la fréquence cyclotron

La fréquence d'un signal électromagnétique est la grandeur physique qui actuellement est mesurable avec la plus grande précision (10^{-14}). L'idée de départ est d'associer la masse d'un noyau à sa fréquence de rotation ou d'oscillation dans un champ électrique, magnétique ou d'une combinaison des deux. Le confinement d'ions dans un champ électrique peut être obtenu dans un piège de Paul que nous décrirons au chapitre 2. La difficulté d'extraire

précisément les fréquences du mouvement d'un piège de Paul limite l'utilisation de celui-ci comme spectromètre de masse de haute précision. Il reste toutefois couramment employé comme filtre de masse grâce à sa bonne résolution.

Le piège de Penning qui obtient le confinement des ions par la combinaison d'un champ électrique et d'un champ magnétique est devenu le spectromètre de masse le plus performant avec une précision de l'ordre de 10^{-11} pour les noyaux stables. Les différences de masse entre électron et positron [21] ainsi qu'entre proton et anti-proton [22] ont été obtenues avec une précision de 10^{-10} en utilisant un instrument de ce type. Le piège de Penning constitue le coeur de l'expérience ISOLTRAP avec laquelle a été faite une partie de ce travail de thèse. Une des plus grandes difficultés dans la manipulation de pièges électromagnétiques est l'introduction à très basse énergie (quelques eV) des ions dans le piège avec une efficacité satisfaisante. La résolution de ce problème est grandement facilitée par un faisceau primaire de bonne qualité c'est-à-dire de faible émittance. Il est alors préférable de travailler avec des faisceaux de type ISOL. Nous aurons l'occasion de revenir sur cet appareillage dans la section 1.6 ainsi que dans les chapitres 2 et 7.

Il est à noter que plusieurs dispositifs mettant en jeu des cellules de gaz sont à l'étude pour concilier l'utilisation de pièges de Penning avec des faisceaux radioactifs produits en vol. Le principe consiste à décélérer les ions de haute énergie dans une cellule contenant du gaz à haute pression (de l'ordre de l'atmosphère) avant de les introduire dans un piège. Parmi ces projets on peut citer SHIPTRAP au GSI et CPT (Canadian Penning Trap) à Argonne.

En dehors des pièges ioniques L. G. Smith a imaginé durant les années 50 le spectromètre de masse à radiofréquence qui se base aussi sur la mesure de la fréquence cyclotron d'un ion dans un champ magnétique [30]. A la différence du piège de Penning sa résolution est en particulier déterminée par la taille des fentes à travers lesquelles les ions doivent passer. Cela implique que la précision atteinte avec cet instrument se fait au détriment de la transmission et donc de la sensibilité du spectromètre. Du fait de cette faible acceptance ce dispositif est très sensible à la qualité du faisceau incident et doit également utiliser un faisceau de type ISOL.

1.5 L'expérience MISTRAL

1.5.1 Principe de fonctionnement

MISTRAL [47] (Mass measurements at ISOLDE with a Transmission and Radiofrequency Spectrometer on-line) est une expérience relativement récente installée auprès du dispositif ISOLDE en 1997. Les premières mesures ont été faites en juillet et novembre 1998 et concernaient les isotopes riches en neutrons ^{26,27,28,29,30}Na. La description de cette expérience a déjà été faite en détail dans les thèses de Cristian Toader [23] et Céline Monsanglant [24] et nous nous contenterons ici de décrire brièvement son principe. MISTRAL est un spectromètre de type Smith qui emploie une excitation radiofréquence du mouvement des ions dans un champ magnétique homogène ($0,8$ T au maximum). Les ions de

60 keV issus du séparateur ISOLDE sont introduits dans le champ magnétique où ils vont effectuer deux tours en suivant une trajectoire hélicoïdale de un mètre de diamètre (voir figure 1.4).

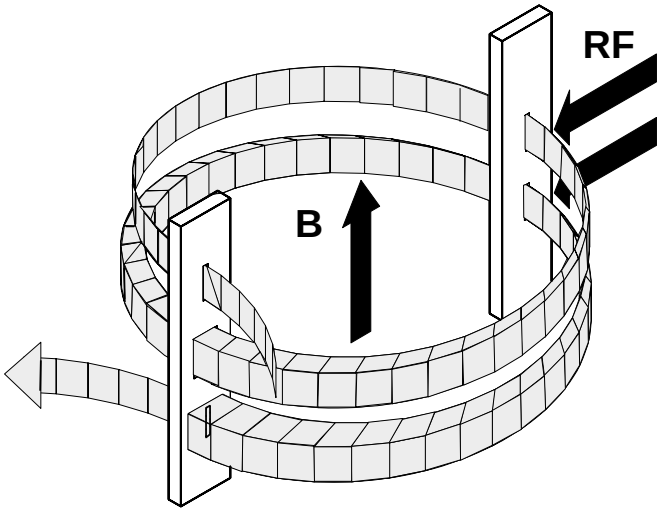

FIG. 1.4: *Schéma de fonctionnement de l'expérience MISTRAL : les ions sont injectés dans un champ magnétique homogène où ils effectuent deux tours suivant une trajectoire hélicoïdale. La modulation de l'énergie cinétique des ions est effectuée au niveau du premier et troisième demi-tour.*

A l'issue du premier et du troisième demi-tour les ions passent à travers un modulateur à radiofréquence qui modifie leur énergie cinétique. Au premier passage les ions sont écartés radialement de la trajectoire nominale et adoptent un rayon de courbure plus grand ou plus petit selon la phase de la radiofréquence. Si l'effet du deuxième passage à travers le modulateur compense exactement le premier alors les ions se retrouvent sur la trajectoire nominale à l'issue du dernier demi-tour et passent à travers une fente de 0,4 mm avant d'être détectés dans la ligne de sortie du spectromètre. Comme le mouvement est isochrone, c'est-à-dire que la fréquence cyclotron $f_c = qB/2\pi m$ est indépendante de l'énergie cinétique de l'ion ou du diamètre de sa trajectoire, la transmission de l'ion à travers le système peut être obtenu en ajustant la fréquence de modulation. On a alors une condition de résonance entre la fréquence cyclotron f_c des ions dans le champ magnétique et la fréquence f_{RF} de l'excitation :

$$f_{RF} = (n + \frac{1}{2}) \cdot f_c \tag{1.5}$$

où n est un entier représentant le rang harmonique de la radiofréquence. Lorsque l'on fait varier f_{RF} on obtient un spectre de fréquence composé de pics équidistants séparés de f_c comme le montre la figure 1.5. Cela permet de déterminer la fréquence cyclotron des ions via la détermination des maxima de transmission. Pour les mesures de haute précision ($\leq 10^{-6}$) la précision de la détermination de la valeur du champ magnétique B est toutefois

insuffisante et il est alors nécessaire d'éliminer ce facteur en mesurant un rapport de masses. Pour cela on effectue une comparaison des fréquences cyclotron d'un ion de masse inconnue avec celle d'un ion de référence produit par une source propre à MISTRAL. Les sources d'ions utilisées produisent essentiellement des ions monochargés et on peut alors écrire la relation :

$$m_a \cdot f_{ca} = m_b \cdot f_{cb} \tag{1.6}$$

Le pouvoir de résolution en masse de l'appareil est donné par :

$$R = \frac{m}{\Delta m} = 2\,\pi\,n\,\frac{D_m}{w} \tag{1.7}$$

où n est le rang harmonique, w la largeur de la fente de sortie du spectromètre et D_m l'amplitude de modulation du diamètre de la trajectoire directement liée à l'amplitude du signal appliqué sur le modulateur. Il apparaît que cette résolution est indépendante de la masse de l'ion (contrairement aux pièges de Penning) et, pour une géométrie donnée, est directement proportionnelle au rang harmonique et à l'amplitude de l'excitation radiofréquence.

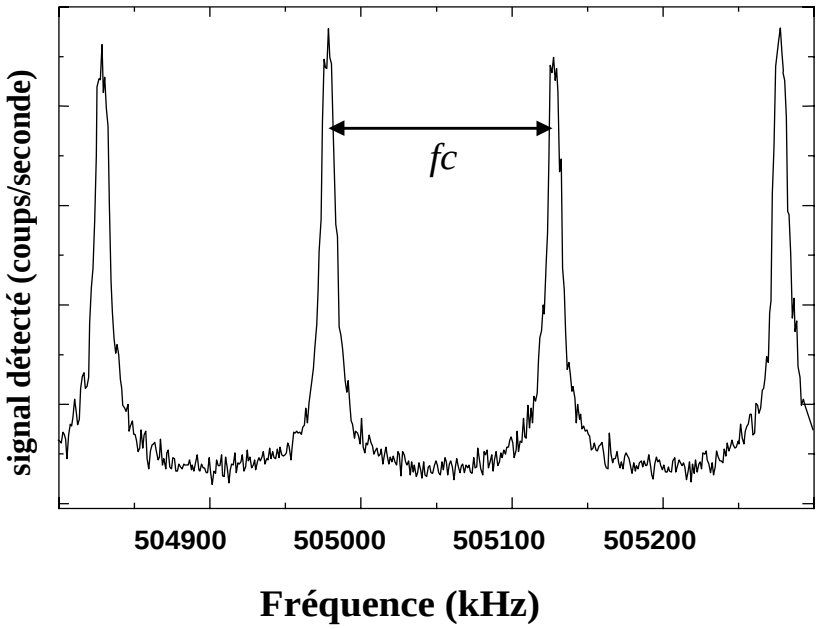

FIG. 1.5: *Représentation du nombre de coups enregistrés dans la ligne de sortie du spectromètre en fonction de la fréquence de modulation. Chaque pic représente une résonnance à un rang harmonique différent. L'intervalle entre deux pics est égal à la fréquence cyclotron* f_c.

1.5.2 Bénéfice d'un système de refroidissement

Le premier objectif de ce travail de thèse a été de participer à la mise au point du système de refroidissement de faisceau de MISTRAL. Le but de cette section est de discuter des raisons qui ont conduit à la naissance de ce projet puis d'expliquer en quoi le refroidissement préalable du faisceau ISOLDE peut augmenter les performances du spectromètre.

1.5.2.a Les défauts d'homogénéité du champ magnétique

Ce point découle de la nécessité, déjà discutée plus haut, d'introduire alternativement les ions à mesurer et un faisceau d'ions de référence. Techniquement cela impose de disposer d'une source d'ions propre à MISTRAL d'où sont produits les ions de masse connue. Les trajectoires de ces deux faisceaux doivent se superposer avant l'entrée dans le spectromètre.

Cependant les enveloppes de ces deux trajectoires ne se superposent pas parfaitement et les deux types d'ions ne suivent pas rigoureusement le même chemin dans le champ magnétique. Les défauts d'homogénéité de ce champ magnétique conduisent à ce que les intégrales du champ percu par les deux types d'ions le long du tour séparant les deux modulations ne soient pas identiques. Le rapport mesuré entre les fréquences cyclotron n'est alors plus égal au rapport des masses (les fréquences centrales des pics de résonnance montrés dans la figure 1.5 subissent un décalage). Ce décalage est très difficile à calibrer et à corriger. Lors de la prise de mesures d'avril 1999, concernant le ^{32}Mg, la valeur de cette correction était d'environ $50 \cdot 10^{-7}$ et son erreur estimée à $7 \cdot 10^{-7}$. Ceci est à comparer avec l'erreur totale de cette mesure de $20 \cdot 10^{-7}$.

Une série de mesures des gradients axiaux (verticaux) et radiaux (horizontaux) du champ magnétique a été faite en 1994 pour évaluer l'intérêt de l'installation de nappes de courant destinées à réduire ces gradients. Les résultats de ces mesures effectuées avec une sonde à effet Hall sont résumés dans le tableau suivant :

	$\Delta B/B$	
Champ magnétique	axial cm^{-1}	radial cm^{-1}
1500 G	$3 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-5}$
8000 G	$-25 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-5}$

Le système de refroidissement sera positionné en aval de la source d'ions de référence (voir la figure 1.7). Les deux faisceaux seront injectés alternativement dans le quadrupole. L'action conjuguée du gaz et de la radiofréquence sur les particules chargées va complètement redéfinir les positions et les énergies dans chaque direction du mouvement. On peut considérer que cette ré-initialisation des trajectoires est relativement indépendante des caractéristiques des différents faisceaux en amont du sytème de refroidissement. Ce dispositif devrait alors se comporter comme une nouvelle source d'ions de caractéristiques constantes. La meilleure superposition des trajectoires attendue devrait permettre de limiter le décalage des pics de résonances observés.

1.5.2.b La transmission

De façon à limiter les erreurs systématiques dûes aux inhomogénéités du champ magnétique il est nécessaire de contraindre la trajectoire des ions de manière à limiter les écarts de trajectoires. Par ailleurs on a vu (équation 1.7) que la résolution de l'appareil est inversement proportionnelle à la taille des fentes ce qui implique de limiter également la dimension des fentes du spectromètre. En pratique cela a conduit à installer tout au long de la trajectoire des fentes de 0,4 mm de large (sens horizontal) et 5 mm de haut (sens vertical). Il en résulte la résolution nominale d'environ 10^5 du spectromètre.

Cette géométrie limite fortement l'acceptance du spectromètre dans les deux directions transversales du mouvement. On peut quantifier ces contraintes sur les ions et calculer ainsi l'acceptance du spectromètre. Celle-ci définit les valeurs maximales de l'extension spatiale et de l'ouverture angulaire du faisceau dans chaque dimension du mouvement.

Verticalement : le champ magnétique n'agit pas sur le faisceau dans ce plan. Cependant les éléments optiques utilisés pour l'injection des ions dans le spectromètre sont réglés de manière à obtenir une focalisation verticale du faisceau au milieu des 2 tours effectués dans l'appareil. Cela impose une limite angulaire de $\pm 0,8$ mrad. D'autre part l'acceptance est ainsi limitée par la hauteur des fentes $\pm 2,5$ mm.

Horizontalement : dans ce plan le faisceau est focalisé en angle tous les demi-tours. L'acceptance est alors limitée par la largeur des fentes $\pm 0,2$ mm. D'un point de vue angulaire l'acceptance est limitée par la géométrie de l'injecteur à ± 10 mrad.

L'acceptance est représentée dans les deux plans dans la figure 1.6. La valeur de cette acceptance est, pour pouvoir estimer la transmission, à comparer avec celle de l'émittance du faisceau. Cette valeur de l'émittance est caractéristique du type de source d'ions utilisée. Dans le cas d'ISOLDE les éléments issus de la cible peuvent être ionisés en employant deux techniques : les sources à ionisation de surface ou les sources à plasma. Une campagne de mesures a permis de fixer les valeurs des émittances caractéristiques de chacune de ces sources qui sont résumées dans le tableau suivant :

Source	Energie	Emittance à 95%
Ionisation de surface	$60\,keV$	$32\,\pi \cdot mm \cdot mrad$
Plasma	$60\,keV$	$22\,\pi \cdot mm \cdot mrad$

La transmission maximale que l'on peut atteindre est donc fonction des valeurs relatives de l'acceptance de l'appareil et de l'émittance du faisceau mais aussi de la façon dont les deux zones qui les définissent se superposent. Il intervient également la dispersion en énergie du faisceau incident qui est limitée par la taille du modulateur au premier demi-tour. Dans le cas d'un réglage du faisceau idéal la transmission théorique est donnée par le rapport de l'acceptance sur l'émittance. Dans la pratique les réglages de la ligne d'injection de MISTRAL permettent d'atteindre cette valeur maximale prédite qui est de l'ordre de 1 %. L'enjeu du système de refroidissement est d'augmenter cette valeur nominale.

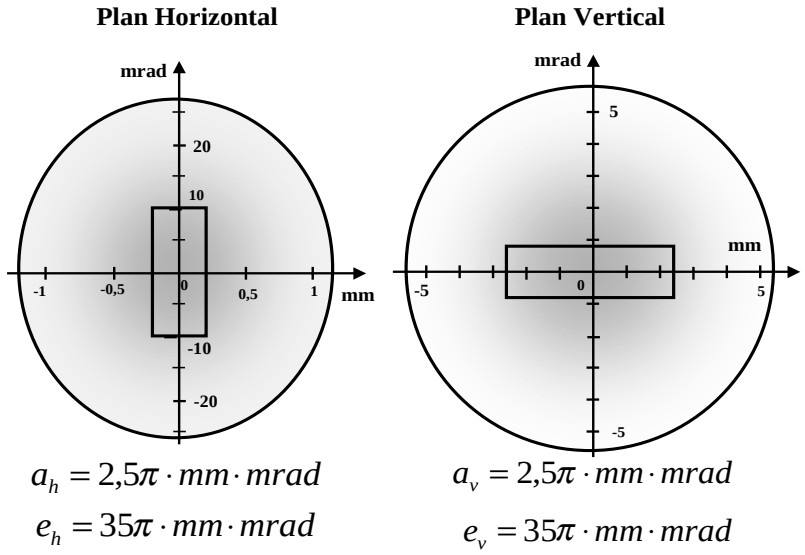

FIG. 1.6: *Représentation des acceptances du spectromètre et des émittances du faisceau ISOLDE dans les directions transversales du mouvement. Les valeurs a_h, e_h, a_v, e_v représentent respectivement les acceptances et les émittances dans les plans verticaux et horizontaux.*

Dès l'origine du projet, l'élaboration de ce système de refroidissement a été décomposée en plusieurs étapes :

1. Mise au point d'un prototype à basse énergie. Le mécanisme d'interaction ions-gaz après introduction dans le quadrupole est indépendant de l'énergie initiale du faisceau et son étude peut alors être découplée de celle de la section décélératrice. Pour cette étape on utilise un banc d'essai à basse énergie ($\leq$ 10 keV) monté à cet effet dans le laboratoire d'Orsay.
2. Tests à pleine énergie. Une fois que la géométrie et les réglages du quadrupole lui-même sont spécifiés cette étape consiste principalement à tester la résistance aux claquages des sections isolantes entourant le RFQ.
3. Installation auprès du spectromètre MISTRAL

Le premier point a constitué une partie de mon travail de thèse. Les différentes phases de simulation, construction et prises de mesures avec la version finale du prototype seront décrites au cours des chapitres 4, 5 et 6.

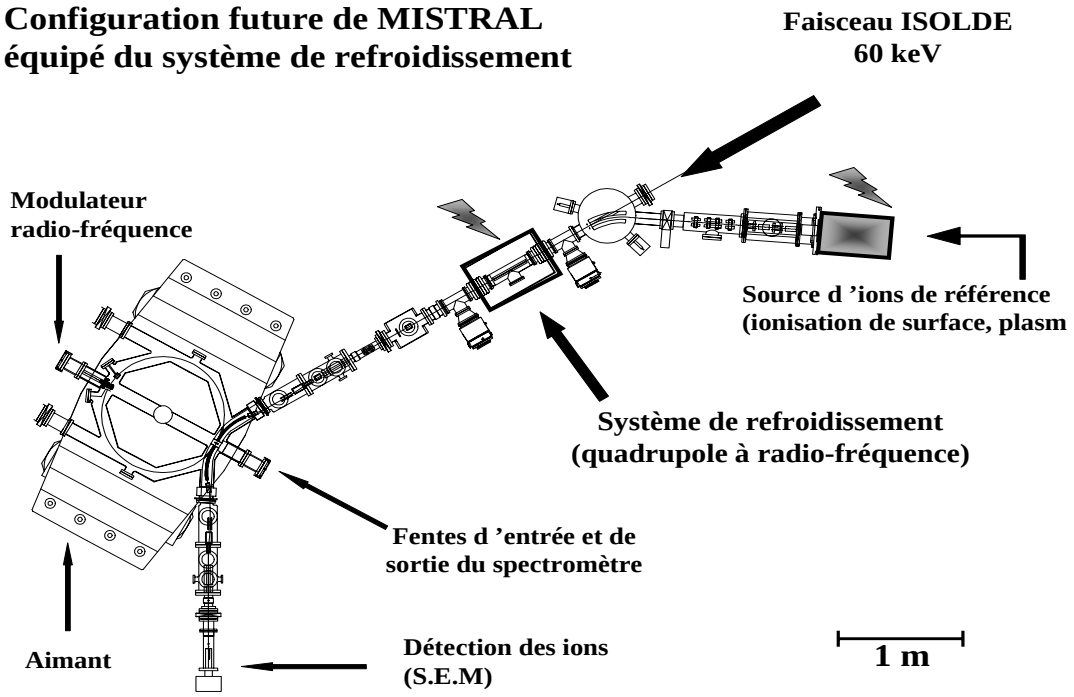

FIG. 1.7: *Emplacement prévu de l'installation du système de refroidissement pour l'expérience MISTRAL. Le refroidissement est opéré sur le faisceau ISOLDE et sur le faisceau d'ions de référence.*

1.6 L'expérience ISOLTRAP

1.6.1 Principe de fonctionnement

Le fonctionnement de cette expérience est décrit en détail dans le chapitre 7. Dans cette partie nous aborderons simplement les raisons qui ont motivé l'installation du quadrupole linéaire à radiofréquence en 1998. Le principe de la mesure de masse dans l'expérience ISOLTRAP réside, comme on l'a dit plus haut, dans la détermination de la fréquence cyclotron $f_c = qB/2\pi m$ d'ions accumulés dans un piège de Penning. Cette opération n'est toutefois que la dernière étape d'un processus de mesure que l'on peut diviser en trois parties (voir figure 1.8) :

La collecte du faisceau ISOLDE : Contrairement à MISTRAL qui fonctionne avec le faisceau quasi-continu d'ISOLDE, cette expérience opère en mode pulsé. Il est alors nécessaire de collecter préalablement les ions de 60 keV pour les ré-émettre sous forme de paquets à plus basse énergie ($\sim 3\ keV$) pour la suite de la mesure.

Le nettoyage et le refroidissement de la collection d'ions : Le faisceau issu de la source d'ions peut être pollué par des isobares que la résolution limitée du séparateur d'ISOLDE n'a pas permis d'éliminer. De plus le piège de mesure lui-même requiert un faisceau purifié pour éviter les erreurs systématiques qui proviennent de l'interaction Coulombienne entre des ions de différentes masses. Cette partie constituée par un piège de Penning est alors utilisée pour nettoyer le paquet d'ions c'est-à-dire opérer une sélection en masse. Le principe est de rendre instable le mouvement des ions indésirables. Elle utilise pour cela les propriétés particulières de l'action d'un gaz tampon sur le mouvement d'ions dans un piège de Penning. La résolution atteinte par ce piège est d'environ 10^5. L'action du gaz est aussi de refroidir le mouvement des ions gardés dans le piège avant de les transférer dans la dernière partie de l'expérience.

Le piège de mesure : Elle consiste également en un piège de Penning de précision dans lequelle se fait la mesure elle-même. Basiquement on détermine la fréquence cyclotron en excitant les ions piégés par une tension radiofréquence azimutale. L'énergie radiale qui est transférée à l'ion durant cette excitation est détectée, après éjection du piège, par une mesure de temps de vol. En effet le passage de l'ion dans le gradient du champ magnétique a transformé ce gain d'énergie radiale en augmentation de la vitesse axiale.

La particularité de l'utilisation de pièges de Penning pour la mesure de masses est que la résolution en masse est déterminée par la durée de l'application de l'excitation RF. On peut exprimer cette résolution R par la formule :

$$R = \frac{m}{\Delta m} = \frac{f_c}{\Delta f_{FWMH}} \simeq f_c.T_{RF} \tag{1.8}$$

où T_{RF} est la durée de l'excitation et Δf_{FWMH} la largeur à mi-hauteur du pic en fréquence obtenu. Une résolution importante est apportée par l'utilisation d'un aimant supra-conducteur ($6\,T$) qui permet d'avoir une fréquence cyclotron f_c élevée. D'autre part le choix d'une durée d'excitation importante permet d'atteindre des résolutions élevées. Par exemple une excitation d'une seconde permet d'atteindre une résolution en masse de 10^6. Une résolution $R = 8 \cdot 10^6$ a été atteinte en période de tests sur du ^{133}Cs en utilisant une période d'excitation $T_{RF} = 12s$. L'étude des énergies de liaison nucléaires nécessite une précision d'environ 10^{-7} ce qui est généralement possible avec une résolution plus modeste $R \leq 10^6$. Cependant il est parfois nécessaire d'atteindre des valeurs plus élevées lorsque le faisceau d'ions contient des isomères de longue durée de vie (notamment dans l'étude de la chaîne de Hg effectuée dans ce travail de thèse). Cette séparation isomérique a déjà été effectuée dans le cas du ^{141}Sm ($\Delta E = 175\,keV$) et du ^{185}Hg ($\Delta E = 118\,keV$).

La première partie de l'expérience qui consiste à recueillir le faisceau continu d'ISOLDE pour former des "paquets" de basse énergie a évolué plusieurs fois depuis l'installation du spectromètre en 1985. Anciennement les ions de 60 keV étaient implantés dans une feuille

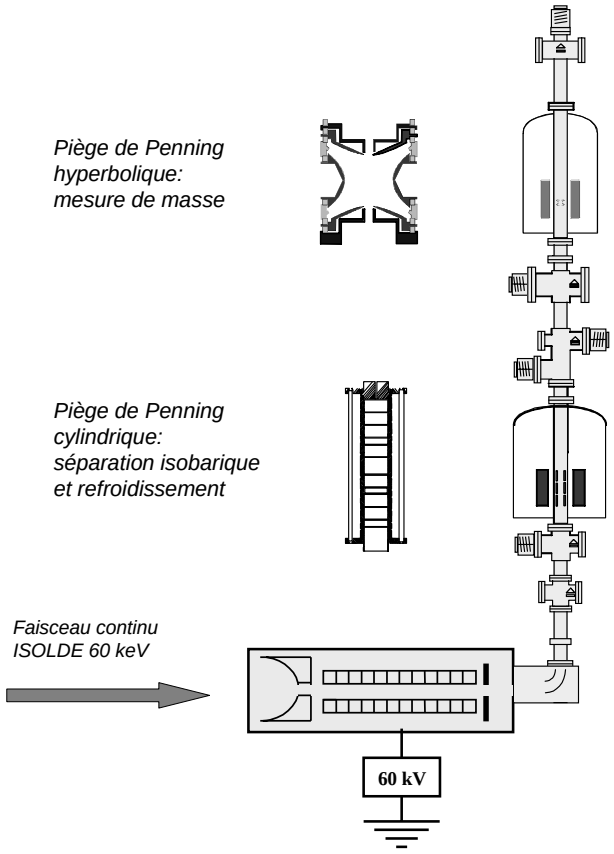

FIG. 1.8: *Configuration actuelle de l'expérience ISOLTRAP.*

de rhénium située dans le premier piège de Penning. La feuille était ensuite tournée de 180 degrés par l'action d'un moteur et chauffée pour extraire et ioniser les espèces implantées directement dans le piège. Ce dispositif avait l'inconvénient de n'être applicable que pour les alcalins, qui diffusent et s'ionisent plus facilement, et restreignait drastiquement le champ d'investigation du spectromètre.

Pour étendre les applications d'ISOLTRAP à des éléments impossibles à obtenir par ionisation de surface, la version suivante, développée à l'université de McGill [8], consistait en un piège de Paul à trois dimensions (voir section 2.3). A cause de la profondeur limitée du puits de potentiel, créé à l'intérieur de ce piège par l'application d'un voltage radiofréquence (voir chapitre 2), les ions du faisceau d'ISOLDE devaient être décélérés avant leur introduction. Cette décélération était obtenue électrostatiquement avant l'entrée dans le piège où les ions subissaient une perte d'énergie supplémentaire par interaction avec un gaz

d'hélium. Le faisceau piégé et refroidi était alors éjecté sous forme de paquets à une énergie d'environ 3 keV vers le premier piège de Penning. Le problème de la trop grande sélectivité était alors résolu mais la faible acceptance de ce système relativement au faisceau ISOLDE rendait difficile l'injection de ce faisceau dans le piège et ne permettait pas une transmission acceptable. Typiquement elle était de 10^{-4} en utilisation courante. Si cette configuration a tout de même permis de faire un certain nombre de mesures (l'exploration des noyaux de mercure en 1997 voir la thèse de Stefan Shwarz [5]), elle rendait difficile l'exploration des nucléides les plus éloignés de la stabilité, moins produits et de plus courte durée de vie.

1.6.2 Bénéfice d'un nouveau système de collection

Le but de cette nouvelle installation est donc de remplacer ce piège de Paul à 3 dimensions par un dispositif de plus grande acceptance capable de collecter le faisceau à $60keV$ d'ISOLDE avec une efficacité satisfaisante et de le convertir en paquets d'ions de faible émittance. Ce dispositif consiste en un quadrupole à radiofréquence linéaire rempli de gaz. Le principe détaillé ainsi que les performances de ce dispositif seront traités dans le chapitre 7.

1.7 Comparaison des deux expériences

ISOLTRAP et MISTRAL représentent deux approches différentes de la mesure de haute précision de la masse des noyaux exotiques adaptées à la technique de production de faisceau ISOL. Le travail de cartographie de la masse des noyaux entrepris par ces deux expériences a toutefois tendance à se répartir en fonction des qualités et des défauts de chacune des approches.

En ce qui concerne ISOLTRAP ses principaux avantages vis-à-vis de MISTRAL sont sa résolution et sa précision élevées. En revanche, comme on l'a vu plus haut, les ions à analyser doivent être stoppés à trois reprises pour être pulsés, refroidis et excités. En particulier la dernière étape peut nécessiter un temps de stockage jusqu'à la seconde qui est pénalisant pour les noyaux de plus courte durée de vie. La meilleure résolution de cette expérience lui permet d'entreprendre dans de meilleures conditions l'étude de noyaux lourds comportant des états isomériques avérés ou supposés. Du point de vue des durées de vie, s'il était admis qu'ISOLTRAP aurait des difficultés à descendre en dessous de la seconde, les récentes améliorations de sa sensibilité, apportées par le nouveau quadrupole à radiofréquence, ont permis d'atteindre des valeurs sensiblement moindres. En témoignent les mesures de l'^{33}Ar ($T_{1/2} = 174\,ms$) [79] ou plus récemment du ^{74}Rb ($T_{1/2} = 65\,ms$) [80].

Avec des performances moindres en matière de précision, MISTRAL est dédié à l'exploration des noyaux de très courte durée de vie. Contrairement à ISOLTRAP il ne souffre en effet d'aucune limite intrinséque au niveau temporel. Il a pu notamment atteindre le ^{28}Na de durée de vie $T_{1/2} = 30\,ms$ lors de la prise de mesures de novembre 1998. Cependant sa

sensibilité reste faible vis-à-vis des taux de productions offerts par ISOLDE pour ce type de noyaux. Au même titre qu'ISOLTRAP le projet de refroidissement de faisceau, qui fait l'objet de ce travail de thèse, s'inscrit alors dans une logique d'évolution de l'expérience visant à améliorer sa sensibilité.

En conclusion on peut dire que ces deux expériences offrent une bonne complémentarité pour l'étude des noyaux exotiques, d'une part le programme de mesure de chacune d'entre elles a vocation à être différent mais aussi car il est nécessaire que les masses des isotopes particulièrement importants soient mesurées en utilisant deux méthodes différentes pour être à l'abri des erreurs systématiques inconnues.

Chapitre 2

Les pièges électromagnétiques

2.1 Introduction

L'étude des propriétés caractéristiques d'un système physique quelconque ne peut être faite en détails que si l'on parvient à ramener ce système à sa composante fondamentale et à s'affranchir des perturbations extérieures. Cela nécessite parfois de ramener notre système sous observation au repos si il a une vitesse de déplacement et à l'isoler de son environnement.

Avec un piège à ions il est possible d'isoler dans l'espace une particule chargée avec une énergie faible pendant une longue période. Dans cette situation il est possible de mesurer précisément certaines caractéristiques fondamentales du système telles que la masse atomique ou la période de décroissance, d'observer des réponses aux excitations ou de mesurer des sections efficaces de réactions. Dans le domaine de la physique des particules, l'étude précise de la cinématique de la réaction de décroissance β de l'élément $^6He^+$ à l'intérieur d'un piège de Paul transparent (Laboratoire de Physique Corpusculaire de Caen) permet d'obtenir des renseignements sur la nature de l'interaction faible et procure alors un test du modèle standard. En physique atomique la possibilité d'isoler et de localiser dans un domaine restreint de l'espace un petit nombre de particules, voir un atome unique, est un progrès important pour des mesures de précision en comparaison des méthodes plus classiques utilisant des faisceaux de particules où l'on doit tenir compte de l'énergie cinétique, parfois élevée, des atomes et de leurs interactions. En effet les temps de confinement prolongés qu'ils procurent permettent de longs temps d'interactions entre particules et champs. Même si le piègeage de particules neutres est désormais possible grâce aux récents développements de sources lasers très stables, cette technique reste relativement difficile à mettre en oeuvre et ne permet pas un stockage de longue durée. Au contraire les différentes techniques de piègeage électromagnétique, plus accessibles expérimentalement, permettent de piéger presque indéfiniment des particules chargées.

Dans la pratique, pour confiner des ions, il est nécessaire de créer une force de rappel. Par exemple on peut trouver dans la nature des exemples de "pièges" : les planétes du système solaire confinées dans leur orbites par l'action de la gravitation ou les électrons

du cortége atomique par l'interaction électromagnétique. En laboratoire on utilise cette interaction électromagnétique pour le confinement des ions, principalement à travers deux techniques : le piège de Paul et le piège de Penning. On peut également citer le piège de Kingdon, de conception plus simple, où la particule chargée est confinée par l'action d'un champ électrique crée entre un cylindre et un fil disposé en son centre. La possibilité d'utiliser un champ électromagnétique quadrupolaire oscillant pour le confinement de particules chargées a été pour la première fois évoquée en 1953 par Wolfgang Paul [10] en se basant sur des avancées techniques dans le domaine des accélerateurs à haute énergie. L'idée du piège de Penning, qui combine un champ quadrupolaire électrostatique avec un champ magnétique uniforme, a quant à elle été proposée par Hans Dehmelt et baptisée ainsi en hommage à Francis Michel Penning qui, en combinant un champ magnétique avec une décharge électrique, a réalisé la jauge qui porte son nom.

Si de tels dispositifs ont initialement été utilisés au bénéfice de la physique atomique, la possibilité d'un stockage sélectif en fonction du rapport masse sur charge des espèces piégées a étendu leur utilisation jusqu'à la spectrométrie de masse et la chimie. Certains pièges sont devenus d'utilisation routinière dans l'industrie pour la détection de gaz résiduels. La reconnaissance de l'apport de ce domaine à la science a été l'attribution en 1989 du prix Nobel de physique à Wolfgang Paul et Hans Dehmelt pour leurs travaux sur le développement des pièges à ions.

2.2 Principe de piègeage des particules chargées

Piéger des particules chargées, c'est les contraindre à se déplacer dans un domaine restreint de l'espace autour d'un point origine que l'on peut définir comme étant le centre du piège. Pour cela il faut leur appliquer une force de rappel qui dans le cas des ions doit être électromagnétique. Créer une trappe consiste donc à générer un champ de force, ou en d'autres termes un gradient de potentiel, capable de maintenir les particules à l'intérieur du piège.

Dans le cas le plus académique on arrive à ce résultat en utilisant un champ électrique dont l'intensité croit linéairement avec la distance par rapport au centre du piège. Cela revient à générer un potentiel quadratique à trois dimensions qui s'écrit :

$$\phi(x, y, z) = A\left(\alpha x^2 + \beta y^2 + \gamma z^2\right) \tag{2.1}$$

Le champ quadrupolaire est le moyen le plus simple d'obtenir le confinement de particules chargées. Il offre de plus l'avantage d'être relativement simple à produire mécaniquement et procure la force de rappel la plus forte pour de petites distances par rapport au centre. Si l'on se place dans l'approximation quelque peu paradoxale où il n'y a pas de charges dans le champ alors le potentiel doit satisfaire l'équation de Laplace qui s'exprime (hormis le cas trivial où $A = 0$) par :

$$\nabla^2\phi(x, y, z) = 0 \Longrightarrow \alpha + \beta + \gamma = 0 \tag{2.2}$$

Cette condition peut être remplie de deux manières :

- En générant un potentiel à deux dimensions :

$$\alpha = -\beta \; ; \; \gamma = 0 \Longrightarrow \phi_{2D}\left(x, y\right) = A\left(x^2 - y^2\right) \tag{2.3}$$

- En générant un potentiel à trois dimensions :

$$\alpha = \beta = 1 \; ; \; \gamma = -2 \Longrightarrow \phi_{3D}\left(x, y, z\right) = A\left(x^2 + y^2 - 2z^2\right) \tag{2.4}$$

On peut remarquer que quel que soit la forme du potentiel quadratique choisie pour remplir la condition de Laplace, celui-ci ne permet pas le piègeage de particules par sa simple application. Par exemple dans le cas à deux dimensions la forme du potentiel, communément assimilée à une selle de cheval, il est visible que si le champ est confinant dans une direction il ne l'est pas dans l'autre. Par analogie, à trois dimensions, on peut généraliser en disant qu'aucun champ quadrupolaire statique ne peut être confinant dans toutes les directions simultanément.

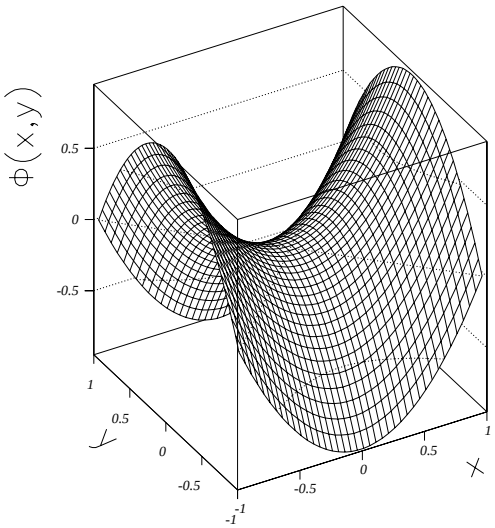

FIG. 2.1: *Représentation du potentiel généré par les électrodes dans le cas du piège à deux dimensions.*

On peut cependant contourner cet état de fait dans deux cas de figure :

- On fait osciller le potentiel électrique à une fréquence convenablement choisie. On constitue ainsi un piège de Paul.
- On superpose au champ électrique statique un champ magnétique homogène. On a alors un piège de Penning.

2.3 Le piège de Paul

Nous allons dans un premier temps discuter des équations du mouvement dans le cas du piège tri-dimensionnel, qui est le cas le plus général du piège de Paul avant d'en arriver au cas du champ quadrupolaire à deux dimensions qui nous intéresse plus particulièrement. Les équipotentielles décrites par l'équation 2.4 forment une courbe hyperbolique à trois dimensions. Idéalement on peut reproduire cette configuration de champ par l'utilisation d'électrodes dont la forme suit ces équipotentielles. Dans notre cas il s'agira d'électrodes de symétrie cylindrique : une première électrode centrale en forme d'anneau de rayon interne r_0 et de deux chapeaux à une distance z_0 du centre du piège (voir figure 2.2). Mathématiquement la géométrie de cette trappe est décrite par l'expression suivante :

$$\frac{r^2}{r_0^2} - \frac{z^2}{z_0^2} = \pm 1 \tag{2.5}$$

où les dimensions sont reliées par $2z_0^2 = r_0^2$. Les signes + et − correspondent respectivement à l'électrode centrale et aux chapeaux.

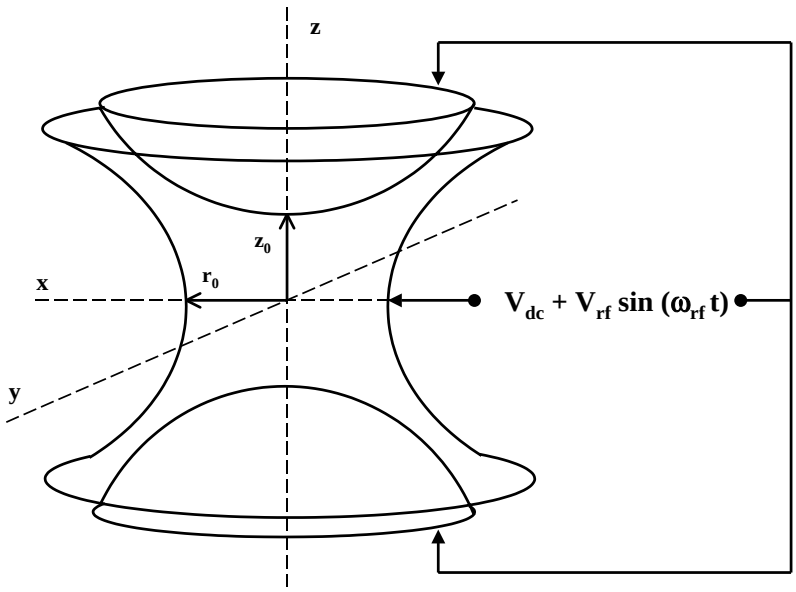

FIG. 2.2: *Configuration mécanique du piège de Paul et son alimentation électrique.*

Le potentiel à l'intérieur du piège est alors décrit compte tenu des conditions aux limites par :

$$\phi_{3D}(x, y, z, t) = \frac{\phi_0(t)}{r_0^2 + 2z_0^2} \left(x^2 + y^2 - 2z^2\right) \tag{2.6}$$

où ϕ_0 est le potentiel extérieur appliqué sur les électrodes tandis que r_0 et z_0 sont les dimensions caractéristiques de la trappe. Cette configuration idéale est cependant inaccessible dans la pratique pour des raisons de difficulté de fabrication et plus simplement par l'inévitable troncature des électrodes ou les ouvertures nécessaires au passage des ions. Typiquement le potentiel oscillant appliqué sur les électrodes est de la forme :

$$\phi_0(t) = V_{dc} + V_{rf}\ \cos(\omega_{rf}\ t + \psi) \tag{2.7}$$

Les équations du mouvement s'écrivent alors pour $u = x, y, z$ et e la charge de l'ion :

$$\frac{d^2u}{dt^2} = -\frac{e}{m}\,\frac{d\phi(x,y,z)}{du} \tag{2.8}$$

qui deviennent les équations dites de "Mathieu" :

$$\frac{d^2u}{d\tau^2} + (a_u - 2q_u \cos 2\tau)\, u = 0 \tag{2.9}$$

avec :

$$\tau = \frac{\omega_{rf}\, t}{2} \tag{2.10}$$

$$a_{x,y} = -\frac{a_z}{2} = \frac{4\, e\, V_{dc}}{m\, r_0^2\, \omega_{rf}^2} \tag{2.11}$$

$$q_{x,y} = -\frac{q_z}{2} = \frac{2\, e\, V_{rf}}{m\, r_0^2\, \omega_{rf}^2} \tag{2.12}$$

Les termes a_u et q_u sont appelés les paramètres de Mathieu. Ils sont sans dimensions et dépendent de la géometrie du piège, des paramètres de confinement ainsi que de la masse de l'ion considéré. Ils caractérisent entre autres choses la stabilité du mouvement dans le piège. Une solution stable de l'équation de Mathieu sera caractérisée par une amplitude de mouvement finie dans toutes les directions. A l'inverse, un ion décrivant une trajectoire instable verra son amplitude croître exponentiellement avec le temps dans au moins une direction du mouvement et sera perdu par choc sur une électrode. Les propriétés des équations de Mathieu sont bien établies depuis longtemps dans la littérature et nous ne discuterons ici que de la nature des solutions. La forme générale de ces solutions s'écrit :

$$u(\tau) = M \cdot e^{\mu\tau} \cdot \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty} c_{2k}\, e^{2ik\tau} + N \cdot e^{-\mu\tau} \cdot \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty} c_{2k}\, e^{-2ik\tau} \tag{2.13}$$

où N et M sont des constantes dépendantes des conditions initiales de l'ion (vitesse et position) tandis que c_{2k} et μ sont des constantes sans dimensions dépendantes des coefficients de Mathieu a_u et q_u. Il apparait alors que la nature du mouvement des ions dans le piège ne va pas dépendre de leurs conditions initiales mais uniquement des coefficients de Mathieu. Toutes les particules de même point de fonctionnement (a_u, q_u) auront une périodicité de mouvement identique tandis que les conditions initiales des ions influeront uniquement sur l'amplitude de ce mouvement.

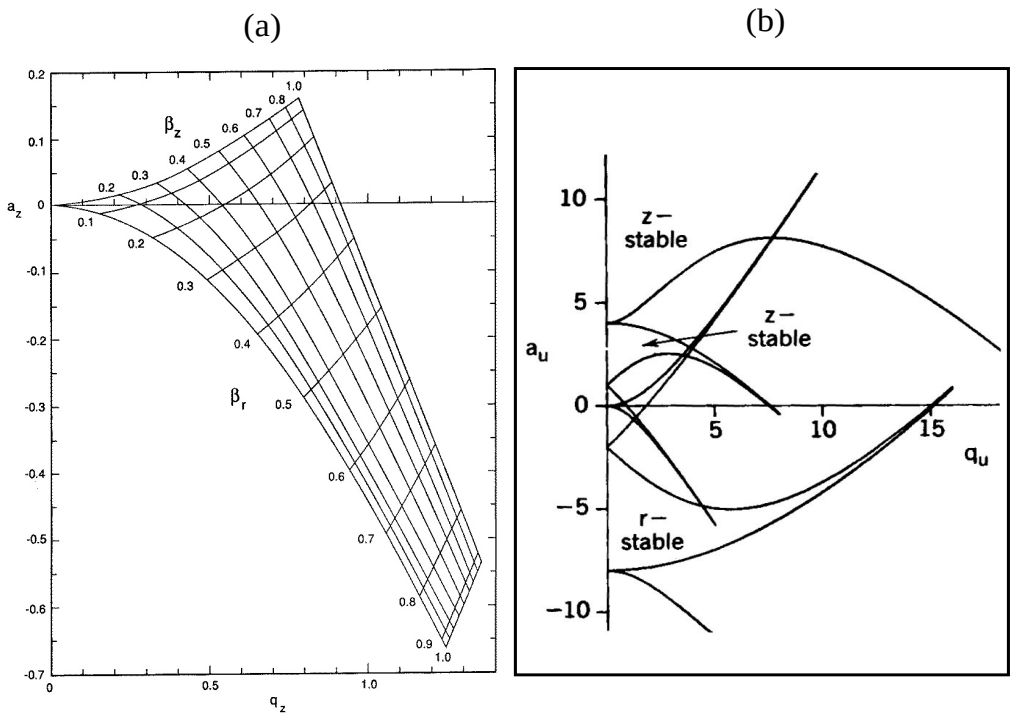

FIG. 2.3: *En (b) : diagramme de stabilité pour un piège de Paul dans les directions axiale z et radiale $r = \sqrt{x^2 + y^2}$. Les régions de stabilité de la trajectoire correspondent aux zones de recouvrement entre les régions de stabilité en z et en r. En (a) : Vue de la première zone de stabilité en fonction des paramètres β.*

L'équation 2.13 a des solutions de deux types selon la nature du terme μ. Les solutions stables sont celles ou u restera fini quand $\tau \rightarrow \infty$ tandis que les solutions instables le veront augmenter sans limites avec τ. Il y a quatre possibilités pour μ :

1. μ est réel et différent de zéro : L'amplitude du mouvement croît alors sans limite avec le temps.
2. μ est un nombre complexe : les solutions sont alors instables.
3. $\mu = i\,\beta$, avec β réel non entier, est un nombre imaginaire pur : ce sont les solutions périodiques stables.
4. $\mu = i\,m$ avec m entier réel : dans ce cas les solutions sont périodiques mais instables. Ces solutions forment les limites entre solutions stables et instables dans l'espace $(a_u,\, q_u)$ comme le montre la figure 2.3.

Les équations du mouvement dans un piège de Paul conduisent donc à des solutions stables ou instables en fonction des paramètres de fonctionnement. Le contrôle de ces paramètres peut alors permettre de confiner un ion de rapport m/e donné, les autres ions seront intrinséquement instables ou auront des amplitudes de mouvement plus grandes que le

piège qui les conduisent à être perdus par collision avec les électrodes. Ces derniers peuvent par exemple avoir été introduits ou formés très près des électrodes ou avoir des vitesses initiales trop importantes.

Dans la région stable ($\mu = i\,\beta$) les solutions peuvent s'écrire :

$$u(\tau) = M \cdot \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty} c_{2k}\, e^{i\,(2k+\beta)\,\tau} + N \cdot \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty} c_{2k}\, e^{-i\,(2k+\beta)\,\tau} \tag{2.14}$$

En utilisant l'identité $e^{i\theta} = \cos\theta + i\,\sin\theta$ on obtient :

$$u(\tau) = (M+N) \cdot \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty} c_{2k}\, \cos(2k+\beta)\tau + i\,(M-N) \cdot \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty} c_{2k}\, \sin(2k+\beta)\tau \tag{2.15}$$

Il apparaît alors que les solutions stables sont une superposition d'oscillations de fréquences :

$$\omega_k = (2k+\beta)\,\frac{\omega_{rf}}{2} \quad avec\ k = 0, 1, 2, ..., \infty \tag{2.16}$$

Dans la pratique les coefficients c_{2k} décroissent très rapidement et seuls les termes d'ordre $k = 0, 1, 2$ sont d'importance. La composante de plus basse fréquence du mouvement, $\omega_0 = \beta\frac{\omega_{rf}}{2}$, est appelée le "macro-mouvement". Les conditions de stabilité ainsi que le spectre de fréquences de ces oscillations sont donc déterminés par le terme β correspondant aux paramètres de Mathieu. Ce terme définit alors des zones limitées de stabilité dans l'espace (a_u, q_u). Les limites entre zones stables et instables sont définies par des valeurs de ces paramètres pour lesquelles β est entier (quand on utilise le piège avec le paramètre de Mathieu $a = 0$, tous les ions de $q < 0,908$ sont stables). Pour que le mouvement d'un ion soit stable il faut évidemment considérer les zones de stabilité communes aux directions z et r . Il apparaît alors plusieurs régions d'intérêt pour lesquelles ces zones se superposent. Pour des raisons techniques il est plus facile d'obtenir expérimentalement de faibles valeurs pour les amplitudes du potentiel radiofréquence (comme on le verra au cours de la section 4.1.4). De plus les équations indiquent que les amplitudes du mouvement augmentent avec la valeur de q ce qui peut ne pas être souhaitable notamment pour des raisons d'efficacité de refroidissement (chauffage RF) que nous évoquerons dans le chapitre suivant. Pour ces raisons on travaille essentiellement dans les régions où les paramètres de Mathieu sont les plus faibles. Les allures des trajectoires sont illustrées dans le chapitre 5 pour différentes combinaisons des paramètres de Mathieu. Ces trajectoires sont obtenues à partir de code de simulations dans le cas du piège de Paul à deux dimensions abordé dans la section suivante.

