

Un nouveau piège à ions circulaire pour la spectrométrie de masse et la structure nucléaire

Enrique Minaya Ramirez

▶ To cite this version:

Enrique Minaya Ramirez. Un nouveau piège à ions circulaire pour la spectrométrie de masse et la structure nucléaire. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Paris Sud - Paris XI, 2009. Français. NNT : . tel-00421111

HAL Id: tel-00421111 https://theses.hal.science/tel-00421111v1

Submitted on 30 Sep 2009

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.





CENTRE DE **S**PECTROMÉTRIE **N**UCLÉAIRE ET DE **S**PECTROMÉTRIE DE **M**ASSE UNIVERSITÉ PARIS-SUD 11 - CNRS - IN2P3

 N^o d'ordre : 9507

UNIVERSITÉ PARIS-SUD 11 U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THÈSE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SUD 11

 par

Enrique MINAYA RAMIREZ

Un nouveau piège à ions circulaire pour la spectrométrie de masse et la structure nucléaire

Soutenue le 18 septembre 2009 devant le jury composé de :

М.	Pierre Désesquelles	Président
Mme.	Martina Knoop	Rapportrice
М.	Gilles Ban	Rapporteur
Mme.	Marcella Grasso	Examinatrice
М.	David Lunney	Directeur de thèse

Résumé

La détermination de la masse nucléaire permet d'accéder à l'énergie de liaison donc au bilan de toutes les forces agissant dans le noyau. L'exploration de la structure nucléaire requiert la mesure des masses loin de la stabilité. Néanmoins la production des ions radioactifs est peu sélective et l'ion d'intérêt est souvent noyé dans un fond de contaminants isobariques. Ces dernières années, l'utilisation des pièges à ions linéaires et du refroidissement par gaz tampon a été fortement développée permettant la mesure de masse des noyaux exotiques avec une grande précision. Cette thèse porte sur le développement innovant d'un piège de Paul circulaire, "le cirque d'ions". Sa géométrie lui permet de confiner les ions sur un grand nombre de tours. Ainsi, ils peuvent être refroidis avec une pression de gaz tampon de l'ordre de 10^{-4} mbar. Par ailleurs, il est capable de trier en masse les ions piégés et refroidis avec un pouvoir de résolution suffisant pour séparer des isobares. Nous avons réalisé et testé le premier prototype de ce spectromètre à Orsay. Cette thèse étudie également les prédictions des masses par les différents modèles théoriques, en les comparant avec l'approche microscopique HFB-17. Actuellement, la masse des novaux très exotiques peut seulement être prédite. L'étude de l'énergie de séparation de deux neutrons avec HFB-17 met en évidence des zones d'instabilité numérique. Afin de l'améliorer, nous avons apporté une correction aux énergies de déformation calculées par ce modèle, en utilisant comme référence les masses des chaînes isotopiques $^{143-146}$ Xe et $^{223-229}$ Rn que nous avons mesurées avec le spectromètre ISOLTRAP au CERN.

<u>Mots-clés</u> : Piège de Paul circulaire, spectrométrie de masse, mesure de masse, énergie de liaison, structure nucléaire, modèles nucléaires, Hartree-Fock-Bogoliubov

Abstract

Nuclear mass measurements give a direct determination of the binding energy, the result of all forces acting in the nucleus. The exploration of nuclear structure requires the measurement of masses far from stability. However the production of radioactive ions is not very selective and the ion of interest is often lost in a background of isobaric contaminants. The use of linear ion traps and buffer gas cooling has been highly developed in recent years, allowing mass measurement of exotic nuclei with high accuracy. This thesis focuses on the development of a novel circular Paul trap, "the ion circus". Its geometry allows confining ions during several turns. Thus, they can be cooled with a lower buffer gas pressure of about 10^{-4} mbar. Furthermore, during trapping and cooling, the ions may be mass separated with a resolving power sufficient to exclude isobaric contaminants. The first prototype was built and tested at Orsay. Currently, the mass of very exotic nuclei can only be predicted. This thesis also examines the prediction of different mass models by comparing them with the HFB-17 microscopic model. The study of the two-neutron separation energies of HFB-17 revealed numerical instability. To improve this, we have corrected the deformation energies calculated by this model, using as a reference the new isotopic chains ^{143–146}Xe and ^{223–229}Rn, measured with the ISOLTRAP spectrometer at CERN.

Keywords : circular Paul trap, mass spectrometry, mass measurement, binding energy, nuclear structure, nuclear mass models, Hartree-Fock-Bogoliubov

Remerciements

Cette page est la seule à caractère non-scientifique de tout mon manuscrit. Elle me donne l'opportunité de remercier tous les gens qui ont contribué, directement ou indirectement, à l'aboutissement de ma thèse. Depuis le début de celle-ci, le lundi 9 janvier 2006, j'ai eu la chance de rencontrer un grand nombre de personnes, même si je ne cite pas tout le monde dans les lignes qui suivent, elles ont à jamais toute ma reconnaissance !

Je remercie tout d'abord tous les membres de mon Jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail : mes rapporteurs Gilles Ban et Martina Knoop qui ont lu en détail, durant l'été, ma thèse, Pierre Désesquelles qui a assuré la présidence de mon jury et Marcella Grasso qui a porté un regard minutieux sur le chapitre théorique de ma thèse.

Je voudrais ensuite dire à Dave toute ma gratitude pour m'avoir permis de participer à un projet de recherche aussi riche et varié. Je te remercie pour ta confiance, tes enseignements, conseils, suggestions et nos riches conversations toujours ponctuées d'humour. Merci de m'avoir introduit à la famille des "trappistes", notamment celle du CERN. J'espère sincèrement que nos chemins continueront à se croiser dans les années à venir!