2.3.1 Cas du piège à deux dimensions : Le filtre de masse

On a considéré jusqu'à présent le champ quadrupolaire tri-dimensionnel qui est la forme la plus classique du piège de Paul. En ce qui concerne notre étude où l'on souhaite travailler

avec le faisceau ISOLDE en mode continu, il est beaucoup plus adéquat de travailler avec un piège à deux dimensions. Cette variante, qui est à la base de l'utilisation des pièges de Paul en spectrométrie de masse et qui est connue sous le nom de filtre de masse ou guide d'ions, permet de piéger les ions dans les directions transversales du mouvement sans entraver la propagation du faisceau.

L'équation 2.3 d'un champ quadrupolaire bi-dimensionnel décrit une forme hyperbolique pour chaque courbe équipotentielle. Une telle distribution de potentiel peut théoriquement être obtenue en deux dimensions en utilisant deux paires d'électrodes hyperboliques infinies placées en x et $y = \pm r_0$. L'application d'une différence de potentiel ϕ_0 entre chaque paire opposée d'électrodes nous donne, compte tenu des conditions aux limites, une distribution de la forme :

$$\phi_{2D}\,(x, y) = \frac{\phi_0}{2r_0^2}\,(x^2 - y^2) \tag{2.17}$$

Les nouvelles équations du mouvement en x et y seront obtenues à partir de cette nouvelle expression du potentiel tandis qu'en z on aura maintenant $d^2z/dt^2 = 0$. Compte tenu de la nouvelle expression du potentiel la différence d'un facteur 2 entre les composantes des coéfficients de Mathieu (voir les équations 2.11 et 2.12) disparait dans le cas d'un potentiel quadrupolaire à deux dimensions et on a :

$$a_x = -a_y = \frac{4\,e\,V_{dc}}{m\,r_0^2\,\omega_{rf}^2} \;\; et \;\; q_x = -q_y = \frac{2\,e\,V_{rf}}{m\,r_0^2\,\omega_{rf}^2} \tag{2.18}$$

Les zones de stabilité pour une dimension présentent une symétrie par rapport à l'axe a, une trajectoire stable pour un point de fonctionnement (a, q) sera également stable pour le point $(a, -q)$. Au reste cela correspond juste à un changement de la phase de la radiofréquence. Le diagramme de stabilité dans l'autre direction sera le symétrique du premier par rapport à l'axe q car on a $a_x = -a_y$.

Cette configuration de piège est connue sous le nom de filtre de masse ou spectromètre de masse quadrupolaire. De même que dans le cas à trois dimensions la configuration décrite est idéale. Pour des raisons de facilité de fabrication on utilise dans la grande majorité des applications, des électrodes cylindriques qui introduisent alors des distorsions dans le champ quadrupolaire (voir figure 2.4). On obtient cependant la meilleure approximation si l'on respecte la relation suivante entre le rayon r des électrodes et le rayon interne r_0 du quadrupole ainsi formé :

$$r = 1.148\,r_0 \tag{2.19}$$

Les filtres de masse conventionnels utilisés en spectrométrie de haute résolution opèrent en combinant une alimentation radiofréquence V_{rf} et une différence de potentiel V_{dc}. Par rapport au diagramme de stabilité de la figure 2.3 (a) le fait de fixer un rapport constant entre ces deux paramètres correspond à déplacer le point d'opération du piège le long d'une droite de pente V_{dc}/V_{rf} (ou $a/2q$) dont le recouvrement avec la première zone de stabilité fixe les limites inférieures et supérieures du rapport masse sur charge m/e permettant des

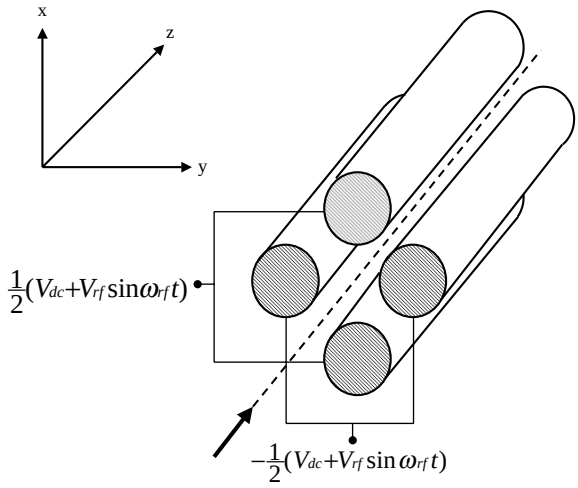

FIG. 2.4: *Configuration des électrodes pour la formation d'un champ quadrupolaire à deux dimensions. On applique un potentiel oscillant opposé sur chaque paire d'électrodes se faisant face. U représente la tension continue tandis que V est l'amplitude de la tension radiofréquence.*

trajectoires stables. L'augmentation de la pente de cette droite permet de se rapprocher du sommet de cette première zone de stabilité et d'accroître ainsi la résolution du piège. L'avantage de cette méthode en spectrométrie de masse est que cette discrimination en masse peut se faire de manière électronique en changeant les paramètres de Mathieu a et q ce qui peut être obtenu simplement en changeant V_{dc}, V_{rf} ou la fréquence du potentiel oscillant. Ceci est à comparer avec les méthodes de séparation plus classiques où il est nécéssaire de changer mécaniquement la dimension des fentes de l'appareil.

Pour d'autres utilisations du guide d'ions il est au contraire préférable de pièger des ions dans un large domaine de rapport m/e. Dans le cas du système de refroidissement MISTRAL le paramètre important n'est pas la résolution, qui sera obtenue par le spectromètre lui-même, mais l'efficacité de la transmission à travers le système. Dans ce cas on travaillera avec $a = 0$ de manière à avoir une "acceptance" maximale en q donc en masse dans la première zone de stabilité.

2.3.2 Le pseudo-potentiel

Major et Dehmelt ont développé une approche consistant à considérer que les deux fréquences les plus basses qui composent le mouvement jouent un rôle majeur et que l'on peut alors considérer ce mouvement comme étant la somme de ces deux oscillations. La composante de plus basse fréquence (k=0) d'amplitude U est le macro-mouvement de fréquence ω_0 à laquelle on superpose la seconde d'amplitude δ (k=1), appelée micro-mouvement qui oscille plus rapidement à une fréquence proche de l'excitation radiofréquence. On approxime donc le mouvement par la somme de ces deux composantes dans une direction u donnée :

$$u(\tau) = \delta(\tau) + U(\tau) \tag{2.20}$$

Si l'on se limite au cas où le paramètre de Mathieu q_u, qui est dépendant de la force du champ d'excitation électrique (voir équation 2.12), est suffisamment petit, alors on a $\delta \ll U$. Si l'on considère de plus que les fréquences de ces deux mouvements sont telles que $d^2\delta/dt^2 \gg d^2U/dt^2$ alors l'introduction du terme 2.20 dans l'équation de Mathieu nous donne :

$$\frac{d^2\delta}{d\tau^2} + [a_u - 2q_u \cos(2\tau)]\, U = 0 \tag{2.21}$$

Supposant maintenant que $a_u \ll q_u$ et que U est constant sur un cycle radiofréquence cette équation peut être intégrée pour donner :

$$\delta(\tau) = -\frac{q_u U}{2} \cos(2\tau) \tag{2.22}$$

Cette équation implique que le déplacement dû au micro-mouvement augmente linéairement avec l'amplitude du macro-mouvement et qu'il soit en opposition de phase avec l'excitation radiofréquence appliquée sur les électrodes. Réintroduit dans l'équation 2.20 cela nous donne :

$$u(\tau) = U - \frac{q_u U}{2} \cos(2\tau) \tag{2.23}$$

L'équation du mouvement moyenné est obtenue en remplaçant ce terme dans l'équation de Mathieu et en calculant sa moyenne sur une période radiofréquence. Dans ce cas on obtient :

$$\frac{d^2U}{dt^2} = -(a_u + \frac{q_u^2}{2})\frac{\omega_{rf}^2}{4}\, U = -\omega_{0,u}^2\, U \tag{2.24}$$

Cela correspond à l'équation d'un mouvement d'oscillation harmonique à la fréquence $\omega_{0,u}$ dans un puits de potentiel de profondeur $\overline{D_u}$ donnée par :

$$\overline{D_u} = \frac{e\, V_{rf}^2}{4\, m\, \omega_{rf}^2\, r_0^2} = \frac{q\, V_{rf}}{8} \tag{2.25}$$

Cette approche nous montre alors que lorsque la micro-oscillation peut être négligée par rapport au macro-mouvement, la trajectoire de l'ion dans le piège peut être considérée comme une oscillation harmonique dans un puits de potentiel parabolique de profondeur $\overline{D_u}$. Cela revient à considérer que l'ion ressent dans cette approximation une pseudo-force résultant d'une moyenne dans le temps de la force réellement créée par le potentiel oscillant appliqué sur les électrodes. Celle-ci est similaire à une force qui serait créée par un puits de potentiel dans toutes les directions (ou seulement les directions transversales dans le cas du filtre de masse), ce qui du reste est interdit par la condition de Laplace. Dans le cas du filtre de masse on peut donc considérer la particule comme étant piégée dans un pseudo-potentiel de la forme :

$$\phi(x,y) = \frac{\overline{D_{x,y}}}{r_0^2}(x^2+y^2) = \frac{\overline{D_{x,y}}}{r_0^2}r^2 \tag{2.26}$$

Le domaine d'application de ce modèle est étendu même jusqu'à des zones où la composante radiofréquence du mouvement n'est plus réellement négligeable. Typiquement ces zones sont fixées par $a_u \approx 0$ et $q_u \leq 0.4$. Cette approche est appelée adiabatique dans le sens où l'ion piégé dans le puits de pseudo-potentiel peut être considéré comme isolé du système extérieur et n'échange pas d'énergie avec lui. Son énergie cinétique est conservée le long d'un cycle radiofréquence. Au contraire si l'on prend en compte le micro mouvement l'ion échange de l'énergie avec le système extérieur par l'intermédiaire du champ électrique, son énergie varie durant un cycle radiofréquence. Il est à noter que dans cette approximation "adiabatique" l'expression β, qui est généralement une fonction récursive des paramètres de Mathieu, est réduite à :

$$\beta_u = \sqrt{a_u + \frac{q_u^2}{2}} \tag{2.27}$$

La figure 2.5 illustre l'hypothèse du pseudo-potentiel en présentant des simulations de trajectoires pour différentes valeurs du paramètre q de Mathieu. Conformément à l'équation 2.20, le mouvement d'un ion dans la trappe peut être considéré, pour des petites valeurs de ce paramètre, comme la superposition d'un mouvement d'oscillation harmonique et d'un micro-mouvement de plus grande fréquence. Les amplitudes de ces 3 trajectoires illustrent également l'évolution de la profondeur du puits de pseudo-potentiel (équation 2.25).

2.3.3 La charge d'espace

Pour certaines expériences il est utile d'isoler un nombre de particules aussi petit que possible dans un piège de Paul. Dans le cas de MISTRAL ou d'ISOLTRAP au contraire il est intéressant d'en avoir un nombre plus important pour augmenter la statistique des mesures. Quand le nombre d'ions confinés augmente les effets du potentiel additionnel causés par la présence de charges à l'intérieur du piège sont à prendre en considération.

Les premiers modèles prenant en compte ces effets se basant sur une distribution spatiale uniforme des charges ont prédit des décalages dans le point de fonctionnement du piège. Cela implique qu'une trajectoire stable caractérisée par un point de fonctionnement proche d'une ligne $\beta = 0\, ou\, 1$ (limite de la zone de stabilité, voir figure 2.3) peut devenir instable ou en d'autres termes que les limites de stabilité déterminées par les lignes $iso - \beta$ se déforment. Ce décalage a même été utilisé pour estimer le nombre d'ions dans le piège. Toutefois une analyse théorique plus poussée et les comparaisons avec certaines données expérimentales tendent à montrer les limites de ce modèle et incitent à considérer une distribution spatiale des charges plus réaliste.

Dans le cas de MISTRAL, on ne piège pas le faisceau dans toutes les directions du mouvement et le temps d'interaction entre les particules dans le piège est alors très court. De plus le faisceau d'ions “exotiques” fourni par ISOLDE est généralement de basse intensité.

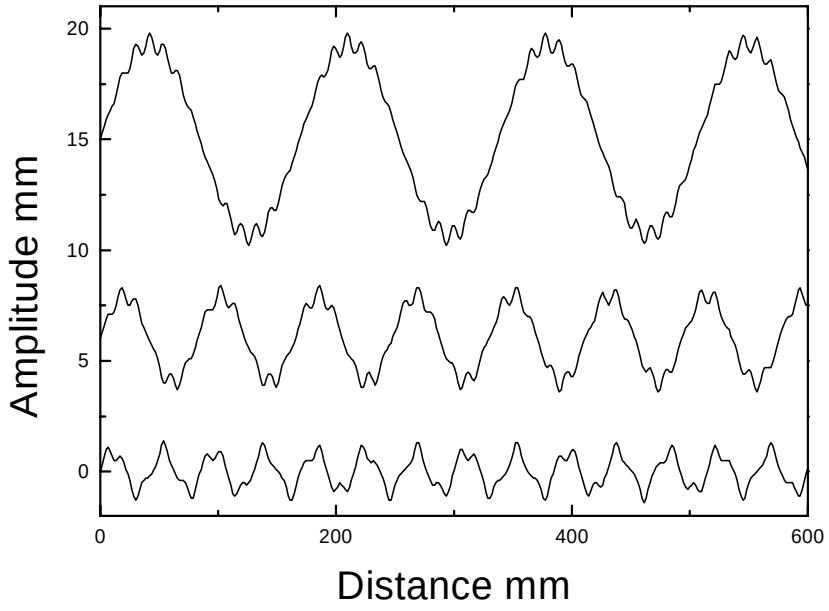

FIG. 2.5: *Représentation de trajectoires simulées d'ions* ^{133}Cs *dans un piège de Paul. La fréquence est* $f = 700\,kHz$ *et le rayon interne du quadrupole est* $r_0 = 7\,mm$. *L'amplitude de l'excitation électrique est, de haut en bas, de* $130\,V$, $260\,V$ *et* $450\,V$ *correspondant respectivement à des paramètres de Mathieu* $q = 0,2$, $q = 0,4$ *et* $q = 0,7$. *La simulation utilisée ici est décrite au cours du chapitre 5.*

La situation du "buncher" d'ISOLTRAP un peu différente à ce sujet sera traitée dans le chapitre 7.

2.3.4 Les imperfections et le champ de fuite

Les principes décrits précédemment pour le filtre de masse ont été établis pour des champs électriques parfaits autant du point de vue de la géométrie des électrodes, de la forme sinusoïdale des signaux que de l'absence de champs de fuite en amont et en aval du quadrupole. Les effets les plus importants de ces imperfections sont causés par la présence de champs de fuites à l'entrée et à la sortie de l'ion.

A l'intérieur du piège lui-même les défauts du champ électrique peuvent avoir une influence sur les trajectoires des ions. Dans ce cas le potentiel dans le filtre de masse ne s'exprime plus simplement par la formule 2.17 mais par une expression plus générale prenant en compte des composantes pondérées du champ d'ordre supérieur à 2. Il en découle que la force de rappel exercée par le champ électrique à l'intérieur du piège ne varie plus de manière linéaire avec la distance et que la condition de Laplace implique

maintenant la présence d'un couplage entre les coordonnées transversales du mouvement. Dans la pratique ce sont les termes d'ordre 3, 4 et 6 qui jouent le plus grand rôle.

Bush et Paul [9] ont montré que cela entraînait des perturbations dans le mouvement des ions pour des valeurs spécifiques du plan (a,q) de telle sorte que des trajectoires normalement stables deviennent instables ou de très grande amplitude. Ces valeurs particulières peuvent être déterminées expérimentalement pour un filtre de masse par des ruptures dans la transmission quand on déplace le point d'opération du quadrupole dans le plan (a,q). Il a alors été montré que ces valeurs se situent le long de lignes de résonances dans le diagramme de stabilité (a,q). La position de chacune de ces lignes étant caractéristique du type de défauts dans le champ. Le phénomène est d'autant plus marqué que les ions subissent plus de cycles radiofréquence à l'intérieur du quadrupole. Expérimentalement ce phénomène a pu être observé pour des ions piégés dans le champ électrique oscillant pendant environ 10^5cycles radiofréquence.

Il est toutefois à noter que les effets de ces imperfections dans les pièges n'auront des incidences importantes que dans le cas où on l'utilise pour des applications de spectrométrie de masse à haute résolution. Le traitement de ces imperfections n'interviendra alors pas au même niveau pour le piège de Penning utilisé par ISOLTRAP pour la mesure de masse (voir chapitre 7) et pour les quadrupoles à radiofréquence utilisés pour le refroidissement de faisceau, ces derniers n'ayant pas un rôle selectif en masse (ils sont utilisés en mode $a_u = 0$).

2.4 Le piège de Penning

Dans divers domaines de la physique il peut être important d'atteindre des résolutions de l'ordre de 10^7 en particulier pour les valeurs des masses atomiques. Un des moyens pour atteindre et parfois même dépasser cette barrière est l'utilisation de pièges de Penning. L'idée originale d'utiliser un champ électrique et magnétique pour augmenter le temps passé par des électrons dans une décharge électrique, due à Penning en 1936, a été étendue et il est maintenant possible de confiner indéfiniment des ions par la combinaison d'un champ électrostatique quadrupolaire et d'un champ magnétique homogène axial. Les configurations mécaniques des pièges de Paul ou de Penning sont donc identiques, elles consistent toutes deux en un système de trois électrodes à symétrie cylindrique : une électrode centrale en forme d'anneau et deux autres électrodes de part et d'autre de la première comme indiquées sur la figure 2.6.

2.4.1 Les équations du mouvement

La configuration mécanique du piège de Penning est identique à celle du piège de Paul évoqué dans la section précédente. De la même manière la géométrie des électrodes sera alors idéalement décrite par l'équation 2.5. La distribution du potentiel dans le piège est alors donnée par :

$$\phi\,(x,y,z) = \frac{\phi_0}{2z_0^2 + r_0^2}\,\left(x^2 + y^2 - 2\,z^2\right) \tag{2.28}$$

Une fois de plus il apparaît l'impossibilité de piéger dans les trois directions du mouvement par l'application d'un simple potentiel électrostatique. La solution consiste alors à choisir ϕ_0 de manière à avoir un potentiel de piégeage harmonique axial et d'introduire un champ magnétique homogène pour prévenir l'action défocalisante dans les directions transverses. La description du mouvement d'un ion dans un piège de Penning peut être traitée de manière classique ou quantique. Cependant dans la plupart des situations expérimentales les ions auront des énergies totales $E \gg \frac{1}{2}\hbar\omega$ qui se prêtent à un traitement classique.

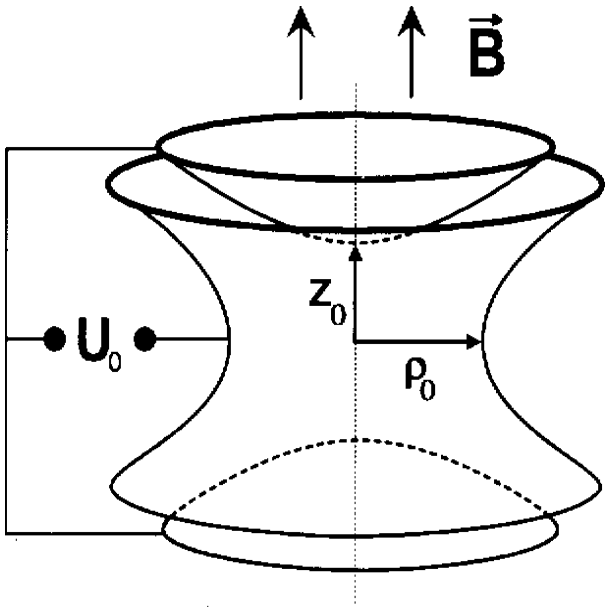

FIG. 2.6: *Représentation schématique de la structure idéale d'un piège de Penning et de son alimentation électrique.*

L'équation générale du mouvement sera alors :

$$m \cdot \begin{bmatrix} a_x \\ a_y \\ a_z \end{bmatrix} = e \cdot \left(\begin{bmatrix} v_x \\ v_y \\ v_z \end{bmatrix} \wedge \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ B_z \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} \right) \tag{2.29}$$

Pour la direction axiale z on obtient l'équation d'un oscillateur harmonique :

$$\frac{d^2 z(t)}{dt^2} + \omega_z^2\, z(t) = 0 \quad avec\ \omega_z = \sqrt{\frac{4\,e\,\phi_0}{m\,(2z_0^2 + r_0^2)}} \tag{2.30}$$

Pour les directions transverses x et y :

$$\frac{d^2x(t)}{dt^2} - \omega_c \frac{dy(t)}{dt} - \frac{\omega_z^2}{2} x(t) = 0 \tag{2.31}$$

$$\frac{d^2y(t)}{dt^2} + \omega_c \frac{dx(t)}{dt} - \frac{\omega_z^2}{2} y(t) = 0 \tag{2.32}$$

avec $\omega_c = \frac{e \cdot B}{m}$ la fréquence cyclotron de l'ion dans le champ magnétique. On peut résoudre ces équations en introduisant le terme complexe $u = x + i \cdot y$ qui nous donne :

$$\frac{d^2u(t)}{dt^2} + i\,\omega_c \frac{du(t)}{dt} - \frac{\omega_z^2}{2} u(t) = 0 \tag{2.33}$$

En posant $u = exp(-i\omega t)$ on obtient l'équation du second degré caractéristique :

$$2\omega^2 - 2\omega_c\omega + \omega_z^2 = 0 \tag{2.34}$$

dont les racines sont :

$$\omega\pm = \frac{1}{2}(\omega_c \pm \omega_0) \;\; avec \;\; \omega_0 = \sqrt{\omega_c^2 - 2\omega_z^2} \tag{2.35}$$

Le mouvement est donc celui d'un oscillateur harmonique dans la direction axiale z. Dans le sens radial la présence d'un champ défocalisant modifie le mouvement cyclotron classique en mouvement cyclotron réduit de fréquence ω_+ et introduit un lent mouvement circulaire appelé mouvement magnétron de fréquence ω_-. La trajectoire résultante des ces trois mouvements est représentée sur la figure 2.7. Alors que l'énergie du mouvement axial oscille entre énergie cinétique et potentielle comme c'est le cas dans toutes les directions du mouvement dans un piège de Paul, l'énergie du mouvement cyclotron est principalement cinétique tandis que celle du mouvement magnétron est essentiellement potentielle. De la même manière que dans le piège de Paul les équations imposent certaines conditions à la stabilité de la trajectoire. Celles-ci sont dérivées du fait que le terme $\omega_c^2 - \omega_z^2$ figurant sous la racine doit être positif. Cela conduit à la condition de stabilité dans un piège de Penning :

$$\frac{m}{e} \leq \frac{B^2\, r_0^2}{4\,\phi_0} \tag{2.36}$$

Si ce critère est vérifié alors on a la relation :

$$\omega_+ \simeq \omega_c \gg \omega_z \gg \omega_- \tag{2.37}$$

Les équations développées jusqu'à présent concernent un piège de Penning idéal. De même que pour le piège de Paul les imperfections sont inévitables et doivent être prises en compte et maintenues à un niveau acceptable dès que l'on veut utiliser le piège pour des mesures de précision (voir section suivante). Cela a conduit à concevoir ce que l'on appelle des pièges de Penning compensés où des électrodes de corrections sont ajoutées à la structure pour se rapprocher d'un champ quadrupolaire parfait. De plus par rapport à un piège de Paul, de structure identique, il faut considérer les paramètres liés au champ magnétique c'est-à-dire son homogénéïté spatiale, sa stabilité dans le temps et son alignement vis-à-vis des électrodes. Le traitement précis de ces défauts sera fait dans le dernier chapitre qui a trait aux mesures de masse effectuées sur ISOLTRAP.

Les potentiels vecteur et scalaire dans un piège de Penning s'exprimant respectivement par $\overrightarrow{A} = \frac{1}{2}\overrightarrow{B} \wedge \overrightarrow{u}$ et par l'équation 2.28, on peut exprimer l'Hamiltonien du système par la relation :

$$H = \frac{1}{2m}(\overrightarrow{p} - \frac{e}{2}\overrightarrow{B} \wedge \overrightarrow{u})^2 + e\,\phi(u) \tag{2.38}$$

Ce qui donne, si on développe cette équation compte tenu du potentiel électrostatique présent dans le piège de Penning (équation 2.28) et du champ magnétique dirigé selon l'axe z, l'expression suivante :

$$H = \frac{1}{2m}(p_x^2 + p_y^2 + p_z^2) - \frac{\omega_c}{2}(xp_y - yp_x) + \frac{m}{4}\omega_0^2(x^2 + y^2) + \frac{1}{2}m\omega_z^2 z^2 \tag{2.39}$$

Ce terme comporte des termes croisés qu'il est intéressant d'éliminer pour faire apparaître la contribution de chacun des mouvements à l'énergie totale du système. Dans ce but on peut introduire les termes suivants en posant $C = \sqrt{m\omega_0/2}$:

$$q_\pm = \frac{1}{\sqrt{2}}(C\ x \mp \frac{p_y}{C}) \ \ , \ \ p_\pm = \frac{1}{\sqrt{2}}(\pm C\ y + \frac{p_x}{C}) \tag{2.40}$$

$$q_z = \sqrt{m\omega_0} \ \ , \ \ p'_z = \frac{p_z}{\sqrt{m\omega_0}} \tag{2.41}$$

On obtient alors de manière équivalente l'expression de l'Hamiltonien d'une particule dans le piège :

$$H = \frac{\omega_0}{2}(q_z^2 + p_z'^2) + \frac{\omega_+}{2}(q_+^2 + p_+^2) - \frac{\omega_-}{2}(q_-^2 + p_-^2) \tag{2.42}$$

Il est alors visible que la contribution du mouvement magnétron à l'énergie totale du système est négative. Cela traduit la nature particulière de ce mouvement et spécialement son instabilité. Cependant il est plus adéquat de le considérer comme métastable car il est relativement lent (équation 2.37) vis-à-vis des deux autres composantes du mouvement. On verra plus loin que cette particularité a des effets importants quand on veut faire du refroidissement par gaz tampon à l'intérieur du piège.

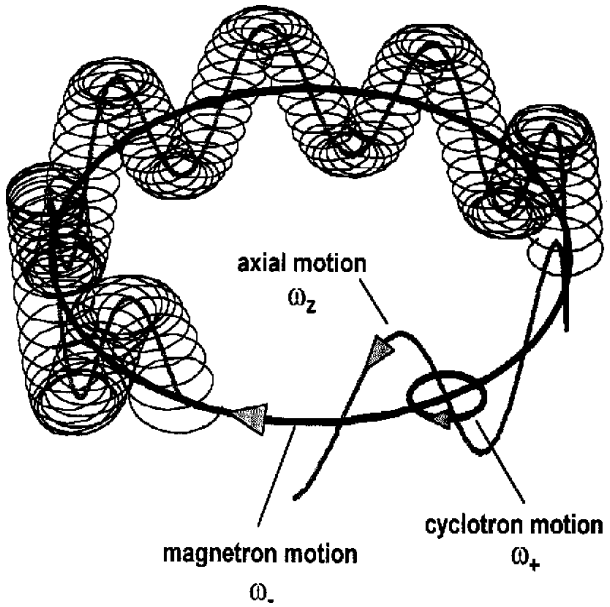

FIG. 2.7: *Représentation de la superposition des trois mouvements dans la trappe de Penning.*

2.4.2 Le piège de Penning comme spectromètre de masse

Toutes les applications des pièges de Penning en tant que spectromètre de masse sont basées sur l'observation de la fréquence cyclotron de l'ion dans le champ magnétique (technique ICR pour Ion Cyclotron Résonance). Même si on a vu plus haut que ce n'était plus une fréquence directe du mouvement à cause de la présence du champ électrique, la relation 2.35 implique que $\omega_+ + \omega_- = \omega_c$. Plusieurs méthodes permettent la détection de cette fréquence. Une d'entre elles, utilisée par Van Dyck [11] consiste à exciter les mouvements radiaux des ions à l'intérieur d'un piège de Penning compensé par l'application d'un champ électrique oscillant. Lorsque les mouvements cyclotron et magnétron sont excités les amplitudes des trajectoires augmentent sensiblement jusqu'à des régions du piège où les imperfections du champ quadrupolaire sont grandes. Ces fréquences de résonance sont mesurées via la détection des anharmonicités du potentiel qui sont alors perçues par les ions.

La mesure de la fréquence cyclotron dans l'expérience ISOLTRAP est également basée sur une excitation du mouvement de l'ion dans le piège de Penning. Cette fois-ci un champ quadrupolaire azimuthal à la fréquence $\omega = \omega_+ + \omega_-$ est utilisé pour coupler les mouvements dans le plan radial de manière à ce que le mouvement magnétron soit entièrement transformé en mouvement cyclotron réduit. Comme on l'a vu plus haut l'énergie de ces derniers est principalement potentielle pour le mouvement magnétron et cinétique pour le mouvement cyclotron. Une telle transformation s'accompagne donc d'un gain d'énergie cinétique et d'une baisse d'énergie potentielle qui résultent en une augmentation de l'amplitude du mouvement et donc en un moment magnétique μ plus important. Une fois cette

excitation accomplie les ions sont éjectés du piège dans le sens axial par application d'une petite différence de potentiel entre les deux chapeaux. L'interaction du gradient du champ magnétique avec le moment magnétique de l'ion va alors créer une force $\mu\, \partial B/\partial z$ qui va accroître l'énergie cinétique axiale des ions. Ce gain étant maximal à la résonance cela résulte en un temps de vol minimal entre le piège et le détecteur. La mesure de ce temps de vol en fonction de la fréquence d'excitation permet de déterminer la masse de l'ion.

Chapitre 3

L'émittance et le refroidissement

Dans ce chapitre nous allons discuter du concept d'espace des phases et d'émittance pour évaluer la dynamique d'un système. Tout d'abord appliqué à un faisceau, nous aborderons ensuite ce concept dans le contexte particulier d'une collection de particules chargées dans un piège de Paul et la notion de température que l'on peut lui associer. Par la suite nous aborderons les modifications apportées dans le piège par la présence de gaz tampon sur cette température et sur le mouvement du faisceau dans l'espace des phases.

3.1 La notion d'espace des phases

La trajectoire d'une particule chargée est déterminée par la résolution de l'équation fondamentale de la dynamique $\overrightarrow{F} = m\overrightarrow{a}$ et de l'équation de Lorentz $\overrightarrow{F} = q(\overrightarrow{v} \wedge \overrightarrow{B} + \overrightarrow{E})$. Pour obtenir les solutions de l'équation du second ordre résultante il est nécessaire de connaître la position (x, y, z) et la quantité de mouvement (p_x, p_y, p_z) de la particule à un moment donné. Toutes ces informations peuvent être représentées par un point dans l'espace à six dimensions (x, y, z, p_x, p_y, p_z) connu sous le nom d'espace des phases. La connaissance de cette position dans l'espace des phases permet ensuite de calculer l'évolution de la particule au cours du temps, le point représentatif de la particule se déplacant généralement dans cet espace avec le temps. Ce concept est particulièrement utile quand on s'intéresse à un faisceau d'ions, c'est-à-dire à un très grand nombre de particules considérées de manière collective, où chaque particule sera alors caractérisée par un point dans l'espace des phases. Le groupe de points representatifs d'un faisceau de dimension finie sera alors contenu dans un hypervolume à six dimensions. Cet hypervolume possède une propriété remarquable exprimée par le théorème de Liouville :

> "*Sous l'action de forces qui peuvent être dérivées d'un Hamiltonien, le mouvement d'un groupe de particules est tel que la densité locale des points représentatifs dans l'espace des phases demeure constante*"

La conservation de la densité locale sous les conditions citées implique que l'hypervolume contenant la totalité des points représentatifs d'un faisceau soit une constante. La représentation d'une collection d'ions dans l'espace des phases se comporte alors comme un fluide

incompressible. Tout système de forces conservatives appliquées sur un faisceau possède un Hamiltonien. Une force conservative est caractérisée par le fait que le travail fourni au système par cette force dépend uniquement des positions initiales et finales de la particule et non du chemin intermédiaire suivi. Les champs électriques et magnétiques font partie de cette catégorie s'ils sont externes au faisceau. Les interactions entre les particules individuelles du faisceau telles que la charge d'espace n'entrent pas dans cette catégorie. Il est théoriquement possible de construire un Hamiltonien pour ce type d'interaction mais dans ce cas le mouvement ne va plus dépendre uniquement de la position de la particule dans l'espace des phases mais aussi de celle des autres particules de la collection. Dans le cas du système de refroidissement MISTRAL ce concept reste cependant bien adapté car les petits temps de transit dans le piège rendent négligeables les interactions entre les particules par rapport aux effets des champs électriques appliqués. A l'opposé les changements d'énergie dus aux radiations ou aux interactions avec des cibles, qui sont liés à des forces dissipatives, ne tomberont pas dans le champ d'application du théorème de Liouville.

Si l'analyse du mouvement d'un faisceau doit parfois être faite dans l'espace des phases à six dimensions, la configuration de la plupart des instruments utilisés pour la manipulation de faisceaux d'ions permettent de pouvoir faire un choix des axes tel que l'on puisse considérer séparément les directions x, y et z. Les équations du mouvement étant alors découplées par rapport à ces axes (il n'y a pas de termes croisés qui apparaissent dans les équations du mouvement). L'espace à six dimensions peut dans ce cas être représenté par la projection de l'hypervolume sur les plans $(x,\, p_x)$, $(y,\, p_y)$ et $(z,\, p_z)$. Ces projections sont appelées diagrammes de l'espace des phases. Tradionnellement on considère l'axe z comme axe de propagation du faisceau tandis que x et y figurent les mouvements transversaux. Dans ce cas le théorème de Liouville se traduit comme la conservation de l'aire de la région contenant les points représentatifs dans chacun des trois diagrammes de l'espace des phases.

$$S_u = \int dp_u\, du \; = constante, \;\; avec\; u = x, y, z \tag{3.1}$$

Ces termes, définis par le produit d'une distance et d'une quantité de mouvement, ont la dimension d'une *action*. Le volume total dans l'espace des phases peut alors être défini par :

$$S = S_x\, S_y\, S_z \tag{3.2}$$

Dans la situation où la quantité de mouvement axiale est constante, ce qui est généralement le cas sauf dans les phases d'accélération, il est possible de simplifier encore la représentation du faisceau. La divergence angulaire d'une particule relativement à l'axe optique est égale au rapport des quantités de mouvement axiale et transversale. Si cette dernière est constante on peut remplacer p_x par la divergence angulaire $x' = p_x/p_z$ (de même pour l'axe y). Les deux coordonnées de notre diagramme, le déplacement et la divergence angulaire qui sont maintenant toutes deux des quantités observables, définiront une quantité ε appelée émittance. Ce diagramme d'émittance est généralement utilisé pour

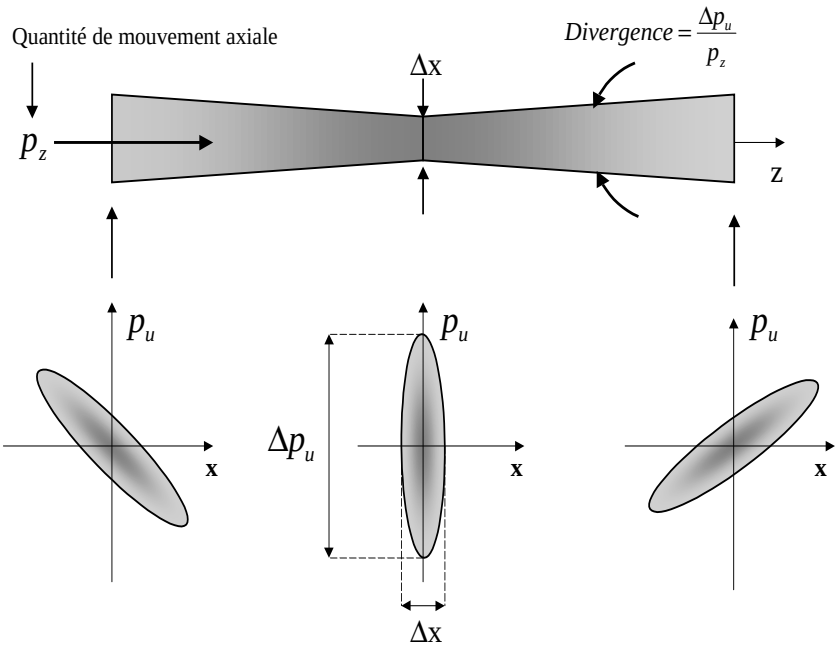

FIG. 3.1: *Évolution du diagramme d'espace des phases en quelques points particuliers du faisceau. Le théorème de Liouville prévoit que si la forme de la distribution d'une collection de particules dans cet espace peut changer, la surface de la zone contenant tous les points se conserve ($u = x, y$).*

les composantes transversales du faisceau, dans ce cas la valeur de l'émittance est reliée à l'espace des phases par la relation :

$$S_x = p_z\, \varepsilon_x \quad ; \quad S_y = p_z\, \varepsilon_y \tag{3.3}$$

Les unités utilisées pour le déplacement et pour la divergence angulaire sont typiquement le mm et le $mrad$. De plus la distribution des points dans ce plan étant généralement en forme d'ellipse on notera la valeur de l'émittance en $\pi\, mm\, mrad$. Dans le cas de faisceaux pulsés le produit $p_z\, z$ peut être décrit par :

$$S_z = \int dp_z\, dz = \int m\, dv\; v\, dt = \int dE\; dt \tag{3.4}$$

où E et t représentent l'énergie cinétique et le temps. L'unité couramment choisie pour cette quantité est l'$eV\, \mu s$. La composante longitudinale exprime alors la dispersion en énergie du faisceau pulsé ainsi que sa focalisation en temps. Si cette dernière valeur n'est pas un paramètre primordial pour l'expérience MISTRAL qui travaille avec le faisceau quasi-continu d'ISOLDE, elle sera plus déterminante pour la fonctionnement de l'expérience ISOLTRAP qui opère en mode pulsé (chapitre 7).

3.2 Ions dans un champ quadrupolaire à radiofréquence

Dans cette partie nous allons étudier l'évolution d'une collection d'ions dans un piège de Paul. Comme on l'a vu dans le chapitre 2 la trajectoire peut être approximée sous certaines conditions par un mouvement d'oscillation harmonique dans un pseudopotentiel quadratique (voir section 2.3.2). L'énergie des particules individuelles oscille alors entre énergie cinétique et potentielle avec la fréquence ω_0 décrite par l'équation 2.24. La position radiale $u(t)$ et la quantité de mouvement $p_u(t)$ sont données dans ce cas par :

$$u(t) = u_{max} \cos \omega_0 t \tag{3.5}$$

$$p_u(t) = m\frac{du(t)}{dt} = -m\,\omega_0\,u_{max}\ \sin \omega_0 t \tag{3.6}$$

Éliminant le temps entre ces deux équations on obtient l'équation du mouvement dans le plan $(u,\, p_u)$ en fonction de l'énergie totale E de la particule :

$$E = \frac{1}{2}m\,(\omega_0\,u_{max})^2 = \frac{p_u^2}{2m} + \frac{1}{2}m\,(\omega_0\,u)^2 \tag{3.7}$$

Les trajectoires individuelles se décrivent alors le long d'ellipses alignées avec les axes du diagramme. La surface de cette ellipse sera donnée par l'énergie initiale de l'ion à l'entrée du piège. Le mouvement se fait dans le sens des aiguilles d'une montre. Pour une collection de particules de même masse la fréquence du mouvement, uniquement déterminée par les paramètres d'opération du piège, sera la même. Par contre les phases d'oscillation des particules sont distribuées aléatoirement. Une collection de particules dans cet espace va alors remplir aléatoirement la zone inscrite dans la trajectoire de la particule la plus énergétique. Cette surface S_u se conservera et s'exprimera en utilisant les notations de la figure 3.2 par :

$$S_u = \pi\, m\, \omega\, u_{max}^2 \tag{3.8}$$

A ce mouvement d'oscillation harmonique (que l'on va appeler macro-mouvement dans l'approximation adiabatique abordée lors de la section 2.3.2) se superpose un micro-mouvement de plus faible amplitude à la fréquence d'application du potentiel sur les électrodes de la trappe. Alors que la phase individuelle de chaque ion est aléatoire dans le macro-mouvement, le micro-mouvement est cohérent c'est-à-dire effectué par tous les ions en phase avec le signal radiofréquence. Son amplitude est proportionnelle à la distance de la particule par rapport à l'axe du piège et donc au déplacement dû au macro-mouvement (équation 2.22). Les effets de ce mouvement radiofréquence sont de distordre l'ellipse initiale en conservant son aire et sa symétrie par rapport à l'origine des axes. Cette déformation dépend de la phase de la radiofréquence et se répète à chaque cycle RF (voir figure 3.3).

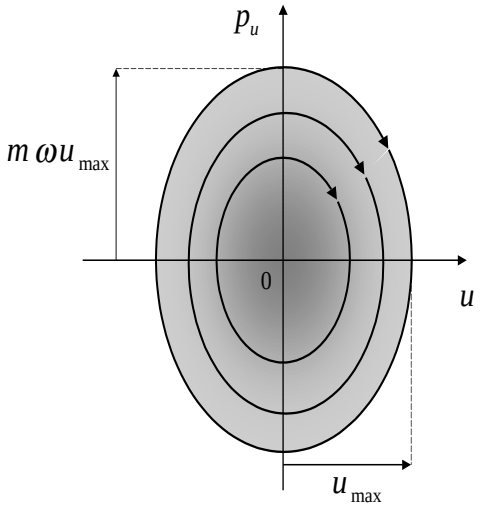

FIG. 3.2: *Trajectoires dans le diagramme d'action pour des particules ayant un mouvement d'oscillation harmonique dans un piège de Paul. L'amplitude maximale du mouvement, notée u_{max}, est liée à l'énergie totale de l'ion par l'équation 3.7. Le paramètre u représente les directions transversales x et y.*

3.3 Définition de la température

Dans les sections précédentes on a abordé les principes de fonctionnement des pièges de Paul et de Penning puis l'utilisation de l'espace des phases pour évaluer l'émittance, les trajectoires des ions et l'acceptance de ces pièges. L'énergie cinétique, et donc la température, des particules piégées est un paramètre important à plusieurs niveaux. Premièrement les amplitudes du mouvement des particules dans le piège vont croître avec leur énergie cinétique. Cela augmente les pertes de particules dans le piège et résulte en une perte de la sensibilité de notre dispositif. Par ailleurs, comme on l'a vu précédemment, une particule ayant une trajectoire de grande amplitude va rencontrer des zones de champs imparfaites et les paramètres de son mouvement s'en trouveront modifiés. On verra dans le chapitre 7 que dans un piège de Penning cela peut induire un décalage dans les fréquences du mouvement qui sont justement utilisées pour des mesures de masses de précision (expérience ISOLTRAP). Dans un autre domaine, les expérimentations de spectroscopie sont également affectées par une énergie cinétique des particules trop importante qui va augmenter l'effet Doppler.

Jusqu'à présent nous avons déterminé la distribution d'une collection d'ions dans l'espace des phases à partir de la nature du champ appliqué. Il reste maintenant à établir de quelle manière la température de cette collection d'ions intervient dans cet espace des phases et en particulier sur la densité locale dont traite le théorème de Liouville.

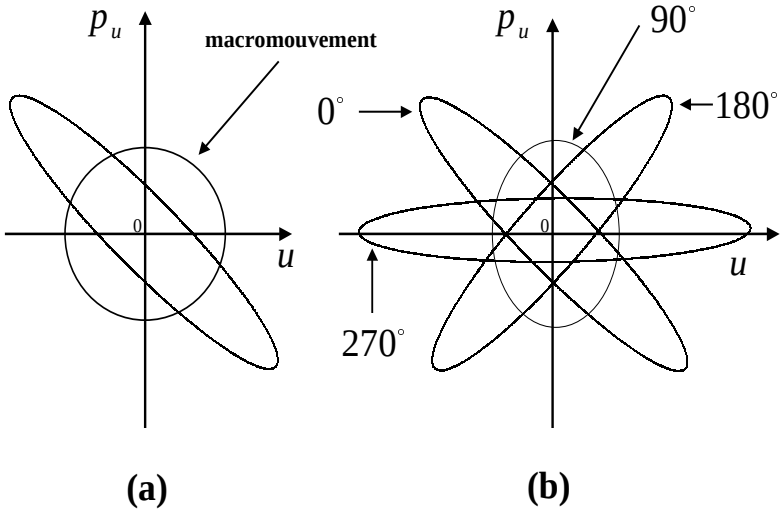

FIG. 3.3: *Distorsion du diagramme d'action de particules dans un piège de Paul. La partie (a) montre la distribution pour la phase* 0 *et dans la cas du macro-mouvement sans RF. La partie (b) montre la distorsion en fonction de la phase de la RF. Ces figures sont obtenues par simulation numérique d'une collection d'ions dans un piège de Paul.*

3.3.1 Approximation harmonique

Boltzmann a donné une définition statistique de la température en termes de distribution en énergie des particules. Pour un ensemble de N_0 particules à la température T , le nombre dN de particules ayant une énergie totale comprise entre E et $E + dE$ est :

$$\frac{dN(E)}{dE} = A\,\exp(-\frac{E}{kT}) \tag{3.9}$$

où A est un coefficient de normalisation et k est la constante de Boltzmann. A partir de cette définition on peut constituer le lien entre température et densité dans l'espace des phases. Si l'on considère un ion circulant dans cet espace à un rayon u et une quantité de mouvement $m\,\omega\,u$ alors son énergie totale est $E = \frac{1}{2}m(\omega\,u)^2$ et sa dipersion en énergie sur la bande de largeur du est $dE = m\,\omega^2\,u\,du$. Ainsi :

$$dN(E) = A\,m\,\omega^2\,u\,\exp(-\frac{E}{kT})\,du \tag{3.10}$$

Les particules d'énergie comprise dans cette bande ont des phases d'oscillation uniformément distribuées. On peut alors exprimer la densité locale en divisant la dernière formule par l'élément d'aire de cet espace des phases, soit $dS_u = 2\pi\,m\,\omega\,u\,du$. L'expression de cette densité est alors :

$$\frac{dN(E)}{dS_u} = \frac{A}{2\pi}\,\omega\,\exp(-\frac{E}{kT}) \tag{3.11}$$

Dans le cas de la distribution des ions pour le mouvement simple harmonique (macro-mouvement) on peut exprimer l'énergie de la particule dans les directions transversales par la somme des énergies cinétique et potentielle :

$$E_u = \frac{p_u^2}{2m} + \frac{1}{2}m\,(\omega u)^2 \tag{3.12}$$

Ainsi

$$\frac{\partial N(u,p_u)}{\partial u \partial p_u} = \frac{A}{2\pi}\,\omega\,\exp(-\frac{p_u^2}{2mkT} - \frac{m\omega^2 u^2}{2kT}) \tag{3.13}$$

A partir de cette équation on peut obtenir la distribution en déplacement u ou en quantité de mouvement p_u par l'intégration de cette distribution par rapport à, respectivement, du et dp_u soit :

$$\frac{\partial N(u,p_u)}{\partial u} = \frac{A}{2\pi}\,\omega\,\sqrt{2\pi mkT}\,\exp(-\frac{m\omega^2 u^2}{2kT}) \tag{3.14}$$

$$\frac{\partial N(u,p_u)}{\partial p_u} = \frac{A}{2\pi}\sqrt{2\pi\frac{kT}{m}}\exp(-\frac{p_u^2}{2mkT}) \tag{3.15}$$

Le coefficient de normalisation A peut être obtenu par une itération supplémentaire par rapport au paramètre restant ($A = N_0/kT$). On peut maintenant caractériser la température en terme de dispersion en espace et en quantité de mouvement. A partir des formules précédentes on extrait les déviations standards σ reliées à la température dans l'approximation du mouvement harmonique :

$$\sigma_u = \frac{1}{\omega}\sqrt{\frac{kT}{m}} \tag{3.16}$$

$$\sigma_{p_u} = \sqrt{mkT} \tag{3.17}$$

Ces paramètres correspondent à une oscillation correspondant à une énergie de $\frac{1}{2}kT$. Avec cette distribution Gaussienne, l'extension des points du faisceau dans le diagramme d'espace des phases est en principe illimitée. On peut cependant l'estimer en considérant qu'une ellipse correspondant à un σ contient environ 45% des particules de la collection, une ellipse de deux σ environ 90% et une ellipse de trois σ environ 99%.