Je n'aurais jamais pu construire le Cirque d'ions sans l'aide précieuse de Stéphane Cabaret à qui j'adresse mes plus sincères remerciements pour ses conseils techniques éclairés et l'excellente qualité de nos échanges dès le début de ma thèse. Je souhaite également remercier tous les autres membres du groupe Masse atomique (anciens et nouveaux) : Georges, Carole, Georgi, Enrico, Sarah, Lara, Radomira, Omar, Meng, Karl et Waely, pour leur bonne humeur, leurs conseils et les discussions scientifiques (ou autres) partagées durant tant d'années. Je remercie plus particulièrement Catherine pour son grand investissement dans la lecture de ma thèse, Jean-François pour nos discussions matinales et la transmission de ses connaissances techniques, Romain pour son aide avec Labview et pour m'avoir "accompagné" durant quelques mois dans la "salle spectro".

Je tiens également à remercier les directeurs du CSNSM, Hubert Flocard et Gabriel Chardin, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire. J'exprime également ma reconnaissance à toutes les personnes de l'administration, du service informatique et mécanique pour leur soutien indispensable tout au long de ma thèse. Ainsi qu'à tous les membres du laboratoire qui m'ont donné plus d'une fois des précieux conseils et/ou outils !

Au cours de ma thèse, j'ai également pu travailler et avoir de nombreux échanges passionnants avec des membres de laboratoires internationaux, je leur adresse de vifs remerciements : à Stéphane Goriely et à tous les membres de la collaboration ISOLTRAP.

Un très grand merci aux doctorants et post-docs du CSNSM, du campus d'Orsay et des autres laboratoires internationaux, pour les excellents moments en leur compagnie et pour toutes nos sorties loin des laboratoires. Une mention très spéciale pour mes compagnons de RER B, Sandra et Cyril, qui ont supporté avec moi les retards, les changements de trains, les "colis suspect", les pannes,

Je remercie également ma famille pour leurs encouragements et pour accepter de me voir partir toujours plus au nord. Pour finir, je voudrais remercier Héloïse pour son soutien et ses "ondes positives" qui m'accompagnent depuis presque 9 ans!

Table des matières

Introduction

1	Le p	poids d	le la masse nucléaire	3
	1.1	Que no	ous apporte la mesure de masse?	3
		1.1.1	Qui bénéficie de la mesure de masse?	4
		1.1.2	Quelle unité pour la masse nucléaire ?	5
		1.1.3	Comment évaluer une mesure de masse?	6
	1.2	Comm	ent mesurer la masse des noyaux?	7
		1.2.1	La production des noyaux exotiques	7
		1.2.2	Spectrométrie de masse	9
		1.2.3	Mesure de masse	12
2 50 ans de Pièges à ions		Pièges à ions	15	
	2.1	Le con	finement des ions	16
		2.1.1	Les pièges à champ électrique quadrupolaire	16
		2.1.2	La dynamique des faisceaux : l'espace des phases	25
		2.1.3	Température d'un faisceau	28
	2.2	La géo	ométrie des pièges	29
		2.2.1	Pièges à deux dimensions	29
		2.2.2	Pièges à trois dimensions	31
	2.3	Emplo	i des pièges en physique nucléaire	31
		2.3.1	Préparation d'un faisceau	32
		2.3.2	Mesure des Masses	34
3 Le Cirque d'ions : un piège multitâche		d'ions : un piège multitâche	35	
	3.1	Un piè	ege de Paul particulier	36
		3.1.1	La séparation en masse	36
		3.1.2	Confinement des ions injectés	37
3.2 Modélisation du Cirque d'ions		isation du Cirque d'ions	39	
		3.2.1	Code de simulation : Simion 7	40
		3.2.2	Influence sur le montage du cirque	41
		3.2.3	Modélisation du confinement des ions	46
3.3 Principe de fonctionnement		Princi	pe de fonctionnement	54
		3.3.1	Nomenclature du Cirque	54
		3.3.2	Conditions d'injection	54
		3.3.3	Les trois numéros du Cirque	56
		3.3.4	Ejection des ions	59

1

4	Réalisation et premières performances du Cirque d'ions 61			61
	4.1	Le mo	ntage du chapiteau	. 61
		4.1.1	L'assemblage du Cirque	. 61
		4.1.2	Pompage différentiel	. 63
		4.1.3	L'électronique du Cirque	. 64
	4.2	Banc o	de test à Orsay	. 66
		4.2.1	Le spectromètre de masse	. 66
		4.2.2	La Source	. 68
		4.2.3	Les détecteurs	. 70
		4.2.4	Le système de contrôle-commande	. 71
	4.3	Premi	ers résultats	. 73
		4.3.1	Piégeage en bout de ligne	. 73
		4.3.2	Piégeage direct	. 76
5	ISO	DITRA	P : une mixité de pièges pour la mesure de masse	79
0	51	Le hal	l ISOLDE	79
	0.1	5.1.1	Création du faisceau	. 80
		5.1.2	Transport du faisceau	. 81
	5.2	Le dis	positif expérimental	. 82
	0.1	5.2.1	Préparation du faisceau	. 84
		5.2.2	Elimination des contaminants	. 85
		5.2.3	La mesure de masse	. 86
	5.3	La car	npagne de mesure de 2008	. 90
G	Το	aituati	an de la prédiction de magges nucléoires	0.5
0	La :		adèlas de masse	9 0 02
	0.1	611	Approche phénoménologique	. 95
		619	Approche magroscopique	. 94
		613	Approche microscopique	. 31
		614	Quelle approche utiliser?	103
	62	HFR-1	7 : le protagoniste du futur modèle de référence?	106
	0.2	621	Bref historique	106
		6.2.2	Lissage intégral	. 106
C	nch	ision	-	113
U.	JIICIT	151011		110
Bi	Bibliographie			
A	Des	ssins Te	echniques du CIRQUE	121
В	3 Album photo du Cirque			127
\mathbf{C}	C Branchements électroniques 1			133

Introduction

La physique nucléaire fait ses débuts dans la science entre 1895 et 1911. On peut considérer que la naissance de cette branche de la physique apparaît avec la découverte du noyau. Ainsi, en 1908 à Cambridge, Ernest Rutherford et un de ses étudiants, Thomas Royds, comprennent que les particules alpha sont des atomes d'hélium débarrassés de leurs charges négatives. Puis, au cours des trois années suivantes, Rutherford, Geiger et Marsden démontrèrent -en bombardant des feuilles de mica et d'or avec des particules alpha- qu'au centre de l'atome devait se trouver un noyau contenant presque toute la masse et toute la charge positive de l'atome -les électrons déterminant, en fait la taille de l'atome.

Depuis cet instant, la physique nucléaire n'a cessé de se renforcer sur le plan expérimental et théorique. Aujourd'hui, nous sommes capables de différencier les noyaux entre eux à partir de nombreuses propriétés. Toutefois, la majorité des propriétés du noyau sont fortement influencées par une quantité : la masse. Elle nous fournit l'énergie de liaison : le bilan de toutes les forces qui agissent dans le noyau. Rappelons que la masse du noyau est inférieure à la somme des masses de chacun des nucléons (protons et/ou neutrons) qui le constituent, d'après la théorie de la relativité, c'est justement ce défaut de masse qui correspond à l'énergie nécessaire à la cohésion du noyau atomique.

La mesure des masses a été possible grâce à la naissance de la spectrométrie de masse. Ce domaine a également été exploré à Cambridge, grâce à F.W. Aston dans les années 20 à 30. Déjà à cette époque, F.W. Aston avait mis en évidence le défaut de masse en analysant 200 mesures de masse. En 1919, en poursuivant les travaux de J.J. Thomson, Aston découvre les noyaux isotopiques stables grâce au nouveau spectrographe qu'il avait mis au point, puis se lance dans les mesures précises des masses des atomes. Les résultats d'Aston, combinés aux résultats sur la densité nucléaire, montrèrent que les nucléons dans un noyau n'interagissent qu'avec leurs plus proches voisins (l'énergie de liaison est de l'ordre de 8 MeV par nucléon alors que la masse d'un nucléon est d'environ 1 GeV), donnant ainsi une information sur la portée de l'interaction forte. Les techniques des mesures de masse n'ont cessé d'évoluer depuis l'utilisation des spectrographes jusqu'à arriver aux pièges à ions qui, de nos jours, règnent sur ce domaine. Les chapitres 2 à 5 de cette thèse y seront consacrés. Pour comprendre la structure nucléaire, il est nécessaire d'explorer les noyaux loin de la vallée de stabilité. Cependant, dans ces régions éloignées, le temps de vie et le taux de production des noyaux chutent inévitablement. Sans oublier le problème des contaminants isobariques que l'on trouve dans les faisceaux radioactifs. Pour faire face à ces conditions peu avantageuses, il est nécessaire de continuer le développement de nouveaux pièges toujours plus performants.

Une mesure de masse dans un piège à ions se fait en isolant un seul ion pour déterminer sa fréquence cyclotron, qui dépend de la masse. Néanmoins la production des ions radioactifs est peu sélective et l'ion d'intérêt est noyé dans un fond de contaminants, souvent plusieurs ordres de grandeur plus élevé. L'axe principal de recherche de cette thèse est la spectrométrie de masse pour la physique nucléaire. Plus particulièrement, l'étape dédiée au tri des contaminants. En effet, le piège que nous développons, le "cirque d'ions", a comme objectif de trier les ions en fonction de leur masse avec un grand pouvoir de résolution afin de purifier les faisceaux radioactifs. L'idée de base du cirque d'ions est de faire trois opérations simultanément : piéger, refroidir et séparer en masse les ions. Dans les chapitres 3 et 4, nous verrons plus en détail le principe de fonctionnement de ce piège et pourquoi il représente une nouvelle alternative. Sans une séparation en masse isotopique (noyaux ayant le même numéro atomique Z) et/ou isobarique (noyaux ayant le même nombre de masse A) la mesure de masse est impossible. Parfois, il est même nécessaire de trier les états isomériques, c'est-à-dire, les états excités du noyau. L'expérience ISOLTRAP, située au CERN, est un exemple de spectromètre de masse dédié aux mesures de masse de grande précision. Son fonctionnement sera vu dans le chapitre 5.

A l'heure actuelle, environ 2300 masses ont été mesurées dont 300 stables. Une part importante à été obtenue grâce aux pièges à ions qui permettent d'avoir des incertitudes sur les mesures dans la gamme de la dizaine de keV -et même parfois très en dessous. Cependant, comme nous le verrons dans le chapitre 1, même si de nombreuses expériences basées sur les pièges à ions continuent à accroître la liste des masses mesurées, elle reste encore trop limitée. En effet, plusieurs milliers de noyaux instables seraient encore à découvrir selon les estimations des modèles théoriques.

Une autre possibilité pour déterminer les masses nucléaires manquantes est de s'appuver sur les prédictions théoriques. Mais, malgré un siècle de découvertes, notre vision globale du noyau est encore incomplète; nous ne maîtrisons pas encore complètement l'interaction qui existe entre les protons et les neutrons qui composent le noyau. Ainsi, à l'heure actuelle, les modèles théoriques sont capables de prédire les masses avec une incertitude relative d'environ deux ordres de grandeurs au dessus de celle nécessaire pour étudier les phénomènes liés à la structure du noyau. Le dernier chapitre de cette thèse -chapitre 6-, est consacré au modèle de masse nucléaire le plus récent dont nous disposons : HFB-17. Il se distingue de la grande majorité des modèles de masse par son approche microscopique en utilisant la méthode de Hartree-Fock-Bogoliubov avec une force de Skyrme. De plus, ce modèle utilise les données expérimentales pour faire converger les énergies calculées et non pas comme des paramètres d'ajustement. Il est le premier de type microscopique à proposer un écart-type avec l'expérience de moins de 600 keV. Le travail effectué dans cette thèse porte sur la correction des énergies calculées par ce modèle en utilisant comme référence les nouvelles mesures de masse que nous avons effectuées en 2008 -plus particulièrement les chaînes isotopiques $^{143-146}Xe$ et $^{223-229}Rn$ - avec le spectromètre ISOLTRAP, auprès du séparateur d'isotopes ISOLDE au CERN.