3.3.2 Le mouvement réél

Comme on l'a vu précédemment le diagramme d'action pour un mouvement réél peut être considéré comme une distorsion de l'ellipse associée au macro-mouvement. Ces déformations conservent la forme Gaussienne initiale de l'ellipse et la symétrie par rapport à l'origine des axes mais changent les déviations standard exprimées dans les équations 3.16 et 3.17. Les variations de ces paramètres dépendent de la phase de la radiofréquence et du coefficient de Mathieu q. La figure 3.4 montre les variations de l'amplitude et de la quantité de mouvement en fonction de la phase de la radiofréquence pour trois valeurs de q. On peut voir que cette distorsion peut augmenter la taille du faisceau d'un facteur environ deux pour certaines valeurs de la phase. Pour éviter des pertes d'ions par collisions avec les parois du piège on s'efforce alors de restreindre la taille de l'ellipse associée au macro-mouvement à la moitié de l'espace disponible entre les électrodes.

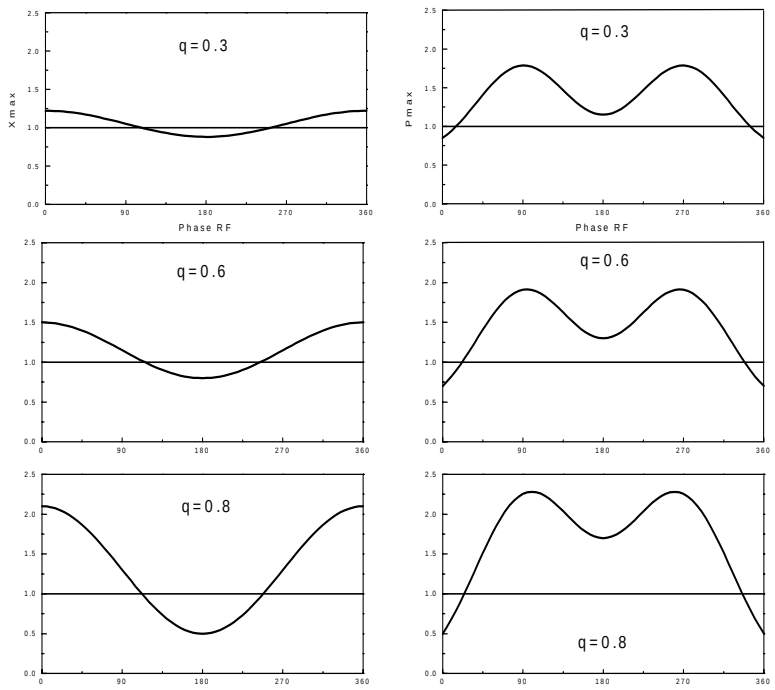

FIG. 3.4: *Evolution de la dispersion spatiale (colonne de gauche) et de la dispersion en quantité de mouvement (colonne de droite) en fonction de la phase RF pour différentes valeurs de q. Ces valeurs sont relatives à celles de l'ellipse correspondant au mouvement d'oscillation harmonique (représentées par les lignes droites). Ces calculs sont extraits de la thèse de Taeman Kim (université de Mc Gill).*

On a vu que notre définition de la température était statistique car basée sur la forme de la distribution en énergie à l'intérieur du piège de Paul. Les deux composantes du mouvement, macro et micro-mouvement, ne jouent pas le même rôle dans cette définition.

Le mouvement harmonique est statistiquement distribué en amplitude et en phase et à ce titre occupe une certaine aire dans le diagramme d'espace des phases. A l'inverse le micro-mouvement est effectué en phase par toutes les particules et son amplitude est directement proportionnelle à sa position dans le piège. L'energie qui lui est associée n'est donc pas distribuée de manière statistique et ne peut donc être incluse dans la définition de la température. Dans ce sens on peut comprendre que les distorsions de l'ellipse associées au mouvement harmonique par l'effet de la radiofréquence se font à aire constante.

3.3.3 Le chauffage RF

La technique de refroidissement de faisceaux employée dans ce travail de thèse, et développée au cours du chapitre 5, repose sur la perte d'énergie subie par les ions au contact des atomes d'un gaz neutre introduit dans le piège. En principe la température du faisceau va décroître jusqu'à celle du gaz lui-même. Dans la réalité il atteint un équilibre thermique dans lequel sont en balance les effets du refroidissement et de ce que l'on appelle le chauffage RF. On a vu dans la section précédente que le micro-mouvement (que l'on peut appeler le mouvement RF) n'entre pas dans la définition de la température car le mouvement dont il est la cause est "cohérent" c'est-à-dire effectué en phase par toute les ions dans le piège. Cependant les collisions, de nature aléatoires, avec les atomes du gaz cause un décalage dans la phase de l'ion et cette "incohérence" introduite dans le mouvement RF va augmenter la température statistique du nuage d'ions. Le sujet a été étudié en détails par Dehmelt [15] lors des premiers développement de pièges de Paul. L'augmentation de la température due au chauffage RF est difficile à quantifier. Une estimation peut être faite en recourant à une simulation de type Monte-Carlo de l'interaction ion-gaz que l'on abordera au cours de la section 5.3. On peut toutefois discuter de quelques caractéristiques générale de cet effet.

La température d'équilibre des ions va dépendre du degré auquel se manifeste ce phénomène. La masse du gaz tampon utilisé est un paramètre important et en fait l'augmentation de la température due au chauffage RF va dépasser les effets du refroidissement dès que la masse des atomes de gaz est supérieure à celle des ions. C'est pourquoi cette technique n'est applicable, dans les pièges à radiofréquence, que pour des ions de masse au moins égale à celle des atomes de gaz. Un deuxième facteur amplifiant le phénomène de chauffage est l'énergie associée au mouvement RF. Cette énergie va dépendre de l'intensité de la force électrique et va donc être proportionnelle à la distance par rapport au centre du piège dans un champ quadrupolaire (l'énergie associée au mouvement sera alors proportionnelle au carré de cette distance). On peut alors minimiser cet effet en fonctionnant avec une amplitude faible du potentiel appliqué sur les électrodes du piège c'est-à-dire avec un paramètre de stabilité q (défini dans l'équation 2.18) petit. On se rapproche alors de l'approximation du mouvement harmonique définie dans la section 2.3.2.

Un aspect important du chauffage RF est qu'il est indirectement dépendant du nombre d'ions stockés dans le piège. En effet la répulsion Coulombienne due à la charge d'espace va pousser les ions jusqu'à des zones de fort champ électrique.

3.4 Les techniques de refroidissement des ions

Dans un piège, refroidir signifie diminuer l'énergie cinétique de l'ion. Les ions piégés ont usuellement des énergies de l'ordre de quelques eV, celles-ci étant limitées par la profondeur du puits de potentiel créé à l'intérieur de ce piège. Dans l'ordre de grandeur des masses de ces particules chaque eV représente environ 10000^oK. Ces relativement grandes énergies sont défavorables aux expériences sur beaucoup de points. Cependant le confinement et l'isolement des ions dans un piège par rapport à l'environnement extérieur permettent d'une part la mise en oeuvre de techniques de refroidissement et d'autre part de garder ces ions froids dans le piège. Dans cette section nous allons faire un survol des techniques de refroidissement les plus couramment utilisées (une revue intéressante à ce sujet est indiqué à la référence [39]). Ces différentes méthodes sont les refroidissements résistif, stochastique, radiatif et électronique. Le traitement, plus complet, de la technique de refroidissement par gaz tampon, employée dans ce travail de thèse, se fera dans le chapitre 5 traitant des simulations.

3.4.1 Le refroidissement résistif

Le refroidissement résistif consiste à amortir les mouvements en couplant les électrodes du piège avec un circuit externe résistif où les ions dissipent leur énergie. La constante de temps de ce processus étant inversement proportionnelle au rapport e/m le refroidissement résistif est particulièrement efficace pour des particules de faibles masses telles que les électrons et les protons. Cette méthode offre les avantages d'être applicable pour n'importe quelle particule chargée sans sélectivité et de pouvoir atteindre des températures très basses $(4,2^oK)$ si le circuit est refroidi avec de l'hélium liquide. Cependant les durées de refroidissement pour des ions plus lourd que le proton sont supérieures à la seconde et restent assez incompatibles avec son utilisation pour les noyaux de courte durée de vie.

3.4.2 Le refroidissement stochastique

Le principe de cette méthode repose sur une réorganisation de la distribution de la collection d'ions dans l'espace des phases. En pratique cela consiste à détecter le passage d'un ion grâce au signal induit par celui-ci sur un capteur puis à le traiter pour envoyer un signal de correction qui rapprochera l'ion de l'origine de l'espace des phases. Cette technique peut être aussi bien appliquée dans un anneau de stockage que dans un piège à ions. Dans le premier cas la détection et la correction sont alors distantes d'un demi tour. Le refroidissement stochastique a été utilisé en 1983 sur l'anneau de stockage d'anti-proton du CERN et a permis d'obtenir un taux de collisions entre protons et anti-protons dans le Super Proton Synchrotron suffisant pour mettre en évidence les particules $W^{\pm}$et Z^0. Dans le cas de son utilisation dans un piège à ions, la détection et la correction se font par l'intermédiaire de deux électrodes opposées.

Cette méthode est proche du refroidissement résistif dans le sens où elle est également basée sur la charge induite par un ion sur une électrode. Cependant le traitement du signal

se fait ici de manière active : il est amplifié et inversé en phase avant d'être renvoyé à l'électrode de correction. Par comparaison avec la technique résistive la durée du refroidissement est plus courte grâce à ce facteur d'amplification. En contrepartie celui-ci va aussi agir sur le bruit de fond et augmenter la température finale de ce même facteur.

3.4.3 Le refroidissement par laser

Cette technique peut s'appliquer aux ions qu'ils soient piégés ou pas. Le principe consiste à faire absorber à un ion les photons selon l'axe de propagation du faisceau laser pour ré-émettre celui-ci sous un angle aléatoire. Le recul de l'ion lors de cette émission est la cause d'une diminution de la vitesse selon l'axe de ré-émission du photon. Cette technique a la particularité de pouvoir être utilisée sur des particules neutres électriquement et a été employée pour la réalisation de l'état de la matière le plus froid qui existe : le condensat de Bose-Einstein. Cette technique a fait l'objet d'un prix Nobel en 1997 pour S.Chu, W. Phillips et C. Cohen-Tannoudji [14]. Cependant cette méthode n'est applicable qu'aux espèces d'éléments ayant une structure atomique exploitable ce qui la rend incompatible avec la large variété d'ions produits à ISOLDE.

3.4.4 Le refroidissement par électrons

Cette technique est couramment utilisée dans les anneaux de stockage. Le principe consiste à superposer au faisceau d'ions un faisceau intense d'électrons (jusqu'à 1 Ampère) de même vitesse dans un champ magnétique dirigé selon l'axe des deux faisceaux. Les électrons refroidis par rayonnement de radiation synchrotron (qui n'affecte pas les ions en raison de leur forte masse) ramènent les ions à leur vitesse par interaction coulombienne. Cette méthode permet tout aussi bien le refroidissement de faisceaux relativistes que, à une autre échelle, le refroidissement d'ions confinés dans un piège de Penning (pour les anti-protons en l'occurence) où le champ magnétique du piège offre la possibilité de rayonnement synchrotron aux électrons.

Chapitre 4

Le dispositif expérimental

Dès l'origine du projet le développement du système de refroidissement a été conduit en menant en parallèle des travaux de tests expérimentaux et de simulations dont le principe sera décrit dans le chapitre 5. Le dispositif présenté ici est le résultat de l'évolution d'une série de prototypes antérieurs qui ont servi à le valider. La conception de cet instrument a été guidée par plusieurs facteurs :

1. L'énergie d'injection des ions : le premier de ces facteurs est que l'énergie des ions injectés doit être de l'ordre de quelques dizaines d'eV. Cette contrainte provient du fait qu'il faut éviter de provoquer une ionisation secondaire des ions incidents. De plus la durée de l'interaction entre le gaz et les ions doit être suffisamment longue pour permettre le refroidissement. Cette décélération implique de porter le quadrupole à un potentiel proche de celui de la source d'ions du faisceau incident. Le faisceau est alors ré-accéléré à la sortie du quadrupole jusqu'à son énergie initiale.
2. Les claquages électriques : les phases de décélération et d'accélération impliquent l'existence de zones de fort gradient de champ statique dans un milieu où le vide est dégradé par l'introduction d'un gaz d'hélium à l'intérieur du quadrupole. Cela nécessite d'adapter la taille et la géométrie de ces sections en fonction de la pression employée dans le RFQ. A l'intérieur du quadrupole lui-même la superposition de tensions oscillantes et d'une pression de gaz de l'ordre de quelques 10^{-2} $mbar$ crée également un environnement propice aux décharges électriques.
3. La capacité de pompage : afin d'éviter ces problèmes de claquages mais aussi pour ne pas polluer les lignes de faisceaux en aval et en amont du quadrupole on doit disposer d'une capacité de pompage adaptée à la pression de gaz employée ainsi qu'à la taille des orifices nécessaire au passage des ions.

Après la description du banc de test et du système de refroidissement nous aborderons la création d'un instrument capable de mesurer directement les effets produits sur le faisceau d'ions. En effet si l'on peut avoir des mises en évidence indirectes de la réduction de l'émittance d'un faisceau, par l'augmentation de la transmission à travers un système par exemple, il est beaucoup plus instructif d'explorer directement la distribution des ions dans

l'espace des phases. Cet instrument, un émittance-mètre, est également décrit au cours de la dernière section de ce chapitre.

4.1 Le système de refroidissement

4.1.1 Le banc d'essais

Le choix du développement du système de refroidissement à Orsay a nécessité l'installation d'un banc d'essai dans le laboratoire. La fonction de ce dispositif est de procurer un faisceau de test, d'énergie et de masse données, pour fournir les ions incidents au quadrupole à radiofréquence. Le dispositif mis en place, schématisé sur la figure 4.1, consiste en une source d'ions suivie d'un aimant de séparation en masse qui délivre le faisceau d'ions de faible intensité ($\leq 10^6$ ions par seconde) sur une ligne de sortie horizontale où sont connectés le quadrupole et l'émittance-mètre. Cet ensemble source-aimant ne peut toutefois fournir un faisceau d'ions d'énergie supérieure à 10 keV alors que le système de refroidissement devra fonctionner à terme sur la ligne de faisceau d'ISOLDE de 60 keV. Le développement auprès de ce faisceau de test constitue une étape dans cette étude et le système de refroidissement devra par la suite être essayé à une énergie compatible avec la ligne de faisceaux ISOLDE. Cette étape finale à pleine énergie sera possible auprés du séparateur d'isotopes SIDONIE du CSNSM. La technique d'ionisation de surface utilisée dans la source permet d'obtenir des éléments alcalins monochargés positivement. On peut donc travailler avec une gamme de masse assez large comprenant les nucléides ^{23}Na, ^{39}K et $^{85,87}Rb$.

Un paramètre important dans le développement du système de refroidissement est son efficacité. La ligne de sortie de l'aimant permet de mesurer, avant l'injection dans le quadrupole, l'intensité du faisceau incident. Un déflecteur électrostatique (vertical) permet de dévier le faisceau jusqu'à un multiplicateur d'électrons secondaire (SEM). De même la ligne de sortie du RFQ est équipé d'un dispositif équivalent (mais horizontal) qui permet de connecter l'émittance-mètre en parallèle avec un autre dectecteur d'ions (également un SEM).

4.1.2 Le quadrupole linéaire à radiofréquence (RFQ)

La structure et le principe de fonctionnement du quadrupole linéaire à radiofréquence, connue sous le nom de filtre de masse, sont décrits au cours de la section 2.3.1. La place disponible en amont du spectromètre MISTRAL (voir figure 1.7) est limitée à 1300 mm et doit inclure, en plus du quadrupole lui-même, les sections d'isolation, d'accélération et de décélération, les pompes à vide ainsi que des soufflets permettant l'isolation mécanique de l'ensemble par rapport à la ligne de faisceau ISOLDE. Pour ces raisons les électrodes formant le quadrupole ne peuvent pas dépasser la longueur de 500 mm.

Le choix du diamètre de ces électrodes ainsi que du rayon disponible entre elles résulte d'un compromis entre le bénéfice d'avoir une grande acceptance vis-à-vis du faisceau inci-

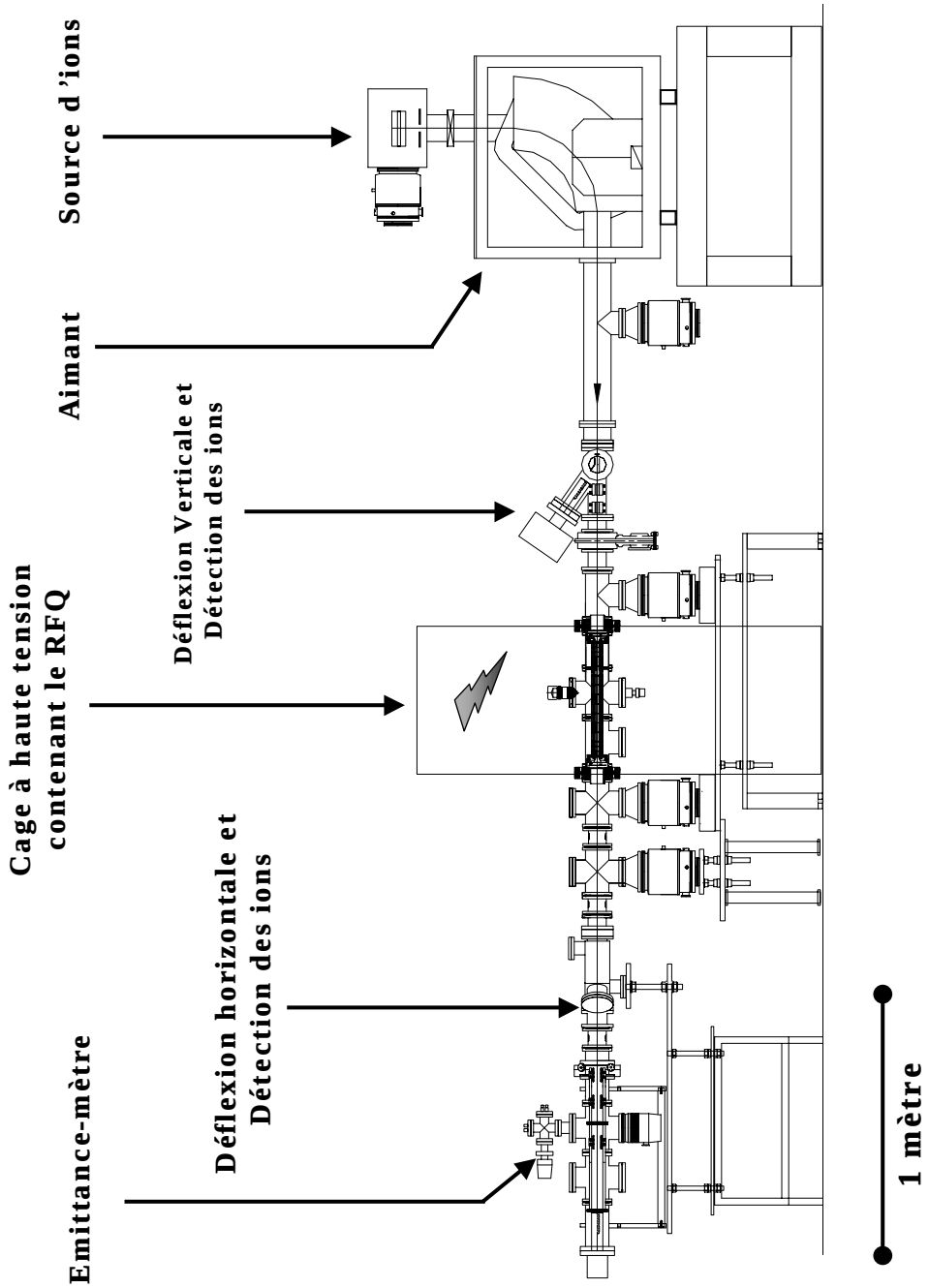

FIG. 4.1: *Banc de testsdu système de refroidissement à Orsay.*

dent et les limitations techniques auxquelles nous sommes soumis. En effet, l'espace entre les électrodes intervient directement (équations 2.18) dans le coefficient q_u de Mathieu qui définit le mouvement des ions dans le piège et par conséquent dans la profondeur du puits de potentiel $\overline{D_u}$ crée dans les directions transversales $u = x,\ y$ du piège dans l'approximation du mouvement d'oscillation harmonique. Ces relations, déjà développées dans la section 2.3.1, sont :

$$q_u = \frac{4eV}{m\omega^2 r_0^2} \quad \rightarrow \quad \overline{D_u} = \frac{q_u V}{8}$$

Il apparaît alors que pour un mouvement de même nature, c'est-à-dire de coefficient q_u identique, la profondeur du puits de potentiel devient plus importante quand r_0 augmente. Cependant l'augmentation de ce rayon doit être compensée par une augmentation de l'ampitude du signal radiofréquence V de manière à conserver la valeur du coefficient de Mathieu. On verra dans la section 4.1.4 prochaîne qu'il est techniquement difficile d'atteindre des valeurs élevées de cette amplitude dans une large gamme de fréquence. De plus le fait que le rayon apparaisse quadratiquement dans l'équation implique qu'un doublement de ce dernier nécessiterait de quadrupler l'amplitude V du signal pour conserver la valeur du paramètre de stabilité q_u.

Le diamètre des électrodes, s'il ne joue aucun rôle direct dans le mouvement des ions, est important pour la définition de la pureté du champ quadrupolaire. On a vu, toujours dans la section 2.3.1, que les électrodes de forme hyperboliques, idéales pour la création du champ quadrupolaire, pouvaient être remplacées par des électrodes cylindriques avec une bonne approximation pourvu que l'on respecte la relation suivante entre r_0 et le rayon r de ces électrodes :

$$r = 1.148\ r_0$$

Toutefois le confinement d'ions durant son interaction avec le gaz ne nécessite pas un aussi haut degré de pureté du champ quadrupolaire que les applications plus classiques de cette structure comme filtre de masse. Dans notre cas la forme et la disposition des électrodes dépendent de paramètres plus pratiques pour éviter les claquages électriques entre les électrodes ou entre les électrodes et la masse.

La segmentation du quadrupole

Assez tôt dans le développement du système il est apparu la nécessité de contrôler le mouvement axial des ions à l'intérieur du quadrupole. Cette possibilité peut être utilisée de deux manières :

1. Les angles d'entrée des ions dans le quadrupole sont d'autant plus grands que la décélération du faisceau a été forte. Pour augmenter l'efficacité de l'injection il est alors intéressant que la dernière partie de cette décélération se fasse dans le quadrupole lui-même où les ions sont soumis à la force de rappel du champ électrique.

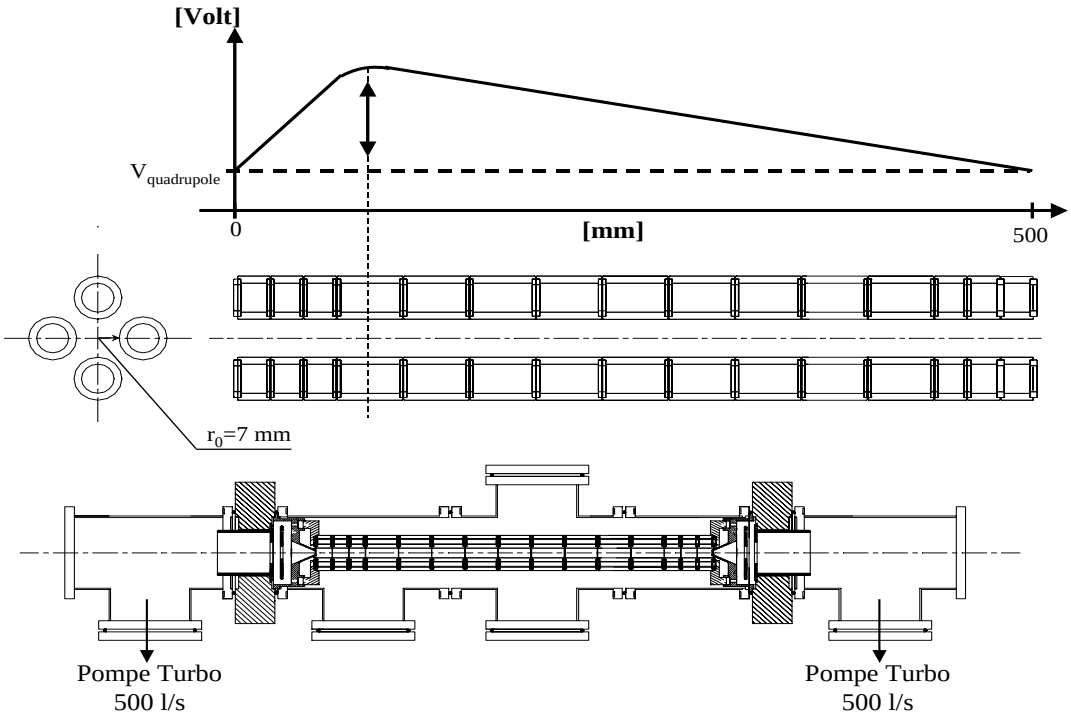

FIG. 4.2: *Représentation de la partie portée à la haute tension contenant le quadrupole (en bas) et de la structure segmentée des électrodes du quadrupole (en haut). Le graphe schématise l'alimentation électrique de ces segments.*

2. Les collisions avec les atomes de gaz provoquent une perte d'énergie des ions dans les directions axiales et transversales du mouvement. Si dans les directions radiales le mouvement des ions est contraint par le champ quadrupolaire à radiofréquence, le champ axial permet de contrôler l'énergie cinétique axiale des ions le long de la structure. Cela permet d'éviter en particulier que les ions soient arrêtés dans le quadrupole quand ils ont perdu toute leur énergie. Cette force axiale permet aussi de moduler le temps passé par les ions dans le quadrupole.

On obtient ce champ axial par une segmentation des baguettes du guide d'ions (voir la figure 4.2). Cela permet, par l'application de potentiels statiques succcessifs sur ces segments, de modeler le gradient de potentiel dans l'axe du système. Plus pratiquement les quatres électrodes du quadrupole à radiofréquence sont segmentées en 15 parties en utilisant deux longueurs de segments différentes. Les parties extrêmes du quadrupole, qui sont impliquées dans les parties critiques d'injection et d'extraction des ions, nécessitent un modelage plus fin du gradient axial que la partie centrale du quadrupole. En conséquence, chacune des extrémités des baguettes est constituée de 3 segments de $20mm$ tandis que la partie centrale du RFQ se compose de 9 segments de $40\,mm$ (voir les figures 4.2 et 4.3).

Les quatre premiers segments du quadrupole sont alors utilisés en leur appliquant un potentiel positif croissant de manière à obtenir la décélération additionnelle souhaitée. A partir de ce point, les ions sont guidés à travers la structure avec un potentiel décroissant jusqu'à la sortie du quadrupole. Toutefois la possibilité de moduler le gradient axial de potentiel est limitée par le fait que les électrodes coniques d'injection et d'extraction, liées mécaniquement à la chambre du quadrupole (voir la figure 4.3), sont au même potentiel. La différence de potentiel totale vue par les ions le long du guide est alors nulle.

Dans le cas du système de refroidissement d'ISOLTRAP décrit dans le chapitre 7 la segmentation est également utilisée pour créer un puits de potentiel axial qui a pour fonction d'accumuler les ions avant de les éjecter en paquet vers la première trappe de Penning. Cet autre aspect de la segmentation sera traité au cours du chapitre 7 concernant ma collaboration avec le groupe ISOLTRAP.

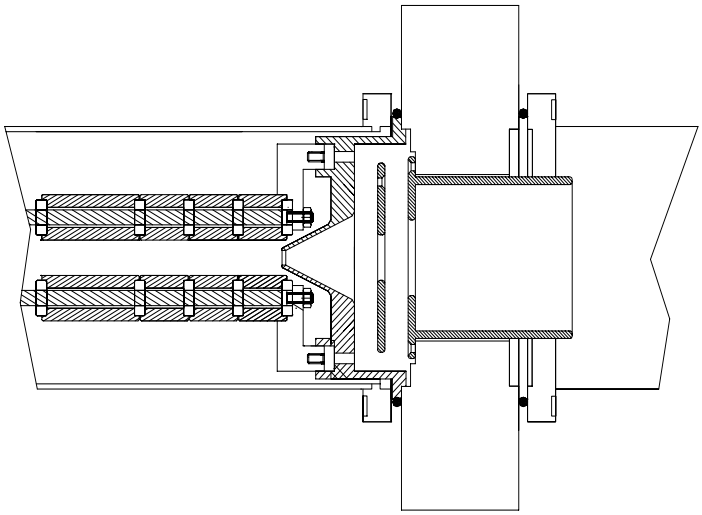

FIG. 4.3: *Représentation en coupe longitudinale des parties extrèmes du quadrupole. A gauche du schéma on voit les quatre segments à l'extrémité des baguettes du guide d'ions. Les trois électrodes de droite sont utilisés pour décélérer (respectivement ré-accélérer) le faisceau incident (respectivement sortant). L'électrode conique est au même potentiel que le quadrupole (hormis la radiofréquence et les tensions statiques appliquées sur les électrodes). Les parties isolantes sont représentées en blanc.*

L'injection et l'extraction des ions

La structure du système, aussi bien du point de vue du quadrupole que de l'optique de décélération et d'accélération, est complètement symétrique. Les parties d'optique ionique,

de part et d'autre du guide d'ions, sont chacune composées de 3 électrodes comme le montre la figure 4.3. Ces électrodes servent à répartir les potentiels statiques à partir du potentiel nul de la ligne (première électrode) jusqu'àu potentiel du quadrupole lui-même (troisième électrode de forme conique) en passant par une électrode intermédiaire dont le potentiel, variable entre la masse et celui du quadrupole, permet de modifier la focalisation du faisceau entrant ou sortant (voir les figures 5.3 et 5.6 qui présentent les simulations des trajectoires des ions dans cette partie de la structure).

4.1.3 Le pompage différentiel

A cause des orifices nécessaires au passage des ions à travers le RFQ, la présence de gaz à une certaine pression à l'intérieur du quadrupole détériore la qualité du vide en amont et en aval du système de refroidissement. Cette augmentation de la pression dans les zones de fort gradient de champ électrique que sont l'entrée et la sortie du quadrupole peut être favorable aux claquages électriques entre la masse et la haute tension du quadrupole. Une fois le système de refroidissement installé sur la ligne de faisceaux ISOLDE, une détérioration du vide environnant peut de plus perturber le fonctionnement du spetromètre MISTRAL.

La pression à l'extérieur du quadrupole dépend de plusieurs facteurs : la taille des orifices de passage des ions, la pression de gaz nécessaire au refroidissement à l'intérieur du guide d'ions et la capacité de pompage à l'entrée et à la sortie du quadrupole (voir la figure 4.2). Un autre de ces paramètres est la façon dont on introduit le gaz dans la chambre du quadrupole. Sur le système de refroidissement d'ISOLTRAP, le quadrupole a une structure étanche qui permet de n'introduire le gaz qu'entre les électrodes du guide d'ions. A cet effet les intervalles entre ces électrodes sont obturés par des tiges isolantes parallèles. La faible conductance du volume ainsi crée permet d'obtenir un gradient de pression entre le centre, où est introduit le gaz, et les extrémités du guide (le taux de refroidissement étant fixé par l'intégrale de la pression tout au long du quadrupole). Cela a pour avantage de favoriser la qualité du vide à l'extérieur du quadrupole. Dans notre cas, la longueur du quadrupole, deux fois moindre que celle du système ISOLTRAP, ne permettrait pas d'obtenir une différence aussi sensible de pression de gaz (elle a été calculée comme étant d'un facteur deux pour le quadrupole linéaire d'ISOLTRAP qui mesure environ $1m$ de long pour un diamètre entre les électrodes de $12mm$). Cette solution n'a donc pas été retenue dans notre cas et on peut considérer que la pression de gaz est constante tout au long du guide d'ions.

Le gradient de pression est obtenu par l'installation de deux pompes turbo-moléculaires d'une capacité de pompage de 500 $l\,s^{-1}$ installées de chaque coté du quadrupole (voir la figure 4.1). De même la conception des éléments optiques d'injection et d'extraction du système a été contrainte par le nécessité de limiter la taille des orifices d'entrée et de sortie au détriment de l'acceptance du quadrupole. Le diamétre de ces orifices (sur les électrodes coniques représentées sur la figure 4.3) a alors été fixés à 5 mm.

La haute tension appliquée sur le quadrupole rend impossible la mesure directe de la pression car, dans notre montage électrique (voir la section 4.1.4), seules les alimentations statiques des segments du quadrupole sont portées à la haute tension. Il est alors néces-

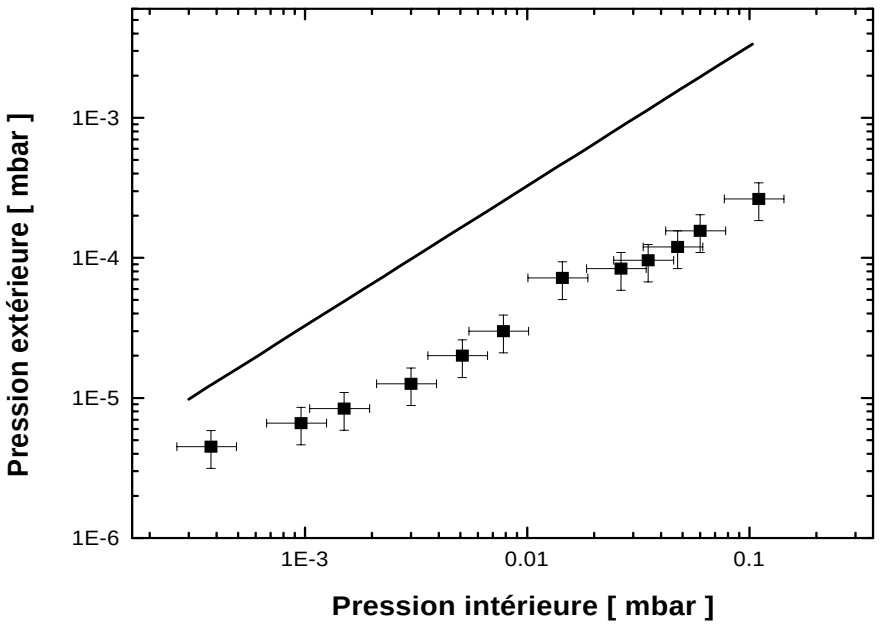

FIG. 4.4: *Variation de la pression d'hélium à l'extérieur du système en fonction de la pression introduite dans le quadrupole. Les points représentent les mesures d'étalonnage et la ligne une prédiction théorique utilisant un calcul de conductance de canalisation due à Knudsen.*

saire d'effectuer un étalonnage de cette pression par rapport à une mesure de la pression à l'extérieur du quadrupole. Une jauge à vide est installée a cet effet près de l'entrée du quadrupole. L'installation temporaire d'une jauge à l'intérieur du système a permis d'établir la courbe d'étalonnage présentée sur la figure 4.4. Cependant, l'impossibilité de disposer cette sonde dans les régions de fort gradient de potentiel, directement à la sortie du guide d'ions, nous a conduit à effectuer un calcul théorique de cette pression dont les résultats sont également présentés sur la figure. Ce calcul est basé sur l'évaluation de la conductance des électrodes coniques, formant l'étanchéité, en utilisant la formule suivante due à Knudsen valable en régime moléculaire :

$$C = \frac{4}{3}\frac{v_m}{\int_0^L \frac{b}{a^2} dL} \quad en \quad cm^3\ s^{-1} \tag{4.1}$$

où v_m est la vitesse moyenne arithmétique des atomes d'hélium, L la longueur de notre cône (30 mm) et les paramètres a et b caractérisent l'ouverture angulaire de l'électrode (environ 30 degrés). Comme on peut s'y attendre, les valeurs mesurées sont inférieures aux prédictions car elles correspondent à une distance plus grande des orifices. On peut alors considérer que la zone située entre ces deux courbes correspond à la gamme de pression à

laquelle on peut s'attendre dans les régions de fort gradient de potentiel.

Il est toutefois difficile de prédire la valeur de la tension disruptive dans ces zones. En effet pour une pression de l'ordre de quelques 10^{-2} $mbar$ à l'intérieur du quadrupole (selon les simulations, section 5.3), le domaine de pression mis en jeu dans ces régions se situe dans une gamme allant de quelques 10^{-4} $mbar$ jusqu'à 10^{-3} $mbar$. Ce domaine de pression est situé au voisinage d'un zone de transition entre une régions où la disruption est indépendant de la pression et une autre, pour des pressions plus élevées, où ce phénomène est géré par la loi de Paschen [40]. Le cas de l'hélium est particulièrement difficile à évaluer car si son potentiel d'ionisation est parmi les plus élevés ($\geq 20\,eV$), sa faible masse le rend facile à accélérer ce qui favorise le phénomène d'avalanches.

4.1.4 L'électronique

Les conditions de stabilité des ions dans le RFQ ainsi que la profondeur du puits de potentiel créé dépendent à la fois de l'amplitude et de la fréquence du signal appliqué sur les électrodes du quadrupole ainsi que de la masse des ions et de la géométrie du piège. Ces paramètres de piègeage ont été explicités au cours du chapitre 2 (équations 2.18 et 2.25). Pour s'adapter à un large domaine de masse ($1 \rightarrow 200$ uma) l'amplitude de l'excitation doit pouvoir être variable jusqu'à une valeur $\simeq 500\,V$ sur un domaine de fréquence compris entre $500\,kHz$ et $1\,MHz$.

Atteindre ces valeurs implique de s'intéresser au problème de la transmission de puissance dans un circuit à haute fréquence. Dans ce cas le signal transmis aux électrodes est la superposition d'une onde incidente et d'une onde réfléchie. Dans le cas général ce régime est fixé par l'adaptation entre l'impédance de la ligne et celle de la charge (le RFQ). Idéalement on supprime les ondes réfléchies quand la ligne est terminée par une impédance égale à son impédance caractéristique.

Comme l'impédance de la charge dépend de la fréquence du signal il n'est pas possible d'avoir un accord parfait sur une large gamme qu'avec un système d'adaptation accordable en fréquence. Cette solution a été choisie pour transmettre la puissance au modulateur radiofréquence de MISTRAL (voir chapitre 1) car celui-ci doit couvrir une très large bande de fréquence de $250 - 500$ MHz. Son principe repose sur l'utilisation d'un court-circuit réglable en position qui nécessite une mécanique complexe. Pour l'alimentation du quadrupole à radiofréquence l'adaptation des impédances n'est pas réglable, le système possède alors une fréquence de résonnance fixe. L'enjeu de l'adaptation des impédances consiste alors à ce que la position et la largeur de ce pic de résonnace permettent d'atteindre les valeurs de fonctionnement souhaitées.

Le circuit est composé d'un générateur de signaux connecté à un amplificateur de puissance (100 Watt maximum) dont l'impédance caractéristique de la ligne de sortie est de $50\,\Omega$. Ces éléments ne sont pas portés à la haute tension du quadrupole. Le signal transporté par la ligne de sortie de l'amplificateur aboutit sur un transformateur isolé électriquement. La composition de ce transformateur a été choisie de manière à avoir une résonnance la plus large possible et située dans la plage de fonctionnement en fréquence souhaitée (entre $500\,kHz$ et $1\,MHz$ dans notre cas).

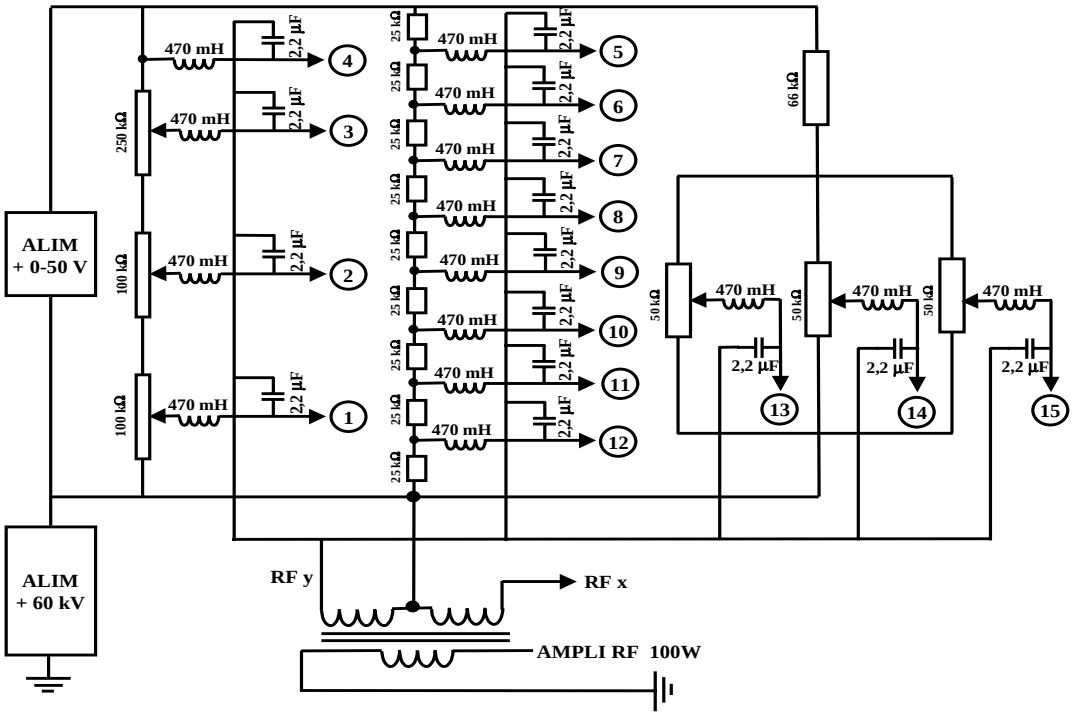

FIG. 4.5: *Circuit d'alimentation des électrodes du quadrupole. On ne représente ici que l'alimentation d'une phase du signal radiofréquence, les potentiels statiques pour l'autre phase étant les mêmes. La numérotation représente les 15 ensembles de segments du quadrupole.*

Les alimentations des tensions statiques du quadrupole sont par contre montées dans le châssis à la haute tension et sont alimentées par un autre transformateur d'isolement. Le schéma 4.5 représente le circuit électronique d'alimentation des segments du quadrupole. La réponse en fréquence obtenue avec ce circuit est représentée dans la figure 4.6. On voit que la fréquence de résonnance ($\simeq 610\ kHz$) est située dans le domaine visé et que la décroissance des valeurs des tensions du côté droit de la résonnance est suffisamment faible pour permettre d'obtenir des amplitudes du signal suffisantes jusqu'à $1\ MHz$.

4.2 L'émittance-mètre

Dès le début de notre étude il est apparu nécessaire de disposer d'un instrument capable de mesurer l'émittance d'un faisceau. En effet il n'était pas envisageable que, une fois le système de refroidissement construit, les travaux d'optimisation et d'amélioration puissent avoir lieu auprès du spectromètre pour ne pas interrompre son fonctionnement. De plus cet instrument nous procure une mesure directe non seulement de la valeur de l'émittance du faisceau mais aussi de sa distribution dans l'espace des phases. Les caractéristiques qui étaient visées lors de l'étude de cet instrument sont les suivantes :

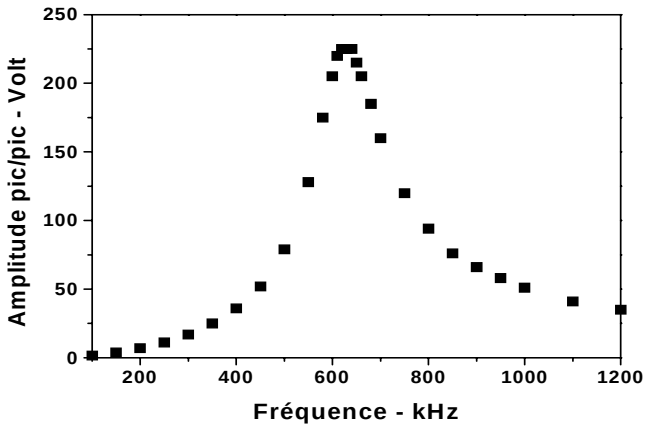

FIG. 4.6: *Réponse en fréquence du RFQ. Cette courbe est tracée pour une amplitude à la sortie du générateur de signaux de* $500\,mV$.

1. Utilisation de l'instrument sur notre banc d'essais d'Orsay et sur la section commune à la ligne de faisceaux d'ISOLDE et de la source de référence MISTRAL. Soit un domaine d'énergie allant de quelques keV jusqu'à $80\,keV$.
2. De même le domaine d'émittance mesurable doit pouvoir inclure les émittances typiques des faisceaux ISOLDE avec les différentes sources utilisées et l'émittance plus faible d'un faisceau refroidi.
3. L'instrument doit pouvoir être monté en bout de ligne de faisceau et avoir une structure relativement compacte qui lui permette d'être amovible facilement. Il doit aussi être possible de le faire tourner autour de l'axe du faisceau pour pouvoir mesurer les émittances dans deux direction perpendiculaires transversales au mouvement des ions.
4. L'appareil doit être capable d'analyser des faisceaux de faible intensité ($\leq 10^6$ ions par seconde).

4.2.1 Principe et caractéristiques techniques

Le processus de mesure consiste à balayer électrostatiquement le faisceau d'ions devant deux fentes fines. Le balayage devant la première fente permet d'explorer la dimension spatiale du faisceau. Il est obtenu par un jeu de deux secteurs électrostatiques successifs qui, lorsqu'ils sont portés à une différence de potentiel opposée, résultent en une translation du faisceau parallèlement à lui-même dans une direction transversale du mouvement. On selectionne ainsi, pour chaque configuration du potentiel, une tranche du faisceau dont l'épaisseur est égale à l'ouverture de la première fente. Un troisième secteur électrostatique situé entre la première et la deuxième fente permet ensuite d'explorer la dispersion angulaire

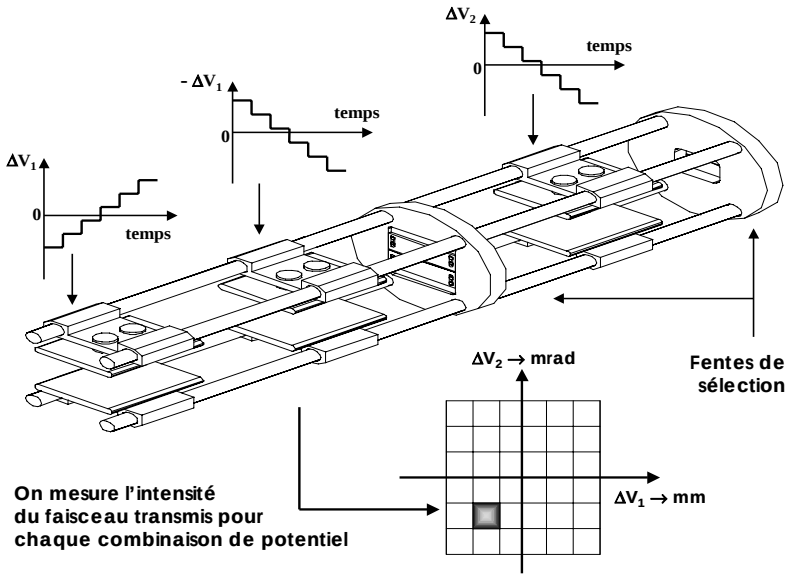

FIG. 4.7: *Schéma de principe de l'émittance-mètre. L'exploration du diagramme d'émittance revient à diviser cet espace en pixels dont la taille est fonction de la résolution de l'appareil.*

correspondant à la tranche sélectionée. On enregistre alors l'intensité du faisceau transmis à travers les deux fentes en fonction de la combinaison des potentiels appliqués sur les trois secteurs. La durée de cette mesure est modulable et peut être adaptée à l'intensité du faisceau incident.

La figure 4.7 présente le schéma de principe de l'émittance-mètre et la figure 4.8 son schéma mécanique. Il aurait été équivalent de déplacer les fentes par rapport au faisceau mais cela aurait impliqué une mécanique trop complexe sans offrir les mêmes possibilités de contrôle extérieur. Ce contrôle est effectué par l'intermédiaire du logiciel Labview sur PC qui fournit le potentiel sur les électrodes et enregistre les intensités de faisceaux correspondantes. La transmission du faisceau à travers les deux fentes, pour une combinaison donnée des potentiels appliqués sur les déflecteurs, est généralement très faible. Les intensités des faisceaux incidents étant elles mêmes faibles, le détecteur d'ions utilisé est, à cet effet, un multiplicateur d'électrons secondaire dont la sensibilité peut aller jusqu'à quelques particules par seconde.

Le paramètre essentiel découlant de la conception de l'émittance-mètre est sa résolution dans les dimensions angulaire et spatiale. On peut définir cette résolution comme étant l'acceptance de notre système qui peut alors s'exprimer dans les mêmes unités que l'émittance le $mm \cdot mrad$ (l'expression de cette unité en $\pi \cdot mm \cdot mrad$ que l'on a introduite dans le chapitre 3 n'est plus justifiée ici). Cette aire présente une géométrie rectangulaire dont les dimensions sont fonction des résolutions spatiales et angulaires. La résolution spatiale est directement liée à l'ouverture de la première fente. Dans la direction angulaire elle est fontion de l'ouverture des deux fentes et de la distance qui les sépare. Dans sa configuration actuelle l'ouverture de la première fente est de $f_1 = \pm 0,15\, mm$ et celle de la deuxième de

$f_2 = \pm 0,1\,mm$. La distance entre les deux fentes est de $d_{1/2} = 400\,mm$. Les résolutions et l'acceptance au sens où on l'a défini s'expriment comme :

$$r_{spatial} = f_1 = 0,3\,mm \tag{4.2}$$

$$r_{angulaire} = \frac{f_1 + f_2}{d_{1/2}} \simeq 1,25\,mrad \tag{4.3}$$

$$a = r_{spatial} \cdot r_{angulaire} \simeq 0,4\ mm\ mrad \tag{4.4}$$

S'il apparaît qu'il est possible de réduire indéfiniment ces résolutions en fermant les fentes ou en rallongeant l'appareil, l'optimisation de la résolution de l'émittance-mètre est aussi la recherche du meilleur compromis avec la transmission de l'appareil. Une intensité en bout de l'instrument trop basse résultera en une pauvre statistique de mesure ou des temps d'acquisition trop longs.