Chapitre 1 Le poids de la masse nucléaire

Pourquoi la masse des noyaux est-elle une grandeur fondamentale pour la physique nucléaire? La réponse à cette question sera abordée dans la première section de ce chapitre et nous verrons que cette grandeur est indispensable pour d'autres branches de la physique. Actuellement, il existe de nombreuses expériences capables de mesurer les masses. Dans la dernière section nous exposerons les différentes techniques utilisées pour y arriver.

1.1 Que nous apporte la mesure de masse?

En 1919, le premier spectromètre de masse de F.W. Aston avait une précision de 1/1000. Et huit ans plus tard, après l'avoir porté à $1/10\ 000\ [1]$, il a découvert les isotopes en regardant les espèces chimiques dont la masse atomique n'était pas entière. Sa première mesure se porta sur le néon dont la masse atomique chimique était de 20,20. En séparant en masse les isotopes stables du néon naturel, Aston mesura les masses atomiques suivantes 20, 21 et 22. Il pouvait également estimer les abondances relatives des éléments à partir de l'intensité des raies qu'il observait. Il montra que l'abondance relative du néon 22 par rapport au néon 20 était de 1/9. Par la suite, il découvrit d'autres chaînes d'isotopes stables (étain, xénon). En 1933 après avoir analysé 200 mesures de masse, il publia son célèbre ouvrage "Mass-Spectra and Isotopes" [2] qui allait être fondamental pour l'étude de l'évolution de l'énergie de liaison des noyaux.

Les propriétés physiques mesurables, liées aux noyaux, sont diverses et chacune a sa propre contribution dans la compréhension du comportement du noyau atomique. Celui-ci est composé de neutrons et de protons ayant des masses très similaires ($M_n =$ 939.56533(40) MeV/ c^2 et $M_p =$ 938.272029(80)MeV/ c^2) et environ 2000 fois supérieures à la masse des électrons qui composent l'atome ($M_e = 0.510998918(44) \text{MeV}/c^2$). Ainsi, toute la masse de l'atome est concentrée dans son noyau, mais elle n'est pas égale à la somme des masses de ses nucléons :

$$M(N,Z) = ZM_p + NM_n - B(N,Z)$$
(1.1.1)

B(N,Z) représente l'énergie de liaison en MeV/ c^2 . Cette énergie correspond exactement à la quantité de masse manquante (d'après la relation $\Delta E = \Delta mc^2$), et elle est à l'origine de la cohésion des nucléons, c'est donc une grandeur physique fondamentale pour la compréhension de la structure nucléaire. Au sein du noyau, deux forces sont en compétition : la force électromagnétique qui repousse les protons (de charge positive) entre eux et la force nucléaire qui maintient ensemble protons et neutrons. La cohésion des nucléides montre bien que la force nucléaire agit à très courte distance mais de façon plus intense que la

force électromagnétique. La limite de la force nucléaire est atteinte lorsque le nombre de protons ou neutrons devient trop grand, alors le noyau est moins lié et donc plus instable.

La figure 1.1 (à gauche) montre l'énergie de liaison par nucléon (équivalente à une perte de masse par nucléon) en fonction du nombre de nucléons A = N + Z. On peut observer qu'elle est faible pour les noyaux légers, puis augmente jusqu'aux noyaux de masse moyenne et une fois arrivée au ${}^{56}Fe$ elle décroît lentement. Ainsi les atomes les plus liés sont ceux de masse moyenne. On peut arriver à la même conclusion en regardant les noyaux instables (figure 1.1 à droite). De plus, la faible évolution de l'énergie de liaison pour les grandes masses montre bien que les nucléons n'interagissent qu'avec leurs voisins les plus proches. L'évolution de l'énergie de liaison par nucléon nous renseigne également sur la fusion. En effet, d'un point de vue énergétique la combustion sera possible uniquement pour les éléments plus légers que le fer.



FIGURE 1.1 – Energie de liaison par nucléon des noyaux stables (à gauche) et de l'ensemble des noyaux de la carte des noyaux (à droite)

Expérimentalement, l'énergie de liaison d'un noyau est mesurée soit directement par rapport à une masse de référence, soit indirectement à travers le bilan d'énergie lors d'une décroissance ou d'une réaction nucléaire.

Il est donc nécessaire d'explorer les noyaux loin de la stabilité pour continuer à mesurer les énergies de liaison et donc en apprendre davantage sur la cohésion nucléaire. Le but ultime étant d'identifier tous les phénomènes à l'origine des propriétés nucléaires (transmutations radioactives) et permettre ainsi de mettre au point des modèles capables de mieux les décrire pour accéder à des phénomènes physiques inaccessibles en laboratoire.

1.1.1 Qui bénéficie de la mesure de masse?

La mesure de masse a un impact dans de nombreuses branches de la physique. En physique des particules, l'étude des désintégrations β à la fin des années 1950 mit en évidence la violation de la parité dans les interactions faibles [3]. Depuis ce jour, le noyau est devenu un laboratoire pour tester les hypothèses du modèle standard. Les mesures de l'énergie de réaction (Q) et de la demi-vie des transitions β super-permises (0⁺ \rightarrow 0⁺) donnent accès à la quantité Ft qui dépend de la constante de couplage G_v . Ces transitions permettent donc de tester la conservation du courant vectoriel (CVC) et également l'unitarité de la matrice de mélange des quarks (CKM) en ayant accès au terme V_{ud} . Ainsi la détermination avec une grande précision de la masse des noyaux père et fils lors d'une désintégration β est cruciale pour le modèle standard. En effet ces masses peuvent être mesurées avec une plus grande précision que l'énergie Q issue d'une mesure de décroissance β . La nucléosynthèse nous apprend que la composition de notre univers est le fruit d'une multitude de réactions nucléaires à partir d'une composition de matière primordiale. C'est grâce au travail étroit entre l'astronomie, l'astrophysique et la physique nucléaire que cette théorie a pu énormément progresser. L'astrophysique nucléaire a montré qu'il existe trois sites de nucléosynthèse : (I) *Le Big-Bang* où la quasi-totalité de l'hélium et de l'hydrogène de notre univers a été formée. (II) *Les étoiles* où les combustions par fusion peuvent s'enchaîner jusqu'à former le fer. Lorsque la fusion nucléaire ne peut plus contrebalancer la gravitation, l'étoile s'effondre sur elle-même et explose (novae, supernovae, sursauts X). Les très nombreux neutrons et protons émis peuvent être capturés par les noyaux, mettant en compétition la décroissance radioactive β avec ce processus de nucléosynthèse [4]. (III) *Le milieu interstellaire* où les rayons cosmiques interagissent par réactions de spallation avec des noyaux lourds et créent des noyaux plus légers (lithium, béryllium, bore).

Pour ce qui est des processus de formation d'éléments lourds (au delà du fer) lors des explosions d'étoiles, ils sont divers et restent en partie méconnus. Les noyaux peuvent capturer des protons rapides pour former des noyaux jusqu'à Z = 50 (processus rp). Les captures lentes (processus s) ou rapides (processus r) des neutrons sont à l'origine de la formation de la plupart des éléments lourds. Au niveau de la carte des noyaux, le processus s se déroule au niveau de la vallée de stabilité. A l'inverse le processus r se situe là où les noyaux sont instables et très riches en neutrons [5]. Finalement, les noyaux lourds déjà formés peuvent par une série de photodésintégrations capturer également des protons (processus p). Par conséquent, pour avancer dans notre compréhension de la nucléosynthèse, il est nécessaire de connaître la masse de chaque noyau afin de déterminer l'énergie disponible pour des réactions de capture et pour la décroissance β .

En physique nucléaire, l'étude des masses mettent en évidence la structure du noyau : les fermetures de couche ou encore la déformation du noyau. La masse contient également l'information sur l'interaction des nucléons au sein du noyau. Elle est donc un outil idéal pour tester les modèles théoriques basés sur l'interaction des nucléons afin de prédire les masses nucléaires. Ces modèles sont importants pour interpréter les résultats expérimentaux et prévoir les valeurs des masses encore inconnues qui contribueront au perfectionnement des modèles d'astrophysique ou encore à notre compréhension de la structure nucléaire (notamment les noyaux à halos). Ce point sera abordé plus en détail dans le dernier chapitre de cette thèse.

1.1.2 Quelle unité pour la masse nucléaire?

Avant 1960, la masse de référence était la masse 16 : l'unité de masse atomique était $\frac{1}{16}$ de la masse de référence. D'ailleurs les premières mesures de masse de F.W. Aston avaient cette masse de référence. Cependant, les physiciens attribuaient cette masse à l'oxygène 16 et les chimistes à l'oxygène naturel (composé de 3 isotopes stables ${}^{16}O$, ${}^{17}O$ et ${}^{18}O$). Par conséquent il y avait une différence importante entre les deux échelles. Ce problème fut amélioré par le IUPAP (International Union of Pure and Applied Physics) et le IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry) lorsqu'ils décidèrent d'employer la masse 12 comme référence commune (en 1960 à Ottawa pour le IUAP et 1961 à Montréal pour le IUAPC). Le choix de cette masse était basé sur le critère de séparation du ${}^{12}C$ par rapport à la séparation de l'oxygène 16 qui était plus compliquée. Par ailleurs, on retrouve le carbone 12 dans une très grande liste de composés chimiques.

En physique nucléaire, l'unité de masse est définie comme étant exactement $\frac{1}{12}$ de la masse d'un atome de ${}^{12}C$ et vaut $1u = 931 494.013 \pm 0.037$ keV. Expérimentalement, c'est

souvent la masse atomique $M_{at}(N, Z)$ qui est mesurée car on travaille avec des ions plutôt qu'avec des noyaux débarrassés de leurs électrons (voir section suivante). Ainsi les valeurs qu'on retrouve dans les tables dépendent des masses nucléaires M(N, Z), des masses des électrons M_e et de leur énergie de liaison $B_{el}(Z)$:

$$M_{at}(N,Z) = M(N,Z) + ZM_e - B_{el}(Z)$$
(1.1.2)

Par conséquent pour déterminer les masses nucléaires à partir des masses atomiques il est nécessaire de connaître la valeur de $B_{el}(Z)$ et son incertitude (elle peut être plus importante que l'incertitude expérimentale des masses atomiques). L'énergie de liaison des électrons varie de quelques dizaines d'eV à plusieur centaines de keV. Il existe une approximation proposée par [6], donnant une erreur rms sur l'ensemble des masses de 150 eV (pour Z = 2 à Z = 106) :

$$B_{el}(Z) = 14,4381 Z^{2,39} + 1,55468 \cdot 10^{-6} Z^{5,35} \quad \text{eV}$$
(1.1.3)

Dans les tables de masses atomiques on utilise par commodité l'excès de masse :

$$M_{exc}(N,Z) = M_{at}(N,Z) - A * u$$
(1.1.4)

Par définition l'excès de masse du ${}^{12}C$ vaut exactement 0 mais ce paramètre n'a pas de signification physique directe. Selon les noyaux, l'excès de masse peut prendre des valeurs positives ou négatives.

Sur la figure 1.2 on peut voir l'évolution de l'excès de masse en MeV de la chaîne isobarique A = 100 à partir de l'étain ${}^{100}_{50}Sr$ jusqu'au strontium ${}^{100}_{38}Sr$. M_{exc} est minimal pour l'isobare stable et atteint une valeur maximale pour les noyaux faiblement liés. Le comportement en dents de scie de l'excès de masse sur cette chaîne isobarique est dû à l'appariement (δ). Les noyaux qui possèdent un nombre pair de nucléons sont plus liés que ceux qui ont un nombre impair. L'effet d'appariement suggère que les nucléons se lient entre eux pour former des paires. Donc δ représente un gain d'énergie lorsque le nombre de protons et/ou neutrons du noyau est pair.