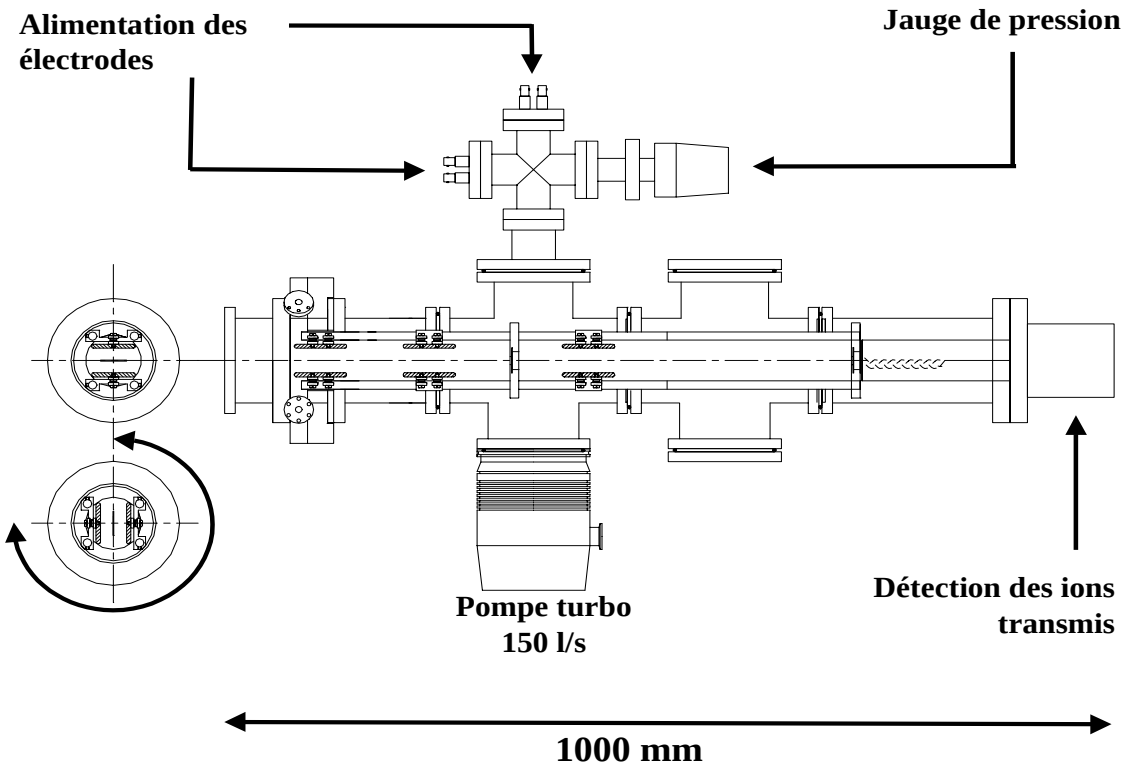

FIG. 4.8: *Schéma mécanique de l'émittance-mètre. Il est monté sur la ligne de faisceau par l'intermédiare d'une bride tournante qui lui permet de mesurer l'émittance dans toute les directions transversales du mouvement. Il dispose d'une unité de pompage autonome d'une capacité de* $150\,ls^{-1}$.

4.2.2 La mesure de l'émittance

Pour connaître la valeur de l'émittance à la suite d'une mesure on doit pouvoir établir une correspondance entre les tensions appliquées sur les électrodes et les déviations spatiales ou angulaires qu'elles provoquent sur le faisceau d'ions. Il s'agit donc d'établir les équations du mouvement des ions le long de l'émittance-mètre. Ce problème ne se résume pas à un classique calcul de trajectoires entre des électrodes planes car il faut tenir compte de la distribution réelle de potentiel à l'intérieur de l'émittance-mètre. Cela signifie prendre en compte le champ de fuite entourant chaque jeux de déflecteurs mais aussi l'influence sur cette distribution de potentiel des électrodes environnantes comme les deux fentes ou la chambre même de l'appareil qui sont à un potentiel nul.

La méthode choisie pour déterminer cette correspondance a été de prendre pour base les équations du mouvement établies pour des secteurs électrostatiques plans. L'utilisation du logiciel de simulation SIMION (décrit au cours du chapitre 5) a permis de déterminer une distribution réaliste du potentiel dans l'émittance-mètre et d'évaluer ainsi les corrections a appliquer aux équations classiques du mouvement des ions dans des secteurs électrostatiques. La figure 4.9 donne un exemple d'une mesure d'émittance après application de la "fonction de réponse" ainsi calculée.

Les déformations induites sur le faisceau par les déflexions nécessaires à la mesure ont été de même évaluées à l'aide de ce logiciel. Dans la première partie de l'émittance-mètre, la conclusion est que, mis à part le décalage souhaité du faisceau devant la première fente, la distribution des ions dans l'espace des phases n'est pas sensiblement modifiée par l'action du potentiel.

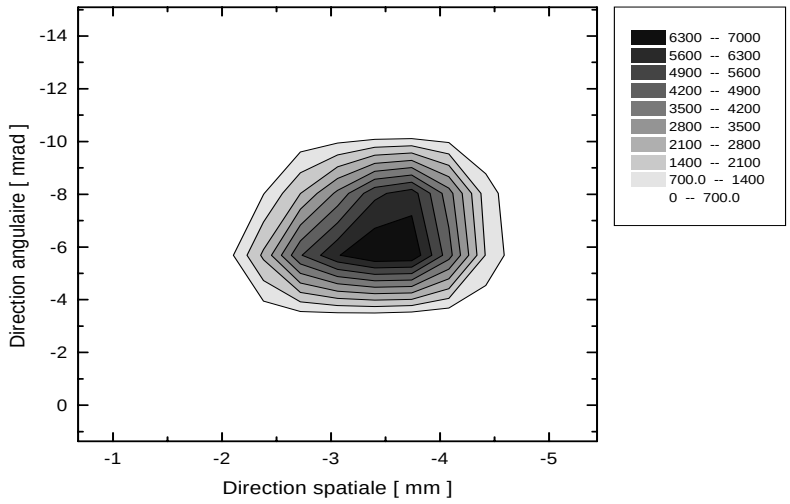

FIG. 4.9: *Exemple d'une d'émittance mesurée sur un faisceau d'ions incidents de* $^{39}K^{+}$ *à* $5\,keV$.

Chapitre 5

Les outils de simulation

5.1 Avant-propos

Le travail de simulation constitue la première étape de la conception du système de refroidissement. Il permet de fixer la géométrie et les dimensions caractéristiques du dispositif ainsi que de définir l'ordre de grandeur de paramètres de fonctionnement tels que la fréquence et l'amplitude de l'excitation électrique ou la pression de gaz à l'intérieur du quadrupole. Ce travail peut être divisé en deux parties que l'on a considéré comme indépendantes dans ce travail :

1. En premier lieu il a été nécessaire de disposer d'une simulation des trajectoires des ions. Cet outil nous a permis de nous familiariser avec les pièges ioniques et en particulier d'avoir une meilleure approche des parties critiques que sont l'injection et l'extraction des ions d'un piège de Paul. Cette partie sera traitée au cours de la section 5.2.
2. La seconde partie du travail de simulation a porté sur la modélisation de l'interaction entre les ions et le gaz. De la même manière que pour les modèles nucléaires on peut aborder ce problème complexe avec une approche microscopique ou macroscopique. Le modèle dont il est question dans la section 5.3 de ce chapitre appartient à la seconde catégorie, c'est une approche relativement simple de l'interaction entre un ion et des atomes de gaz basée sur les données de mobilités atomiques.

5.2 Simulation du mouvement des ions

Ces simulations ont été faites en utilisant le logiciel SIMION [29] (version 6.0). SIMION est un programme de modélisation en trois dimensions des champs et des forces électrostatiques et magnétiques. Il utilise le concept de matrice de potentiel qui, à partir de la définition d'une grille à 2 ou 3 dimensions, assigne à chaque maille élémentaire un état (électrode ou non-électrode) et un potentiel (voltage). La géométrie des électrodes introduite par l'utilisateur permet de définir l'état de toute les mailles du tableau. Les points

dans l'état d'électrodes ainsi définis servent de conditions aux limites pour le calcul des potentiels de tous les autres points de la matrice. La détermination de ces potentiels est basée sur la résolution de l'équation de Laplace par la méthode des différences finies. La charges d'espace, qui n'est pas prise en compte dans l'équation de Laplace, peut être estimée par SIMION par une méthode de répulsion de charges. Toutefois cette option n'a pas été utilisée dans ce travail compte tenu des faibles densités d'ions en question. Ce travail de simulation des trajectoires en utilisant ce logiciel a été réalisé avec des objectifs bien précis qui sont énumérés ici :

1. Spécification des éléments d'optique ionique nécessaires à la décélération du faisceau jusqu'à quelques dizaines d'eV et à son introduction entre les électrodes du quadrupole.
2. Concernant la géométrie du quadrupole lui-même il s'agissait de déterminer son diamètre interne (distance entre les électrodes opposées) ainsi que la segmentation de ces électrodes.
3. Pour finir les simulations ont permis de tester l'influence des paramètres d'opérations du quadrupole (fréquence et amplitude de l'excitation électrique) et des potentiels statiques appliqués sur les éléments d'optique ionique pour l'injection et l'extraction des ions.

Dès le début de l'étude il est apparu légitime de décomposer la simulation en deux parties que l'on peut considérer comme indépendantes : l'injection et l'extraction des ions du quadrupole à radiofréquence. En effet, on suppose que si les conditions de stabilité sont respectées le transport des ions le long du quadrupole n'est pas une phase critique du mouvement. La première partie de la simulation concerne alors la décélération des ions et leur injection dans les premiers centimètres du quadrupole, elle est traitée à la section 5.2.1. La section 5.2 abordera la seconde partie de la simulation où le point de départ sera une collection d'ions piégés proche de la sortie du quadrupole. La structure de notre système étant symétrique, les géométries définies pour l'injection et l'extraction des ions sont identiques. La figure 5.1 montre une représentation en 3 dimensions de la géométrie de cet ensemble optique d'injection-quadrupole.

5.2.1 Simulation de l'injection des ions dans le RFQ

En préalable à la simulation du système lui-même il est nécessaire d'avoir une représentation fidèle du faisceau d'ions incident. On abordera alors la modélisation de ces conditions initiales de l'état du faisceau d'ions puis la simulation elle-même.

Création des conditions initiales du faisceau d'ions

Le faisceau produit par notre banc d'essai avait anciennement fait l'objet d'une étude et sa nature en termes de dispersions spatiale et angulaire est relativement bien connue dans les plans horizontal et vertical. Ces caractéristiques ont été testées *a posteriori* par des

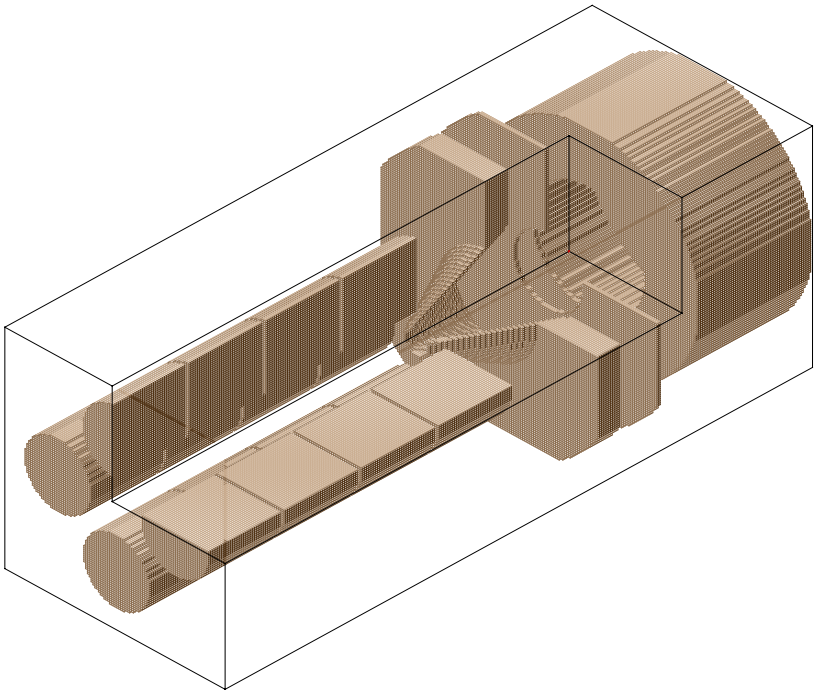

FIG. 5.1: *Représentation de la géométrie introduite dans la simulation SIMION. Les dimensions de ce volume sont* $60 \times 60 \times 160\ mm^3$. *Cette partie correspond à la géométrie représentée sur la figure 4.3.*

tests effectués avec une version préliminaire de l'émittance-mètre (l'émittance-mètre est abordé au chapitre 4). Cette version de l'instrument n'était pas encore assez avancée pour délivrer des mesures précises et fiables pour des raisons de résolution angulaire insuffisante. Dans la limite de la confiance que l'on peut accorder à ces mesures les tests effectués se sont montrés compatibles avec les caractéristiques pré-établies. Il a été possible d'attribuer à notre faisceau de test une émittance de l'ordre de 15 $\pi\, mm\, mrad$ dans les deux plans (pour une énergie de 6 keV) qui sera utilisée pour les simulations. La situation du faisceau ISOLDE est cependant différente car on lui attribue une émittance de 35 $\pi\, mm\, mrad$ à 60 keV (voir section 1.5). Cette valeur devra être prise en compte lors des simulations du système d'optique ionique à pleine énergie.

Un programme a été crée permettant de générer les conditions initiales du faisceau. Les paramètres dont dépendent ces caractéristiques sont l'énergie du faisceau, la dispersion spatiale et angulaire ainsi qu'une distance de "dérive" (voir chapitre 3 et figure 3.1). La distribution des ions a été supposée gaussienne. Un exemple caractéristique de la modélisation du faisceau d'ions incident est représenté sur la figure 5.2.

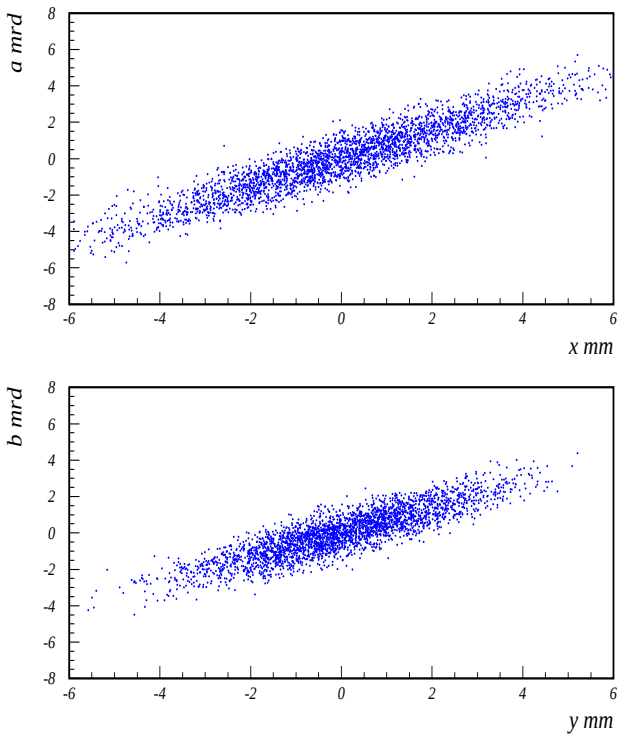

FIG. 5.2: *Conditions initiales des ions pour les simulations concernant l'injection dans le RFQ. Le diagramme* (x, a) *représente le plan vertical et* (y, b) *le plan horizontal. Le champ magnétique utilisé pour la selection en masse, qui introduit une convergence dans le plan vertical, explique que la distribution de faisceau ne soit pas symétrique dans les deux plans. L'émittance associée est de* $15\ \pi\ mm\,mrad$ *dans le plan vertical et* $12\ \pi\ mm\,mrad$ *dans le plan horizontal pour une énergie de transport de* $6\ keV$.

Simulation de l'injection du faisceau d'ions

La problèmatique de cette partie de la simulation est alors, dans un premier temps, de caractériser la forme et la disposition des électrodes de décélération. Cette spécification doit également tenir compte des impératifs techniques comme la tenue en tension du système et le flux de gaz de l'intérieur vers l'extérieur du quadrupole. Compte tenu du fait que cette phase du développement concerne un prototype à basse énergie ($\leq 10 keV$), la partie statique de décélération est relativement compacte ($20\ mm$ entre l'électrode à la masse et le cône d'injection). La nécessité de ne pas trop dégrader le vide dans cette partie conduit quant à elle à limiter l'ouverture d'entrée des ions. Ce qui a pour effet de limiter l'acceptance du dispositif vis-à -vis du faisceau incident.

Une fois la géométrie du système établie le travail de simulation consiste à étudier l'influence des paramètres de fonctionnement sur l'efficacité de l'injection des ions. Cette

introduction dans le quadrupole est d'autant plus difficile que la décélération du faisceau d'ions est forte. Pour augmenter l'efficacité de l'injection il est intéressant d'utiliser les premiers segments du quadrupole pour que la dernière partie de la décélération se fasse à l'intérieur du quadrupole où le mouvement transversal des ions est contraint par le champ électrique.

Les ions, dont les conditions initiales sont définies dans la section précédente et représentées sur la figure 5.2, sont alors introduits dans la géométrie définie dans SIMION (figure 5.1). La figure 5.3 montre l'injection de ce faisceau à une énergie de $50\,eV$ entre les électrodes du RFQ. On peut vérifier que la séparation de la simulation des phases d'injection et d'extaction se justifie car les ions qui n'ont pas été perdus dès l'introduction dans le quadrupole ont des trajectoires stables.

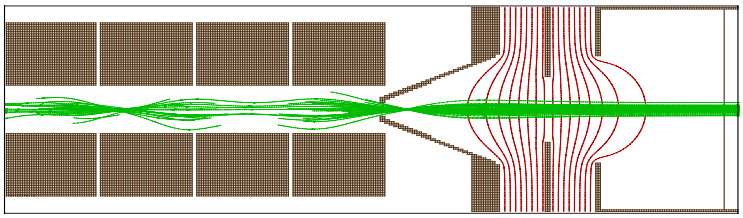

FIG. 5.3: *Représentation en coupe de la simulation de l'injection des ions dans le quadrupole. La décélération du faisceau de* $6\,keV$ *(qui arrive par la droite) est obtenue en portant la lentille Einzel à un potentiel de* $+3\,kV$ *et le quadrupole à*$+5,9kV$*. Les 4 premiers segments sont respectivement alimentés par des potentiels de* $+10V$, $+20V$, $+35V$, $+50V$*. Le RFQ opère avec une fréquence de* $900\,kHz$ *et une amplitude d'oscillation crête à crête de* $100\,V$*. Cela correspond à une valeur du paramètre de Mathieu* $q = 0,5$*.*

5.2.2 Simulation de l'extraction des ions du RFQ

De la même façon que pour l'injection, la simulation de l'extraction des ions du quadrupole nécessite au préalable d'étabir des conditions initiales aussi réalistes que possible. Cela signifie générer un faisceau d'ions dont la dimension dans l'espace des phases est représentative du refroidissement effectué le long du quadrupole. Cela sous entend qu'il faut introduire la température du faisceau d'ions. Cette génération sera abordée dans une première partie avant de passer à la simulation des trajectoires elle-même.

Création des conditions initiales de la collection d'ions

Créer ces conditions initiales implique d'établir un lien entre la température et la distribution en énergie d'une collection d'ions dans un champ électrique quadrupolaire à radiofréquence. Le fait que les ions dans un piège de Paul possèdent une distribution gaussienne en espace et en vitesse permet de définir cette température en terme de dispersion de ces paramètres.

Le mouvement des ions dans un piège de Paul a été établi dans le chapitre 2. On a vu au cours de la section 2.3.2 ainsi que dans la section 3.3 que ce mouvement pouvait être considéré comme une oscillation harmonique dans un puits de pseudo-potentiel (le macro-mouvement) auquel se superposent des petites oscillations (le micro-mouvement).

Si le mouvement d'oscillation harmonique est statistiquement distribué en phase et en amplitude (voir figure 3.2) le micro-mouvement est effectué en phase par toutes les particules et son amplitude est définie par la position de chaque ion dans la trappe. L'énergie associée à ce dernier mouvement n'est alors pas distribuée de manière statistique et ne rentre pas directement dans la définition de la température pour des valeurs faibles du paramètre de stabilité q (voir la section 3.3.3 à propos du chauffage RF).

Dans la première section les caractéristiques du faisceau à injecter dans le RFQ étaient directement liées à la manière dont se forment les ions dans les sources. Cela avait conduit à supposer que les positions et les vitesses des ions pouvaient être générées de manière indépendante. Dans le cas présent le mouvement d'oscillation harmonique à l'intérieur du piège implique un couplage entre ces deux paramètres. Cette relation, déjà exprimée au cours du chapitre 3, s'écrit dans chaque direction u transversale du mouvement :

$$E_u = \frac{p_u^2}{2m} + \frac{1}{2}m\left(\omega u\right)^2 = \frac{1}{2}kT \tag{5.1}$$

Dans l'approximation d'un champ quadrupolaire parfait l'équation 2.17 nous montre que les deux directions transverses du mouvement restent tout de même indépendantes. Le point de départ de cette modélisation est de générer l'énergie de chaque ion conformément à la définition statistique de la température de Boltzmann (équation 3.9). A partir de cette valeur et de l'équation 5.1 il est alors possible d'associer à l'ion une trajectoire dans une direction transverse du mouvement. Cette trajectoire peut être représentée par une ellipse dans cet espace (u, p_u) comme le montre la figure 5.4. Sur chacune de ces ellipses on génére une phase Φ aléatoire d'où l'on tire les coordonnées u^i et p_u^i de l'ion. Pour un ensemble d'ions les paramètres u et p_u sont distribués avec une statistique gaussienne. Les déviations standards σ_u et σ_{p_u} de ces gaussiennes sont données en fonction de la température par les expressions :

$$\sigma_u = \frac{1}{\omega}\sqrt{\frac{kT}{m}} \;\; et \;\; \sigma_{p_u} = \sqrt{mkT} \tag{5.2}$$

Comme on l'a expliqué au début de la section, le point de départ de la simulation de l'extraction est situé quelques centimètres avant l'extrémité finale des électrodes. Arrivé à ce point, le faisceau devrait, selon les simulations concernant l'interaction ion-gaz (section

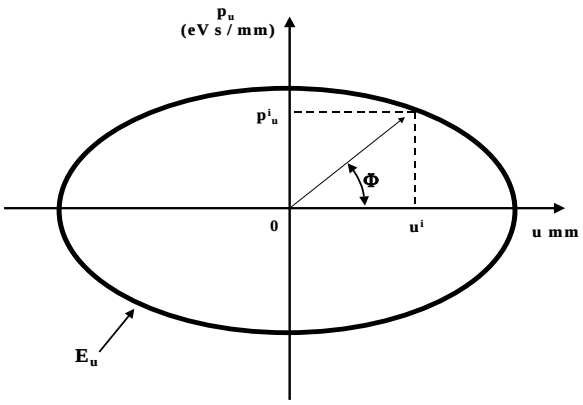

FIG. 5.4: *Méthode employée pour la reconstitution des conditions initiales des ions. L'ellipse représente le mouvement d'oscillation harmonique d'un ion dans l'espace des phases pour une énergie déterminée à partir de l'équation de Boltzmann. La phase de l'ion dans ce mouvement est déterminée aléatoirement par l'intermédiaire de l'angle* Φ.

5.3), être thermalisé par l'action du gaz donc avoir une température d'environ 300^oK. Il faut cependant garder à l'esprit que le modèle d'interaction développé ne prend pas en compte certains effets comme la charge d'espace et le chauffage RF (voir section 3.3.3) qui font augmenter la température d'équilibre finale. Si les faibles intensités des faisceaux d'ions exotiques nous permettent de limiter la charge d'espace, le chauffage RF à beaucoup plus d'influence sur la température du faisceau et son estimation quantitative est très difficile. La distribution du faisceau dans l'espace des phases est basée sur une température de 900^oK trois fois supérieure à la température thermique pour avoir une marge de sécurité.

Simulation des trajectoires d'extraction

La géométrie de cette partie de la structure est identique à celle de l'injection des ions. Dans ce cas les ions, dont les conditions initiales ont été modélisées dans la partie precédente, sont introduits dans la dernière partie du quadrupole. Contrairement au cas de l'injection, les ions sont ici soumis à un champ électrique axial dirigé dans le sens de leur mouvement.

L'énergie cinétique axiale procurée aux ions par le gradient de potentiel permet, en plus de l'évitement de l'arrêt des particules dans la structure, de diminuer le rapport vitesse radiale sur vitesse axiale qui, dans chaque plan transversal, détermine les angles que font les ions avec l'axe du quadrupole. En effet si dans les directions transverses le mouvement des ions est entretenu par le champ électrique radiofréquence, l'énergie longitudinale des ions est, quand le faisceau est en équilibre thermique avec le gaz, uniquement fixé par le champ électrique axial.

La figure 5.6 montre un exemple de ces trajectoires pour une distribution du faisceau d'ions associée à une température de 900^oK (figure 5.5 en bas).

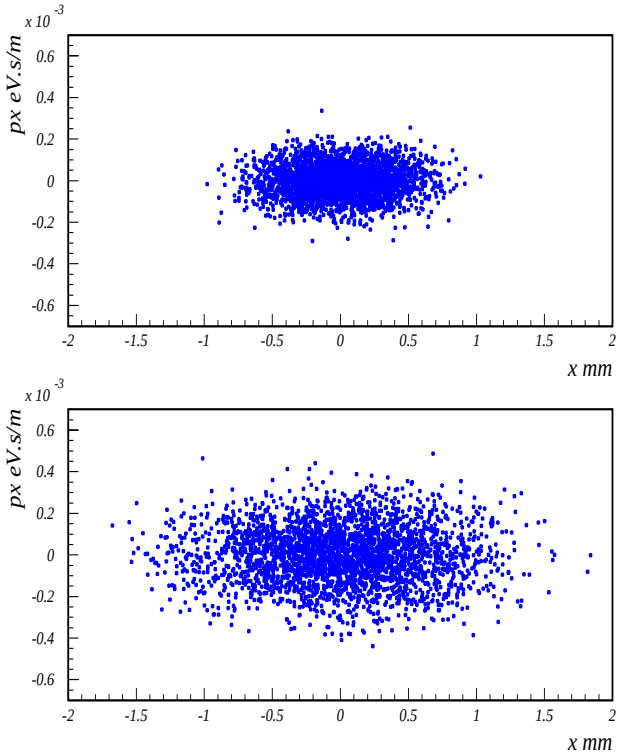

FIG. 5.5: *Distribution du faisceau dans l'espace des phases générée pour la simulation de l'extraction des ions du RFQ. Les températures associées aux deux distributions sont* 300^oK *en haut et* 900^oK *en bas pour une valeur de* $\omega = 1,7\ 10^5 s^{-1}$.

5.3 Simulation de l'interaction ions-gaz

Depuis longtemps l'interaction entre des ions et un gaz léger, neutre et inerte est utilisée pour obtenir une perte d'énergie de ces ions. Aujourd'hui encore la connaissance du pouvoir d'arrêt d'un gaz est une donnée importante pour des applications à haute énergie où cette interaction peut être considérée en termes de collisions élastiques de type "sphères dures". A plus basse énergie cette interaction est dominée par les polarisations induites dans l'atome ou la molécule de gaz. Ce sujet complexe reste un problème d'actualité dans les milieux ultra-froids (jusqu'aux condensats de Bose-Einstein) où les récents développements de pièges ions permettent de tester les modèles ([37], [38]).

Le refroidissement du mouvement des ions a été démontré pour la première fois en 1965. Il concernait une collection d'ions Hg dans une trappe de Paul en présence d'un gaz d'hélium. Les principes théoriques de base de cette interaction furent proposés par Dehmelt en 1967 [15] puis de manière plus approfondie par Dawson en 1976 [16]. Ce phénomène a aussi été observé plus récemment dans un piège de Penning par Savard et al [6]. Le refroidissement d'ions dans un piège de Penning, de nature complètement différente de celui

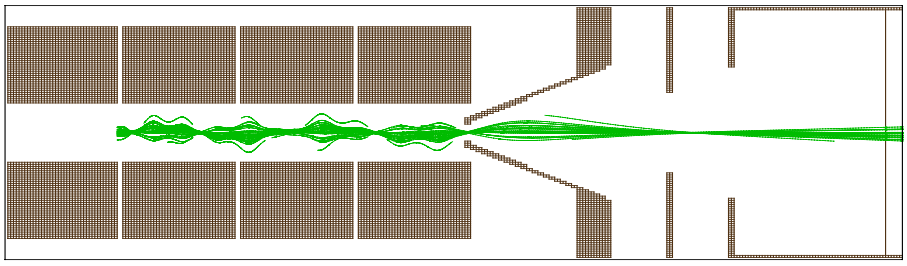

FIG. 5.6: *Simulation de l'extraction des ions du quadrupole. Les ions, introduits sur la gauche, se déplacent vers la droite. Le champ axial est ici définit en appliquant les potentiels statiques* $+5V$, $+3V$, $+2V$ *et* $+1V$ *sur les 4 derniers segments (en addition à la haute tension et au signal radiofréquence). La lentille Einzel est portée à* $+2000V$ *et l'électrode de droite est à la masse. Les paramètres de fonctionnement du piège sont identiques à ceux appliqués pour l'injection des ions (figure 5.3).*

effectué dans un piège de Paul à cause du caractère instable du mouvement magnétron (voir section 2.4, sera abordé au cours du chapitre 7 dans le contexte de l'expérience ISOLTRAP.

Suite à ces démonstrations Douglas et French eûrent l'idée en 1992 d'utiliser cette technique dans un piège de Paul à deux dimensions, un quadrupole à radiofréquence, et démontrèrent à leur tour que l'introduction d'une faible quantité de gaz à l'intérieur du quadrupole produisait une augmentation de la transmission du faisceau d'ions à travers un trou d'un millimètre de diamètre à la sortie du quadrupole [17], ce qui semblait être une mise en évidence indirecte du refroidissement du mouvement transversal de l'ion. Plus récemment encore le travail plus détaillé de Kim [12] sur un quadrupole à radiofréquence à montré la possibilité d'effectuer ce refroidissement sur les dimensions transversales du mouvement.

Cette technique peut être considérée comme universelle dans la mesure où elle n'impose quasiment aucune selectivité parmi les différentes espèces d'ions à refroidir (la masse de l'atome de gaz doit toutefois être inférieure à celle de l'ion pour des raison de chauffage RF). De plus ce mécanisme est d'autant plus rapide que la pression de gaz est élevée. Cela permet d'atteindre des durées de refroidissement suffisamment courtes pour pouvoir manipuler des isotopes de très courte durée de vie. La technique de refroidissement par gaz tampon sera donc particulièrement bien adaptée à nos besoins (rapidité et non selectivité) dans la mesure où le phénomène de diffusion, qui accompagne le processus de refroidissement, sera maîtrisé par le confinement des ions à l'intérieur du piège de Paul.

Dans le quadrupole la présence de gaz neutre donne lieu à plusieurs mécanismes d'interaction avec les ions. Ces mécanismes sont les collisions élastiques et inélastiques. Dans la gamme d'énergie où l'on introduit les ions dans le piège on peut considérer que les collisions inélastiques sont toutefois peu probables et peuvent être négligées par rapport aux collisions élastiques. Le phénomène d'échange de charge, entre les ions et les atomes de gaz ou des impuretés présente dans le piège, peut lui aussi intervenir. Il est dépendant des espèces chimiques misent en jeu et devient alors difficile à quantifier dans le cas de notre système de refroidissement qui a vocation a fonctionner dans une gamme d'éléments très large. Si dans le cadre du développement du système sur notre banc d'essai à Orsay (décrit au cours du chapitre 4), les éléments alcalins produits présentent peu d'affinités électronique, le phénomène d'échange de charge pourrait au contraire être favorisés à ISOLDE si l'on travaille avec des gaz rares. Dans tout les cas ce phénomène peut être limité en travaillant dans un environnement propre et en purifiant le gaz introduit dans le quadrupole.

Parmi les différentes méthodes possibles pour modéliser l'interaction entre les ions et les atomes de gaz dans le piège, nous présenterons au cours de cette section la technique, basée sur une approche macroscopique, utilisée dans ce travail.

5.3.1 L'approche macroscopique

En opposition à l'approche microscopique, qui consiste à remonter aux mécanismes élémentaires de l'interaction ion-gaz pour reproduire l'ensemble des quantités observables, l'approche macroscopique consiste à traiter l'interaction de manière globale à travers le concept de mobilité des ions dans le gaz. Ce concept dérive du mouvement d'ions à travers un gaz neutre. Townsend [18] a montré à la fin du siècle dernier que si l'énergie cinétique qu'un ion peut tirer d'un champ électrique appliqué est comparable à son énergie thermique alors la vitesse de déplacement v_d de cet ion sera proportionnelle au champ électrique E appliqué. On définit la mobilité K des ions par ce terme de proportionnalité :

$$\overrightarrow{v_d} = K \cdot \overrightarrow{E} \tag{5.3}$$

Pour un gaz donné cette mobilité est une caractéristique particulière qui peut être utilisée pour l'identification de l'espèce ionique. Cette technique connue sous le nom de Ion Mobility Spectrometry (IMS) est par exemple utilisée en chimie pour la détection des polluants dans l'atmosphère.

La mobilité peut être considérée comme le résultat de toutes les collisions élastiques avec les atomes du gaz. Mécaniquement elle résulte en une force de friction que l'on peut insérer comme un terme supplémentaire dans les équations du mouvement d'un ion piégé. La vitesse limite des ions dans le gaz est atteinte quand cette force de friction f_c est égale à la force électrique, soit :

$$f_c = e \cdot E = e \cdot \frac{v_d}{K} \tag{5.4}$$

Cette force est uniquement fonction du déplacement des ions dans le gaz et existe même en l'absence du champ électrique E. Les équations du mouvement données précédemment par l'expression 2.9 se transforment alors en :

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \frac{e}{mK_x}\frac{dx}{dt} + (U + V\cos\omega t)\,x = 0 \tag{5.5}$$

$$\frac{d^2y}{dt^2} + \frac{e}{mK_y}\frac{dy}{dt} - (U + V\cos\omega t)\,y = 0 \tag{5.6}$$

$$\frac{d^2z}{dt^2} + \frac{e}{mK_z}\frac{dz}{dt} = 0 \tag{5.7}$$

où x et y représentent les directions transversales du mouvement tandis que z est la direction de propagation du faisceau. Dans ce cas le mouvement est amorti exponentiellement avec le temps dans chaque direction suivant l'équation :

$$v = v_0 \exp(-\frac{e}{mK}t) \tag{5.8}$$

Ce qui correspond à une décroissance en énergie :

$$E = E_0 \exp(-\frac{2e}{mK}t) \tag{5.9}$$

où e et m sont la charge et la masse de l'ion et t le temps. Les constantes de temps pour les décroissances de la vitesse et de l'énergie sont alors respectivement $\tau_v = \frac{mK}{e}$ et $\tau_E = \frac{mK}{2e}$.

Nous allons maintenant nous pencher sur la capacité de cette approche simple à reproduire les interactions mises en jeu. D'un point de vue négatif, notre approche macroscopique ne rend pas compte des phénomènes de diffusion ni d'échange de charges. Il est toutefois possible d'introduire l'échange de charges *a posteriori* dans le code de simulation si l'on connait la section efficace du processus. De même le phénomène de diffusion peut être pris en compte si l'on introduit dans le code les solutions de l'équation de Fick ($J = -D \bigtriangledown n$). Sans ce terme l'interaction entre les ions et les atomes du gaz se réduit à un terme dissipatif qui ne modifie pas la direction des particules. Du coté des points positifs, cette approche est entièrement basée sur la connaissance des mobilités qui ont fait l'objet de beaucoup d'études et qui sont tabulées [13] avec précision depuis longtemps.

La perte d'énergie d'un ion dans le gaz est proportionelle au taux de collisions de cet ion avec les molécules ou les atomes de ce gaz. De même la mobilité de l'ion est inversement proportionnelle à ce taux de collision. Si l'on considère que ce taux de collision est proportionnel à la densité de gaz, il en résulte que la mobilité est inversement proportionnelle à cette densité. Cela permet de transformer les valeurs données par les tables qui sont généralement mesurées pour des conditions standards de températures et de pressions. Ces mobilités sont appelés mobilités réduites et notées K_0. Les valeurs pour d'autres densités sont alors données par la formule suivante ou N et P représentent la densité et la pression.

$$K = \frac{N_0}{N}K_0 \tag{5.10}$$

Les données sur les mobilités des ions sont normalisées à des températures et des pressions atmosphériques. L'extrapolation de ces mobilités aux basses pressions en utilisant la

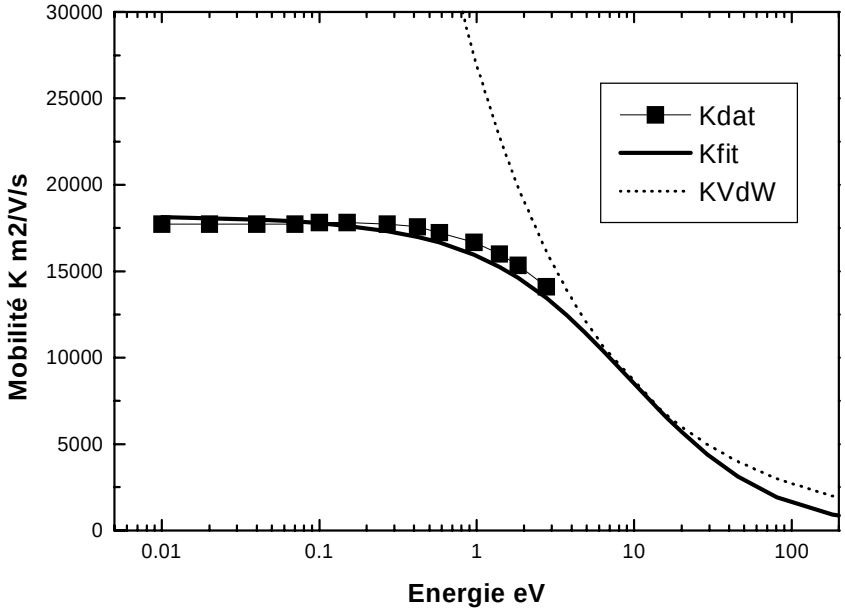

FIG. 5.7: *Paramétrisation de la mobilité d'un ion K^+ en fonction de son énergie cinétique dans un gaz d'Hélium à une pression de 10^{-4}mbar. Les carrés représentent les valeurs mesurées des mobilités et la courbe en pointillé la mobilité équivalente dans le cas d'une interaction de type sphères dures. La courbe en trait plein représente la mobilité utilisée dans la simulation (conformément à l'équation 5.15). Les valeurs des constantes dans ce cas sont trouvées comme étant égale à $c_1 = 0,0455\ m^{-2}Vs$, $c_2 = 5 \cdot 10^{-7}\ m^{-3}Vs^2$ et $c_3 = 9 \cdot 10^{-10}\ m^{-4}Vs^3$.*

formule précédente n'est en toute rigueur valable que pour des champs électriques faibles. A l'équilibre la perte d'énergie due au gaz est égale au gain apporté par le champ électrique. Si celui ci est réduit d'un même facteur que la densité de gaz, la vitesse limite v_d de l'ion dans le gaz sera identique. Il apparaît alors que c'est le paramètre E/N qui détermine le mouvement de l'ion dans le gaz. Les mobilités sont par ailleurs établies en fonction de ce rapport. Dans ce travail il est toutefois apparu plus intuitif de représenter celles-ci en fonction de l'énergie cinétique de l'ion pour une pression de gaz donnée.

A des énergies supérieures à l'énergie thermique du gaz, les mobilités ont tendance à décroitre. Ceci est du au fait que le nombre de molécules de gaz rencontrées par un ion augmente avec sa vitesse. La figure 5.8 montre cette tendance à la décroissance de la mobilité avec la vitesse de l'ion pour quelques éléments.

L'interprétation de ces données de mobilités peut être abordée par le biais d'un modèle prenant en compte un potentiel d'interaction ion-atome. La forme de ce potentiel, qui dépend de la structure atomique de l'ion et de la particule neutre, s'exprime sous la forme :

$$V(r) = \frac{C}{r^n} - \frac{C_6}{r^6} - \frac{C_4}{r^4} \tag{5.11}$$

où les paramètres C sont des constantes et r la distance d'approche. A basse énergie ($\leq 1eV$), c'est-à dire pour une distance d'approche importante, la force dominante de l'interaction est due à la polarisation des atomes de gaz au voisinage de l'ion. Cette polarisation peut être dipolaire (dépendance en $1/r^4$) ou quadrupolaire (dépendance en $1/r^6$) et le signe négatif traduit la caractère attractif de ces forces. Dans ce domaine d'énergie l'effet du passage d'un ion sera de laisser dans dans son sillage des atomes légérement perturbés.

Par comparaison, ces forces sont relativement faibles par rapport à celles mises en jeu à plus haute énergie quand l'interaction peut se faire de plus près. En général ce cas peut être pris en compte dans le potentiel d'interaction par un terme positif ayant une dépendance en $1/r^n$ où n est de lórdre de 12. On peut mesurer l'importance de ces effets à basse énergie en comparant les mobilités mesurées à celles qui correspondraient à l'interaction à plus haute énergie de type "sphères dures". On peut montrer que dans ce cadre la perte d'énergie ΔE d'un ion de masse m_i et d'énergie E dans un gaz stationnaire de masse m_g est :

$$\Delta E = -\frac{m_i \cdot m_g}{(m_i + m_g)^2} E \tag{5.12}$$

Le taux de décroissance en énergie peut alors être exprimé en fonction de cette dernière équation par :

$$\alpha_E = -\frac{\Delta E}{E} N \, \sigma \, v \tag{5.13}$$

où N est la densité de gaz, σ la section efficace de collision associée au volume de Van der Waal du gaz et v est la vitesse de l'ion. Par comparaison de ce taux de décroissance à l'équation 5.9 on peut extraire une mobilité équivalente relative à cette interaction seule :

$$K_{sphere\,dure} = \frac{2e}{m} \frac{(m_i + m_g)^2}{m_i \cdot m_g} \frac{1}{N \, \sigma \, v} \tag{5.14}$$

On peut comparer l'évolution de cette mobilité à celle issue des mesures sur la figure 5.7. Pour de faibles valeurs de la vitesse ces mobilités sont assez différentes mais se rapprochent à des plus grandes énergies quand les interactions de type sphères dures deviennent prépondérantes. A faible vélocité cette différence est confirmée par des mesures de temps de refroidissement dans un piège de Paul [19] qui ont démontré que les ions sont refroidis plus vite que si l'on prenait en compte uniquement des collisions de type sphères dures (ce qui va dans le sens d'une mobilité plus grande pour cette dernière interaction). Notre simulation doit pouvoir être effective à partir de l'énergie à laquelle on introduit les ions dans le quadrupole jusqu'à l'énergie thermique. Le domaine couvert par les données de mobilités est alors insuffisant et doit être extrapolé jusqu'à une énergie de l'ordre de quelques dizaines d'eV. Dans ce sens on utilise une mobilité paramétrisée qui reproduit les données expérimentales à basse vélocité et la mobilité équivalente donnée par 5.14 à partir d'une énergie de l'ordre de quelques eV. Un exemple de cette paramétrisation est montré sur la

figure 5.7 dans le cas d'ion Potassium dans de l'hélium. Dans ce domaine limité d'énergie il apparait que l'on puisse utiliser la paramétrisation suivante :

$$K_{para} = \frac{1}{c_1 + c_2\, v + c_3\, v^2} \tag{5.15}$$

où c_1, c_2 et c_3 sont des constantes et v est la vitesse de l'ion. La mobilité est exprimée en $m^2/V/s$. La figure 5.8 montre la comparaison des mobilités de différents éléments alcalins dans le même gaz d'hélium. Il apparait que les mobilités présentent des valeurs assez comparables.

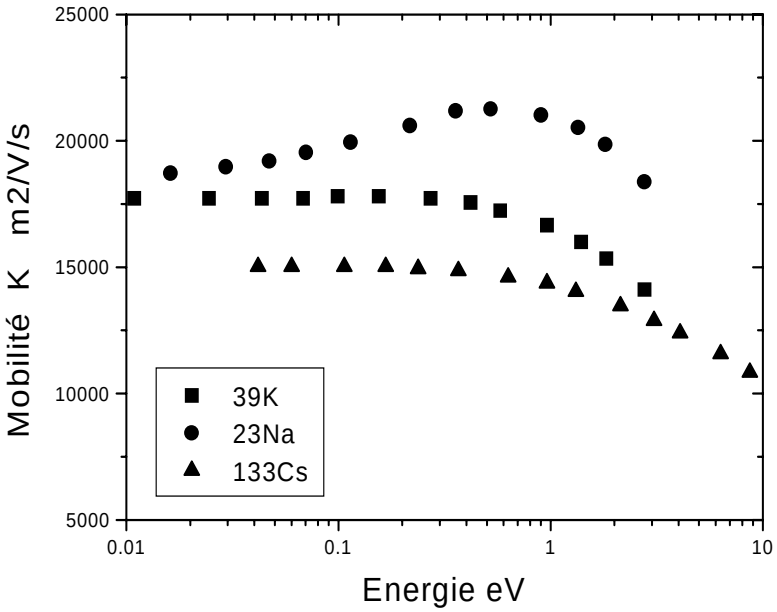

FIG. 5.8: *Comparaison des mobilités de différentes espèces ioniques dans le même gaz d'hélium. Les mobilités sont tracées en fonction de l'énergie cinétique associée à la vitesse de l'ion. Le domaine de mesure est limité par la valeur du champ électrique au delà de laquelle le gaz devient conducteur.*

5.3.2 Comparaison micro/macro

On a vu que l'approche de l'interaction ion-gaz en termes de frottements visqueux est une approximation valide à basse énergie pour des ions de masses beaucoup plus faibles que celles des molécules ou des atomes de gaz. La comparaison de cette modélisation avec une approche microscopique de l'interaction permet de cerner ces limites de validité. La figure 5.9 reprend des calculs effectués par le groupe ISOLTRAP pour comparer les deux

techniques [35]. Elle illustre ces différences par la comparaison du refroidissement d'un ion obtenu d'un côté par une approche macroscopique de type frottement visqueux et de l'autre par une approche microscopique basée sur un calcul Monte-Carlo.

Ces calculs montrent que l'accord entre les deux approches est relativement bon quand le rapport entre la masse de l'ion et la masse du gaz est élevé. Dans le cas contraire la collision de l'ion avec un atome relativement lourd peut faire sensiblement dévier sa trajectoire pour l'amener dans des zones de plus fort champ électrique. Ce processus, appelé le chauffage radiofréquence (voir section 3.3.3), résulte en une augmentation de son énergie cinétique qui peut conduire à l'instabilité de la trajectoire de l'ion comme dans le cas du K^+ dans le gaz de Kr. En comparaison le frottement visqueux ne reproduit pas ces fluctuations statistiques ce qui explique son aspect lissé. De plus le mouvement des ions est, dans cet exemple, refroidi jusqu'à une énergie nulle (cas du K^+ dans l'Argon) alors que dans la réalité l'énergie minimale des ions correspond à l'énergie thermique. Dans le cas du modèle macroscopique développé au CSNSM, on ajoute "artificiellement" un terme fixant cette limite inférieure.

5.3.3 Résultats

Comme on l'a vu dans le chapitre 4 (section 4.1.2) les électrodes du quadrupole sont segmentées pour introduire un champ électrique axial. Cet effet est pris en compte dans la modélisation des trajectoires en modifiant l'équation 5.7 qui décrit le mouvement dans la direction axiale z. Cette équation devient :

$$\frac{d^2z}{dt^2} + \frac{e}{mK_z}\frac{dz}{dt} - \frac{e}{m}E_{axial} = 0 \tag{5.16}$$

où E_{axial} peut prendre deux valeurs selon la position de l'ion dans le quadrupole. Une valeur négative de l'entrée du RFQ jusqu'au quatrième segment où est appliqué le potentiel maximal statique V_{max}. La norme de ce champ électrique est alors égale à $E_{axial} = \frac{V_{max}}{80}\, V\, mm^{-1}$ où $80\, mm$ est la distance entre l'entrée du quadrupole et le centre du segment en question. A partir de cette position le champ électrique prend une valeur positive dont la norme est alors égale à $E_{axial} = \frac{V_{max}}{420}\, V\, mm^{-1}$ où $420\, mm$ est la distance restante jusqu'à la sortie du RFQ.

La figure 5.10 montre les trajectoires simulées macroscopiquement d'un ion ^{133}Cs dans le quadrupole pour quatre pressions d'hélium différentes et un champ axial constant correspondant à un paramètre $V_{max} = 5\, V$. Sur la colonne de droite la représentation de l'énergie radiale (selon la direction u) en fonction de la position de l'ion le long du quadrupole permet de voir si l'équilibre avec le gaz a été atteint. Dans ce cas l'énergie de la particule se stabilise à une valeur $kT/2 \simeq 0,01\, eV$ avec $T = 300^o K$. On voit que pour une valeur de $V_{max} = 5\, V$ et une pression d'hélium d'environ $4 \cdot 10^{-2} mbar$ la modélisation prévoit qu'il est possible de thermaliser le mouvement des ions à l'intérieur du quadrupole. En se reportant à la figure 4.4 on peut alors prévoir que cela correspond à une pression d'environ $7 \cdot 10^{-4} mbar$ à la sortie du quadrupole.

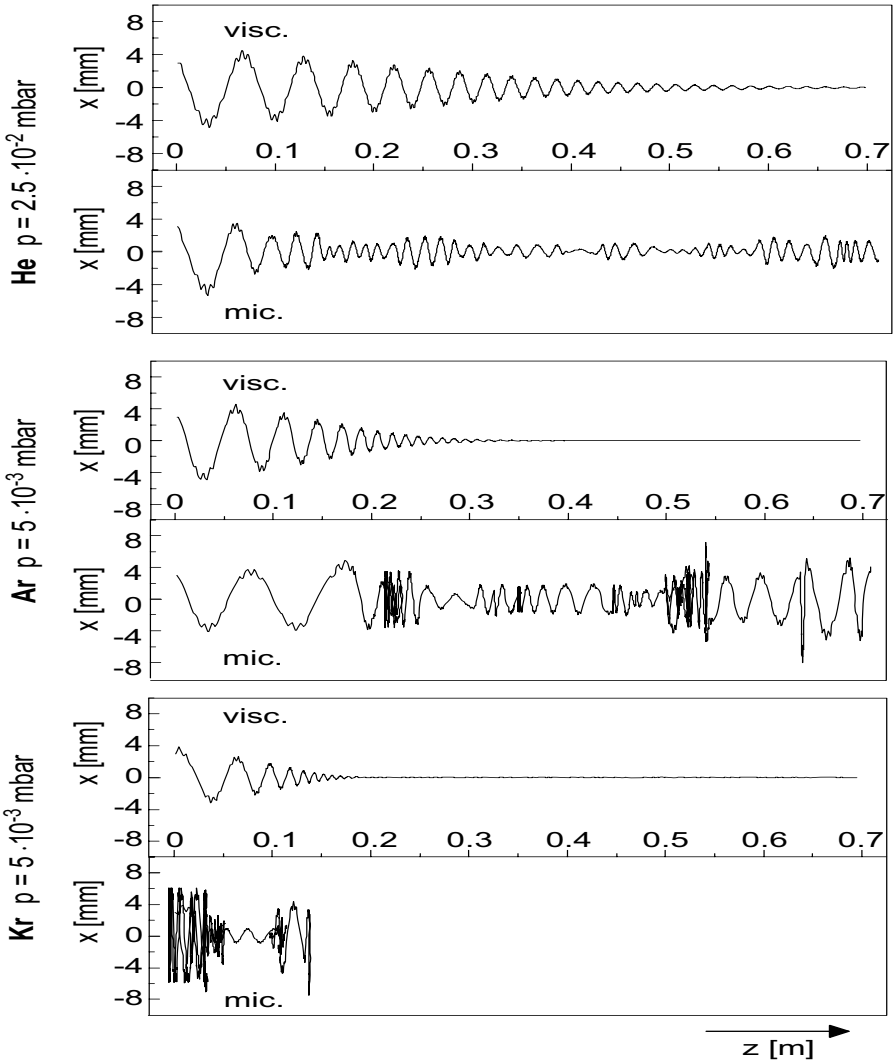

FIG. 5.9: *Comparaison des trajectoires d'un ion dans un piège linéaire à radiofréquence entre un calcul basé sur les frottements visqueux [visc] et une approche miscroscopique [mic]. Les calculs, qui concernent un ion K^+dans des gaz He, Ar et Kr, proviennent du code de calcul développé par Stefan Schwarz dans sa thèse* [5].

Les fluctuations de l'énergie cinétique qui apparaissent sont dues au mouvement des ions en phase avec le champ électrique radiofréquence. Ce mouvement, proportionnel à la distance par rapport à l'axe du piège et visible sur les trajectoires représentées sur la colonne de gauche, illustre les limites de l'hypothèse du pseudo-potentiel développée au cours de la section 2.3.2.

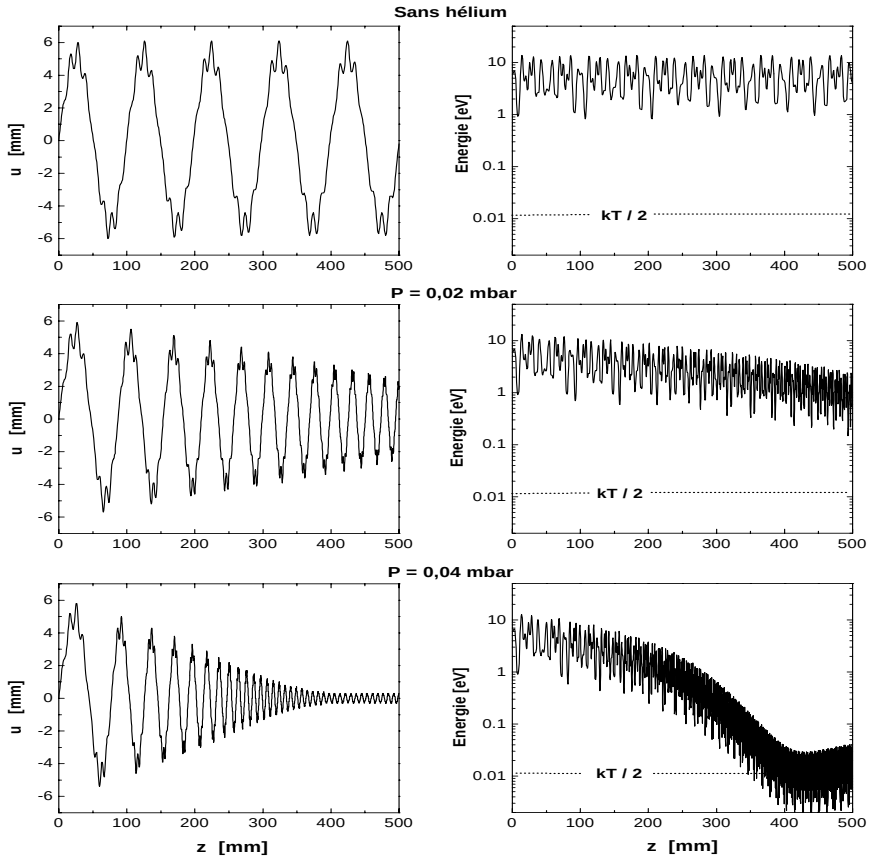

FIG. 5.10: *Modélisation des trajectoires pour différentes pressions de gaz d'hélium avec $V_{max} = 5V$. Les paramètres de stabilité sont $a_u = 0$ et $q_u = 0,3$. Les figures représentent les position radiale (colonne de gauche) ou les énergies radiale (colonne de droite) en fonction de la position axiale.*

Influence du champ axial

Le paramètre V_{max}, qui fixe la valeur du champ électrique le long du quadrupole, permet, pour une énergie d'injection donnée, de moduler la durée du transit des ions à l'intérieur du piège et donc l'efficacité du refroidissement du faisceau (équation 5.9). La détermination de la valeur optimale de ce paramètre va alors résulter de la recherche du meilleur compromis entre la maximisation du temps passé à l'intérieur du piège et l'augmentation de l'acceptance de celui-ci quand on utilise le gradient positif du potentiel axial (à l'entrée du quadrupole) pour appliquer une décélération additionnelle au faisceau introduit (comme on l'a expliqué dans la section 5.2.1). Les valeurs optimales des champs axiaux pour chacun de ces effets ne sont pas du même ordre. En effet, s'il suffit d'un champ axial très faible

(quelques volt pour V_{max}) pour éviter que les ions ne soient stoppés par l'action du gaz, les effets sur l'efficacité d'injection nécessite plutôt quelques dizaines de volts pour être sensible.

Il est à noter que la nécessité de ce compromis résulte directement du choix, effectué lors de la construction du système, d'avoir les électrodes d'injection et d'extraction au même potentiel que l'ensemble du quadrupole. Une plus grande liberté pourrait être offerte par une structure rendant ces électrodes indépendantes d'un point de vue électrique.

La figure 5.11 présente les différences de temps de vol pour des valeurs différentes de V_{max} et une pression d'hélium de $4 \cdot 10^{-2} mbar$. On voit que la durée de transit diminue quand V_{max} augmente. Les temps de vol en question sont, quelque soit la valeur du champ axial utilisé ici, inférieurs à la milli-seconde. Cette durée peut généralement être négligée vis-à-vis des périodes de décroissance radioactive des noyaux étudiés à ISOLDE.

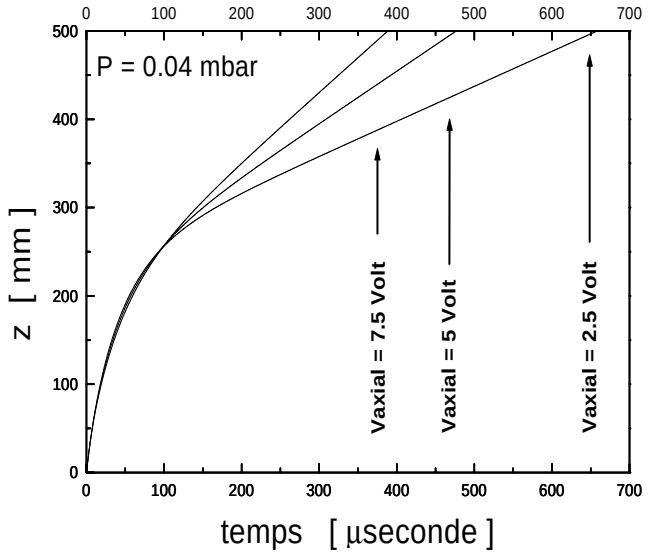

FIG. 5.11: *Représentation du temps nécessaire aux ions pour traverser le quadrupole pour une pression de gaz de* $4\ 10^{-2} mbar$ *et différentes valeurs du champ axial. Les paramètres de fonctionnement du piège, comme pour la figure précédente, sont* $a_u = 0$ *et* $q_u = 0,3$.

Chapitre 6

Résultats expérimentaux

6.1 Introduction

Cette partie de la thèse traitera des mesures effectuées en utilisant le dispositif expérimental décrit au cours du chapitre 4. L'objectif de ces mesures est de mettre en évidence une diminution de l'émittance du faisceau de basse énergie ($\leq 10\,keV$) fourni par notre banc d'essais ainsi que d'estimer la transmission du système. Cela constitue une étape indispensable avant les tests à pleine énergie ($80\,keV$), qui seront également réalisés à Orsay, et finalement l'installation du système de refroidissement auprès du spectromètre MISTRAL sur la ligne de faisceaux ISOLDE. Toutefois, si d'un point de vue technique, le passage à la haute énergie (et à la haute tension pour le quadrupole) n'est pas sans poser de problèmes (sections isolantes à modifier, claquages électriques), les mécanismes d'interactions à la base du refroidissement ne dépendent pas, une fois le faisceau décéléré, de l'énergie du faisceau incident. Les résultats obtenus avec cette version du système de refroidissement détermineront alors la faisabilité de la réduction de l'émittance, en conservant un maximum de transmission, pour un quadrupole de longueur relativement courte ($\sim 500\,mm$) fonctionnant en mode continu. Comme il a été expliqué dans la section 4.1.2, cette longueur est contrainte par la limitation à $1,3\,m$ de l'emplacement destiné à l'installation du système de refroidissement sur la ligne ISOLDE. En comparaison, le quadrupole à radiofréquence d'ISOLTRAP, décrit au cours du chapitre 7, a une longueur d'environ un mètre et fonctionne en mode pulsé, ce qui permet d'augmenter la distance parcourue par les ions dans le piège.

6.1.1 Les "observables" du dispositif expérimental

L'étude expérimentale du système de refroidissement repose sur l'observation de deux variables. D'une part, les variations de l'intensité du faisceau sortant du quadrupole nous fournissent une information globale sur les processus qui se déroulent à l'intérieur du système constitué du piège lui-même mais aussi des parties d'injection et d'extraction des ions. Ces changements dans la transmission du système peuvent être de nature simplement

optique ou bien être interprétés comme une mise en évidence indirecte du refroidissement du faisceau piégé.

Le deuxième paramètre à notre disposition dans cette étude est la distribution du faisceau dans l'espace des phases qui nous est fournie par l'émittance-mètre. Cet instrument a été développé (voir la section 4.2) pour accéder directement à la valeur de l'émittance du faisceau et donc au processus de refroidissement des ions dans le piège. La valeur de l'émittance du faisceau à la sortie du système est de plus le paramètre qui déterminera la transmission du faisceau ISOLDE à travers le spectromètre MISTRAL.

6.1.2 La démarche expérimentale

Dans la continuité du raisonnement appliqué à la simulation des trajectoires, on peut séparer le système de refroidissement en trois parties auxquelles on peut attribuer une efficacité (on définit celle-ci pour chaque partie comme étant le nombre d'ions transmis sur le nombre d'ions incidents). On peut accéder expérimentalement à la valeur de l'efficacité en comparant les mesures d'intensités fournies par les détecteurs d'ions situés en amont et en aval du système de refroidissement (voir la figure 4.1).

1. L'injection dans le piège

L'efficacité de l'injection du faisceau d'ions dans le quadrupole va dépendre de plusieurs facteurs. En premier, l'acceptance du piège qui dépend de la géométrie de celui-ci mais aussi de la profondeur du puits de potentiel crée (voir équation 2.25). En deuxième lieu, l'efficacité de l'injection va dépendre de l'émittance du faisceau incident. On a vu, dans la section 3.1, que l'émittance d'un faisceau est un paramètre normalisé par rapport à l'énergie de transport des ions. Cela se traduit par la relation de conservation :

$$\varepsilon_1\sqrt{E_1} = \varepsilon_2\sqrt{E_2} \tag{6.1}$$

où ε est l'émittance du faisceau et E son énergie cinétique. Quand on décélére le faisceau incident de plusieurs keV ($\leq$ 10 keV pour le banc de tests utilisé à Orsay) jusqu'à quelques dizaines d'eV d'énergie cinétique, son émittance va alors fortement augmenter. Par exemple, l'émittance de notre faisceau d'une valeur estimée à 15 $\pi\, mm\, mrad$ à 6 keV (voir le chapitre 5) atteindra 150 $\pi\, mm\, mrad$ une fois ce faisceau décéléré à 50 eV. En plus de la valeur de l'émittance, la forme de la distribution des ions dans l'espace des phases joue également un grand rôle. A cet égard, la ligne de faisceau de tests utilisé dispose d'éléments d'optique ionique en amont du système de refroidissement afin d'optimiser les conditions de focalisation à l'entrée du quadrupole.

Cette région est caractérisée par le fait que les ions possèdent une énergie axiale importante relativement à leur énergie transversale. Lors des collisions avec les atomes du gaz, une part de cette énergie axiale va être transféré dans la direction radiale et augmenter ainsi la taille de la distribution du faisceau d'ion dans l'espace des phases transverse. Ce phénomène est une source de perte qu'il est difficile de quantifier car il ne peut être pris en compte par notre approche, de type frottement visqueux, de la modélisation ions-atomes.

2. Le transport des ions

Cela concerne la partie centrale du quadrupole entre les parties d'injection et d'extraction. On considère, et cela a été vérifié par les simulations, que cette phase du mouvement se fait avec une très bonne efficacité. Cette efficacité s'explique par le fait que les ions les plus "énergétiques" (qui sont situés dans les régions extrêmes de l'espace des phases) ont été perdus au cours de la première partie du quadrupole.

3. L'extraction des ions

Comme pour l'injection des ions dans le quadrupole, l'extraction des ions est difficile car, comme le montre la figure 3.3, le mouvement des ions en phase avec le champ électrique (le micro-mouvement) va donner, en fonction des paramètres de stabilité utilisés dans le piège, des amplitudes de mouvement supérieures à celles déterminées dans le cadre de l'approximation harmonique. Ce phénomène peut rendre les dimensions du faisceau supérieures à celles de l'orifice de sortie du quadrupole (de 5 mm de diamètre). Toutefois, l'amortissement du mouvement des ions effectué en présence de gaz devrait permettre d'améliorer l'efficacité de cette partie. En effet, les vitesses transversales des ions sont fonction de l'intensité du champ électrique qui est, dans un champ quadrupolaire, proportionnelle à la distance par rapport à l'axe du piège.

Nous commençerons la présentation des résultats expérimentaux par des mesures d'intensité du faisceau à la sortie du quadrupole à radio-fréquence en fonction des conditions de piégeage et de refroidissement. Ces mesures, interprétées par les influences de chacune des trois parties du quadrupole, sont destinées à déterminer, à partir de la première observable de notre dispositif, le point de fonctionnement optimal du système de refroidissement (énergie cinétique des ions introduits, pression de gaz, champ électrique axial et paramètres de piégeage). Par la suite, des mesures d'émittance permettront d'observer directement les effets de l'interaction ions-gaz dans le piège.

6.2 Les effets du potentiel axial

Le quadrupole à radio fréquence décrit au cours du chapitre 4 est, comme on l'a évoqué, le résultat d'une évolution de dispositifs intermédiaires. Parmi toutes ces évolutions (variations de longueur du quadrupole ou de la taille des orifices d'injection et d'extraction des ions, modifications de la géométrie des électrodes), l'ajout d'un champ électrique axial est celle qui a été la plus déterminante dans le fonctionnement du système de refroidissement.

La figure 6.1 présente le résultat des mesures effectuées avec une version antérieure du piège qui ne disposait pas encore de la possibilité d'introduire ce champ axial (cette version d'une longueur de 300 mm était par ailleurs plus courte que le dispositif actuel de 500 mm). Les intensités de faisceau mesurées à la sortie du quadrupole en fonction du paramètre de stabilité q (voir équation 2.18) montrent une diminution moyenne de la

hauteur de ces courbes quand on augmente la pression d'hélium à l'intérieur du piège. En l'absence d'un guidage axial des ions, on interprète cette baisse par un blocage progressif des ions à l'intérieur du quadrupole sous l'action du gaz.

Sur la première courbe, sans hélium, on observe une succession de pics d'intensité sur un fond continu. Ce phénomène peut être interprété en considérant que la transmission du faisceau est maximale lorsque la durée du parcours des ions entre les orifices d'entrée et de sortie du système correspond à un multiple de la demi-période du mouvement d'oscillation harmonique. Dans ce cas, l'efficacité de l'extraction est optimisée car les ions sont sur l'axe du quadrupole. Par ailleurs, on a pu établir que le nombre de pics observés est plus grand quand on augmente la fréquence du potentiel appliqué sur les tiges du quadrupole (et donc la fréquence du mouvement d'oscillation harmonique, voir équation 2.16) ou encore que l'on diminue la vitesse des ions. Le lissage des courbes de transmission que l'on observe quand on introduit du gaz peut s'expliquer par la perte d'énergie, de nature statistique, des ions dans l'hélium.

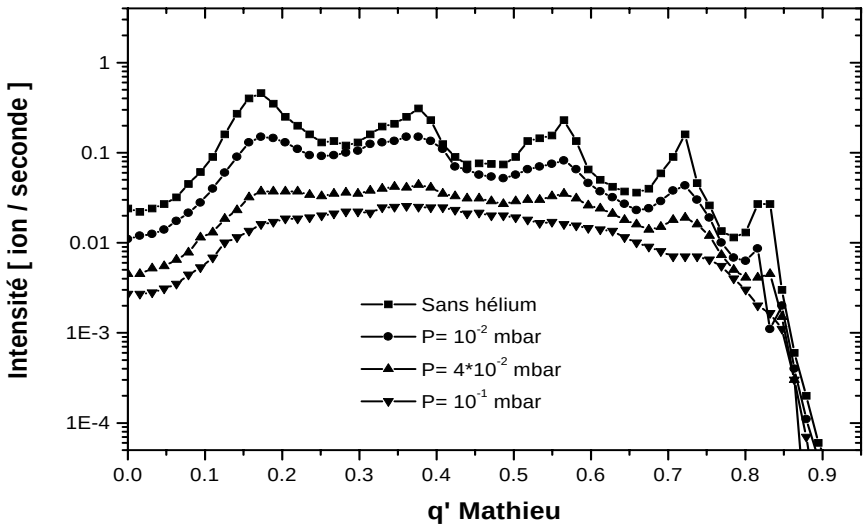

FIG. 6.1: *Représentation de l'intensité (normalisée) d'un faisceau d'ions* $^{39}K^{+}$ *en sortie du quadrupole en fonction du paramètre de stabilité q (pour une fréquence fixe de* $700kHz$*) pour plusieurs pressions d'hélium à l'intérieur du quadrupole. L'énergie cinétique d'injection des ions dans le quadrupole est de 60 eV. Ces courbes concernent une version antérieure du quadrupole plus court (*~ 300 *mm) et ne comportant pas de champ axial. L'échelle verticale est logarithmique.*

Les résultats de la figure 6.1 illustrent la nécessité d'un champ électrique axial pour le quadrupole à radio-fréquence. Par ailleurs, on a vu au cours du chapitre 5 concernant les simulations (voir la figure 5.11) que la distribution de potentiel axial intervient à plusieurs

niveaux car elle permet également de moduler le temps de parcours des ions dans le piège. L'évolution de l'intensité du faisceau à la sortie du quadrupole en fonction de la valeur V_{max} (qui définit la force électrique axiale de la manière décrite dans la section 5.3.3), présentée sur la figure 6.2, permet d'observer ces deux effets (ces courbes se rapportent donc au système expérimental actuel décrit au cours du chapitre 4). De plus, il faut considérer que, comme cela est expliqué au cours de la section 4.1.2, la force électrique axiale est, dans la première partie du quadrupole, dirigée dans le sens contraire du mouvement de propagation du faisceau d'ions. Les ions entrant dans le piège doivent alors franchir, comme le montre la figure 4.2, une barrière de potentiel dont la hauteur est fixée par V_{max}.

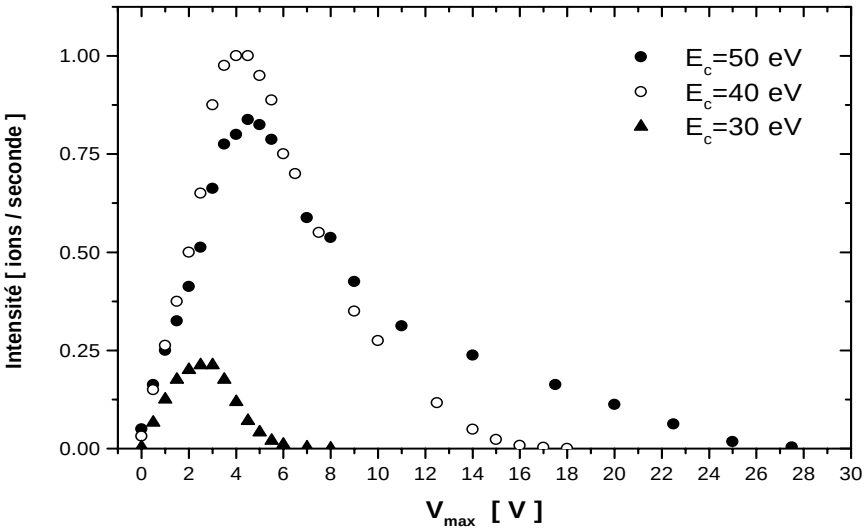

FIG. 6.2: *Représentation de l'intensité (normalisée) d'un faisceau d'ions* $^{23}Na^{+}$ *en sortie du quadrupole en fonction de la valeur* V_{max}. *Ces mesures correspondent à une pression de gaz (hélium) de* $4\ 10^{-2}$ *mbar pour différentes énergies cinétiques* E_c *des ions dans le quadrupole. Le piégeage des ions est obtenu avec une fréquence de* $700\,kHz$ *et un paramètre de Mathieu* $q = 0,5$.

Ces courbes montrent une première phase au cours de laquelle l'intensité augmente rapidement avec V_{max}. Ce gain correspond aux ions que le champ électrique axial, dans la seconde partie du piège où il est dirigé dans le sens de propagation du faisceau, autorise maintenant à sortir du quadrupole. La décroissance observée quand on augmente V_{max} peut être interprétée de manière différente selon l'énergie des ions. Dans le cas où les ions sont le plus fortement décélérés, $E_c = 30\,eV$, elle s'explique par la perte d'énergie des ions au contact du gaz dans la partie du piège où le potentiel est croissant. A partir d'un certaine valeur de V_{max}, que l'on trouve sur cette courbe égale à $3\ V$, les ions n'ont plus assez d'énergie cinétique pour franchir le maximum de potentiel situé à 80 mm de l'entrée du

quadrupole. Du reste, la largeur de la zone de décroissance observée ($\sim 5\,V$) est compatible avec la dispersion en énergie cinétique attendue du faisceau d'ions incident.

Pour les énergies cinétiques plus élevées, $E_c = 40\,eV$ et $E_c = 50\,eV$, la diminution de l'intensité observée ne peut pas s'expliquer, à partir de $V_{max} \sim 4\,V$, de la même manière. Dans ce cas, on interprète cette décroissance par la diminution de la durée de l'interaction ion-gaz qui, comme on l'a vu dans nos simulations (figure 5.11) accompagne l'augmentation de V_{max}. La durée de parcours des ions dans le piège étant liée (voir l'équation 5.9) au refroidissement des ions, une diminution de celle-ci va avoir un effet sur l'efficacité de l'extraction des ions. La "coupure" du faisceau évoquée pour $E_c = 30\,eV$ intervient également mais pour des valeurs plus élevées de V_{max} (on observe sur la droite des courbes que les écarts entre les valeurs limites de ce paramètre sont de l'ordre de la différence entre les énergies cinétiques des ions, soit $10\,V$).

La conclusion que l'on peut tirer de l'analyse de ces courbes est que la valeur du champ axial minimal nécessaire pour éviter que les ions ne soient stoppés dans le piège est d'environ $4V$ à la pression de gaz considérée ($4\,10^{-2}$ mbar). Des mesures effectuées à des pressions de gaz différentes ont permis d'établir que la dépendance de cette valeur optimale de V_{max} par rapport à la pression est très faible et varie entre 4 et 5 V dans le domaine de pression utilisé.

6.3 Le piégeage des ions

Les premières mesures à entreprendre concernent le piégeage procuré par le quadrupole à radio-fréquence. Ce confinement dans les directions transversales du mouvement peut être observé par l'intermédiaire de la transmission du faisceau à travers le système. On peut se rendre compte de la nécessité d'un piégeage transversal en observant la figure 6.3 qui présente les intensités de faisceaux mesurées à la sortie du quadrupole en fonction du paramètre de stabilité q des ions dans le piège de Paul (défini dans la section 2.3.1) pour plusieurs valeurs de la pression d'hélium.

Il apparaît que pour $q = 0$, c'est-à-dire aucun piégeage, la transmission du faisceau à travers le système est nulle et commence à augmenter en même temps que la force de confinement transversale. Sur la première courbe, sans hélium, on observe, comme pour la figure 6.1, une succession de pics d'intensité sur un fond continu.

Quand on introduit du gaz ce phénomène n'apparaît plus et on observe une augmentation continue de l'intensité du faisceau sortant jusqu'à un certain seuil au delà duquel celle-ci est constante et enfin une décroissance du nombre d'ions transmis. La valeur du paramètre de stabilité à partir de laquelle l'intensité est nulle ($q \simeq 0,9$) est conforme à la limite prévue $q = 0,908$ (voir la section 2.3) où les trajectoires des ions dans le piège deviennent instables. La première phase peut être attribuée à l'augmentation de la profondeur du puits de potentiel crée dans le piège qui permet, dans la partie d'injection des ions dans le quadrupole, "d'accepter" des ions dont l'énergie cinétique transversale est de plus en plus grande. La décroissance observée ensuite jusqu'à $q \simeq 0.9$ s'explique par le fait que l'amplitude du mouvement des ions en phase avec la radio-fréquence (le micro-mouvement), qui

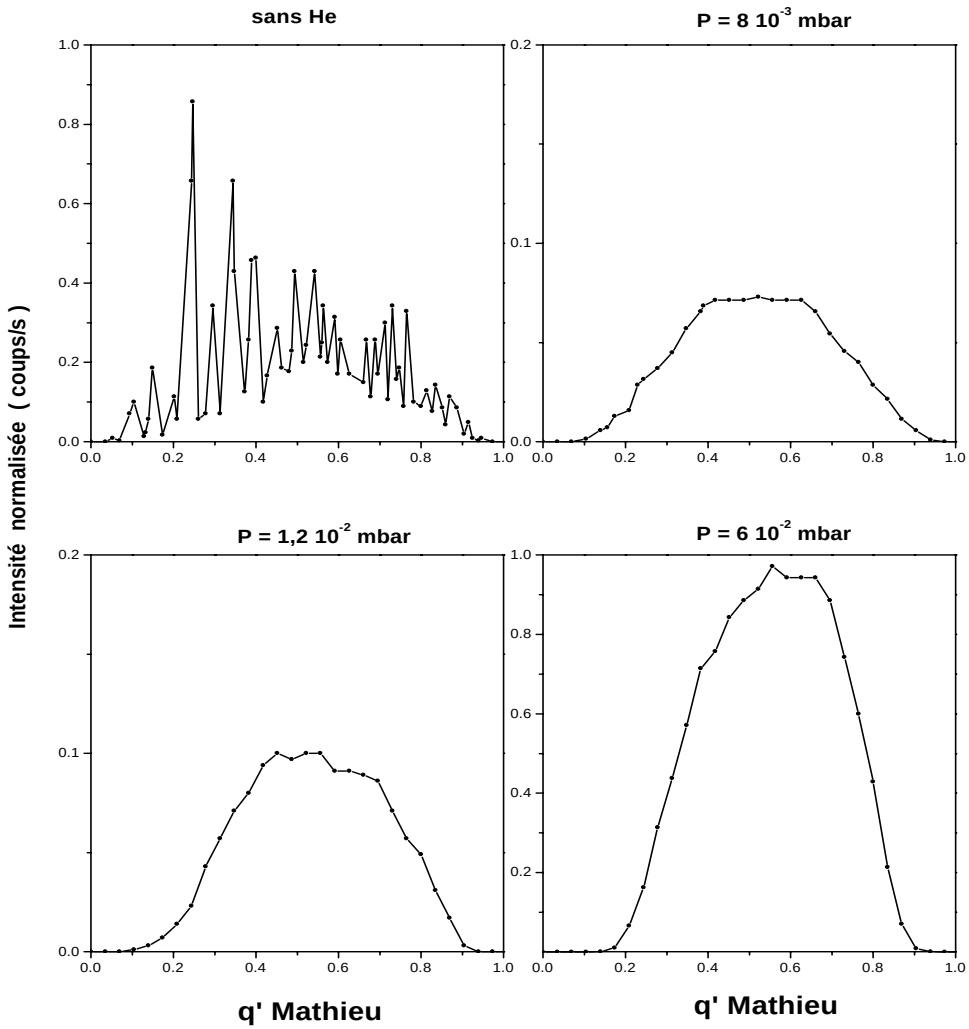

FIG. 6.3: *Variation de l'intensité de faisceau mesurée à la sortie du quadrupole en fonction du paramètre de stabilité q (définit par l'équation 2.18). La variation de ce dernier est obtenue, à fréquence fixe (F=700 kHz), en modifiant l'amplitude du potentiel radio-fréquence aux bornes des tiges du quadrupole. Ces mesures ont été faites avec un faisceau de* $^{23}Na^{+}$ *décéléré jusqu'à 60 eV. La distribution du potentiel axial est donnée par* $V_{max} = 4V$ *pour toute ces courbes.*

est proportionnelle au champ électrique, devient de plus en plus importante et l'approximation du mouvement harmonique (développée au cours de la section 2.3.2) n'est alors plus valable. Si l'on se représente le mouvement de l'ion piégé dans l'espace des phases (voir la figure 3.3), il apparaît que, quand le micro-mouvement n'est plus négligeable, les amplitudes du mouvement sont nettement augmentées et peuvent être supérieures à la

taille du piège.

Il est à noter que, dans son travail de thèse [12], Kim Taeman avait observé un élargissement de la zone de stabilité à mesure que la pression de gaz augmentait dans le piège (la valeur maximale du paramètre q n'était pas constante). La figure 6.3 nous montre que ce phénomène n'est pas observé dans notre cas. L'interprétation de cette différence réside dans le domaine de pression utilisé. En effet, le phénomène observé dans ce travail ne commence à être sensible qu'à partir de pressions de gaz très élevées (entre $1\ 10^{-1}$ mbar et $6\ 10^{-1}$ mbar) qu'il est difficile d'atteindre dans notre cas sans détériorer fortement la qualité du vide à l'extérieur du système.

Il faut toutefois signaler que ces courbes montrent une forte baisse de l'intensité pour de faibles pressions de gaz ($8\ 10^{-3}$ mbar et $1,2\ 10^{-2}$ mbar). Ce phénomène, difficile à interpréter dans le cadre du fonctionnement normal du système, peut être expliqué par la mise en évidence d'une décharge électrique apparaissant dans la première partie du quadrupole sous l'effet conjugué de la haute tension du quadrupole et de l'introduction du gaz d'hélium. Cette décharge a pour effet d'ioniser les molécules ou les atomes présents sous forme résiduelle dans le piège et il est possible de recueillir à la sortie du quadrupole, faisant alors office de source, les ions en question (toutefois les intensités mesurées, de l'ordre de quelques ions par seconde sont négligeables devant celles correpondantes à notre véritable faisceau). La sélectivité en masse du confinemement dans un piége de Paul a permis d'établir que ces espèces ionisées sont principalement composées d'éléments de masse 18 que l'on attribue alors à des molécules de vapeur d'eau H_2O^+. Ce phénomène de décharge peut intervenir à plusieurs niveaux dans le fonctionnement de notre système.

En premier lieu l'observation d'une corrélation entre la baisse constatée de la transmission du faisceau incident à travers le système et l'augmentation du nombre d'ions crées dans le piège semble montrer que cette décharge électrique est la cause d'une baisse d'intensité de faisceau. Toutefois les mécanismes de cette perte peuvent être nombreux, complexes (modification de l'état de charge des ions incidents, interaction avec des molécules résiduelles lourdes, atténuation du piégeage lié à la puissance dissipée) et donc difficiles à évaluer. Egalement, le phénomène de transfert entre l'énergie axiale et radiale, dont on a parlé au début du chapitre, peut constituer une source de pertes dépendante de la pression de gaz utilisée.

A une pression plus élevée on observe toutefois une remontée de l'intensité. Ce phénomène peut s'interpréter par une augmentation de l'efficacité de l'extraction des ions due au refroidissement des ions. La pression de $6\ 10^{-2}$ mbar en question est de plus compatible avec le domaine de pression prédit par les simulations décrites au cours du chapitre 5.

Beaucoup plus difficiles à évaluer sont les effets de cette décharge sur le refroidissement du faisceau d'ions dans le quadrupole. En particulier, l'interaction entre les ions incidents et les éléments résiduels ionisés par la décharge, de masse bien supérieure à l'hélium, peut amplifier le phénomène de chauffage RF (voir la section 3.3.3) et imposer une limite inférieure à la température d'équilibre du faisceau avec le gaz d'hélium. Ce problème sera abordé au cours de la section 6.6 où sont présentées les mesures d'émittance.

6.4 La transmission du système

Le fonctionnement du quadrupole à radio-fréquence est notamment caractérisé par sa transmission c'est-à-dire le rapport de l'intensité du faisceau sortant sur l'intensité du faicseau incident. Ce paramètre est d'autant plus important que la finalité du système est d'améliorer la sensibilité du spectromètre MISTRAL vis-à-vis du faisceau d'ions exotiques d'ISOLDE faiblement produit.

Cette transmission est, comme on le décrit au début de ce chapitre, la composition des transmissions spécifiques à chaque partie du quadrupole, à savoir l'injection, le transport et l'extraction des ions du système. Il est à noter que notre dispositif expérimental ne permet d'accéder qu'aux valeurs de la transmission totale du système. Les valeurs spécifiques à chaque partie, qui pourraient être données par une mesure du courant déposé par le faisceau sur les électrodes du système, sont inaccessibles du fait des intensités de faisceaux relativement faibles délivrées par notre banc de tests ($\sim 10^6$ ions par seconde au maximum).

De plus, il faut signaler que la décharge électrique mis en évidence dans la section précédente provoque probablement une perte d'intensité du faisceau qui est difficile d'évaluer et rend difficile l'interprétation des valeurs mesurées de la transmission totale du système. Cependant, ce phénomène n'intervient qu'en présence de gaz et il reste alors possible d'évaluer de manière plus réaliste la transmission "intrinsèque" du quadrupole en l'absence d'hélium. Dans ces conditions et en se plaçant dans la configuration de la figure 6.3 (sans hélium) on obtient une transmission qui varie entre 1% et 5% en fonction du paramètre de stabilité q.

Que nous apporte la simulation ?

La modélisation du système de refroidissement, décrite dans le chapitre 5, est composée d'une part de l'interaction ions-atomes dans le piège (section 5.3) et d'autre part la simulation des trajectoires des ions dans les phases d'injection et d'extraction du quadrupole (section 5.2). Cette décomposition de la modélisation du fonctionnement du quadrupole ne permet pas de déterminer directement le taux de transmission global du système qui pourrait être comparé à la valeur expérimentale. En particulier, la séparation de la modélisation du refroidissement des ions piégés et de l'extraction ne permet pas d'obtenir des données quantitatives fiables sur l'efficacité de l'éjection des ions du quadrupole.

Au contraire, la simulation de l'injection du faisceau, que l'on considère indépendante du refroidissement des ions, peut nous donner des informations directes sur l'efficacité de cette phase. A cet effet, l'efficacité de cette introduction des particules dans le piège est déterminée d'une part par la distribution en position et en énergie cinétique transversale du faisceau décéléré à l'entrée du quadrupole et d'autre part par la force de confinement transversale créée dans le piège.

En ce qui concerne le premier point, la figure 6.4 présente la simulation des caractéristiques du faisceau décéléré à l'entrée du quadrupole (quand les ions sont introduits dans le champ quadrupolaire de piégeage). La forme de la distribution obtenue pour chacune des différentes décélérations appliquées est caractéristique du fait que, comme le montre la

figure 5.3, le faisceau est focalisé en amont de son introduction dans le piège : les ions les plus éloignés de l'axe du quadrupole sont alors ceux qui ont l'énergie transversale la plus élevée. On peut voir sur cette figure que si les dimensions de l'électrode d'injection (matérialisée par les pointillés) sont fixes, l'augmentation de la profondeur du puits de potentiel du piège permet d'en améliorer l'acceptance (au prix cependant d'une augmentation de la distortion RF de la distribution du faisceau dans l'espace des phases).

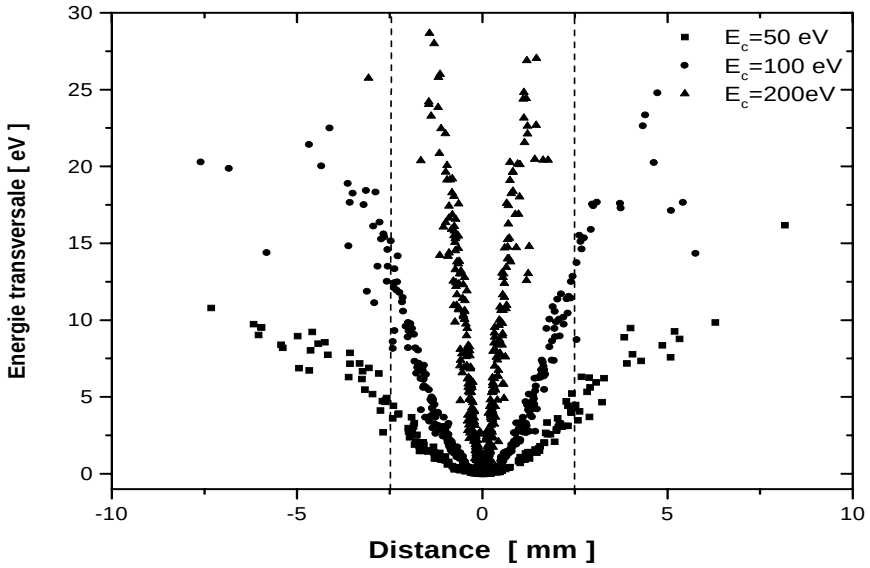

FIG. 6.4: *Simulation de la distribution du faisceau décéléré à l'entrée du quadrupole dans le plan défini horizontalement par la distance par rapport à l'axe du piège et verticalement par l'énergie transversale des ions. Les limites physiques de l'électrode d'injection dans le quadrupole (un orifice de 5 mm de diamètre) sont représentées par les lignes verticales en pointillés. On représente cette distribution pour différentes énergies d'injections du faisceau dans le piège.*

Les valeurs de la transmission de l'injection fournies par la simulation montrent une forte dépendance, pour une émittance du faisceau incident donnée, vis-à-vis de la forme de la distribution du faisceau dans l'espace des phases (le maximum étant obtenu pour un faisceau focalisé à l'entrée du piège). Cela souligne l'importance de disposer en amont du quadrupole d'élements d'optiques ioniques permettant de contrôler finement la focalisation des ions dans la région d'injection. Ces propriétés du faisceau incidents étant difficiles à évaluer précisément, on s'attend d'après les résultats de la simulation à une transmission comprise entre 10% et 40%. Compte tenu du fait que le réglage des élements optiques est basé sur l'optimisation de l'intensité du faisceau sortant du piège, on peut supposer que la transmission cette partie se situe dans la partie haute de cette fourchette. A la sortie du quadrupole, la modélisation des trajectoires (utilisant la géométrie indiquée sur la figure

5.6) nous indique, en l'absence de gaz et dans les mêmes conditions de confinement que pour l'injection, une transmission d'environ 40% (quand le mouvement des ions est thermalisé on obtient une valeur proche de 100%). Finalement, la valeur de la transmission totale du système est attendue entre 4% et 16% dans le vide.

Cette valeur est à comparer à la valeur mesurée de 5% présentée dans la section précédente. Cependant, cette mesure qui résulte du rapport des intensités de faisceaux en amont et en aval du système (en utilisant les détecteurs indiqués sur la figure 4.1) n'est pas strictement une mesure directe de la transmission du quadrupole car elle est également soumise aux pertes liées à la détection des ions (déflection et taille limitée des détecteurs) qui n'ont pas été estimées. De plus, les simulations ne rendent pas compte des défauts d'alignements existants dans toute ligne de faisceaux réelle et qui introduisent à leur tour des pertes d'ions notamment dans la phase d'introduction du faisceau dans le piège.

6.5 La durée de l'interaction ions-gaz

En plus de la pression de gaz elle-même, le refroidissement obtenu est également fonction de la durée de l'interaction entre les ions et le gaz dans le quadrupole. On peut moduler ce paramètre en agissant sur l'énergie cinétique des ions injectés dans le piège et l'intensité du champ électrique axial (statique). On a vu au cours du chapitre 5 que cette force était fixée par la valeur du potentiel V_{max} portée sur le quatrième segment du quadrupole. La figure 6.5 présente des mesures relatives d'intensités en fonction de l'énergie des ions et de la valeur V_{max} pour deux pressions d'hélium.

Pour commencer on peut vérifier là encore, sur les parties gauches de ces figures où V_{max} est faible, qu'en présence de gaz il est indispensable d'avoir un champ axial pour éviter que les ions ne soient stoppés à l'intérieur du quadrupole. Aux pressions considérées, aucun ion n'est transmis lorsque ce champ est nul. On observe également que, sur la courbe du haut où la pression de gaz est plus élevée, la valeur du "seuil" nécessaire en V_{max} est plus forte que pour la figure du bas. On retrouve ce décalage dans les valeurs du potentiel donnant les intensités maximales de faisceau (les zones noires sur la figure). Du côté droit de la figure, la baisse de transmission est attribuée, comme on l'a vu au cours de la section 6.2, à la diminution du temps de parcours des ions dans le quadrupole. La valeur optimale de la transmission résulte donc, relativement au potentiel axial, d'un compromis entre l'efficacité de l'extraction des ions du quadrupole et la maximisation du temps de parcours.

Du point de vue des énergies cinétiques d'injection des ions, un raisonnement analogue sur la durée de l'interaction ions-gaz permet d'interpréter ces mesures. Là aussi la maximisation du temps de parcours des ions dans le gaz favorise la transmission à travers le système. De plus, la diminution de l'énergie cinétique axiale d'injection des ions permet de diminuer le transfert d'énergie entre la direction axiale et transversale, en présence de gaz, qui est source de pertes d'ions. A très faible énergie toutefois, la décroissance de l'intensité observée peut s'interpréter d'une part par une augmentation très rapide de l'émittance du faisceau incident (voir équation 6.1) et par le blocage des ions dans la première partie du piège (entre l'entrée et le quatrième segment) où ils ont une barrière de potentiel (V_{max}) à

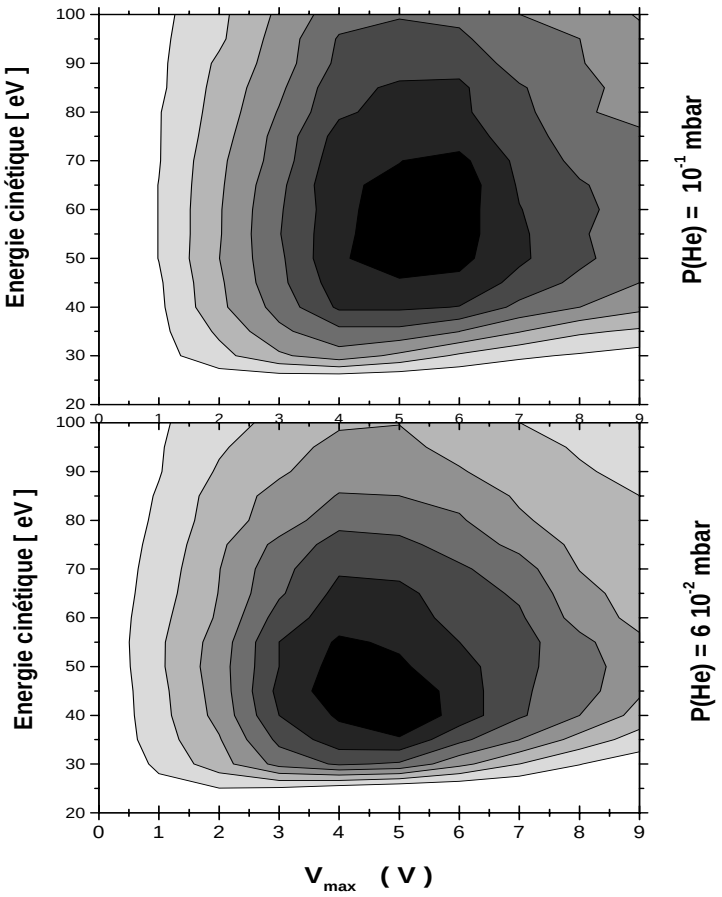

FIG. 6.5: *Variation relative des intensités mesurées à la sortie du quadrupole en fonction de l'énergie cinétique d'injection des ions et de la valeur du potentiel axial (les parties les plus sombres correspondent aux intensité les plus élevées). La figure du haut est tracée pour une pression de* 10^{-1} *mbar et celle du bas pour* $6\,10^{-2}$ *mbar. Ces mesures ont été faites avec du* $^{23}Na^{+}$ *pour une fréquence de piégeage de 800 kHz et un paramètre de stabilité* $q = 0,6$.

franchir.

La figure 6.6 présente, pour la pression $6\,10^{-2}$ mbar, une série de mesures similaires mais réalisées avec un piégeage caractérisé par un paramètre de stabilité inférieur ($q = 0,3$ contre $q = 0,6$). Cela permet de tester les effets de la profondeur du puits de potentiel transversal crée à l'intérieur du piège. Cette force de confinement, qui varie avec le paramètre de stabilité, est de 6,5 eV pour $q = 0,6$ et de 1,5 eV pour $q = 0,3$. La comparaison de cette courbe avec la figure 6.5 (en bas), illustre le lien entre l'acceptance du quadrupole et la force de confinement transversal : quand on augmente la profondeur du puits de potentiel, la zone définissant le point de fonctionnement dans le plan (E_c, V_{max}) est plus étendue. En ce qui concerne les transmissions absolues, on obtient une intensité environ 10 fois plus élevée, à pression de gaz égale, quand on travaille avec un puits de potentiel près de quatre fois plus profond.

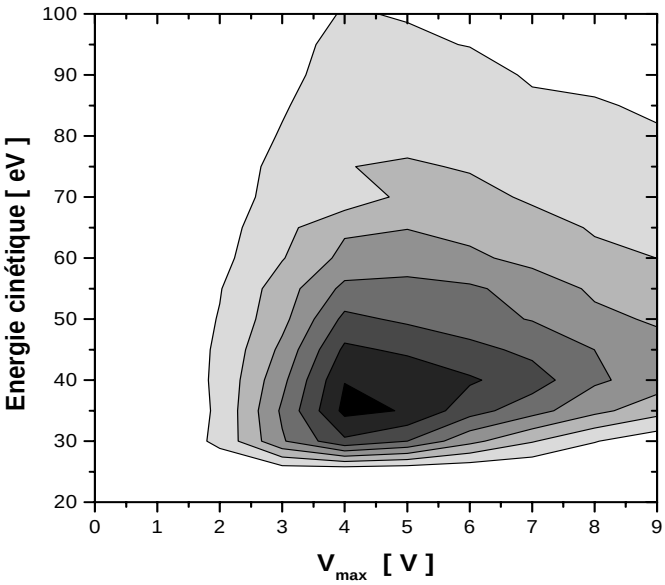

FIG. 6.6: *Variation relative de l'intensité mesurée à la sortie du quadrupole en fonction de l'énergie d'injection des ions et du paramètre V_{max}. Ces mesures ont été faites avec du $^{23}Na^{+}$ pour une fréquence de piégeage de 800 kHz, un paramètre de stabilité $q = 0,3$ et une pression d'hélium de $6\ 10^{-2}$ mbar.*

6.6 Les mesures d'émittances

Après les observations liées à la mesure de la trasmission du faisceau à travers le piège, cette section traitera de la caractérisation directe de l'émittance du faisceau en utilisant l'émittance-mètre développé à cet effet et décrit au cours de la section 4.2. Le but de cette étude étant de mettre en évidence une réduction de l'émittance du faisceau sous l'effet de l'interaction ions-gaz dans le piège, on commencera par caractériser la distribution des ions dans l'espace des phases en l'absence de gaz.