FIGURE 1.2 – Excès de masse de la chaîne isobarique A = 100

1.1.3 Comment évaluer une mesure de masse?

Les données expérimentales en rapport avec les mesures de masse sont diverses (énergies de réactions et de désintégration, rapport de masses par spectrométrie). Toutefois, elles sont toutes relatives : chaque mesure expérimentale est reliée à une ou deux (parfois trois et rarement quatre) différentes masses de nucléides. L'évaluation de masse établie l'ensemble de ces relations (sous forme matricielle) et détermine la table de masse (à partir de l'inversion de la matrice). Cette méthode a été élaborée par Aaldert Hendrik Wapstra [7]. L'ensemble des mesures de masse connues et utilisées comme références proviennent de l'évaluation des masses atomiques (AME). L'AME2003 est la dernière version de cette étude [8], [9]. L'AME est également un outil puissant pour résoudre les incompatibilités entre différentes mesures expérimentales et donc dans un grand nombre de cas pour écarter définitivement certaines mesures. Le calcul d'évaluation permet de déterminer la contribution en pourcentage de chaque mesure expérimentale dans la valeur d'une masse donnée.

1.2 Comment mesurer la masse des noyaux?

Mesurer la masse d'un noyau demande deux conditions évidentes : être capable de produire et transporter le noyau souhaité vers un instrument de mesure suffisamment sensible pour l'observer. Pour obtenir des noyaux stables, on utilise des sources d'ions qui vont ioniser, à travers une grande variété de méthodes, les atomes de l'élément désiré. Les contaminants produits peuvent être divers et en grande quantité selon le type de source utilisée. Dans les années 20 F.W Aston a pu uniquement mesurer les masses d'éléments stables. A cette époque on avait déjà compris que pour étudier le noyau, il fallait disposer de projectiles ayant suffisamment énergie (plusieurs MeV) pour pénétrer et faire réagir le novau. Il était donc nécessaire d'utiliser et de contrôler des particules de très hautes énergies. En 1932 à Cambridge (à nouveau), J. D. Cockcroft et E. Walton utilisèrent l'accélérateur de particules qu'ils avaient mis au point (et qui porte leurs noms) pour transmuter un noyau atomique à l'aide de particules chargées. Cette première expérience avait été réalisée en projetant des protons sur des atomes de lithium qui par absorption d'un proton se désintègrent en deux atomes d'hélium. C'était donc une réaction de type (p,d). Ainsi la production de noyaux radioactifs débuta grâce à l'arrivée de l'accélérateur et de la même manière l'élargissement du nombre d'isotopes mesurés. En général les réactions nucléaires ne sont pas très sélectives, un grand nombre d'éléments sont produits dont des contaminants (isobariques). Alors pour mesurer la masse des noyaux après leur production il est nécessaire de les trier, on verra ce point en détail dans la partie spectrométrie de masse.

1.2.1 La production des noyaux exotiques

De nos jours, il existe principalement deux méthodes pour produire des noyaux exotiques : "projectile fragmentation" (ou encore "méthode en vol") et "ISOL" (Isotopic Separation On line). Comme nous allons le voir dans la suite, ces deux méthodes sont complémentaires. Dans les deux cas, la production d'éléments radioactifs se fait à travers une réaction nucléaire entre un faisceau accéléré et une cible. Donc de nombreuses espèces chimiques seront produites. Les différences principales entre ces deux méthodes sont l'épaisseur des cibles et l'énergie des produits. Parmi les contaminants, on trouve des noyaux isobariques, ce qui va compliquer le tri en masse des faisceaux radioactifs. Par ailleurs les spectromètres de masse ont besoin de faisceaux radioactifs ayant une énergie et une qualité optique bien définies pour un fonctionnement idéal.

Projectile Fragmentation

Cette technique repose sur la réaction nucléaire (fragmentation ou fusion-évaporation) entre un faisceau d'ions lourds à haute énergie (supérieure à 30 MeV/A) et une cible mince. Grâce à la minceur de la cible, les différents fragments produits vont pouvoir quitter la



FIGURE 1.3 – Schéma de production et séparation par méthode en vol

cible sous l'effet de leur inertie. L'étape suivante sera de les trier en fonction de leur masse (voir figure 1.3).

Cette méthode permet de fournir des faisceaux de haute énergie puisque l'énergie des nucléons est similaire à celle du projectile. Et l'interaction entre les atomes de la cible et les ions incidents produisent des noyaux radioactifs très épluchés en électrons. Comme les fragments sont majoritairement dirigés vers l'avant (à des vitesses relativistes), les noyaux à durée de vie courte sont alors accessibles. De plus, une large variété d'espèces chimiques est créée. Cependant, les faisceaux produits par cette méthode ont des qualités optiques dégradées (grande dispersion angulaire et grande dispersion d'énergie). Cette technique est employée dans plusieurs installations : GANIL (SISSI), GSI (FRS), RIKEN et MSU/NSCL.

Isotopic Separation On line (ISOL)



FIGURE 1.4 – Schéma de production et séparation par séparation isotopique en ligne

La méthode ISOL (Isotope Separation On Line) consiste à envoyer un faisceau d'ions (faisceau primaire) sur une cible épaisse. L'énergie du faisceau primaire, généralement des protons, est suffisante pour que les réactions nucléaires (spallation, fission ou fragmentation) génèrent des noyaux radioactifs en plus grande quantité (grâce à la cible plus épaisse). Mais l'épaisseur de la cible va aussi ralentir et arrêter les produits de réaction. Ils vont alors diffuser, à leur vitesse thermique, dans la cible sous forme d'atomes radioactifs. Lorsque l'énergie du faisceau primaire est insuffisante, leur diffusion est accélérée en chauffant la cible. Les atomes quittent la cible et passent à travers le tube de transfert pour atteindre

la source d'ions (voir figure 1.4). Ils sont ensuite ionisés, triés en masse et accélérés entre 10 et 100 keV. Cette méthode permet d'obtenir des faisceaux radioactifs d'intensités importantes. Par rapport à la méthode précédente, les qualités optiques sont bien meilleures. Néanmoins, le temps pendant lequel a lieu la diffusion thermique, selon les espèces chimiques utilisées, peut empêcher l'observation des noyaux de courte durée de vie. D'ailleurs pour augmenter l'intensité des faisceaux, il est nécessaire que le temps de création des ions radioactifs -durée entre la création des atomes radioactifs dans la cible et leur ionisationsoit inférieur à leur demi-vie. Cette technique est employée dans différentes installations : ISOLDE, GANIL (SPIRAL) ou encore TRIUMF (ISAC).