6.6.1 Caractérisation du faisceau non refroidi

En conséquence du théorème de Liouville, discuté au début du chapitre 3, la dimension d'une collection d'ions dans l'espace des phases ne peut varier que si les ions sont soumis à des forces dissipatives comme l'interaction ions-gaz. Dans un piège de Paul et en l'absence de gaz tampon, les seules forces mises en jeu sont électriques et ne rentrent pas dans cette catégorie. On peut alors s'attendre à ce que la valeur de l'émittance mesurée à sortie du quadrupole soit une constante quand on n'y introduit pas de gaz.

Cependant la figure 6.7, qui représente des mesures d'émittances pour différentes configurations du piégeage, montre une contradiction avec ce principe. On observe que, pour

une fréquence d'application du potentiel identique, la modification de l'amplitude de ce signal (et donc du paramètre de stabilité q) provoque une variation de la valeur mesurée de l'émittance (l'émittance augmente avec q).

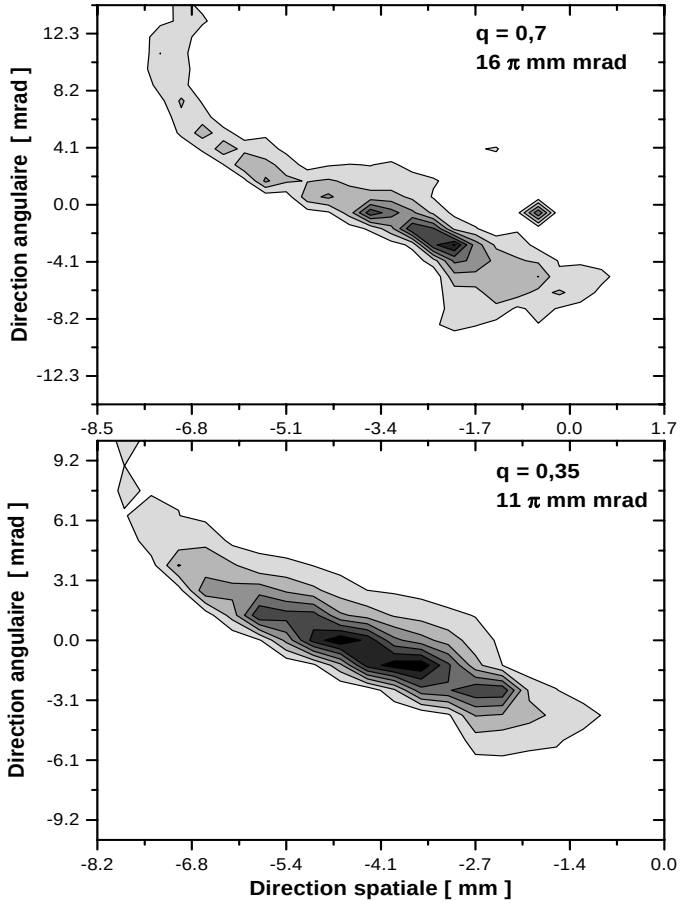

FIG. 6.7: *Mesure des émittances à la sortie du quadrupole (sans gaz tampon) pour des ions* $^{23}Na^{+}$ *piégés avec une fréquence de 700 kHz pour un paramètre de stabilité* $q = 0,7$ *(figure du haut) et* $q = 0,35$ *(figure du bas). Les valeurs des émittances correspondantes sont écrites sur les figures.*

L'explication de cette apparente contradiction avec le théorème de Liouville peut être trouvée dans le micro-mouvement des ions dans le piège. On a vu dans la section 3.2 que ce mouvement est réalisé en phase avec le champ électrique et que son amplitude est proportionnelle au potentiel appliqué sur les tiges du quadrupole. Dans un certain domaine du diagramme de stabilité (jusqu'à $q \leq 4$, voir la section 2.3.2), ce mouvement peut être négligé et on se trouve alors dans l'approximation du mouvement harmonique c'est-à-dire que l'on considère que les ions dans le piège ont un mouvement d'oscillation harmonique dans un puits de pseudo-potentiel. La trajectoire d'un ion dans l'espace des phases peut alors être representée par une ellipse alignée sur les axes (u, p_u). Quand on augmente q, la figure 3.3 nous montre que cette ellipse se déforme en fonction de la phase de la radio-

fréquence. Même si ces modifications de forme se font à aire constante et que l'émittance de la collection d'ions reste constante à chaque instant, l'émittance-mètre considère une projection moyennée dans le temps de la distribution du faisceau dans l'espace des phases. Cela explique l'augmentation mesurée de l'aire de cette distribution quand on augmente le paramètre de Mathieu q.

La détermination du point de fonctionnement du piège sera le compromis entre la profondeur du puits de potentiel, qui est importante pour l'efficacité de l'injection du faisceau dans le quadrupole, et la limitation du micro-mouvement qui augmente la taille "apparente" du faisceau dans l'espace des phases et diminue l'efficacité de l'extraction. Dans ce sens, une augmentation de la fréquence d'application du potentiel permet d'obtenir, à q constant, une force de confinement transversal plus élevée. Toutefois, la plage de fonctionnement en fréquence de notre système, représentée par la courbe de résonance 4.6, n'offre pas une grande liberté dans ce domaine. La solution idéale consisterait en une amplitude du signal décroissante le long du quadrupole.

6.6.2 L'émittance en présence de gaz d'hélium

Une des premières choses que l'on peut vérifier quand on introduit du gaz dans le quadrupole est la persistance de la variation de l'émittance mesurée en fonction des paramètres de piégeage. La figure 6.8 présente la comparaison des mesures d'émittances réalisées dans les conditions de la figure 6.7 en présence cette fois-ci d'une pression de gaz de $6\,10^{-2}$ mbar. Les valeurs mesurées, respectivement $6,5\ \pi\, mm\, mrad$ et $10\ \pi\, mm\, mrad$ pour $q = 0,35$ et $q = 0,7$, montrent encore un écart qui est comparable en proportion avec celui obtenu sans le gaz (respectivement $11\ \pi\, mm\, mrad$ et $16\ \pi\, mm\, mrad$). On constate donc dans les deux cas la réduction de l'émittance du faisceau et la persistance d'un écart en fonction du paramètre de Mathieu q. Le fait que cette réduction de l'émittance soit plus forte, en proportion, dans le cas où q et le plus faible peut être interprété comme la conséquence du chauffage RF (voir section 3.3.3) qui augmente avec le paramètre de stabilité. Bien que cela soit très difficile à évaluer quantitativement, il est probabe que ce phénomène soit amplifié par la présence dans le piège d'ions de masse comparable à celle du sodium (N_2, H_2O) issus de l'ionisation de l'air résiduel par la décharge électrique évoqué précédemment.

Influence de la durée de l'interaction ions-gaz

Les mesures présentées sur la figure 6.5 montrent que l'on peut obtenir des différences sensibles de transmission du faisceau quand on déplace le point de fonctionnement dans le plan (E_c ; V_{max}). On a interprété ces variations de transmission à pression constante comme étant la conséquence d'une réduction de l'émittance du faisceau piégé due à l'augmentation du temps d'interaction des ions avec le gaz.

L'émittance-mètre permet maintenant de vérifier cette interprétation. La figure 6.9 présente une mesure de l'émittance réalisée dans les mêmes conditions de pression d'hélium ($6\ 10^{-2}$ mbar) et de confinement (Fréquence = 700 kHz, $q = 0,7$) que précédemment. Le point de fonctionnement ($E_c = 50$ eV ; $V_{max} = 5$ V) utilisé cette fois-ci permet, conformé-

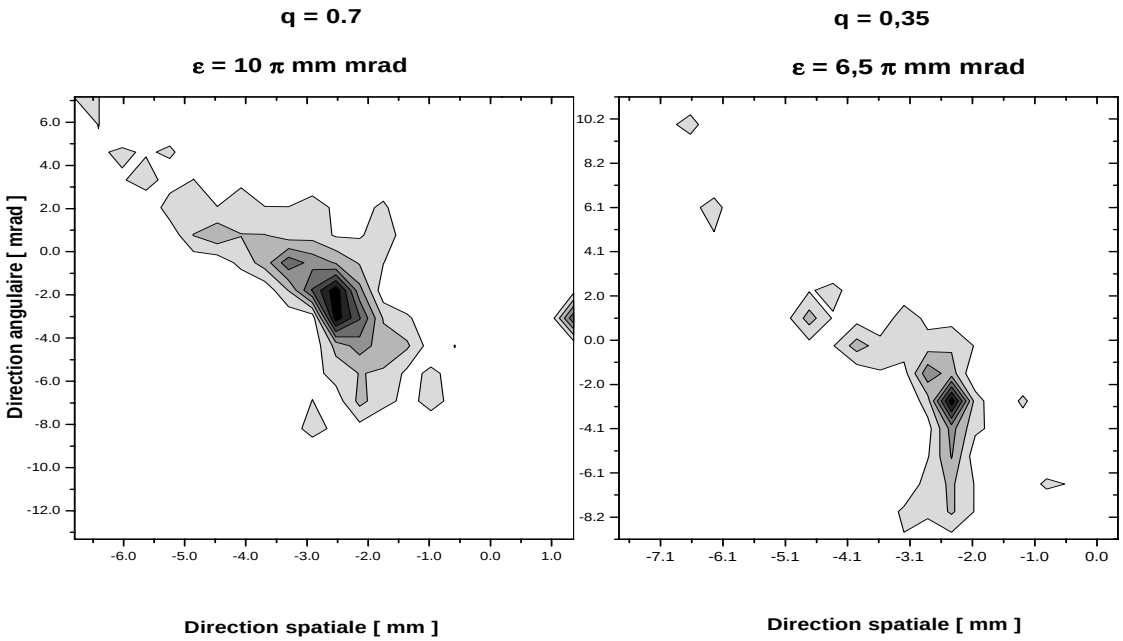

FIG. 6.8: *Mesure des émittances à la pression* $6\,10^{-2}$ *mbar pour un faisceau de Na introduit à 100 eV dans le quadrupole pour deux valeurs du paramètre de stabilité q (le potentiel* V_{max} *est dans les deux cas de 4 V et la fréquence de 700 kHz).*

ment à ce qui est attendu, d'augmenter sensiblement la transmission des ions à travers le système (environ un facteur 5). La valeur mesurée de l'émittance est dans ces conditions de $8,5\ \pi\, mm\, mrad$ alors que l'on avait $10\ \pi\, mm\, mrad$ dans les conditions ($E_c = 100$ eV ; $V_{max} = 4$ V).

6.7 Conclusion

Les mesures présentées dans ce chapitre permettent de démontrer une réduction de l'émittance du faisceau incident. Toutefois, le gain relativement faible obtenu laisse penser que la décharge électrique mise en évidence peut avoir des effets non négligeables sur le refroidissement des ions notamment par l'intermédiaire du chauffage RF. Les résultats présentés dans cette partie doivent alors, dans ce sens, être considérés comme préliminaires et sont amenés à évoluer rapidement une fois que le problème de décharge électrique, identifié et localisé, aura été résolu.

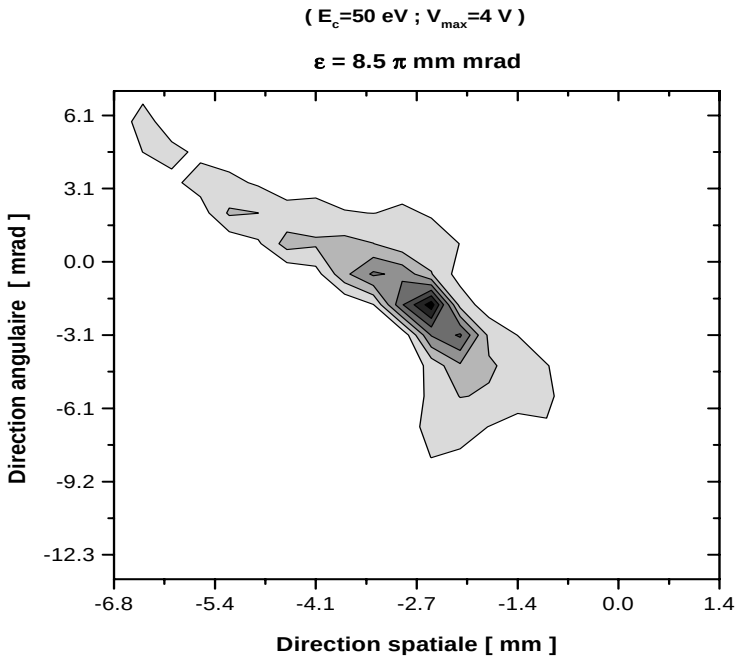

FIG. 6.9: *Emittances à la pression* $6\ 10^{-2}$ *mbar pour un faisceau de Na décéléré à 50 eV dans le quadrupole. Les paramètres du confinement sont* $q = 0,7$ *et* $700kHz$ *(le potentiel* V_{max} *est de 4 V).*

Chapitre 7

Les mesures de masse avec l'expérience ISOLTRAP

ISOLTRAP est un spectromètre de masse dédié à la mesure des noyaux loin de la stabilité [4] . Il est installé, au même titre que MISTRAL, auprès de la ligne de faisceaux radioactifs ISOLDE décrite dans le chapitre 1. Le principe de la mesure repose, comme dans le cas de MISTRAL, sur la détermination de la fréquence cyclotron d'un ion dans un champ magnétique. Dans le cas d'ISOLTRAP il s'agit de la fréquence cylotron d'un ion dans un piège de Penning. On a vu au cours du chapitre 2 (section 2.4) que cette fréquence apparaît indirectement dans les équations du mouvement d'un ion dans ce piège.

La partie spectromètre d'ISOLTRAP consiste en deux pièges de Penning en série. Le premier d'entre eux est utilisé pour collecter, refroidir et opérer une sélection en masse du faisceau ISOLDE pour le transférer dans la deuxième trappe dédiée à la mesure de la masse elle-même. Contrairement à MISTRAL, qui fonctionne avec le faisceau quasi-continu d'ISOLDE de 60 keV, le spectromètre ISOLTRAP fonctionne en mode pulsé à une énergie typique de 3 keV. Cela nécessite alors l'emploi préalable d'un dispositif capable de collecter et refroidir le faisceau continu à "haute énergie" d'ISOLDE pour le mettre sous forme de paquets de basses énergies et de faible émittance qui seront envoyés vers le premier piège de Penning. Cette partie était anciennement assurée par un piège de Paul à trois dimensions dans lequel était directement injecté le faisceau d'ions. Ce système ne donnait pas entière satisfaction à cause d'une faible efficacité de transmission et de l'introduction d'une grande dispersion en énergie cinétique. Il a dernièrement été remplacé par un quadrupole linéaire à radiofréquence.

Dans le cadre d'une collaboration liant les groupes ISOLTRAP et MISTRAL une partie de ce travail de thèse, d'une durée intégrée d'environ 6 mois, a consisté en une participation à l'élaboration de ce nouveau projet jusqu'à son montage et sa mise en service à l'occasion de la mesure de la chaîne isotopique des éléments mercure du côté déficient en neutrons en juillet 1999. Ce chapitre va aborder cette contribution à ce nouveau projet puis l'expérience dans son ensemble pour en venir aux mesures de masse effectuées. Dans cette dernière partie on traitera l'analyse des données de l'expérience pour extraire les masses des éléments ^{182,183}Hg puis nous évaluerons leurs influences sur les masses atomiques de leur voisins sur

la charte des noyaux. Enfin nous procéderons à l'interprétation de ces mesures de masse en les élargissant jusqu'aux éléments $^{179-192}$Hg qui ont été mesurés depuis avec ISOLTRAP [60].

7.1 Le système de collection et de refroidissement du faisceau

7.1.1 Principe

Ce dispositif est basé sur l'utilisation d'un piège de Paul linéaire de structure similaire à celui du système de refroidissement de MISTRAL. Les différences résident dans son échelle, le quadrupole fait ici $880\,mm$ de long, et dans l'utilisation de la segmentation des baguettes. Dans ce cas, la possibilité de moduler le champ axial est utilisée pour créer un puits de potentiel longitudinal pour obtenir l'adaptation au mode pulsé du faisceau incident. Le confinement est donc obtenu dans les trois directions de l'espace par la superposition d'un champ électrique radiofréquence dans les plans radiaux et électrostatique dans la direction axiale. Pour chaque section i du quadrupole les potentiels V^i appliqués à chaque paire d'électrodes opposée sont alors :

$$V^i = V^i_{dc} \pm V_{rf}\ \sin(\omega_{rf}\ t)$$

La figure 7.1 illustre la structure du système et la répartition des potentiels V^i_{dc} employés. Toutefois l'application de la condition de Laplace dans la région de piégeage va modifier les conditions de confinement transversal des ions dans un piège de Paul que l'on a défini dans le chapitre 2. Bien que la longueur finie des segments donne en réalité une distribution du potentiel axial "en escaliers", il est possible d'approximer celle-ci, au niveau du puits de potentiel axial, par une parabole d'expression $V_{dc}(z) = A\,z^2$. L'extension de ce terme à la direction radiale r donne, en appliquant la condition de Laplace $\triangle V_{dc}(r,z) = 0$, l'expression complète du potentiel statique :

$$V_{dc}(r,z) = A\,(z^2 - \frac{r^2}{2}) \tag{7.1}$$

La superposition de ce terme à l'équation 2.26 donne alors la configuration du puits de potentiel total crée dans les trois directions :

$$V(r,z) = A\,z^2 + (\frac{q\,V_{rf}}{8\,r_0^2} - \frac{A}{2})\,r^2 \tag{7.2}$$

Dans la région de piègeage axial, où l'on peut assimiler la répartition du potentiel axial à une parabole, le confinement radial est alors atténué par la partie défocalisante du potentiel statique qui se traduit par le terme $\frac{A}{2}$. En pratique ce coefficient sera déterminé par la longueur des segments et par les différences de potentiels successifs que l'on applique. Par ailleurs, ce paramètre qui définit la taille de la région de piégeage longitudinal, va définir

la dispersion en énergie du faisceau éjecté. Le choix de ces potentiels résultera alors d'un compromis entre une faible atténuation de la force de confinement axial et l'obtention d'une faible dispersion en énergie nécessaire à l'introduction du paquet d'ions éjecté dans le premier piège de Penning.

Originellement la partie centrale des baguettes du quadrupole était composée de segments de 20 mm de long et les extrêmités de segments de 10 mm. La région de piégeage se situait au niveau de l'avant-dernier segment. Cette configuration a dernièrement évolué vers un schéma représenté dans la figure 7.1 dans le but de pouvoir varier la position du piégeage axial (ce système est décrit dans [35]).

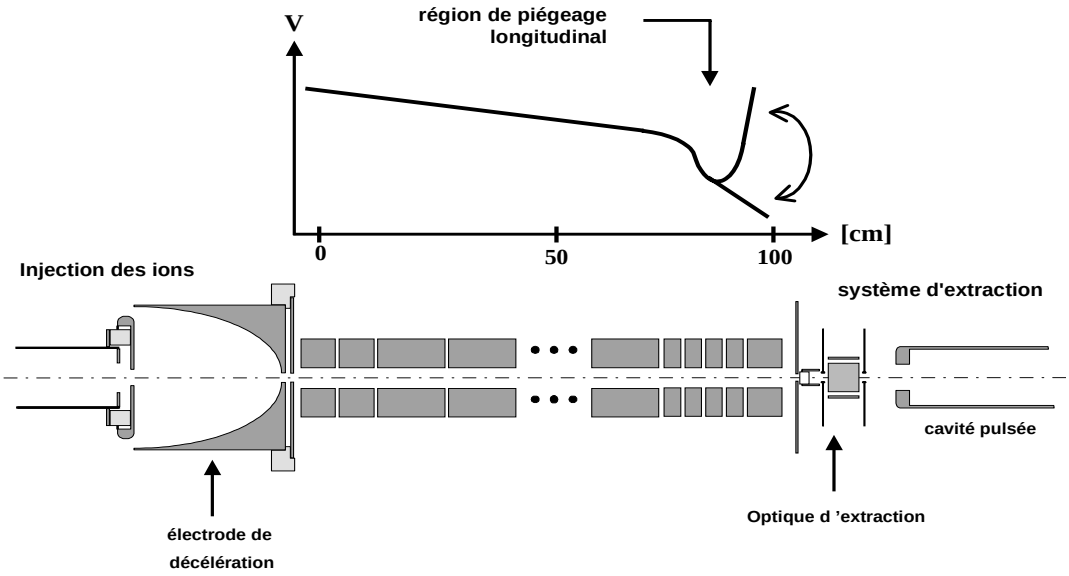

FIG. 7.1: *Représentation du système de collection et de refroidissement d'ISOLTRAP. La répartition des potentiels sur les segments permet de piéger les particules dans la direction longitudinale. La partie centrale du quadrupole est composée de segments de* 40 mm *tandis que la zone de piégeage et d'extraction des ions se compose de 4 segments de* 10 mm *et d'un dernier de* 20 mm.*L'éjection du paquet ainsi accumulé se fait en basculant les potentiels des derniers segments.*

7.1.2 L'extraction et la réaccélération des ions

Durant la période passée sur l'expérience ISOLTRAP, entre les mois d'août et de décembre 1998, ma contribution au projet du nouveau système de refroidissement a consisté en la modélisation de l'extraction des ions du quadrupole puis au montage et aux tests de

l'appareil. Le but du travail de simulation consistait à définir les conditions de piégeage et d'extraction des ions à l'extrémité du quadrupole ainsi que l'effet des éléments d'optique ionique en sortie du guide d'ions (voir figure 7.1).

Ce travail a été effectué en utilisant le même logiciel SIMION qui a également été employé pour le développement du système de refroidissement de MISTRAL et qui est décrit dans la section 5.2. Du reste ces deux travaux de modélisation sont assez similaires dans leur approche. Dans les deux cas la simulation de l'extraction des ions du système a pour point de départ la dernière partie du quadrupole et les conditions initiales des ions correspondent à un faisceau ou un paquet d'ions refroidis. La méthode de génération de ces conditions initiales est celle développée au cours de la section 5.2.2 en généralisant le procédé à la direction longitudinale z.

Dans les directions radiales les distributions des ions dans les espaces $(u,\, p_u)$ sont associées à une température de $900K$. Le choix de cette température résulte d'une hypothèse pessimiste qui doit intégrer les effets difficilement quantifiables comme le chauffage RF ou la charge d'espace. Dans l'hypothèse faite plus haut d'une distribution parabolique des potentiels statiques, le mouvement des ions dans la direction longitudinale z est un mouvement d'oscillation harmonique dont la fréquence est déterminée par la masse des ions en question et par la valeur du paramètre A défini dans l'équation 7.2. Dans ce cas l'équation du mouvement d'oscillation dans cette direction est donnée par :

$$\frac{d^2z}{dt^2} + \omega_z^2\, z = 0 \quad avec \quad \omega_z = \sqrt{\frac{2eA}{m}} \tag{7.3}$$

La valeur du paramètre A est obtenue en approchant la forme de la distribution de potentiel dans la région de piégeage axial par une parabole. La distribution réelle de ces potentiels statiques est extraite du logiciel SIMION à partir de la géométrie des électrodes. La figure 7.2 représente un exemple de cette approche dans l'ancienne configuration du quadrupole c'est-à-dire avec des baguettes composées de segments de $20mm$ se terminant par un segment de $10\,mm$. Le piégeage a lieu au niveau de l'avant-dernier segment. Les valeurs du potentiel axial dépendent également de la distance par rapport au centre du piége. Cependant si l'on considère que le mouvement des ions est refroidi, les amplitudes du mouvement des ions sont suffisamment faibles pour que l'on considére la distribution du potentiel axial sur l'axe du quadrupole. Du reste, l'évolution de la distribution des potentiels quand on s'éloigne de l'axe (la figure représente également la distribution de potentiel pour un écart de $3\,mm$) est suffisament lente pour que l'on puisse considérer que cette hypothèse est réaliste.

Dans le cas de potentiels de piégeage typique appliqués sur les quatre derniers segments ($-25V$, $-50V$, $-75V$ et $0V$), on obtient une valeur de $A = 1,5 \cdot 10^5\ V/m^2$. Cela donne pour une valeur du rayon $r_0 = 6\,mm$ une atténuation du potentiel de piégeage radial d'environ $2,8\,V$. Cette valeur est à comparer avec la profondeur du puits de pseudo-potentiel qui est de $15\,V$ pour une amplitude crête à crête $V_{rf} = 300V$, une fréquence $F_{rf} = 1\,MHz$ et un ion de masse $100\,uma$ (ce qui correspond à une valeur du paramètre de stabilité $q = 0,4$).

Les propriétés du faisceau d'ions extrait de la trappe dépendent de la température et

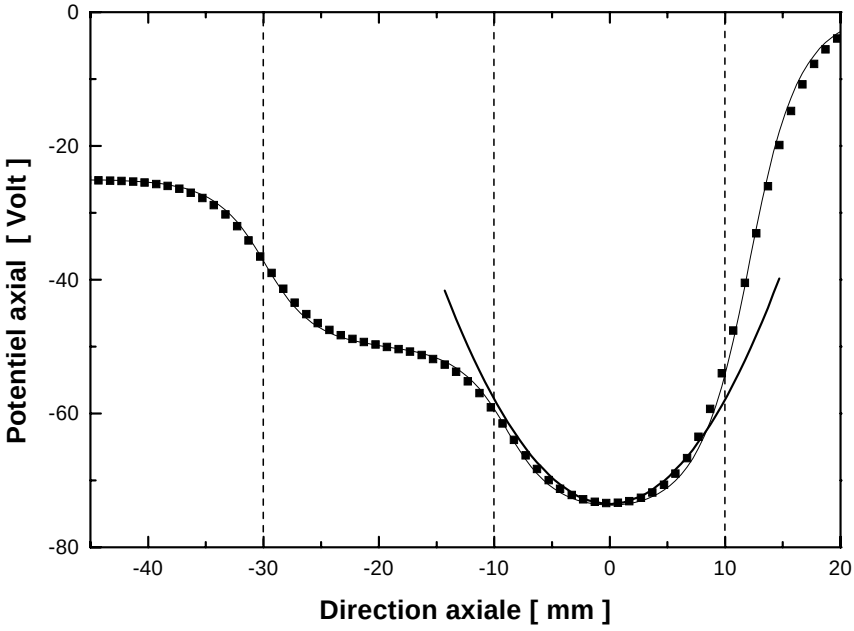

FIG. 7.2: *En carrés, la distribution des potentiels pour la création du piégeage longitudinal. Cette répartition correspond à des potentiels de* $-25\,V$, $-50\,V$, $-75\,V$ *et* $0\,V$ *sur les quatre derniers segments du guide d'ion. La portion de courbe en trait plein (entre -15 et 15 mm) correspond à l'approximation parabolique de la distribution des potentiels dans la zone de piégeage. Les lignes verticales correspondent aux limites entre les derniers segments. Il est également représenté (en trait plein) la distribution du potentiel axial correspondant à un écart de* $3\,mm$ *par rapport à l'axe du quadrupole.*

de la distribution spaciale du nuage d'ions piégé. Dans le cas d'ISOLTRAP, on s'intéresse en particulier à la distribution des ions dans l'espace des phases longitudinal. On a vu, au cours de la section 3.1, que cet espace (z, p_z) était équivalent à (E, t) dans cette direction (où E est l'énergie cinétique des ions et t le temps de vol). La structure temporelle du paquet d'ions expulsés dépend également de la forme du potentiel utilisé pour l'extraction. La figure 7.3 présente le résultat de la simulation de la distribution d'un paquet d'ions éjectés dans cet espace (E, t). Ce diagramme est tracé pour deux températures d'équilibre initiales du nuage d'ions dans la trappe ($300\,K$ et $900\,K$) et pour les conditions de piégeage de la figure 7.2. Dans notre hypothèse d'une température de $900K$, on voit que l'on peut générer un paquet d'ions d'une durée de l'ordre de la micro-seconde. L'énergie des ions dans cette simulation est d'environ 300 keV car cela correspond à un paquet d'ions situé au niveau de l'optique d'extraction (voir figure 7.1).

Pour le transfert de ces ions dans la première trappe de Penning, l'énergie requise est $\approx 2,5$ keV. Pour modifier l'énergie des ions sans avoir à porter le piège à une tension proche

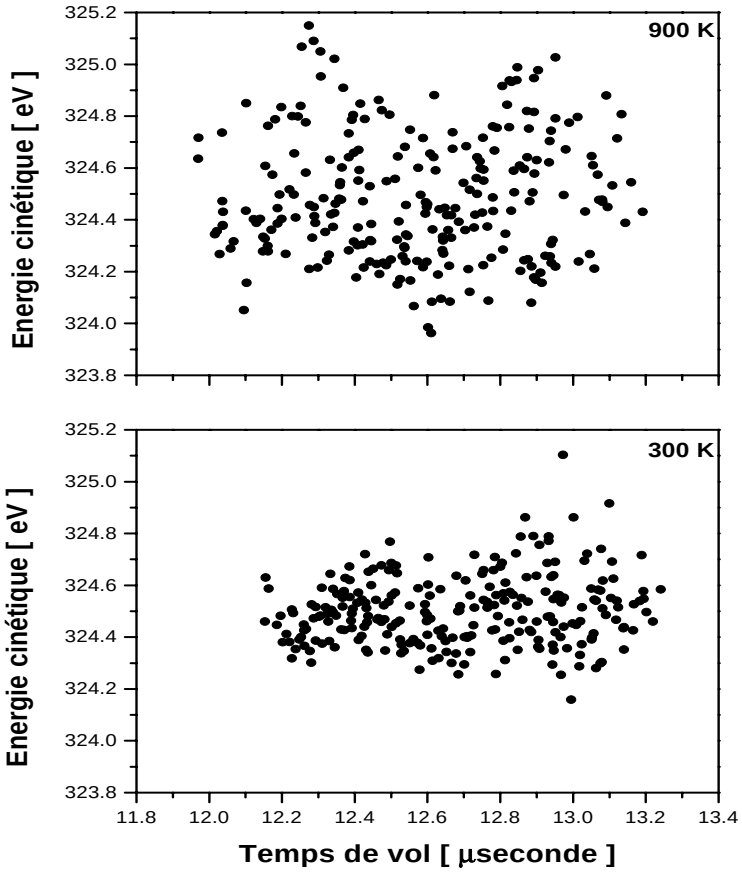

FIG. 7.3: *Simulation de la distribution énergétique et temporelle d'un paquet de 250 ions éjecté du quadrupole à radiofréquence pour des températures initiales de* $300\,K$ *et* $900\,K$.

de 60 keV, on a recours à une cavité pulsée. Comme le montre la figure 7.1, elle consiste en un tube long d'une quarantaine de centimètres dans lequel passent les ions en sortant du quadrupole linéaire. L'énergie cinétique souhaitée est acquise par les ions en portant initialement le potentiel de la cavité à -2,5 keV par rapport au quadrupole. Lorsque les ions sont à l'intérieur du tube ce potentiel est basculé jusqu'à un potentiel nul. Les ions gardent alors l'énergie cinétique qu'ils avaient à l'intérieur de la cavité ($\approx 2,5$ keV) sans être ré-accélérés jusqu'à leur énergie incidente de 60 keV.

La pression de gaz utilisé à l'intérieur du quadrupole est d'environ 10^{-2} *mbar*. Cette valeur a été établie par l'observation du nombre d'ions extrait du quadrupole en fonction de la pression où il est apparu que ce nombre augmentait avec la pression jusqu'à une valeur $\approx 10^{-2}$ *mbar* à partir de laquelle on commence à observer une saturation. On peut trouver en annexe la publication rassemblant la description détaillée de ce système et de ces travaux de tests effectués [35].

7.2 La trappe de nettoyage et de refroidissement

7.2.1 Principes

Les mesures de masse de haute précision effectuées dans la deuxième trappe de Penning recquièrent un faisceau d'ions refroidis et ne contenant qu'une seule espèce ionique. De plus les ions exotiques en question ayant de faibles sections efficaces de production, le transfert des ions à l'intérieur du piège doit être le plus efficace possible. Le but de la première trappe de Penning est de collecter le paquet d'ions issu du quadrupole linéaire pour effectuer un refroidissement additionnel et surtout une sélection en masse avant de le transférer dans la trappe de mesure. Ces deux opérations sont indispensables pour que les erreurs systématiques dues aux imperfections de la trappe aussi bien qu'aux interactions ions-ions soient maintenues à un niveau compatible avec la précision recherchée (voir section 7.3). Le but du refroidissement est de diminuer les amplitudes du mouvement des ions dans la trappe et réduire ainsi les effets des imperfections des champs électrique et magnétique. Les effets de la purification du faisceau seront expliqués en section 7.3.

Pour les mêmes impératifs de durée de refroidissement et de simplicité de mise en oeuvre que dans les pièges de Paul, le nuage d'ions stocké est refroidi par interaction avec un gaz tampon, en l'occurence de l'hélium. Cependant si dans la direction longitudinale le refroidissement par gaz tampon revient, comme dans un piège de Paul, à introduire une force de frottement qui diminue progressivement l'amplitude $\rho_z(t)$ du mouvement des ions, il n'en est pas de même dans les directions radiales d'un piège de Penning. En effet, du fait de la nature instable du mouvement magnétron, dont nous avons parlé au cours de la section 2.4, l'introduction d'une force de frottement du type $\overrightarrow{F} = -\gamma\ \overrightarrow{v}$ dans les équations du mouvement (voir section 2.4) résulte en une dépendance des amplitudes des mouvements axial $\rho_z(t)$, magnétron $\rho_-(t)$ et cyclotron $\rho_+(t)$ en fonction du temps du type :

$$\rho_z(t) = \rho_z^0\ \exp(-\frac{\gamma t}{2m})\ \ et\ \ \rho_\pm(t) = \rho_\pm^0\ \exp(\mp\alpha_\pm t) \tag{7.4}$$

avec

$$\alpha_\pm = \frac{\gamma}{m}\frac{\omega\pm}{\omega_+ - \omega_-} \tag{7.5}$$

où γ est un coefficient de friction inversement proportionnel à la mobilité de l'ion dans l'hélium et proportionnel à la pression de ce gaz (voir en section 5.3). Il apparaît alors que si les amplitudes des mouvements axial ρ_z et cyclotron ρ_+sont amorties, celle du mouvement magnétron ρ_-va augmenter jusqu'à ce que l'ion soit perdu par contact avec les électrodes du piège (voir la figure 7.4 cas (c)). Dans le cas du piège de Penning ce phénomène intervient car le potentiel électrostatique qui cause le confinement axial a par là même une action répulsive, et présente donc un maximum au centre du piège, dans le sens radial. Or le mouvement magnétron est un mouvement de précession autour de l'axe axial du piège et posséde donc une énergie potentielle maximale au centre de celui-ci. Enlever de l'énergie à ce mouvement va alors faire migrer l'ion vers des régions de plus basse

énergie potentielle donc des rayons plus grands. Cette propriété apparaît d'ailleur dans l'expresssion de l'Hamiltonnien (équation 2.42) d'un ion dans dans un piège de Penning.

Pour effectuer du refroidissement par gaz tampon dans un piège de Penning il est alors nécessaire de restreindre l'augmentation de l'amplitude du mouvement magnétron. Il est possible d'agir sur le mouvement des ions dans la trappe par l'intermédiaire d'excitations multipolaires axiales ou radiales ([6],[7]). Une excitation quadrupolaire dans le plan radial à la fréquence $\omega_+ + \omega_-$ permet de coupler les mouvement cyclotron et magnétron de telle manière à faire décroître l'amplitude ρ_- tandis que ρ_+augmente jusqu'à une transformation complète du mouvement magnétron en mouvement cyclotron (voir Figure 7.4 cas (a) et (b)). Une application prolongée de l'excitation contraindra ensuite les ions à osciller entre ces deux modes avec une période T_{conv} donnée par la relation :

$$T_{conv} = \frac{m}{e}\frac{a^2}{2V_{rf}}(\omega_+ - \omega_-) \tag{7.6}$$

Pour un champ quadrupolaire azimutal appliqué de la forme :

$$E_u = \frac{2V_{rf}}{a^2}\cos(\omega_{rf}\, t)\, u \;\; avec \;\; \omega_{rf} = \omega_c \tag{7.7}$$

La figure 7.4 (d) montre les effets de l'application simultanée du refroidissement et d'une excitation quadrupolaire à une fréquence ω_c. Il apparaît que si la vitesse à laquelle décroit l'amplitude du mouvement cyclotron diminue, le mouvement magnétron est maintenant convergeant et la particule se rapproche du centre. Il est toutefois nécessaire pour arriver à ce résultat que la vitesse de conversion entre les deux modes du mouvement soit plus rapide que l'augmentation de l'amplitude du mouvement magnétron. Pratiquement la création du champ quadrupolaire nécessaire à cette excitation est assurée en divisant azimutalement l'électrode centrale du piège en huit parties indépendantes électriquement.

Le faisceau délivré par la source d'ISOLDE est préalablement trié en masse avant d'être injecté dans la ligne de faisceau d'ISOLDE desservant les expériences en utilisant le séparateur magnétique GPS (General Purpose Separator). Cependant celui-ci est couramment utilisé avec une résolution de l'ordre de 1000 et ne permet pas de faire un nettoyage isobarique. De même la trappe linéaire à radiofréquence utilisée décrite précédement n'opère pas en mode filtre de masse ($a_u = 0$ voir section 2.3) et n'apporte aucune sélectivité en masse. La combinaison d'une excitation quadrupolaire et l'introduction de gaz dans la trappe permet, en plus du refroidissement du nuage d'ions piégés, d'obtenir cette sélectivité en masse via la fréquence de l'excitation à appliquer. En effet les ions dont la fréquence cyclotron $\omega_c = eB/m$ est différente de la fréquence d'excitation ne bénificieront pas du couplage des mouvements magnétron et cyclotron et s'éloigneront lentement du centre. Au moment de l'extraction un diaphragme de petit diamètre (3 mm) laissera uniquement passer les ions proche de l'axe vertical de la trappe. On obtient ainsi un nettoyage isobarique du faisceau injecté dans la trappe. La résolution typique obtenue avec ce piège de Penning cylindrique est $R_{cyl} \approx 10^5$.

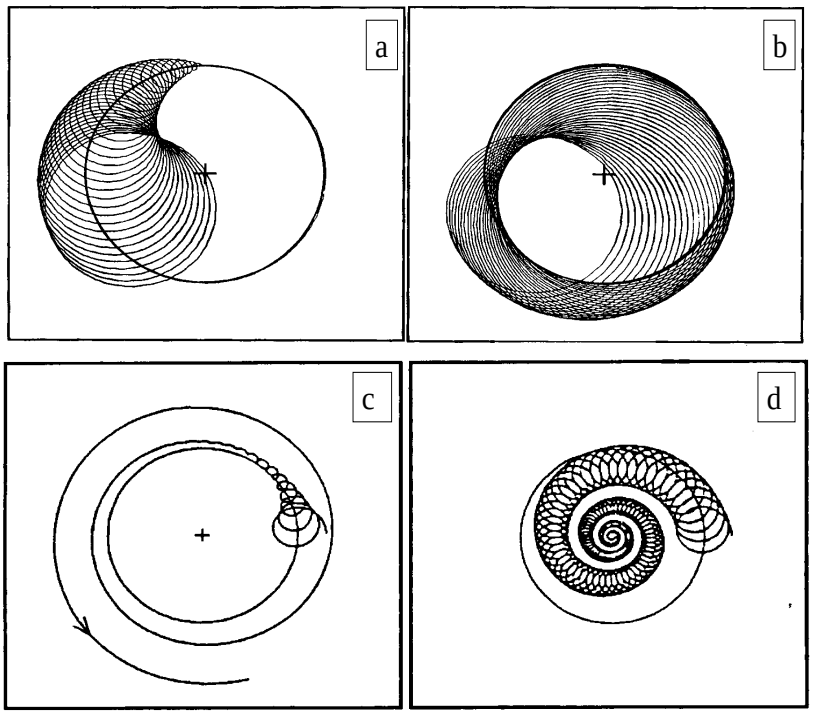

FIG. 7.4: *Transformation du mouvement purement magnétron (a) en mouvement purement cyclotron (b) sous l'effet d'une excitation quadrupolaire à la fréquence* $\omega_c = \omega_+ + \omega_-$. *L'effet du refroidissement par gaz tampon dans la trappe en mode électrostatique est de diminuer rapidement l'amplitude du mouvement cyclotron tandis que celle du mouvement magnétron augmente (c). En bas à droite les effets conjugués du refroidissement et de l'application de l'excitation : Les deux amplitudes du mouvement diminuent (d). Les trajectoires sont montrées dans le plan radial perpendiculaire au champ magnétique.*

7.2.2 Réalisation

La résolution de l'ensemble sera limitée par la qualité du champ électrique régnant à l'intérieur du piège. Comme il est expliqué dans la section 7.3, des écarts de ce champ par rapport à une structure quadrupolaire pure causent des décalages dans les fréquences cyclotron des ions dans la trappe. Compte tenu des objectifs en vue, c'est-à-dire la possibilité de faire du nettoyage isobarique voire isomérique, la résolution nécessaire est de l'ordre de 10^5. Celle-ci peut être atteinte par l'utilisation d'électrodes cylindriques telles que schématisées sur la figure 7.5. Bien qu'étant éloigné de la forme hyperboloide idéale à l'obtention d'un potentiel purement quadrupolaire, l'ajout d'électrodes de correction bien étudiées permet de maintenir les décalages de fréquences à un niveau compatible aux exigences ($\Delta\omega_c/\omega_c \leq 10^6$). La configuration d' électrodes et de potentiels appliqués a été determinée par une méthode de calcul itérative pour minimiser les termes non quadratiques du potentiel [41].

L'injection des ions dans ce piège de penning est effectuée, dans la direction verticale de la trappe, en abaissant la barrière de potentiel longitudinale au moment du passages des ions en provenance du piège linéaire à radiofréquence. Cette opération nécessite de décélérer ces ions jusqu'à une énergie d'environ $50\,eV$. La réduction de l'emittance du faisceau, aussi bien dans la direction longitudinale que dans les plans radiaux, qui a été obtenue dans le RFQ permet d'augmenter l'efficacité de l'introduction des ions. L'éjection de ces ions en direction de la trappe de mesure est obtenue de manière similaire en abaissant les potentiels de la partie supérieure du piège (l'énergie de transfert est de $1\,keV$). Dans ce cas également le refroidissement effectué dans ce piège de Penning, et la diminution des amplitudes du mouvement qui en résulte, permet d'effectuer ce transfert à travers le diaphragme de sortie avec un maximum d'efficacité. En plus de définir la résolution de la séparation en masse, cet orifice permet d'effectuer un pompage différentiel entre cette première trappe de Penning, où régne une pression d'hélium de l'ordre de quelques $10^{-5}\,mbar$, et le piège de mesure lui-même où la pression doit être maintenue à un niveau aussi bas que possible ($\leq 10^{-8}\,mbar$).

Une description plus détaillée de ce piège de penning cylindrique peut être trouvée à la référence [41]. La durée du stockage des ions dans cette partie peut être adaptée en fonction de la période radioactive de l'ion en question. Toutefois, la durée minimale nécessaire à la selection isobarique ne peut descendre en dessous de quelques dizaines de milli-seconde. La sélectivité apportée par ce piège par exemple été indispensable pour l'étude de la région des terres rares où la densité isobarique est très élevée [63].

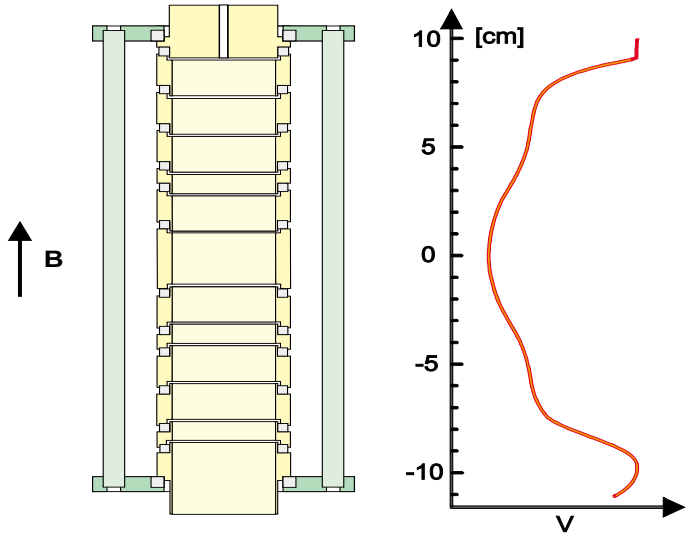

FIG. 7.5: *Représentation schématique de la première trappe de Penning de structure cylindrique. Les dimensions du piège sont* 240*mm de long pour un diamètre interne de* 20*mm. A droite on a représenté la répartition du potentiel longitudinal obtenu avec les électrodes. Celui-ci est basculé au moment de l'injection et de l'extraction des ions.*

7.3 La trappe de mesure

7.3.1 Principes

Le but de cette dernière partie de l'expérience est de mesurer la fréquence cyclotron de l'ion piégé. A partir de l'équation 2.35 il apparaît une caractéristique importante des fréquences du mouvement dans un piège de Penning qui est à la base de son utilisation comme spectromètre de masse :

$$\omega_+ + \omega_- = \omega_c \tag{7.8}$$

Il existe plusieurs techniques pour mesurer les fréquences d'oscillations d'un ion piégé. Les méthodes non destructives, basées sur le signal induit sur les électrodes du piège par le mouvement des particules, sont difficilement applicables aux noyaux exotiques. En effet ces techniques requièrent un temps de stockage important en particulier si les amplitudes de mouvement à l'intérieur du piège sont faibles et le signal détecté est proportionnel à la vitesse des ions ce qui défavorise l'application de cette technique aux ions lourds. La méthode de détection utilisée sur ISOLTRAP est basée sur la mesure du temps de vol d'ions ejectés de la trappe après la conversion de leur énergie cyclotron en énergie axiale. Cette technique destructive a l'avantage d'être utilisable jusqu'à un seul ion dans le piège ce qui permet de limiter le phénomène de charge d'espace.

La conversion en énergie est basée sur une excitation quadrupolaire qui va forcer le mouvement azimutal des ions à osciller entre un mouvement purement magnétron et purement cyclotron avec une période donnée par l'équation 7.6. Dans le cas de la trappe de mesures on s'intérresse au gain d'énergie cinétique qui accompagne une conversion compléte du mouvement magnétron d'amplitude initiale $\rho_{-,0}$ en mouvement cyclotron d'amplitude initiale $\rho_{+,0}$. Cette conversion complète est uniquement possible pour une fréquence d'excitation $\omega_{rf} = \omega_c$ et le gain est alors donné dans ce cas par :

$$\Delta E_c(\omega_{rf} = \omega_c) = \frac{m}{2}\left(\omega_+^2 - \omega_-^2\right)\left(\rho_{-0}^2 - \rho_{+0}^2\right) \tag{7.9}$$

La détermination de la fréquence cyclotron des ions piégés se fait via la détection de cette résonance après ujn balayage des fréquences d'excitation. Après l'excitation les ions sont éjectés de la trappe jusqu'à aller frapper un détecteur où l'on mesure le temps de vol. La detection de la résonance est alors rendue possible par la conversion de l'énergie cyclotron de l'ion en énergie axiale qui est obtenue quand l'ion traverse le gradient négatif de champ magnétique entre le centre du piège et le détecteur d'ions. Le moment magnétique d'un ion d'énergie cyclotron $E(\omega_{rf})$ piégé dans un champ magnétique $\overrightarrow{B} = B\,\overrightarrow{z}$ est :

$$\overrightarrow{\mu(\omega_{rf})} = \frac{E(\omega_{rf})}{B}\,\overrightarrow{z} \tag{7.10}$$

Ce moment magnétique conjugué au gradient du champ magnétique subi par l'ion quand il est éjecté de la trappe crée une force axiale qui s'exprime :

$$F(\omega_{rf}) = -\overrightarrow{\mu(\omega_{rf})} \cdot \nabla \overrightarrow{B(z)} \tag{7.11}$$

Cette force, qui présente un maximum pour $\omega_{rf} = \omega_c$, augmente l'énergie axiale des ions éjectés et conduit à une diminution de leur temps de vol jusqu'au détecteur. Cette énergie s'ajoute à celle que les ions acquièrent de la différence de potentiel existante entre le centre du piège et le détecteur lors de leur extraction. Pour que les effets du gain d'énergie en termes de temps de vol soit important, il est toutefois nécessaire que l'énergie d'extraction des ions soit faible.

L'équation 7.9 montre que la conversion d'énergie accompagnant une conversion complète du mouvement magnétron en mouvement cyclotron est d'autant plus important que l'amplitude ρ_{+0} est faible alors que ρ_{-0} est grande. Quand les ions sont confinés près du centre de la trappe le processus de détection de la résonance ne se fait alors pas avec une résolion optimale. Dans le but d'augmenter ρ_{-0} et en préalable à l'excitation quadrupolaire, on procède à une excitation dipolaire du mouvement à la fréquence magnétron. Toutefois cette augmentation se fait au détriment de la pureté du champ électrique ressenti par les ions s'éloignant du centre du piège. La valeur de l'amplitude ρ_- atteinte après l'excitation dipolaire résulte alors d'un compromis entre ces deux effets.

Dans les conditions de résonnances la largeur à mi-hauteur $\Delta\nu_{rf}$ théorique du pic obtenu peut être calculée en fonction de la durée T_{rf} de l'excitation comme :

$$\nu_{rf} = \frac{1}{2\pi}\omega_{rf} \simeq \frac{0,8}{T_{rf}} \tag{7.12}$$

Typiquement une durée d'excitation de 1 seconde permet d'atteindre une résolution $m/\Delta m \approx 4\ 10^5$. Toutefois, l'équation 7.9 ne s'appliquant que pour une conversion complète du mouvement magnétron en mouvement cyclotron, une variation de T_{rf} doit s'accompagner d'une variation de l'amplitude de l'excitation quadrupolaire afin d'aboutir à cette conversion au moment de l'expulsion des ions de la trappe. La figure 7.6 représente la géométrie de ce piège de mesure. Une discussion de cette structure sera faite au cours de la section suivante sur les erreurs de mesure.

7.3.2 Les erreurs de mesure

La précision que l'on peut atteindre avec ISOLTRAP dépend des diverses sources d'erreurs systématiques qui vont être abordées au cours de cette section. Dans la pratique le mouvement des ions dans une trappe de Penning dévie toujours de celui décrit section 2.4. La cause peut en être diverse mais les effets se traduisent toujours par des décalages des fréquences des différentes composantes du mouvement. En particulier, cela peut introduire des erreurs systématiques sur la détermination de la fréquence cyclotron. La performance du spectromètre dépendra alors de la façon dont ces différents effets ont été pris en compte et éventuellement à quel degré ceux ci ont pu être compensés. Dans la suite de cette section nous allons aborder ces principales sources d'erreurs et leurs effets sur la mesure.

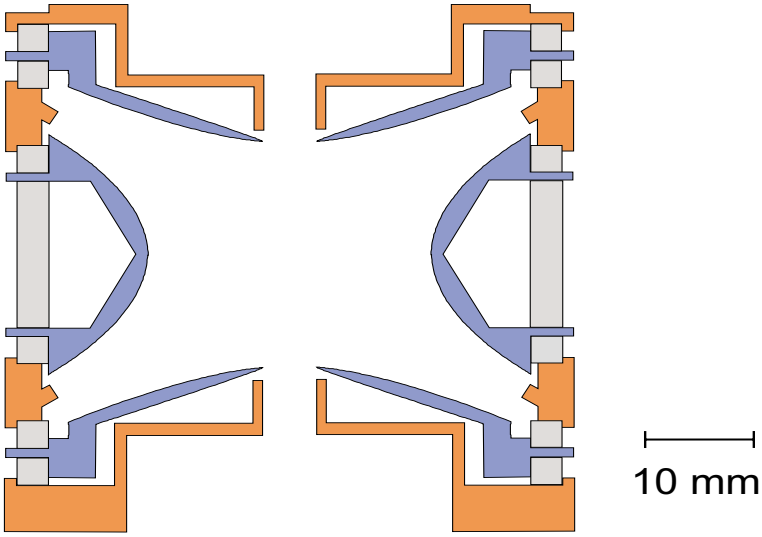

FIG. 7.6: *Schéma de la structure de la trappe de mesure. Les électrodes ont cette fois une forme plus proche de la géométrie hyperbolique idéale. On voit également les électrodes de corrections situées près des orifices de passage des ions et entre les électrodes hyperboliques. Les dimensions de cette trappe sont caractérisées par les paramètres* $z_0 = 11,2\,mm$ *et* $r_0 = 13\,mm$.

Le champ électrique

La conception de la trappe de mesure doit être faite pour minimiser les imperfections des champs électrique et magnétique sur un volume aussi large que possible. La géométrie cylindrique adoptée dans le cas du premier piège de penning, qui permettait une relativement bonne approximation du champ quadrupolaire à condition de ne pas s'éloigner du centre du piège, n'est plus suffisante ici. Les électrodes utilisées ici adoptent alors la forme hyperbolique idéale pour la création du champ quadrupolaire. Les imperfections introduites par la troncature de ces électrodes ainsi que par les trous nécessaires aux passages des ions sont minimisées par l'ajout d'électrodes de corrections (voir Figure 7.6).Les imperfections résiduelles se manifestent par l'introduction de termes multipolaires dans l'expression du potentiel électrique à l'intérieur du piège. En raison de la symétrie axiale de la trappe seuls les termes pairs apparaissent. En pratique les plus importants sont ceux d'ordre octopolaire et décapolaire. Ils induisent un décalage de la fréquence cyclotron des ions qui s'exprime sous la forme [**?**] :

$$\Delta\omega_c^{elec} = \Omega_c^{elec}\left[\frac{3\,C_4}{2d^2}\left(\rho_-^2-\rho_+^2\right)+\frac{15\,C_6}{4d^2}\left(\rho_z^2\left(\rho_-^2-\rho_+^2\right)-\left(\rho_-^4-\rho_+^4\right)\right)\right] \tag{7.13}$$

avec :

$$\Omega_c^{elec} = \frac{\omega_-}{1-\omega_-/\omega_+} \approx \omega_- \tag{7.14}$$

Il apparaît donc que ces imperfections peuvent être minimisées par l'utilisation d'une trappe de grande dimension et d'un potentiel faible. L'augmentation du volume du piège est cependant défavorable à l'obtention d'un champ magnétique homogène sur cet espace (le cas du champ magnétique est traité plus loin dans cette section) et la dimension de la trappe résulte alors d'un compromis entre ces deux paramètres. La minimisation des termes C_4 et C_6, indispensable pour effectuer des mesures d'une précision $\sim 10^{-7}$, est obtenue par des électrodes de géométrie aussi proche que possible de la forme hyperbolique et par l'ajout d'électrodes de corrections supplémentaires. Egalement le refroidissement des ions permet de réduire les amplitudes du mouvement et par la même le terme $\Delta\omega_c^{elec}$. On peut également noter que dans le cas d'une conversion complète entre mouvement magnétron et cyclotron, c'est-à-dire avec $\rho_- = \rho_+$, ce décalage de fréquence s'annule.

Fluctuations et défaut d'homogénéité du champ magnétique

Les inhomogénéités du champ magnétique proviennent d'une part de la taille finie du solénoide de l'aimant et d'autre part de la susceptibilité magnétique des objets introduit dans ce champ, en particulier les électrodes du piège. Toutefois le paramètre qui joue le plus grand rôle concerne la stabilité dans le temps du champ magnétique. Plus que par la stabilité intrinsèque de l'aimant lui même, celle-ci est principalement due à des variations de température dans le hall expérimental qui induisent des changements de suçeptibilité des éléments contenus dans le champ magnétique. Elle a été mesurée comme étant $\Delta B/B = 1 \cdot 10^{-7}$ par jour. C'est donc la précision désirée de la mesure qui déterminera la fréquence à laquelle on doit recalibrer le champ par la mesure d'une masse de référence. Typiquement, lors d'une série de mesure, une calibration est effectuée toute les deux ou trois heures.

La charge d'espace

Jusqu'ici le champ électrique présent dans la trappe avait pour origine le potentiel appliqué aux électrodes. La charge d'espace produite par les ions est également la source d'un champ électrique auquel ils sont sensibles. Elle dépend du nombre d'ions dans la trappe mais aussi de leur distribution. Ces paramètres sont difficilement contrôlables et déterminables et rendent complexe la prise en compte de ce phénomène. On peut cependant approcher le problème en le divisant en deux parties : la charge d'espace créee par des ions de même masse et celle résultante de la présence de plusieurs espèces dans le piège.

Dans le premier cas le champ quadrupolaire d'excitation va agir sur le centre de masse du nuage d'ions. Dans ce sens les effets de la force Coulombienne n'introduisent directement aucun décalage dans les fréquences du mouvement. Elle a toutefois comme effet d'élargir le nuage d'ions jusqu'à des zones plus imparfaites des champs électrique (Equation 7.13) et magnétique.

Dans le cas où il y a plusieurs espèces d'ions dans la trappe, la prise en compte du phénomène est plus complexe car aucune solution analytique n'a pu être trouvée aux

équations du mouvement. Dans ce cas les centres de masse des différents ions sont disctincts et peuvent interférer pour causer des décalages dans les fréquences cyclotrons. Il a été constaté que ce décalage était dépendant du nombre d'ions dans la trappe. Quand les masses sont trop proches pour pouvoir être résolues, on observe une seule résonance plus large correspondant au centre de masse des ions dans la trappe. Dans le cas où les masses sont suffisamment distinctes pour être séparées, les résonances mesurées sont toute deux décalées vers les basses fréquences. La meilleure façon d'éliminer ces décalages de fréquences est de ne confiner qu'une seule espéce d'ions à la fois dans le piège. Cela est normalement rendu possible par l'action de la trappe de nettoyage (voir section 7.2) dans la limite de sa résolution.

Bilan

La contribution des différentes imperfections à l'erreur systématique de la mesure est dominée par les incertitudes liées à la calibration du champ magnétique. la contamination du faisceau confiné par des espéces de masses différentes. Le problème de la charge d'espace peut être traité expérimentalement par le nettoyage isobarique du faisceau effectué dans la première trappe de Penning mais aussi au niveau de l'analyse des résultats en excluant de la détection de la résonance les mesures mettant en jeu un nombre d'ions trop important. Une erreur systématique globale de 1 10^{-7}permet de prendre en compte ces effets ainsi que ceux liés à la perfection du champ électrique. L'erreur totale de la mesure est obtenue en additionnant quadratiquement cette erreur systématique avec l'erreur statistique. Cette erreur systématique est associée à la détermination de la courbe théorique à partir des points expérimentaux de la résonance cyclotron (voir figure 7.8). Typiquement, elle a une valeur $\delta m/m \simeq 2 \cdot 10^{-8}$ après 10 minutes d'acquisition.

7.4 La prise de mesure de Juillet 99

7.4.1 Les enjeux de la mesure des Hg déficients en neutrons

Au cours d'une série de mesures en 1997 ISOLTRAP a exploré la chaîne isotopique du mercure du côté des déficients en neutrons. Cette prise de données a permis de pousser l'étude de cette chaîne jusqu'au ^{184}Hg. Une des motivations de cette région de masse est notamment l'existence d'états isomériques pour les N impairs dont les durées de vie sont comparables à celles des états fondamentaux ce qui a pour conséquence que les masses ne sont pas clairement identifiées. Si aucune conclusion claire à ce sujet n'avait pu être trouvée pour le ^{187}Hg, l'état isomérique du ^{185}Hg avait par contre était clairement résolu. Les résultats de ces mesures peuvent être trouvés dans la thèse de Stefan Schwarz [5]. La prise de mesures de juillet 99 visait à continuer l'exploration de cette chaîne isotopique pour deux raisons :

1. Confirmer les précédentes mesures et lever les ambiguités sur l'état isomérique du noyau ^{187}Hg. En ce qui concerne ce dernier point, les résultats de cette série de

mesure ont permis de séparer clairement l'état fondamental et isomèrique du ^{187}Hg.

2. Profiter des gains en sensibilité apportés par le nouveau système de collection de faisceau pour essayer de pousser les mesures plus loin encore de la stabilité du coté déficient en neutron. En particulier, un des enjeux de cette prise de données était la vérification de l'existence d'un état isomérique pour le noyau ^{183}Hg.

7.4.2 Les conditions de production du faisceau d'ions

Etant donné la région de masse ciblée à cette occasion il a été utilisée une cible de Plomb bombardée avec les protons de 1 GeV issus du PS-Booster . Dans le cas du Plomb la réaction de spallation est nettement favorisée par rapport à la fission et à la multi fragmentation et on peuple alors toute la région des éléments déficients en neutrons de masse inférieure à la cible.

Il a été utilisé une source d'ions à plasma car elle permet d'ioniser tous les éléments extrait de la cible au contraire de la source à ionisation de surface qui ne fonctionne que pour les éléments alcalins. En revanche, cette absence de sélectivité implique que le faisceau produit soit "pollué". En effet en plus des noyaux sortis de la cible, le plasma ionise toute les impuretés contenues dans la source elle même et dans le gaz qui sert à le créer. Il convient d'ajouter à cela toute les combinaisons de ces éléments pouvant donner naissance à une molécule et la capacité de cette source à produire des ions multi chargés. La trappe de nettoyage est alors indispensable pour effectuer un tri sélectif parmi les espèces de rapport m/q voisin du paquet d'ions stockés.

Les taux de production des isotopes de mercure obtenus dans ces conditions décroissent d'environ un facteur dix entre deux éléments succéssifs quand on s'éloigne de la stabilité. Pour évaluer les ordres de grandeur, une série de mesure de ces taux de production, faite au niveau du plan focal du séparateur ISOLDE, a établit que les intensités incidentes sont d'environ 1000 ions par seconde pour le ^{179}Hg et 4 10^6 ions par seconde pour le ^{182}Hg.

7.5 L'analyse des données pour les noyaux ^{182,183}Hg

7.5.1 Traitement des données obtenues

La source d'erreur systématique la plus grande est dûe aux fluctuations du champ magnétique. La précision de la mesure dépend donc presque exclusivement de la précision avec laquelle on connaît l'évolution de ce champ au cours de l'expérience. Comme dans le cas de MISTRAL les masses obtenues résultent du rapport entre la fréquence cyclotron de l'ion de masse inconnue et celle d'un ion de référence. Une mesure fréquente d'une masse de référence permet alors de s'affranchir de la connaissance de la valeur du champ magnétique tout en prenant en compte ses variations au cours du temps. Lors de cette prise de données l'élément de référence a été le ^{208}Pb. Ce noyau doublement magique a l'avantage d'avoir une masse connue avec une grande précision ($\simeq$ 3 keV). Une calibration toute les trois heures en moyenne permet d'être compatible avec l'erreur systématique visée ($\sim 10^{-7}$). La

figure 7.7 montre un exemple de cette calibration pour la mesure du ^{182}Hg. La fréquence cyclotron de la masse de référence est obtenue à chaque instant par une interpolation des données. Les rapports entre les fréquences cyclotrons de l'ion de masse inconnue et de l'ion de référence seront alors calculé à partir de cette paramétrisation. Dans le cas du ^{182}Hg exposé sur la figure comme dans la grande majorité des situations cette paramétrisation est linéaire. Il est toutefois possible de faire cette intrapolation de manière quadratique si cela semble nécessaire.

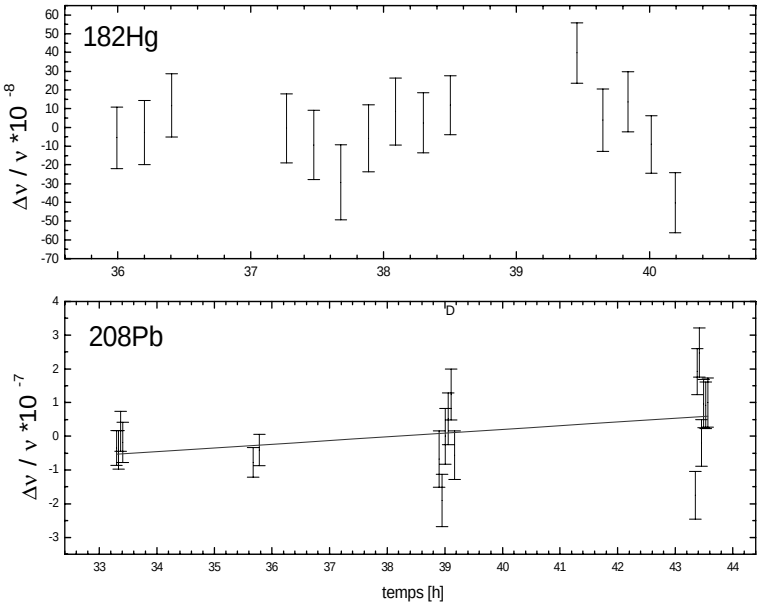

FIG. 7.7: *Normalisation du champ magnétique par rapport à la masse de référence. En ordonnée on représente l'écart des fréquences par rapport à leur moyenne. L'origine des temps est le début de la prise de mesure.*

La charge d'espace présente dans la trappe de mesure (voir section 7.3) est un phénomène qui dépend de paramétres difficilement contrôlables comme la distribution du faisceau dans la trappe ou sa pureté. En effet, la trappe de nettoyage isobarique a une résolution typique de 10^5, ce qui peut ne pas être suffisant dans le cas d'une source d'ions à plasma tel qu'il a été utilisé pour cette prise de mesures. Il peut y avoir de plus des produits de désingration ou des polluants d'origine interne à l'expérience comme l'hélium utilisé dans la trappe de nettoyage ou des molécules de gaz résiduel. Si il est difficile d'agir sur ces paramètres qui polluent la courbe de résonance, il est cependant possible d'intervenir au niveau de l'analyse des résultats. En ce qui concerne les perturbations dues à d'autres espèces ioniques que la masse mesurée il est possible d'opérer une sélection au niveau des temps de vol de manière à ne pas prendre en compte les mesures effectuées avec des masses trop petites ou trop grandes. Egalement il est souhaitable, même dans le cas d'un paquet d'ion de la même espéce, que la charge d'espace soit réduite de manière à éviter que celle

ci n'augmente les amplitudes du mouvement jusqu'à des zones trop imparfaites du champ électrique. Dans ce but il est possible de sélectionner au niveau de l'analyse des résultats le nombre d'ions maximal présent dans la trappe. Dans cette analyse nous avons considéré uniquement, dans nos spectres de temps de vol, un nombre d'ions piégés $n \leq 6$.

7.5.2 Résultats

L'une des questions à résoudre était l'existence d'un état isomérique pour le ^{183}Hg. Cet état a été observé pour les isotopes contenant un nombre de neutrons impairs ^{185,187,191,193,197}Hg avec une énergie d'excitation inférieure à 300 keV [36]. La durée de l'excitation radiofréquence du mouvement des ions dans la trappe de mesure a, dans ce but, été augmentée jusqu'à 4 secondes. En effet, la durée d'excitation typique employée sur le spectromètre de 0,9 seconde, résultant en une résolution de 475 keV pour un nombre de masse $A = 190$, est insuffisante pour séparer l'état fondamental de l'état isomérique. Lors de cette prise de données la durée de l'excitation utilisée a permis d'atteindre un pouvoir de résolution $R = m/\Delta m \simeq 2 \cdot 10^6$, c'est-à-dire pour la masse concernée une résolution d'environ 100 keV. Dans ces conditions de fonctionnement aucun élément ne permet de conclure à la production de deux états pour le noyaux ^{183}Hg. Une seule résonance a été observée et a été attribuée à l' état fondamental. Cette courbe de résonance est représentée sur la figure 7.8 à droite.

En ce qui concerne le ^{182}Hg, on a exclusivement utilisé une durée d'excitation classique de 0,9 seconde. La différence entre les durées d'excitation transparaît dans les amplitudes de balayage de la fréquence dans la figure 7.8 où la résonance apparaît à gauche. L'allure des courbes théoriques rejoignant les points expérimentaux présente un minimum pour une fréquence d'excitation égale à la fréquence cyclotron des ions piégés.

Le tableau suivant liste les rapports ν/ν_{ref} entre les fréquences cyclotron des ions de mercure et celles des ions ^{208}Pb qui ont servi de calibrant ainsi que les excès de masse correspondant :

Elément	^{182}Hg	^{183}Hg
ν/ν_{ref}	0.8749761424 ± 0.0000000935	0.8797832697 ± 0.0000000907
Excès de masse [keV]	-23600.0 ±17.9	-23817.3 ±17.9

7.6 L'évaluation des masses

En spectrométrie de masse il est très rare de parvenir à faire une mesure absolue en raison de la difficulté de connaître avec la précision voulue certains paramètres physiques. Dans le cas d'ISOLTRAP comme dans celui de MISTRAL cette valeur est celle du champ magnétique provoquant le mouvement cyclotron. On a vu que l'on s'affranchissait de cette difficulté en mesurant le rapport de deux masses $m_a/m_b = c$. Il arrive également que l'on obtienne une quantité relative sous la forme $m_a - m_b = c$ comme dans le cas de la mesure de facteur Q de réaction de désintégration α ou β ou dans les transitions internes. Les

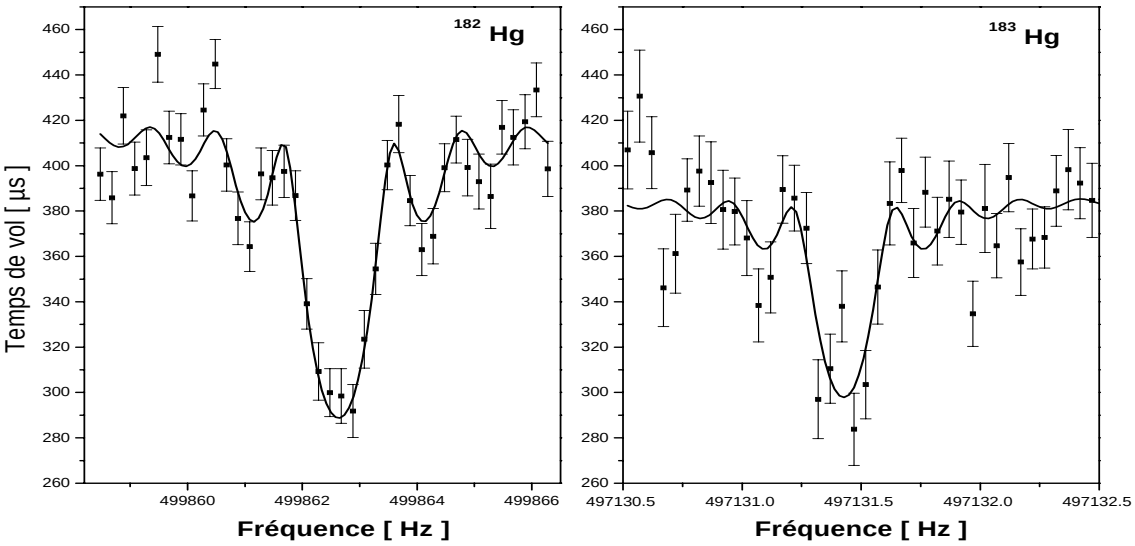

FIG. 7.8: *Temps de vol en fonction des fréquences d'excitation pour les* $^{182,183}Hg$*. La fréquence de résonance, correspondan à un minimium de temps de vol, est représentée à gauche pour le* ^{182}Hg *(durée d'excitation de 0.9 seconde et* $m/\Delta m = 4\,10^5$*) et à droite pour le* ^{183}Hg *(durée d'excitation de 4 secondes et* $m/\Delta m = 2\,10^6$*). Les lignes pleines représentent la courbe théorique. Les barres d'erreurs sur chacun des points sont déterminées par le nombre d'ions détectés sur chaque canal de fréquence.*

mesures sont donc relatives et connectent dans la plupart des cas deux noyaux plus ou moins proches. Dans les zones les plus étudiées du plan (N, Z), certains de ces noyaux peuvent être liés de maniére multiple à ces voisins et de cet enchevêtrement assez complexe de connections il peut apparaître des boucles où les données sont alors corrélées. Dans ce cas on s'efforce de représenter chaque connection apportée par une expérience sous la forme d'une équation à deux inconnues (les masses) du type :

$$m_i - \alpha_{ij}\, m_j = c_{ij} \tag{7.15}$$

On résout ensuite le système d'équations de manière matricielle en utilisant la méthode des moindres carrés. La résolution de ce système procure, en plus des valeurs des masses elles mêmes, un test de cohérence entre les données. Certains résultats de cette évaluation peuvent alors ne plus correspondre aux valeurs expérimentales et le travail d'évaluation consiste à interpréter ces écarts. Cette comparaison peut conduire à exclure ces données de notre réseau fermé si elle est entachée de doutes quant à la validité de l'expérience. On constitue de la sorte un réseau primaire qui se comportera comme un noyau de données de masses intercorrélées à partir desquelles on basera le calcul de la masse des autres

noyaux. Dans ce sens, il est d'usage d'attribuer un degré aux valeurs des masses. Les noyaux appartenant au réseau primaire sont de degré 1, les valeurs calculées à partir d'un noyau de degré 1 sera de degré 2 et ainsi de suite. Actuellement le réseau primaire regroupe plus de 800 noyaux qui se répartisssent principalement autour des régions de stabilité. Toutes les autres masses mesurées jusque là se raccordent alors à ce "noyau" soit de manière isolé soit sous forme de branche comprenant plusieurs masses de degré croissant. C'est le cas par exemple de noyaux liés par une chaîne de désexcitation α ou β et raccordés au réseau primaire par l'un d'entre eux.

Jusqu'à présent l'analyse a consisté à extraire de nos mesures la fréquence cyclotron des ions dans le piège et à construire une relation du type de l'équation 7.15 à partir du rapport des fréquences des ions de Mercure par rapport à une réference, en l'occurence le ^{208}Pb. Il s'agit maintenant de procéder à l'évaluation des données et de mesurer leur apport à l'ensemble des valeurs des masses.

Tout d'abord il est nécessaire de voir quelle était la situation de l'évaluation des masses pour les noyaux qui nous concernent. Pour cela il convient de revenir à l'état de la dernière évaluation des masses atomiques en 1995 (AME 95) c'est-à-dire avant la mesure de la chaîne isotopique de Mercure par ISOLTRAP. Cette situation est shématisée sur la Figure 7.9.

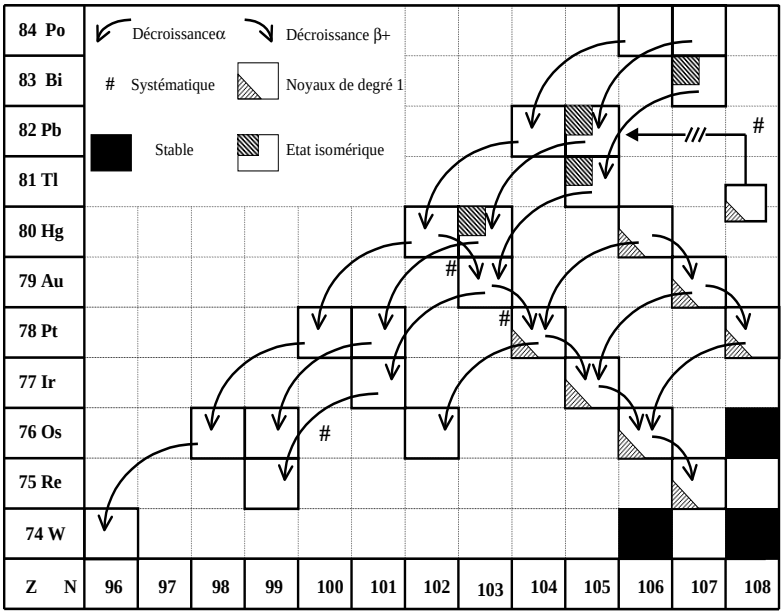

FIG. 7.9: *Etat de l'évaluation des masses atomiques en 1995 dans la région des Hg déficients en neutrons. Le symbole # désigne une relation non expérimentale (extrapolée) entre la masse de deux noyaux.*

Le fait que cette région de la charte soit caractérisée par le passage de plusieurs chaînes de désexitation α permet de diviser l'évaluation des masses en deux parties indépendantes :

7.6.1 Le ^{182}Hg et le ^{182}Au

Ils font partie de deux chaînes de désexcitation α différentes mais liées entre elles par la réaction $^{182}Hg(\beta^+)^{182}Au$. Le raccordement de ces chaînes au réseau primaire se faisait par l'intermédiaire de la désexcitation β^+ du ^{182}Au vers le ^{182}Pt. Ces deux liaisons ont été corrigées par des valeurs extrapolées car les données expérimentales faisaient apparaitre des ruptures par rapport à leurs voisins. Les deux branches de désexcitation α passant par l'or et le mercure sont alors "flottantes" par rapport au réseau primaire dans le sens où toutes les masses sont déterminées à partir d'au moins une valeur non expérimentale. Au total on a alors 11 noyaux dont les masses sont déterminées via une liaison de ce type au^{182}Pt.

Concernant le ^{182}Hg la mesure a permis de créer une liaison avec le ^{208}Pb qui fait partie du réseau primaire. La précision de cette nouvelle mesure (17.9 keV) est à comparer avec celles des etrapolations précédentes (300 keV) et permet maintenant de fixer toute la chaîne de désexcitation α passant par le Mercure (dans les conventions explicitées plus haut il lui est maintenant attribué un degré 2 contre 3 auparavant). Une fois cela établi, il faut savoir quoi faire de ces liaisons non expérimentale. La décision de ne pas faire confiance aux valeurs mesurées était fondée sur le fait qu'elles provoquait des discontinuités, inexplicables par un effet physique, dans la surface des masses pour toute la branche de décroissance α passant par le ^{182}Au. Indirectement ce décalage était reporté aux noyaux de la branche α voisine passant par le ^{182}Hg via la liaison β^+(voir la figure 7.9). Il semble alors que l'évaluateur ait accordé une valeur extrapolée à cette dernière dans le but d'éliminer ce décalage. S'il est clair que l'on puisse couper la liaison$^{182}Au(\beta^+)^{182}Pt$, il semble maintenant raisonable de rétablir les valeurs expérimentales de la liaison$^{182}Hg(\beta^+)^{182}Au$ (voir Figure 7.11).

En termes de précision sur les données de toute la chaîne, les gains apportés par cette nouvelle mesure sont de l'ordre d'un facteur 20 et apparaissent dans le tableau 7.1. On remarque que les nouvelles valeurs obtenues des masses des noyaux de la chaîne sont cohérentes avec les précédentes, ce qui montre que les valeurs systématiques des réactions $^{182}Hg(\beta^+)^{182}Au$ et ^{182}Au$(\beta^+)^{182}$Pt et leurs barres d'erreurs ont été choisies avec précautions.

7.6.2 Le ^{183}Hg

Le ^{183}Hg fait également partie d'une chaîne de désexcitation α, totalement indépendante des deux précédentes, qui est raccordée dans l'AME 1995 aux noyaux de degré 1 par l'intermédiaire du ^{187}Pb via une liaison non expérimentale. On est donc dans le même cas de figure que précédement avec une branche de 5 noyaux liés expérimentalement entre eux mais avec un point d'ancrage défini par une donnée extrapolée. Pour ce noyau, il se pose également le problème de l'existence d'un état isomérique. Celui-ci a été admis dans la table de masse suite aux données expérimentales schématisées sur la figure 7.10.

La position de l'état isomérique du plomb a été déterminée par analogie avec les états isomériques des éléments voisins Po, Pb et Hg de configuration équivalente (Z pair, N impair) et qui présentent, jusqu'à $N = 105$, des propriétés de spin et de parité identiques pour

Isotope	AME 95 [keV]	AME 95 + ISOLTRAP 99 [keV]
^{182}Hg	-21518.0 ± 470.0 # (3)	-23600.4 ± 17.9 (2)
^{170}W	-47235.0 ± 470 # (6)	-47317.6 ± 21.4 (5)
^{174}Re	-43675.0 ± 413.0 # (4)	-43927.0 ± 283.0 # (5)
^{174}Os	-39938.0 ± 470.0 # (5)	-40020.5 ± 18.7 (4)
^{178}Ir	-36250.0 ± 362.0 # (3)	-36502.1 ± 200.9 (4)
^{178}Pt	-31940.0 ±470.0 # (4)	-32022.3 ±18.6 (3)
^{182}Au	-28298.0 ± 362.0 # (2)	-28550.4 ± 200.8 (3)
^{186}Pb	-14622.0 ± 470.0 # (4)	-14704.7 ± 19.2 (3)
^{186}Tl	-20081.0 ± 369.0 # (4)	-20334.0 ± 213.0 # (5)
^{186}Tl^{m}	-19981.0 ± 365.0 # (3)	-20233.6 ±206.9 (4)
^{186}Tl^{m2}	-19607.0 ± 365.0 # (4)	-19859.7 ± 206.9 (5)
^{190}Bi	-10794.0 ±369.0 # (5)	-11046.0 ±213.0 # (6)
^{190}Bi^{m}	-10589.0±365.0 # (4)	-10841.8 ±207.0 (5)
^{190}Po	-4554.0 ± 470.0 # (4)	-4636.7 ±28.0 (3)

TAB. 7.1: *Sur la colonne de gauche, liste des valeurs des excès de masses figurant dans l'évaluation des masses (AME) en 1995. La colonne de droite présente le résultat de la nouvelle évaluation après la mesure du ^{182}Hg par ISOLTRAP. Le symbole # désigne une valeur obtenue par extrapolation (non expérimentale).*

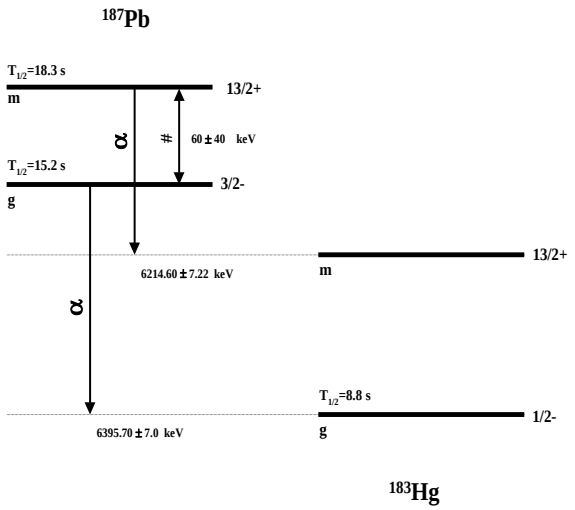

FIG. 7.10: *Schéma supposé de désexcitation α du ^{187}Pb vers le ^{183}Hg [78].*

l'état fondamental (3/2-) et isomérique (13/2+). Par rapport à cette évaluation, l'AME 1995 (Atomic Masses Evaluation) attribue au ^{183}Hg un état isomérique situé à environ 240 keV de l'état fondamental. Cependant cette valeur est également dépendante d'une valeur

systématique et aucune mesure directe n'avait été faite jusqu'a celle d'ISOLTRAP qui, dans la limite de la résolution obtenue ($\simeq$ 100 keV), n'a pas permis de le mettre en évidence. Du reste, une prise de données ultérieure [60] a permis d'améliorer cette résolution en augmentant pour ce noyau le temps d'excitation jusqu'à 8 secondes. La résolution de 50 keV alors obtenue n'a toujours pas permis de mettre en évidence l'existence d'un état isomèrique pour le ^{183}Hg. Dans ces conditions, il semble alors raisonnable de penser que la mesure de l'énergie de la réaction $^{187}Pb^m(\alpha)^{183}Hg^m$ devait plutôt concerner un état excité du mercure.

De la même manière que pour le ^{182}Hg, la nouvelle mesure à permis de créer un lien direct entre le ^{183}Hg et le réseau primaire. La précision de cette mesure, toujours de 17.9 keV, permet également de fixer la chaîne de desexcitation α qui était auparavant flottante à cause de la liaison non expérimentale du plomb. Celle ci peut désormais être coupée (voir Figure 7.11) et les nouvelles valeurs obtenues pour ces noyaux, ainsi que les gains en précisions, apparaissent dans le tableau 7.2.

Isotope	AME 95 [keV]	AME 95 + ISOLTRAP 99 [keV]
^{183}Hg	-23697.0 ± 298.0 # (3)	-23817.0 ± 17.9 (2)
^{183}Hg^m	-23455.0 ± 301.0 # (4)	
^{175}Os	-39981.0 ± 298 # (5)	-40101.6 ± 19.5 (4)
^{179}Pt	-32161.0 ± 298 # (4)	-32281.2 ± 18.4 (3)
^{187}Pb	-14876.0 ± 298 # (2)	-14996.7 ± 19.3 (3)
^{187}Pb^m	-14816.0 ± 301.0 # (3)	-14937.0 ± 44.0 # (4)
^{191}Po	-4980.0 ± 299.0 # (4)	-5101.1 ± 28.1 (4)

TAB. 7.2: *Sur la colonne de gauche, liste des valeurs des excès de masses figurant dans l'évaluation des masses (AME) en 1995. La colonne de droite présente le résultat de la nouvelle évaluation après la mesure du ^{183}Hg par ISOLTRAP. Le symbole # désigne une valeur obtenue par extrapolation (non expérimentale).*

7.6.3 Bilan de l'évaluation

Le travail effectué à partir des mesures des isotopes ^{182,183}Hg permet maintenant de présenter en figure 7.11 la nouvelle situation de l'évaluation des masses dans cette région.

ISOLTRAP avait déjà exploré lors de séries de mesure précédentes les isotopes du mercure jusqu'au ^{184}Hg et l'on ne traite ici que les ^{182}Hg et ^{183}Hg qui ont pu être mesurés au cours de la prise de données de 1999. Cependant, il a été intégré dans la figure 7.11 la mesure de la masse du ^{186}Hg car la nouvelle précision qui a été apportée influence de manière significative celles des noyaux de degré 1 de son voisinage, en particulier le ^{182}Pt d'où se raccordent les deux chaînes α passant par ^{182}Hg et le ^{182}Au. Le tableau 7.3 résume les gains en précisions apportés par cette mesure aux quelques noyaux de degré 1 apparaissant sur le shéma 7.11.

Isotope	AME 95 [keV]	AME 95 + ISOLTRAP 99 [keV]
^{186}Hg	-28446.9 ± 202.0	-28560.7 ± 18.7
^{182}Pt	-36078.0 ± 202.0	-36191.5 ± 24.1
^{186}Pt	-37787.6 ± 32.4	-37789.8 ± 32.1
^{186}Au	-31672.0 ± 144.2	-31729.8± 101.7
^{182}Ir	-32002.9 ± 144.2	-39060.7 ± 101.7
^{182}Os	-44537.3 ± 25.2	-44539.0 ± 25.0
^{182}Re	-45445.3 ± 102.0	-45446.4 ± 102.0

TAB. 7.3: *Sur la colonne de gauche, liste des valeurs des excès de masses figurant dans l'évaluation des masses (AME) en 1995. La colonne de droite présente le résultat de la nouvelle évaluation après la mesure du ^{186}Hg par ISOLTRAP.*

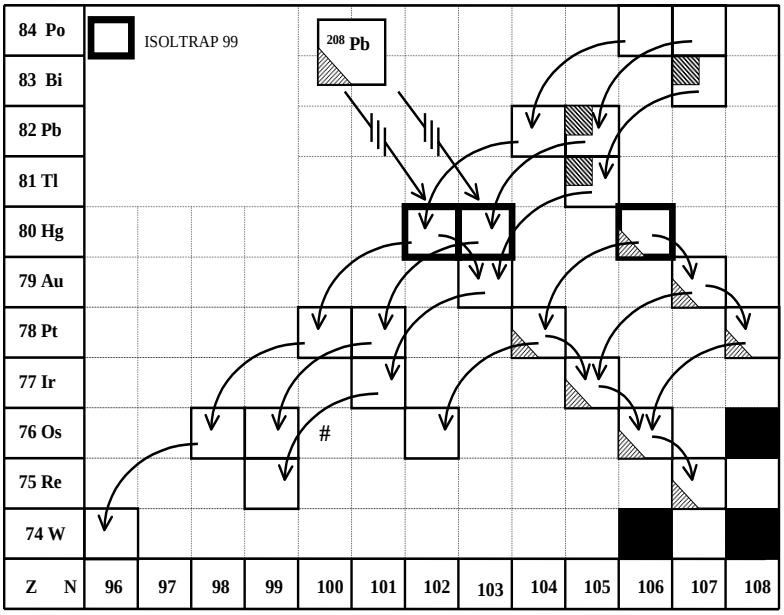

FIG. 7.11: *Etat de l'évaluation AME 95 + ISOLTRAP 99.*

7.7 Discussion des résultats

Parmi les noyaux de mercure explorés par ISOLTRAP, le travail d'analyse et d'évaluation décrit au cours de ce chapitre s'est restreint aux deux éléments ^{182,183}Hg (et dans une moindre mesure celle du ^{186}Hg). La discussion des résultats obtenus, qui est l'objet de cette section, profite toutefois de la totalité des données expérimentales obtenues par ISOLTRAP le long de cette chaîne isotopique et inclut les résultats d'une prise de données ultérieure à celle de 1999 où les masses des éléments ^{179,180,181}Hg ont été déterminées (soit les noyaux $^{179-200}$Hg).

7.7.1 Relation entre forme et énergie de liaison dans le noyau

La connaissance précise des énergies de liaisons est importante pour révéler des effets de la structure nucléaire. L'exploration de la surface des masses définie par l'énergie de séparation de deux neutrons S_{2n} (voir le chapitre 1) nous donne d'excellents exemples de ces effets. La figure 7.12 nous montre deux de ces manifestations. A $N = 50$, les valeurs S_{2n} diminuent brutalement ce qui indique que le neutron supplémentaire est nettement moins lié, c'est la signature de la fermeture de couche. Pour les éléments $Z = 36 - 42$ (du Kr au Mo), on constate une augmentation des valeurs des S_{2n} autour de $N = 60$. Ce phénomène est interprété par une déformation des noyaux en question pour augmenter leurs énergies de liaison (ou, ce qui est équivalent, pour minimiser leurs énergies potentielle).

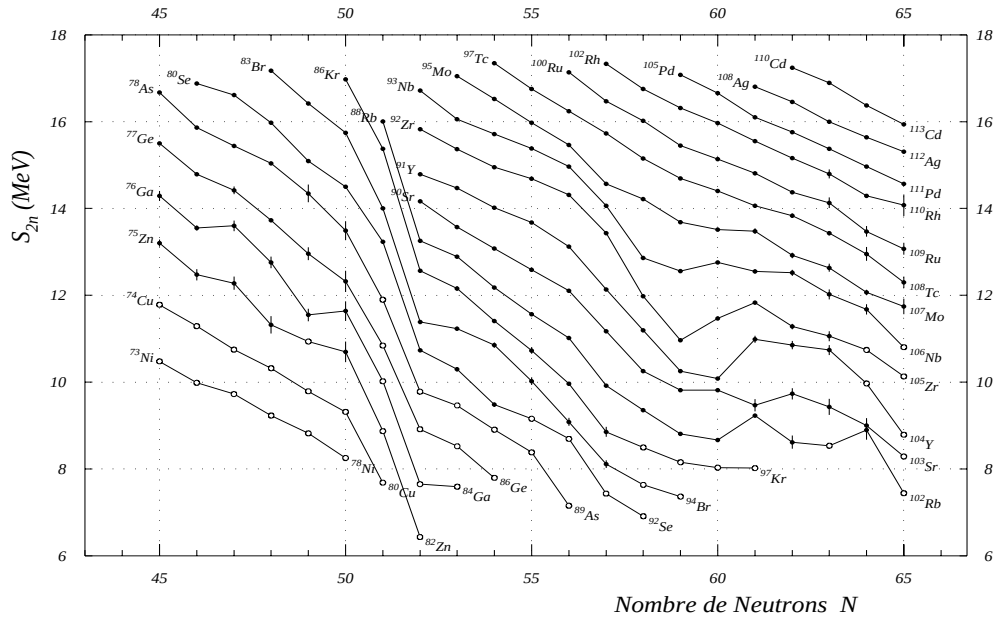

FIG. 7.12: *Energie de séparation de deux neutrons en fonction du nombre de neutrons. Les valeurs des énergies de liaisons sont extraites de AME (Atomic Mass Evaluation)1995 [26].*

Cette déformation a été confirmée par des expériences de spectroscopie laser qui ont montrées une augmentation de la taille des noyaux. Cette technique repose sur l'observation de la structure hyperfine des transitions atomiques qui, étant le résultat du couplage entre le noyaux et le cortège électronique, nous donne des informations sur le rayon moyen carré de charge des noyaux $< r^2 >$[42]. Cette corrélation entre les énergies de liaisons et les rayons est illustrée sur la figure 7.13 dans le cas des isotopes de Sr. Il est intéressant de noter que le modèle nucléaire RMF (Relativistic Mean Field, introduit au cours du chapitre 1) parvient à prédire ce changement de pente du rayon après $N = 50$.

Parfois les phénomènes de fermeture de couche et de déformation peuvent être en compétition. Cette question a été soulevée pour la première fois lors de l'extention des mesures de masses aux noyaux exotiques [43]. Un exemple de cette superposition est la fermeture de couche à $N = 20$ aux alentours de $Z = 10 - 12$. Cette zone, connue sous le nom d'ilôt

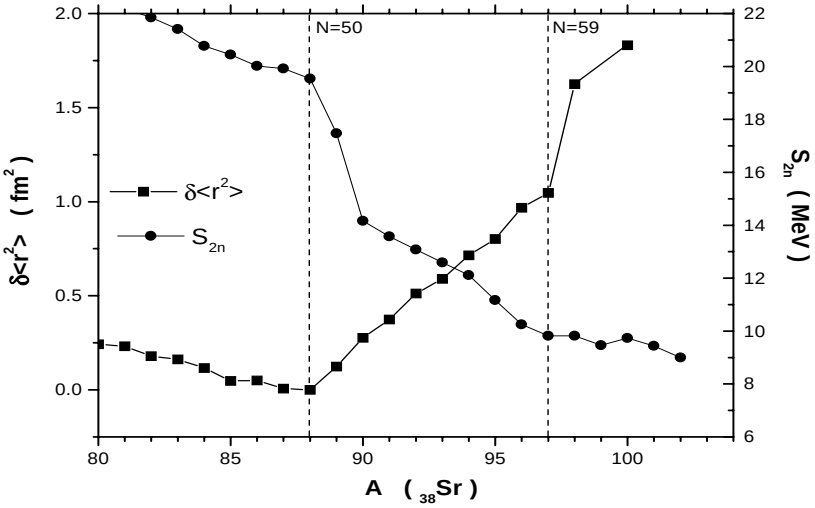

FIG. 7.13: *Représentation de la variation du rayon moyen carré de charge $\delta < r^2 >$[73] (relativement à celui du $^{88}_{38}Sr$) et de l'énergie de séparation de deux neutrons S_{2n} pour les isotopes $^{76-102}_{38}Sr$.*

d'inversion et représentée sur la figure 7.14 pour le cas du $_{11}$Na, se caractérise par une remontée des valeurs de S_{2n} contrairement à ce qui est attendu pour une fermeture de couche. Une fois encore, des mesures de spectroscopie laser ont mis en évidence la corrélation de ce phénomène avec les rayons de charge des noyaux qui suggèrent une déformation après $N = 17$.

Dans cette zone, le cas du ^{32}Mg attire également l'attention. Bien qu'aucune étude par spectroscopie laser n'ait été faite sur ce noyau, une déformation de son état fondamental a été mis en évidence par une méthode d'excitation Coulombienne [64]. Par la suite, une étude spectroscopique détaillée des états excités de basse énergie de ce noyau [66] permet d'interpréter ce phénomène par la co-existence de formes. On parle de co-existence de forme dans un noyau quand il existe plusieurs minima proche dans la courbe de l'énergie totale en fonction de la déformation.

7.7.2 Le cas des isotopes de mercure

La position des Hg sur la charte des noyaux : une région de transition

La région de la charte des noyaux située juste en dessous du nombre magique de protons $Z = 82$ et entre les fermetures de couches $N = 82$ et $N = 126$ est connue depuis longtemps comme étant une région de transition du point de vue de la forme des noyaux. Les terres rares, en dessous de la chaîne isotopique des Hg, possèdent une déformation prolate qui diminue quand on se rapproche de la fermeture de couche en protons $Z = 82$ où les noyaux

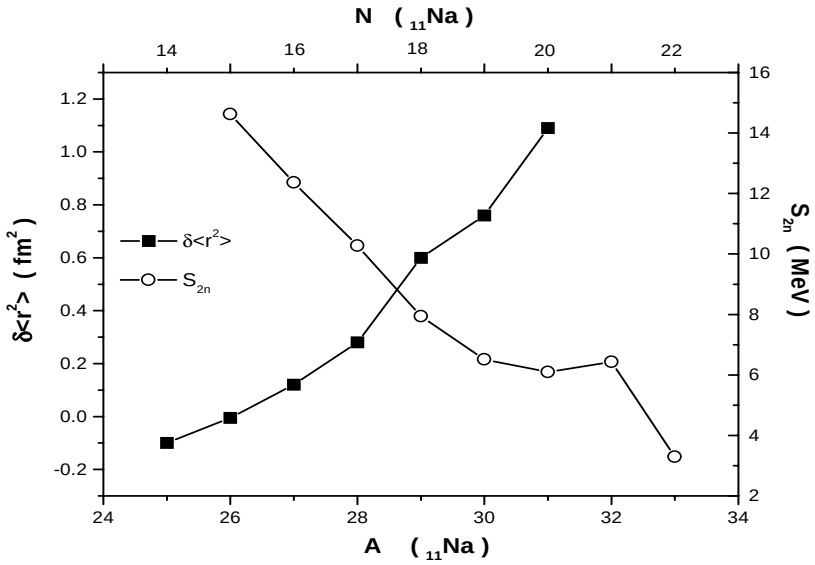

FIG. 7.14: *Représentation de $\delta < r^2 >$(relativement au $^{26}_{11}Na$) et de l'énergie de séparation de deux neutrons S_{2n} pour les isotopes de Sodium.*

sont alors sphériques. Cependant, avant la fermeture complète de la couche on rencontre des noyaux de formes légèrement oblate et en particulier les isotopes de Hg. La première application de la spectroscopie laser sur des noyaux exotiques, en 1972 auprès du séparateur ISOLDE au CERN [51], a permis de mettre en évidence une variation spectaculaire des rayons de charge entre les isotopes pairs et impairs de Hg comme l'illustre la figure 7.15. La décroissance régulière de $\delta < r^2 >$ quand N diminue est conforme à la diminution du volume nucléaire jusqu'aux brusques accroissements constatés pour les isotopes impairs à partir de $A = 185$. Les isotopes de mercure sont considérés comme l'exemple le plus marquant du phénomène de co-existence de forme.

Des oscillations des rayons de charge sont couramment observées dans toute la charte des noyaux mais elles correspondent normalement à un $< r^2 >$plus élevé pour les noyaux pairs que pour les noyaux impairs (ce phénomène apparaît du reste sur la droite de la figure). Les soudaines variations $\delta < r^2 >$ sont alors non seulement les plus grandes jamais observées [52] mais elles se trouvent également inversée par rapport à la situation normale.