1.2.2 Spectrométrie de masse

Plus d'une seule espèce nucléaire est conçue lors de la production de noyaux exotiques. Il est alors nécessaire de trier les différents éléments présents dans les faisceaux radioactifs afin de sélectionner le nucléide souhaité avec la meilleure efficacité possible pour pouvoir réaliser la mesure de masse.



FIGURE 1.5 – Séparation isotopique avec le GPS à ISOLDE (faisceau à faible énergie)

Plus on s'éloigne de la vallée de stabilité et plus le temps de demi-vie des noyaux décroît. Il en va de même pour leur section efficace de production dans les cibles. Il est alors nécessaire d'augmenter l'intensité des faisceaux radioactifs en améliorant les techniques de production afin d'offrir une statistique suffisante aux expérimentateurs. L'accroissement de l'intensité des faisceaux entraînera inévitablement une augmentation des contaminants. Par conséquent, toute expérience de mesure de masse doit d'abord purifier les faisceaux radioactifs. Cette séparation permet de mesurer les abondances relatives et les masses avec une certaine précision. La sélectivité (rejet des espèces non désirées) et l'efficacité de transmission des éléments désirés sont les deux caractéristiques à considérer. Un spectromètre peut être magnétique et/ou électrostatique.

Il existe plusieurs méthodes pour éliminer les contaminants isobariques dès leur créa-

tion. Par exemple en utilisant des sources RILIS (Resonance Ionization Laser Ion Sources) pour produire des faisceaux d'une grande pureté isobarique. Cependant ces sources sont limitées par l'ionisation de surface de certains éléments non désirés, empêchant un tri isobarique complet. Une autre possibilité est de former des molécules de l'isotope d'intérêt, déplaçant ainsi la masse sélectionnée à l'aide d'un spectromètre de masse vers une région à faible contamination isobarique. Ensuite la molécule sera cassée en sélectionnant le type de charge. Dans le cas de gaz nobles isobariques, on peut également utiliser une source ECR et sélectionner les ions par type de charge. Enfin, pour sélectionner des gaz rares, on peut utiliser une ligne de transfert refroidie à travers laquelle seuls les éléments volatils peuvent passer. Ces techniques dépendent fortement des caractéristiques des cibles (épaisseur et espèces chimiques) et des faisceaux incidents (énergie) utilisés. Donc la gamme de masse, pour laquelle les contaminants isobariques sont éliminés, est assez réduite.

La figure 1.5 illustre l'utilisation du séparateur magnétique GPS (ce dispositif sera vu en détail dans le chapitre 5) à ISOLDE au CERN. On peut voir une vue schématique du dispositif ISOL et du séparateur magnétique en haut à droite (c'est en partie une vue 3D de la figure 1.4). Le graphique en dessous représente une séparation en masse effectuée par le GPS avec un faisceau de faible énergie. La dispersion en masse du faisceau est clairement montrée dans cet exemple; la hauteur des pics correspond à leur abondance relative. A titre historique, le spectrographe magnétique de F.W. Aston reposait sur le même principe.

Ce type de séparateur magnétique est généralement placé près du lieu de création des faisceaux radioactifs (comme l'illustrent les figures 1.3, 1.4 et 1.5) car ils peuvent analyser en continu les faisceaux. Leur mise au point repose sur le paramètre de rigidité magnétique $B\rho = \frac{mv}{q}$ (où m, q et v sont la masse, la charge et la vitesse de l'ion) de l'espèce d'intérêt dans le faisceau radioactif. La détection se fera au point focal de l'instrument.



FIGURE 1.6 – Identification des noyaux à haute vitesse à la sortie d'un séparateur

Dans le cas de la technique en vol, une autre méthode est d'identifier les noyaux à la sortie du séparateur (dont la rigidité magnétique sera $B\rho = \frac{\gamma m v}{q}$ où γ représente le facteur relativiste) en mesurant la perte d'énergie des ions dans un détecteur de silicium fin (ΔE) pour identifier le Z et en mesurant ensuite la vitesse des ions sur une distance fixe (temps de vol ou TOF) pour déterminer la valeur de A. La figure 1.6 représente le résultat obtenu, chaque groupement correspond à un noyau (N,Z) donné.

Le pouvoir de résolution $R = \frac{m}{\Delta m}$ permet d'évaluer la sélectivité des spectromètres de masse (les pics observés doivent être bien séparés et identifiés), Δm est la largeur du pic de masse m. En général, il s'agit de la largeur à mi hauteur (FWHM : Full Width Half

Maximum). On peut voir sur les figures 1.7 et 1.8 des exemples du pouvoir de résolution nécessaire pour séparer des éléments d'une chaîne isotopique ou isobarique. Trier des isotopes ne pose aucun problème aux spectromètres de masse (R < 1000). Cependant, on ne peut pas en dire autant pour les noyaux isobariques. En effet, un pouvoir de résolution d'au minimum 10 000 est nécessaire pour séparer une partie non négligeable des nucléides de la carte des noyaux. Or le pouvoir de résolution des meilleurs séparateurs magnétiques est en pratique en dessous de 5000.



FIGURE 1.7 – Exemple du pouvoir résolution nécessaire pour séparer les éléments d'une chaîne isotopique.