Depuis ces premières mesures, l'évolution de la technique a permis d'étendre l'exploration des rayons aux états isomériques présents dans les noyaux impairs de cette chaîne isotopique [67]. Si dans les noyaux de $A > 185$ l'état fondamental présente un rayon de charge similaire à l'état isomérique, on remarquera que l'état isomérique du noyau ^{185}Hg ne présente pas la déformation du niveau fondamental. Cela permet de penser à une co-existence de formes où les noyaux de A pairs dans l'état fondamental ont une forme prolate prononcée tandis que l'isomère est quasi-sphérique (légérement oblate).

Parmi les nombreuses explications théoriques qui ont suivies la découverte de cette transition de formes, Frauendorf et Pashkevisch [65] ont été les premiers à donner une

interprétation satisfaisante de la variation de $\delta < r^2 >$ entre N pair et impair par le calcul des minimums de l'énergie potentielle en fonction de la déformation du noyau pour les isotopes de Hg. Les premiers minimums d'énergie, faiblement oblate, présentés sont dus à la proximité de la fermeture de couche en protons $Z = 82$ et sont favorisés pour les isotopes impairs de $A \geq 187$. La deuxième position d'équilibre, indiquant une forte déformation prolate, est attribuée à la couche de neutrons ouverte et intervient pour les masses impaires de $A \leq 185$.

Une description détaillée de la structure des noyaux dans cette région a été donné par E. W. Otten en 1989 [42] qui a expliqué la variation des rayons par les différences d'énergies d'appariement des neutrons. Pour un nombre impair de neutrons, cette énergie d'appariement est affaiblie par le phénomène dit de "blocking" où le niveau occupé par le neutron célibataire ne peut, à cause du principe de Pauli, participer au processus de diffusion de paires qui est à l'origine de la force d'appariement. La perte d'énergie de liaison est alors compensé par le noyau en adoptant une déformation plus importante. La forme quasi-sphérique du noyau, due à la proximité d'une fermeture de couche en protons, ne peut alors se maintenir quand le nombre de neutrons est inférieur à $N = 106$. Quand le nombre de neutron est pair, la force d'appariement est alors capable de stabiliser le noyau dans sa forme presque sphérique plus loin de la stabilité.

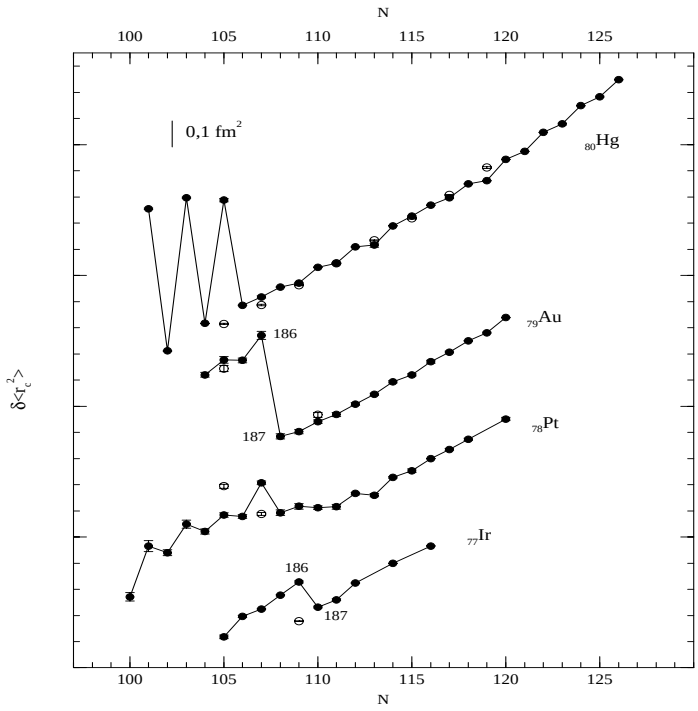

FIG. 7.15: *Variation du rayon carré de charge des noyaux de Hg [52], Au [55] [56] [57], Pt [58] [59] et Ir. Cette figure est extraite de la thèse de David Verney [53].*

Cette région a également été étudiée par David Verney [53] dans sa thèse de doctorat

où il compare le comportement des rayons de charge des chaînes isotopiques voisines de Z pairs ($_{80}$Hg et $_{78}$Pt) et Z impairs ($_{79}$Au et $_{77}$Ir) du côté déficient en neutrons (voir la figure 7.15). Sa conclusion est que dans le cas des chaînes isotopiques de Z pairs, c'est-à-dire lorsque le proton est apparié, il semble que ce soit le neutron célibataire qui détermine la forme du noyau. Quand il existe un proton célibataire au contraire les modifications de la forme du noyau sont liées à un changement d'état de ce proton et le neutron ne paraît plus être que spectateur de la déformation. De plus, le fait que cette brusque variation du rayon de charge soit atténuée quand Z diminue laisse penser que ce phénomène de transition de forme est lié à la proximité de la fermeture de couche de protons $Z = 82$.

Très récemment encore, S. A. Fayans [62] a tenté de décrire les oscillations isotopiques des énergies de séparation de nucléons et des rayons de charge par la méthode EDF (Energy-Density Functional method). L'application de cette approche aux noyaux déformés Nd, Er et W montre qu'elle est capable de reproduire assez bien les énergies de séparation et les variations des rayons de charge. Toutefois ce modéle est incapable de reproduire le comportement observé du rayon des noyaux impairs du Hg. Cette incapacité à décrire les rayons du Hg est interprétée par les auteurs par la possibilité de co-existence de formes où différentes configurations du noyaux résultent en une énergie totale très proche.

Qu'apportent les mesures des masses ?

L'exploration de cette région de la charte des noyaux est difficile à cause de la présence d'isomères de faibles énergies (respectivement 120 keV, 54 keV, 128 keV, 132 keV et 264 keV pour les ^{185,187,191,193,197}Hg) et de durée de vie comparable à celles des états fondamentaux qui nécessite des pouvoirs de résolution extrêment élevés ($\geq 10^6$) qu'il n'est possible d'atteindre qu'avec un piège de Penning. Il est à noter que quelques noyaux de cette région ont été mesurés par spectromètrie de masse Schottky dans un anneau de stockage [44] et que les résultats sont en accord. Toutefois les mesures d'ISOLTRAP vont plus loin de la stabilité et sont typiquement cinq fois plus précises que celle obtenues avec l'anneau de stockage. Comme on l'a vu dans l'évaluation des masses au cours de la section précédente, cette zone de la charte des noyaux est située sur le passage de plusieurs chaînes de désexcitation α. En conséquence, beaucoup de valeurs de masse sont liées entre elles et les erreurs de mesures sont alors propagées et amplifiées quand on s'éloigne de la stabilité. Cela transparait immédiatement quand on examine, sur la figure 7.16, l'état des surfaces S_{2n} dans cette zone avant et après la série de mesure de la chaîne isotopique des Hg par ISOLTRAP. L'amélioration de la précision des mesures a permis de mettre en évidence un comportement très linéaire des valeurs S_{2n} avec N pour tous les éléments de cette chaîne. Ces mesures ont aussi un impact énorme sur tous les noyaux voisins où ce phénomène de lissage des courbes intervient également.

Qu'est ce que ces mesures de masse peuvent apporter à l'étude de cette région de transition de forme ? La mesure de la masse du noyau, donc de son énergie totale, est une information difficile à interpréter car elle reflète le comportement de la structure nucléaire de manière globale. Dans la continuité des hypothèses de Frauendorf et Pashkevish et de la description d'Otten développées plus haut, il peut être intéressant d'évaluer l'énergie

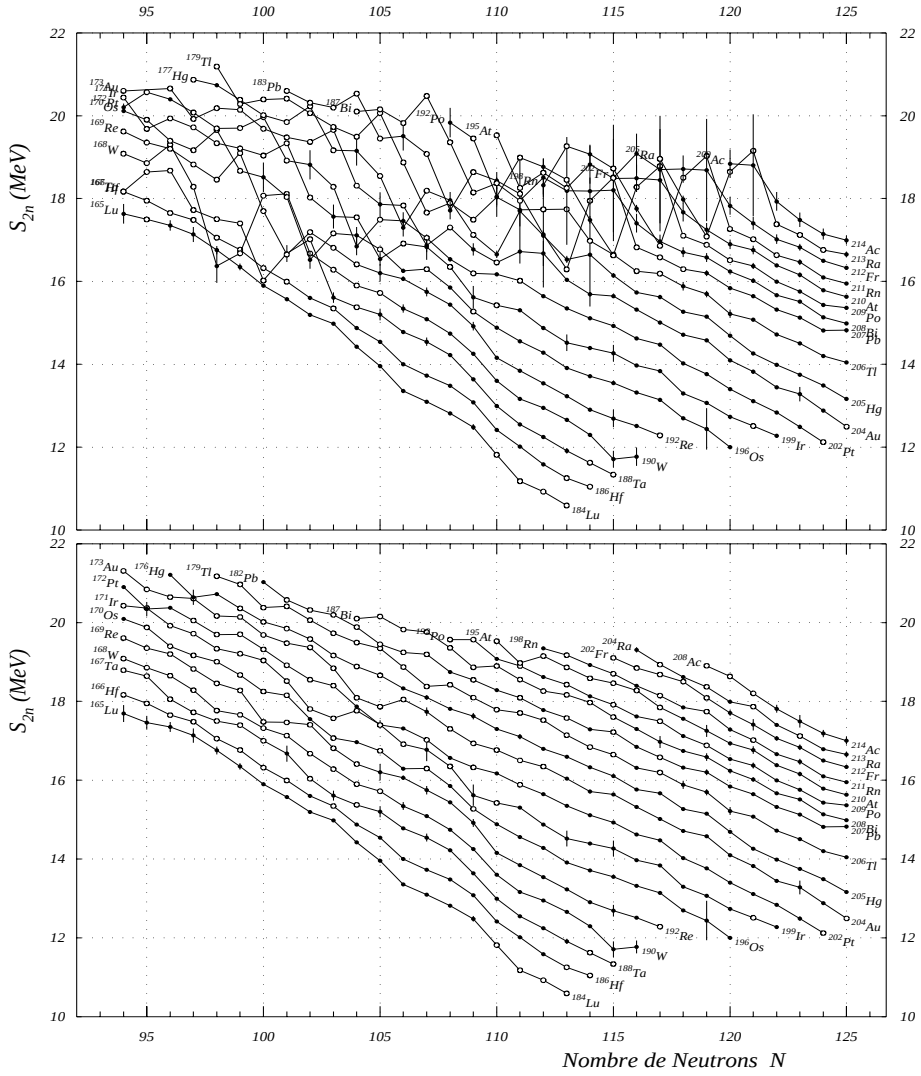

FIG. 7.16: *Evolution des énergies de séparation de deux neutrons dans la région des Hg. En haut, la situation avant la série de mesure des noyaux de Hg par ISOLTRAP (source AME 95). En bas, cette même région après les mesures d'ISOLTRAP. Les points pleins représentent les valeurs expérimentales et les creux les valeurs systèmatiques.*

d'appariement des neutrons le long de cette chaîne isotopique. Cette énergie d'appariement est représentée par la différence entre les courbes paires et impaires des énergies de séparation d'un neutron S_n. Pour déterminer cette valeur on peut utiliser les formules du gap d'appariement $\Delta^{(n)}(N)$ définies dans le cadre du modèle BCS (Bardeen, Cooper et Schrieffer [54]) et qui sont reliés aux énergies de liaisons d'une chaîne isotopique par les relations (pour $n = 3, 4$) :

$$\Delta^{(3)}(N) = \frac{(-1)^N}{2}\left[B(N-1) + B(N+1) - 2\,B(N)\right] \tag{7.16}$$

$$\Delta^{(4)}(N) = \frac{1}{2}\left[\Delta^{(3)}(N) + \Delta^{(3)}(N-1)\right] \tag{7.17}$$

où $B(N)$ est l'énergie de liaison définie par l'équation 1.1. Dans le cas de noyaux ayant un nombre de protons pair, la valeur $\Delta^{(4)}(N)$ est une mesure de la différence pair-impair qui existe entre les courbes S_n et donc de l'énergie d'appariement neutron-neutron Δ_{nn}. Dans le cas d'isotopes de Z impairs, il faut alors tenir compte de l'interaction résiduelle neutron-proton et cette quantité mesure alors la différence $\Delta_{nn} - \Delta_{np}$.

La figure 7.17 (en haut) présente une comparaison de l'évolution de $\Delta^{(3)}$, $\Delta^{(4)}$ et de la variation du rayon carré de charge $\delta < r^2 >$en fonction du nombre de neutrons. On observe que la zone où sont observées les variations brutales du rayon carré de charge correspond à une oscillation des courbes de gap d'appariement. Les courbes $\Delta^{(4)}(N)$ ne donnent qu'une information sur les variations relatives des énergies d'appariement des neutrons et l'interprétation de la manifestation observée nécesssite une analyse plus poussée. Dans ce sens le comportement des énergies de liaison des noyaux à proximité de la région de déformation peut nous apporter des informations complémentaires. Le bas de la figure 7.17 représente les excès de masse mesurés pour les noyaux pairs et impairs en neutrons. Pour faciliter la mise en évidence des structures de ces courbes nous leur avons retranché les valeurs des excès de masse prédites par la formule de la goutte liquide de Bethe et Weizsaker [1] [61]. Les valeurs des coefficients utilisés pour ce calcul sont les suivantes : terme de volume $\alpha = 12,13$ MeV, terme d'asymétrie $\beta = 15,8$ MeV et terme de surface $\gamma = 13,2$ MeV.

Ces différences, représentées en comparaison du gap d'appariement $\Delta^{(4)}$, montrent que l'oscillation observée correspond à une variation de l'énergie de liaison des noyaux impairs. La partie droite de la courbe, jusqu'à $N = 107$ montre une baisse régulière de l'énergie de liaison des noyaux impairs que, dans le sens de l'explication donnée plus haut par Otten [42], l'on peut interpréter comme une perte d'énergie d'appariement due à l'effet de blockage. A partir d'un certain point, le noyau se déforme pour compenser cette perte d'énergie de liaison et cela se traduit sur la figure par un rapprochement entre les deux courbes. On observe pour $N = 179$ une brusque augmentation de la distance séparant ces courbes ce qui semble indiquer une nouvelle baisse de l'énergie d'appariement dans les noyaux impairs que l'on ne peut comparer à l'évolution des rayons par manque de données expérimentales.

Il est à noter que la mise en évidence de cet effet, dont l'amplitude est de l'ordre d'une centaine de keV est rendue possible par l'existence et la précision ($\simeq$ 20 keV pour toute la chaîne isotopique mesurée) des nouvelles mesures d'ISOLTRAP. Ceci est à comparer avec la situation de l'AME 1995 (Atomic Mass Evaluation) qui fournit principalement, dans cette région de la chaîne isotopique, des valeurs non expérimentales des masses de Hg entachées d'erreurs de quelques centaines de keV.

Comme l'illustre la figure 7.16, les mesures d'ISOLTRAP ont permis de fixer plus précisément la masse de beaucoup de noyaux de cette région de la charte. Il est alors intéressant de comparer les comportements du gap d'appariement des chaînes isotopiques des Hg, Au, Pt et Ir dont nous avons évoqué la similitude du comportement des variations des rayons carrés de charge vis-à-vis de la parité du nombre de protons (voir la figure 7.15).

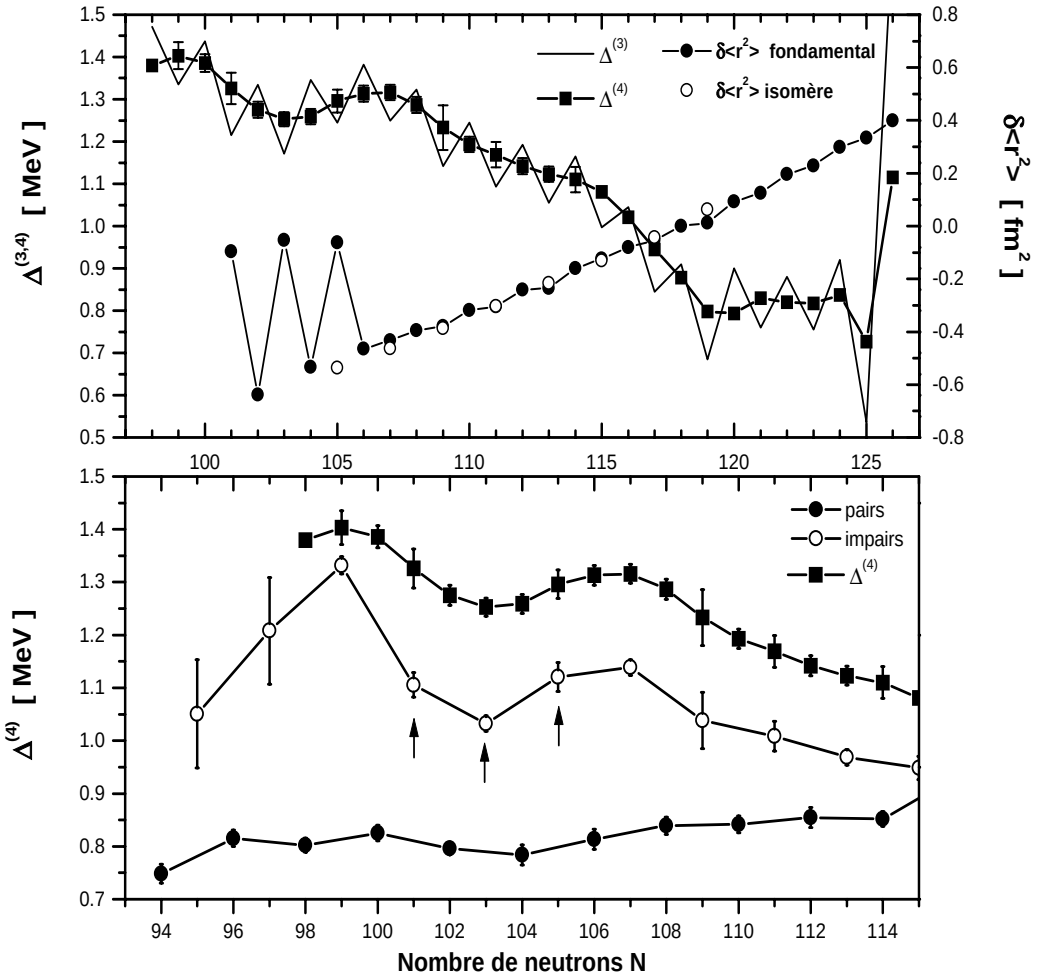

FIG. 7.17: *En haut, on représente les gaps d'appariement* $\Delta^{(3)}$ *et* $\Delta^{(4)}$ *tels qu'ils sont définis dans les équations 7.16 et 7.17 en comparaison de la variation de rayon carré de charge pour la chaîne isotopique des Hg. On peut voir, à* $N = 126$ *sur la droite de la figure, les effet de la fermeture de couche de neutron. La figure du bas représente les excès de masse pour les isotopes pairs et impairs du Hg auquel on a retranché les valeurs données par la formule de la goutte liquide (la courbe concernant les noyaux pairs a été décalée de 1 MeV vers le haut). Les noyaux déformés sont indiqués par une flêche.*

Cette comparaison est présentée sur la figure 7.18. La première observation que l'on peut faire concerne l'évolution générale de ces courbes où l'on note une augmentation du gap d'appariement quand on s'éloigne de la fermeture de couche en neutrons $N = 126$. Par analogie avec le cas du Hg, on peut interpréter cette tendance comme une diminution de l'énergie de liaison des isotopes impairs de ces chaînes.

En ce qui concerne les chaînes isotopiques de Z pair, on remarque la similitude des courbes $\Delta^{(4)}$ du Pt et du Hg qui montrent toutes deux un décrochage du gap d'appariement. Le fait que cette zone soit plus large dans le cas du Pt peut s'interpréter par le fait que, si

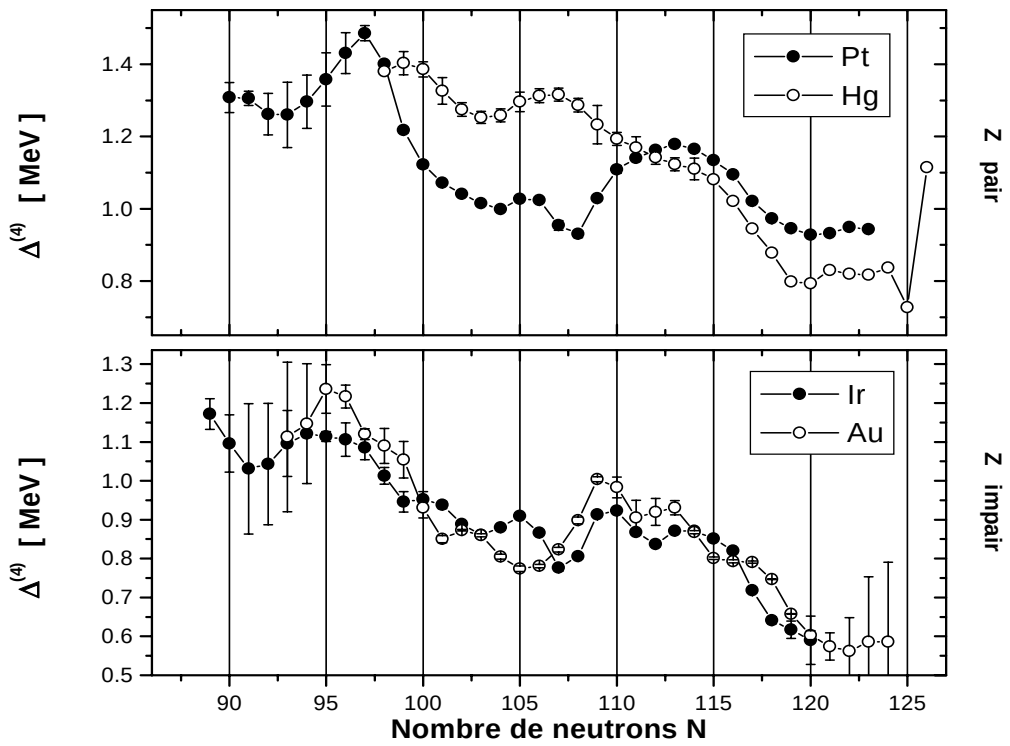

FIG. 7.18: *Comparaison des gaps d'appariement $\Delta^{(4)}(N)$ entre les chaînes isotopique de Z pair ($_{80}Hg$ et $_{78}Pt$) et de Z impair ($_{79}Au$ et $_{77}Ir$).*

la première variation importante du rayon de charge de cet élément est mesurée à $N = 107$, on observe sur la figure 7.15 que les noyaux de cette chaîne isotopique commencent à se déformer vers $N = 111$. Les mesures du rayon de charge du Pt, poussées plus loin que celles du Hg vis-à-vis du nombre de neutrons, permettent également de constater la persistance de la déformation du côté léger jusqu'à $N = 100$.

Dans le cas des éléments Au et Ir, de Z impair, les courbes $\Delta^{(4)}(N)$ sont maintenant influencées par l'interaction résiduelle neutron-proton. Dans les noyaux de N impair, cette interaction va avoir pour effet de lier le neutron célibataire et de rapprocher les courbes S_n entre noyaux pair et impair. Ce phénomène apparait directement sur les courbes de la figure 7.18 où l'on observe ce décalage (entre la figure du haut et celle du bas) d'une valeur d'environ 200 keV. Une fois de plus, les comportements des gaps d'appariement de Z identique montrent des similitudes. Cependant, il n'apparaît cette fois-ci aucune corrélation évidente entre entre les courbes $\Delta^{(4)}(N)$ et les variations des rayons de charge connues (brusque transition de forme à $N = 107$ pour l'Au et à $N = 109$ pour l'Ir). Dans le sens des conclusions données par David Verney plus haut, cette constatation peut être interprétée par le caractère "spectateur" du neutron face aux modifications de la forme du noyau. Celles-ci étant déterminées par l'état du proton célibataire.

7.7.3 Comparaison avec les modèles de masse

Dans cette section nous allons évaluer le comportement des masses nouvellement mesurées de mercure vis-à-vis de quelques modèles de masse existants. La figure 7.19 montre le résultat de la différence entre les masses mesurées (ou à défaut extrait de la table de masse AME 95) et plusieurs modèles utilisant des approches algébriques (Janecke et Masson), macroscopique- microscopique (Du-Zu, FRDM) ou purement microscopique (ETFSI, HF-BCS, HF-Bo).

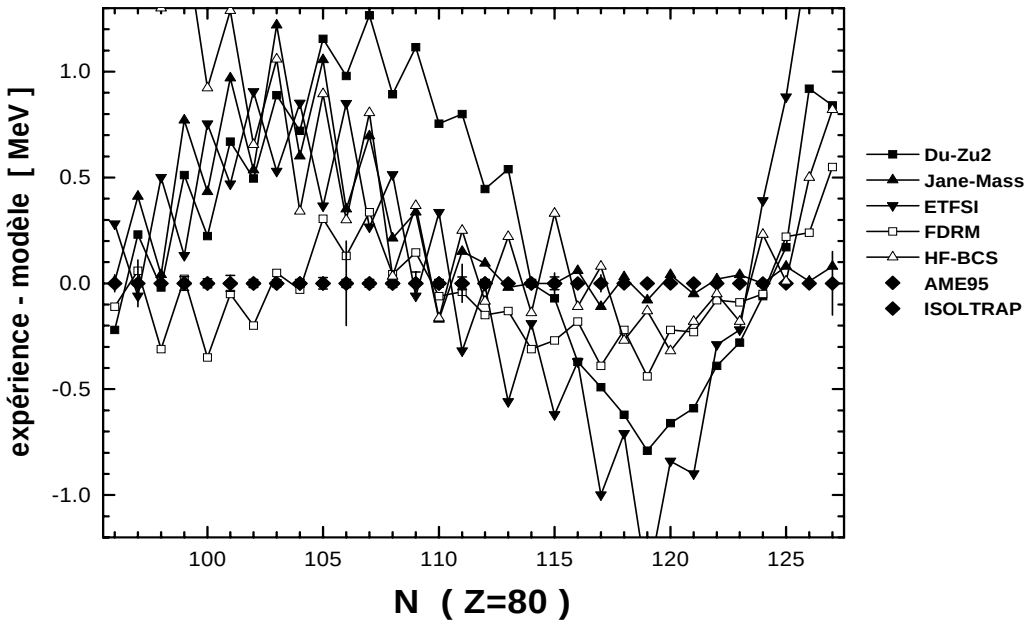

FIG. 7.19: *Représentation de la différence entre les valeurs expérimentales des masses de Hg et celles prédites les modèles de Duflo-Zucker [75], Janecke et Masson [69](basée sur l'approche de Garvey-Kelson [46]), ETFSI (Extended Thomas-Fermi Strutinski Integral [70]), FDRM (Finite Range Droplet Model [71]) et HF-BCS [68]. En dehors des masses mesurées par ISOLTRAP, les valeurs expérimentales sont issues de l'évaluation des masses 1995 (AME95 [26]).*

En plus du fait que l'on trouve des dispersions de plus de 1 MeV entre les différents modèles, il est remarquable que, bien que tout les modèles suivent la même tendance, aucun d'entre eux n'est capable de reproduire correctement la variation de la masse entre isotopes pair et impair en neutrons. Cet effet a été récemment le sujet d'une étude par Satula *et al* [50] qui a pour conclusion que cette variation est le résultat de deux phénomènes : le premier a pour origine l'appariement tandis que le second, comparable en magnitude, a provient de la déformation du noyau.

Les données fournies par ISOLTRAP nous donne l'opportunité d'examiner cette question par l'évaluation précise du paramètre $\Delta^{(4)}$ défini dans la section précédente et utilisé par Satula *et al* dans son étude. L'interprétation des masses par l'intermédiaire de ce paramètre permet de masquer les décalages importants qu'il peut y avoir entre les données pour s'intéresser aux variations relatives, plus significatives, d'effets dûs à la structure nucléaire. La figure 7.20 présente un calcul du paramètre $\Delta^{(4)}$ effectué en utilisant les valeurs fournit par les mêmes modèles que la figure 7.19 et les compares avec les valeurs expérimentales de ce paramètre (hormis le modèle HF-Boqui qui n'est pas utilisé dans la figure 7.19 à cause d'un trop grand décalage avec les valeurs expérimentales).

Il apparaît que la plupart des modèles (hormis les approches microscopiques ETFSI et HF-Bo) ne reproduisent pas la tendance à l'augmentation du gap d'appariement à partir de la fermeture de couche quand N diminue. Les modèles en question prédisent une énergie d'appariement quasiment constante le long de cette région de la chaîne isotopique et ne rendent alors pas compte de la perte d'énergie de liaison des noyaux impairs que l'on a interprétée dans la section précédente comme une confirmation de l'effet de "blocage" suggéré par Otten. On peut remarquer que les approches non microscopique comme le modèle FRDM (basé sur l'approche de la goutte liquide) ou Janecke *et al* (de type Garvey-Kelson [46]) sont en bon accord avec les anciennes valeurs expérimentales mais s'écartent fortement des valeurs nouvellement mesurées. Peut être peut-on voir ici l'influence de l'adaptation de beaucoup de paramètres libres d'un modèle sur les données expérimentales.

Les modèles ETFSI et HF-Bo, au contraire, sont les seuls parmis les approches présentées à reproduire ce comportement. Le modèle ETFSI, qui est basé sur une approximation Hartree-Fock, donne des valeurs trop élevées du paramètre $\Delta^{(4)}$ mais reproduit le décrochage observé pour $100 < N < 107$ dont la figure 7.17 nous montre qu'il correspond à la zone de transition de forme de la chaîne isotopique des Hg.

Par comparaison, le modèle HF-Bo donne des valeurs beaucoup plus proches sans toutefois reproduire ce creux du gap d'appariement. Ce dernier utilise une approche Hartree-Fock où l'appariement a été introduit de manière auto-consistante par l'intermédiaire d'un calcul HF-Bogoliubov. Il est à noter que cette approche est la seule, parmi celles présentées ici, à utiliser un potentiel sphérique. Cela est peut être une confirmation de la correspondance établie sur la figure 7.17 entre ce décrochage des valeurs du gap d'appariement et la région de déformation des Hg.

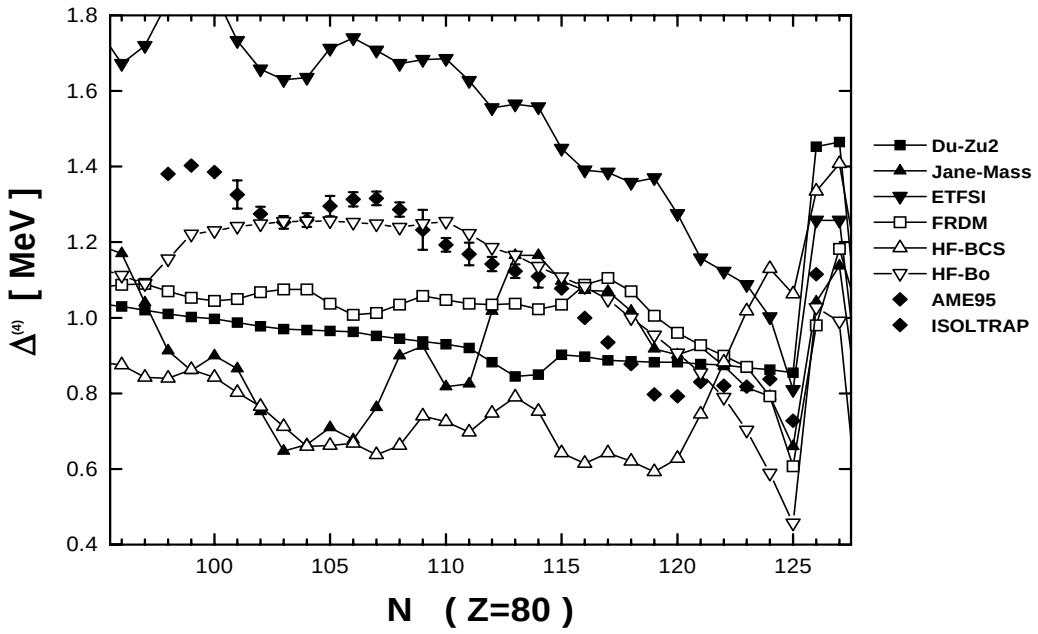

FIG. 7.20: *Comparaison du gap d'appariement à 4 points ($\Delta^{(4)}$) entre les données expérimentales et les prédictions de modèles de masse. Le modèle HF-Bo, qui apparait en plus de ceux représentés dans la figure 7.19, est de type Hartree Fock Bogoliubov [72].*

Conclusion

Au cours de ce travail de thèse, j'ai été impliqué dans deux expériences à ISOLDE, MISTRAL et ISOLTRAP qui utilisent des technologies différentes pour parvenir à un même but : la mesure de masse de haute précision de noyaux exotiques. Aussi différentes qu'elles soient, ces méthodes se trouvent cependant un point commun dans l'utilisation de pièges électromagnétiques pour la mise en forme du faisceau d'ions incident en effectuant notamment une réduction d'émittance. Ces deux expériences font partie du réseau Européen EXOTRAPS qui regroupe les installations de faisceaux radioactifs à grande échelle en Europe (JYFL, GSI, Louvain-la-Neuve, GANIL et ISOLDE). Parmi les autres membres de ce réseau, MISTRAL se distingue principalement par le besoin d'une faible émittance transversale afin de s'adapter à l'acceptance très réduite de ce spectromètre. Ceci est à comparer aux nécessités d'ISOLTRAP d'obtenir des "paquets" d'ions très regroupés temporellement (émittance longitudinale) ou à JYFL qui cherche particulièrement une réduction de la dispersion en énergie du faisceau incident.

Le projet du système de refroidissement de faisceaux pour MISTRAL a débuté lors de mon arrivée au laboratoire CSNSM et a constitué le premier volet du travail qui vous a été présenté dans ce mémoire. Le système en lui-même consiste en un quadrupole à radio-fréquence segmenté rempli de gaz et porté à la haute tension pour décélérer les ions incidents. Cette étude a également nécessité la mise au point d'un outil, l'émittance-mètre, permettant, par un balayage électrostatique du faisceau, la mesure directe de l'émittance transversale dans une large gamme d'énergie et d'émittance.

Ce travail de thèse a permis d'étudier et de mener à leur terme le développement de ces deux instruments et de démontrer, par une exploration directe de l'espace des phases, la réduction d'émittance d'un faisceau en mode continu. Ces premières mesures directes, permises par le développement de l'émittance-mètre, seront présentées à la conférence Exotic Nuclei and Atomic Masses 2001[1].

Les difficultés inhérentes au principe même de ce dispositif, comme l'introduction d'un faisceau de "haute énergie" dans un piège ou le processus de refroidissement, ont pu être étudiées en détails grâce au travail de simulation effectué sur les trajectoires des ions mais

[1] S. Henry *et al.*, "Direct evidence of beam emittance reduction using a gas-filled radiofrequency quadrupole ion guide"
3rd International Conference Exotic nuclei and Atomic Masses, July 2-7 2001, Finland

aussi sur la modélisation de l'interaction ion-atome basé sur les mobilités mesurées des ions. Ce développement nous a également confronté à des obstacles d'ordre plus techniques comme la cohabitation de gradients élevés de champ électrique statiques et oscillants et de gaz dans des régimes de pressions favorable aux disruptions. La prochaine étape de l'évolution du système de refroidissement est, outre la réfection liée au défaut de transmission à basse énergie (la décharge électrique récemment découverte), l'adaptation des électrodes de décélération-accélération à l'énergie correspondante au faisceau ISOLDE (60-80 keV) pour une phase de tests auprès du séparateur SIDONIE à Orsay et enfin l'installation auprès du spectromètre MISTRAL sur la ligne de faisceau ISOLDE.

Ma participation à l'expérience ISOLTRAP m'a permis de m'intégrer et de participer à un projet plus avancé et de pouvoir alors procéder à des mesures de spectrométrie de masse en bénéficiant de l'apport du système de collection et de refroidissement nouvellement développé. Ma contribution à ce projet, sur une durée de 6 mois au CERN, a consisté en premier lieu en la modélisation de l'extraction des paquets d'ions du quadrupole puis en l'installation et aux tests du système et enfin la prise de mesures. Le développement de ce système a donné lieu à une publication indiquée à la référence [35]. Les perspectives offertes par ce dispositif au spectromètre ISOLTRAP, notamment en terme de sensibilité, ont dans ce cas pu se concrétiser par la mesure de la masse de la chaîne isotopique des mercure du coté déficient en neutrons. Les performances de la partie spectromètrie elle-même de cette expérience, aussi bien en termes de résolution que de précision, ont permis d'apporter un éclairage nouveau sur le comportement des énergies de liaison de cette région caractérisée par la co-existence de formes. Concernant le mercure lui-même, la conclusion de ce travail, qui vient en complément de celui effectué par S. Schwarz [60], a été la mise en évidence d'une corrélation entre les brusques changements de forme des noyaux et le comportement des énergies de liaison des isotopes impairs en neutrons. Cela semble corroborer l'interprétation de ce phénomène par l'effet dit de "blocage" du neutron célibataire. De plus, la nouvelle évaluation des masses de la région toute entière qui a été effectuée suite aux mesures d'ISOLTRAP a permis de s'intéresser à l'analogie des comportements observés dans les couples $_{80}$Hg-$_{78}$Pt et $_{79}$Au-$_{77}$Ir. De ce coté là, les mesures pourraient confirmer le comportement "spectateur" du neutron en présence d'un proton célibataire. Ces mises en évidences, qui seront également présentées à la conférence ENAM 2001[2], sont propres à suggérer un travail théorique indispensable à une meilleure compréhension de l'ensemble de cette région.

[2]S. Henry *et al.*, "Mid shell crisis and the pairing gap in neuton-deficient Hg isotopes" 3rd International Conference Exotic nuclei and Atomic Masses, July 2-7 2001, Finland

Remerciements :

Si ce mémoire présente le travail de quelques années d'apprenti-physicien, il ne peut toutefois rendre compte de toutes les facettes plus humaines que constitue une thèse. Que ceux qui par leur aide ou leur simple présence ont contribué à rendre cette aventure surmontable trouvent dans cette page les remerciements qui leur sont dus.

Mes premiers remerciements vont aux membres du groupe Masse Atomique qui m'ont accueilli pour effectuer ce travail de thèse. Les discusions que j'ai pu avoir avec Georges Audi, Michel de Saint-Simon, Carole Gaulard ou Catherine Thibault m'ont beaucoup appris sur la précision, la rigueur mais aussi le calme nécessaire pour aborder les questions scientifiques.

Ce travail, dont le côté technique est prépondérant, n'aurait pu se faire sans les contributions de Michel Jacotin et Jean-Francois Kepinski aussi bien pour la conception elle-même des instruments que pour les "dépannages" plus qu'occasionnels. Egalement et malgré l'éloignement, je remercie Geneviève Le Scornet dont la gentillesse et les conseils au moment de mon arrivée ont facilité mon intégration dans le groupe.

Je souhaite également remercier les compagnons de passage qu'ont été Cyril Bachelet et Zahia Djouadi. Le premier pour les interminables séances de montage-démontage du dispositif expérimental et la seconde pour m'avoir soutenue, ou devrais-je dire supporté, durant les derniers moments de cette tribulation.

Enfin, une mention particulière pour David Lunney qui, en acceptant la charge d'encadrer ce travail, a appris le dur métier de directeur de thèse en même temps que je débutais dans celui de chercheur. Merci pour la convivialité de cette expérience partagée au laboratoire aussi bien que devant une "Dark de Triomphe ".

Je voudrais également exprimer ma reconnaissance à l'ensemble des membres du jury qui ont accepté d'apporter leur contribution à ce travail.

Une part inportante de ce travail de thèse a été effectuée auprès du spectromètre ISOLTRAP et je voudrais ici remercier Georg Bollen, Stefan Schwarz, Frank Herfurth et Alban Kellerbauer de m'avoir accueilli pour quelques mois dans leur groupe et m'avoir laissé "jouer" avec leur expérience.

Au fil des années passées au laboratoire, j'ai eu le plaisir de côtoyer certaines personnes

qui par leur action ou leur simple aura ont contribué à rendre cette période plus agréable.

En premier lieu, je voudrais remercier Annie Ballouard, Elisabeth Seibert, Monique Perrin et Jean-Luc Picot qui ont su avec patience et bonne humeur me guider dans les méandres obscurs de l'administration. Largement solicités eux aussi, ma reconnaissance va à Pascal Pariset et à tous les membres de l'atelier mécanique du CSNSM pour la qualité du travail effectué tout au long de ces années.

Je remercie également Kim, Guillaume et Nader en particulier pour les cigarettes empruntées, Céline pour avoir défriché le chemin avant moi ainsi que Cyril, Serge et Sébastien pour les parties effrenées de squash et les quelques victoires qu'ils ont bien voulu m'accorder au début. Je ne peux oublier Graciela car elle est la seule à rire de mes blagues (quand elle les comprend).

Tout comme certains chateaux Ecossais, le laboratoire est un lieu ou une forme de vie peut éclore une fois la nuit tombée. Je souhaite dans ces lignes remercier tout ces fantômes pour les moments d'allégresse et de désespoir partagés à ces moments là. Qu'il soit donc rendu grâce aux esprits de Gian-Carlo et de ces idées idiotes, de l'existentialiste Cristian ou de la princesse Fairouz sans oublier ceux d'Alex et de Faouzi-la-salsa. Que les bruits de nos chaines enfin brisées résonnent à jamais dans les couloirs du laboratoire !

De la manière la plus chaleureuse qu'il soit, je voudrais remercier Hélène qui, de ces quelques années de recherche dans le laboratoire, est ma plus jolie trouvaille.

Enfin, en direction du sud et jusqu'à la mer, une pensée vers la famille qui, avec une certaine authenticité et en guise de mise à l'épreuve de mes motivations pour la physique, a dès le début cerné une question essentielle : "A quoi ca sert ce que tu fais ?".
Alors, à la lecture du manuscrit, êtes-vous plus avancés maintenant ?

Bibliographie

[1] C.F. Weiszaecker, Z. Phys. 96 (1935) 431.

[2] L.S. Brown and G. Cabriese, Rev. Mod. Phy. 58 (1986) 233.

[3] D.Beck *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. B 126 (1997) 374-377.

[4] G. Bollen *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. A 368 (1996) 675-697

[5] S.Schwarz, PhD Thesis, Universitat Mainz, december 1998.

[6] G. Savard *et al.*, Physics Letters A 158 (1991) 247-252

[7] M. Koenig *et al.*, Int. J. Mass Spectrom. Ion Process. 142 (1995) 95

[8] R.B. Moore, J. Mod. Optic 39 (1992) 361

[9] F. von Bush and W.Paul, Z. Phys., 164 (1961) 581

[10] W. Paul and H. Steinwedel, Z. Naturforsh, A, 8 (1953) 448

[11] R. S. Van Dyck Jr *et al.*, J. Mod. Optics 39 (1992) 243

[12] Taeman Kim "Buffer gas cooling of ions...." Mc Gill University, August 1997.

[13] L.A. Viehland and E.A. Mason, At. Data Nucl. Data Tables 60 (1995) 37

[14] S.Chu, C.N. Cohen-Tannoudji and W.D. Phillips Rev. Mod. Phys. (1998) 685

[15] H.G. Dehmelt, Advances in Atomic Physics 3 (1967) 53

[16] Dawson, quadrupole Mass spectrometry and its applications, (Elsevier Scientific Publishing Compagny, Amsterdam, 1976)

[17] D.J. Douglas and J.B. French, Journal of the American Society of Mass Spectrometry 3 (1992) 398

[18] Townsend, T.S., Phil. Trans. 193, 129 (1899)

[19] M.D. Lunney and R.B. Moore, Int. J. Mass Spectrom.190 (1999) 153

[20] J. J. Thomson, Philosophical Magazine VI 24 (1999) 209,668

[21] P. B. Schwinberg *et al.*, Phys. Rev. Lett. 47 (1981) 1679

[22] G. Gabrielse *et al.*, Phys. Rev. Lett. 74 (1995) 3544

[23] Cristian Toader, "Mesure des masses atomiques de nucléides..." Thèse doctorale, Université Paris-Sud, juillet 1999

[24] Céline Monsanglant, "Mesure de masses de haute précision avec MISTRAL..." Thèse dictorale, Université Paris-Sud, octobre 2000

[25] W. Benenson and E. Kashy, Rev. of Mod. Phys. 51, 527 (1979)

[26] G. Audi and A.H. Wapstra "The 1995 update to the atomic mass evaluation", Nucl. Phys. A595 vol4 (1995) 409

[27] W. Mittig *et al.*, "Mass measurement far from stability", Annu. Rev. Nucl. Sci. 1997.47 27-66

[28] A. Coc *et al.*, Nucl. Inst. and Meth. A 305, 143 (1991)

[29] SIMION 3D version 6.0, David A. Dahl, Idaho National Engineering Laboratory

[30] L. G. Smith and C. C. Damm, Rev. Sci. Instr. 27 (1956) 638

[31] M. Chartier *et al.*, Phys. Rev. Lett. 77 (1996) 2400

[32] A. Gillibert *et al.*, Phys. Rev. Lett. B 192 (1987) 39

[33] D. J. Vieira *et al.*, Phys. Rev. Lett. 57 (1986) 3253

[34] S. Issmer *et al.*, Eur. Phys. J. A 2, (1998) 173-177

[35] F. Herfurth *et al.*, Submitted to NIM A

[36] G. Audi *et al.*, Nucl. Phys. A624, 1 (1997)

[37] A. Igarashi *et al.*, Phys. Rev. Lett. 83 (1999) 4041

[38] R. Coté., Phys. Rev. Lett 85 (2000) 5316

[39] W. M. Itano *et al.*, "Cooling Methods in ion traps", Physica Scripta. Vol. T59, 106-120, 1995

[40] G. A. Boutry., "Industries du vide et de l'électronique", Tome 1

[41] H. Raimbault-Hartmann., Nuclear Instruments and Methods B 126 (1997) 378-382

[42] E. W. Otten in "Treatise on heavy-ion Science" p.517-628, (edited by D. A. Bromley)

[43] C. Thibault, "Etude par spectrométrie de masse en ligne des noyaux légers exotiques", Thèse doctorale, Université Paris-Sud, juin 1971

[44] M. Konig *et al.*, Int. J. Mass Spectr. Ion. Proc. 142, 95 (1995)

[45] F. W. Aston, Phil. Mag. 45 (1923) 934, Proc. of Royal Soc. A115 (1927) 487

[46] G. Garvey and I. Kelson., Phys. Rev. Lett. 16 (1966) 197

[47] M. de Saint-Simon *et al.*, Physica Scripta Vol. 59 (1995) 406-410

[48] J.L. Wood *et al.*, Physics Reports 215, Nos. 3 & 4 (1992) 101-201

[49] K. Heyde *et al.*, Physics Reports 102, Nos. 5 & 6 (1983) 291-393

[50] W. Satula *et al.*, Phys. Rev. Lett. Vol. 81, 17 (1998) 3599-3602

[51] J. Bonn *et al.*, Phys. Lett. 38B (1972) 308

[52] G. Ulm *et al.*, Z. Phys. A 325 (1986) 247

[53] D. Verney, "Etude des noyaux d'Ir déficients en neutrons par spectroscopie laser", Thèse doctorale, Université Joseph Fourier-Grenoble 1, décembre 2000

[54] J. Bardeen *et al.*, Phys. Rev. 108 (1957) 1175

[55] K. Wallmeroth *et al.*, Nucl. Phys. A493 (1989) 2224

[56] G. Savard., Nucl. Phys. A512 (1990) 241

[57] G. Passler *et al.*, Nucl. Phys. A580 (1994) 173

[58] T. Hilberath *et al.*, Z. Phys. 332 (1989) ; Z. Phys. 342 (1992) 1

[59] F. Leblanc *et al.*, Phys. Rev. C 60, 054310 (1999)

[60] S. Schwarz *et al.*, accepté dans Nucl. Phys. A

[61] H. A. Bethe and R. F. Bacher, Rev. Mod. Phys. 8 (1936) 82

[62] S. A. Fayans *et al.*, submitted to Nucl. Phys. A

[63] D. Beck *et al.*, Eur. J. Phys. A 8 (2000) 307

[64] T. Motobayashi *et al.*, Phys. Lett. B 346(1995) 9

[65] S. Frauendorf and V. V. Pashkevich, Phys. Lett. 55B (1975) 365

[66] M. Belleguic-Pigeard, "Spectroscopie γ en ligne au moyen de la fragmentation du projectile au GANIL...", Thèse doctorale, Université Claude Bernard Lyon-1, mai 2000

[67] P. Dabkiewicz *et al.*, Phys. Lett. 82B (1979) 199

[68] F. Tondeur *et al.*, "Towards a Hartree-Fock mass formula", Phys. Rev. C 62 (2000) 024308

[69] J. Janecke and P.J. Masson, At. Data Nucl. Data Tables 39 (1988)...

[70] Aboussir *et al.*, At. Data Nucl. Data Tables 61 (1995) 127

[71] P. Moller *et al.*, At. Data Nucl. Data Tables 59 (1995) 185

[72] J. Dobaczewski., Private Communication

[73] F. Buchinger *et al.*, Phys. Rev. C (1985) 2058

[74] Tachibana *et al.*, At. Data Nucl. Data Tables 39 (1995)...

[75] J. Duflo and A. Zuker., Phys. Rev. C 59 (1999) R2347

[76] J. Duflo and A. Zuker., Phys. Rev.C 52 (1995) 23

[77] W. D. Myers and W. J. Swiatecki., Nucl. Phys. A 601 (1996) 141

[78] A. N. Andreyev *et al.*, Acta Physica Polonica B 30 (1999) 1255

[79] F. Herfurth *et al.*, Phys. Rev. Lett. (2001), in print

[80] F. Herfurth *et al.*, Eur. Phys. Jour. A, Proceedings ENAM 2001