FIGURE 1.8 – Exemple du pouvoir résolution nécessaire pour séparer les éléments d'une chaîne isobarique.

Un moyen efficace pour améliorer le tri en masse isobarique consiste à employer des pièges à ions. Ces nouveaux spectromètres de masse sont essentiels pour les mesures loin de la stabilité car plus les noyaux sont exotiques et plus leur demi-vie et leur taux de production diminuent rendant la précision sur leur masse difficile. Nous verrons en détail leur fonctionnement dans le chapitre suivant.

1.2.3 Mesure de masse

Lorsqu'on parle de mesure de masse on utilise l'incertitude relative $\frac{\delta m}{m}$ plutôt que le pouvoir de résolution. La précision de la mesure dépend de la résolution, des erreurs systématiques et de l'incertitude statistique dont la valeur relative augmente quand le nombre d'ions mesurés diminue. Par exemple, les temps de mesure du TOF sont faibles permettant d'atteindre une incertitude relative de l'ordre de 10^{-5} . La précision nécessaire sur une mesure de masse va dépendre du type de physique qu'on veut explorer. Ainsi une mesure de masse avec une incertitude relative de 10^{-5} est suffisante pour étudier les effets de couche alors que pour les sous-couches il faut atteindre 10^{-6} . L'étude de l'appariement et des noyaux à halos nécessite un précision de 10^{-7} . Finalement pour tester l'interaction faible en physique des particules il faut parvenir à 10^{-8} . Les mesures de masse obtenues avec une précision égale ou inférieure à 10^{-7} sont considérées comme étant des mesures de masse de haute précision.

Il est essentiel que le spectromètre puisse reproduire plusieurs fois la même mesure (précision) et soit exact. Cette exigence est commune à tout instrument de mesure car leurs défauts les rendent sensibles aux erreurs systématiques. Comme l'illustre la figure 1.9, la précision et l'exactitude sont deux conditions complémentaires pour une mesure de haute précision.



FIGURE 1.9 – Exactitude et précision : deux notions communes à tout instrument de mesure

Les séparateurs magnétiques sont nécessaires pour purifier les faisceaux mais insuffisants pour la mesure de masse de haute précision. Expérimentalement, il existe différentes approches pour mesurer les masses des noyaux. Elles reposent sur une mesure directe ou indirecte de la masse (atomique ou nucléaire). Parmi les méthodes indirectes de mesure de masse, on peut utiliser les bilans de réactions. L'énergie de réaction Q est définie dans le cas d'une réaction à deux corps a(b,c)d (où a représente la cible, b le projectile, c l'éjectile et d le produit) par : $Q = M_a + M_b - M_c - M_d$. Il est alors nécessaire de mesurer Q et de connaître M_a , M_b et M_c pour déterminer la masse inconnue.

On peut aussi mesurer les masses qui décroissent par radioactivité α . L'énergie de réaction pour les décroissances β^+ , β^- ou capture électronique est plus délicate à mesurer. En effet, dans ces décroissances on observe un spectre continu d'énergie d'électrons ou de positrons, en raison de l'existence des neutrinos ν et anti-neutrinos $\overline{\nu}$. Il faut alors avoir une statistique importante pour déterminer avec précision la valeur de Q qui va correspondre à l'énergie maximale des électrons ou positrons.

Une autre façon de déterminer la masse des noyaux consiste à mesurer leur temps de vol (TOF : time of flight). Cela consiste à mesurer le temps nécessaire aux noyaux pour parcourir une distance fixe connue. Il existe de nombreuses expériences utilisant ce type de méthode par exemple SPEG (Spectromètre à Perte d'Energie) au GANIL. Il y a également l'anneau de stockage ESR à GSI qui a été développé pour des mesures de masse de grande précision et des demi-vies jusqu'à la milliseconde [10]. Le rapport masse sur charge $\frac{m}{q}$ des ions stockés dans l'anneau est mesuré à partir de la vitesse v et de la fréquence de révolution f des ions. Ces grandeurs sont liées par la relation (au premier ordre) : $\frac{\Delta f}{f} = -\frac{1}{\gamma_t^2} \frac{\Delta(m/q)}{m/q} + \frac{\Delta v}{v} \left(1 - \frac{\gamma^2}{\gamma_t^2}\right)$ où γ est le facteur relativiste de Lorentz et γ_t est la "transition énergétique" pendant laquelle la fréquence de révolution de chaque espèce d'ion de rapport $\frac{m}{q}$ fixe est indépendante de l'énergie.

A partir de cette relation, on peut constater que la différence relative de f sera équivalente à celle du rapport (m/q) si et seulement si le second terme devient négligeable. Cette condition peut être atteinte par deux méthodes différentes. Le mode SMS (Schottky Mass Spectrometry) permet de réduire la dispersion de vitesse (en refroidissant les ions avec des électrons) et ainsi $\frac{\Delta v}{v} \longrightarrow 0$. L'autre méthode consiste à utiliser le mode IMS (Isochronous Mass Spectrometry). Cette fois, les ions (non refroidis) sont injectés à l'énergie de transition $\gamma = \gamma_t$, alors le temps de révolution de chaque espèce d'ions devient quasiment indépendant de la vitesse. Le temps de révolution sera mesuré par la détection de chaque passage de l'ion. La mesure de masse dans l'anneau de stockage ESR, est réalisée avec un seul ion à la fois dans les deux modes de fonctionnement. L'autre particularité est qu'il s'agit d'ions dépouillés complètement de tous leurs électrons. Ainsi, la mesure de masse effectuée avec cet anneau de stockage est directement une mesure de la masse nucléaire.

Une des méthodes les plus employées dans le monde est la mesure de masses à partir de la fréquence cyclotron. Cette fréquence correspond à la fréquence de rotation du noyau dans un champ magnétique. Les mesures de fréquences sont extrêmement précises, autorisant de la même manière les mesures de masse avec une grande précision. Il est alors nécessaire de confiner les ions dans un piège. Nous verrons dans le chapitre 2, que le piège de Penning, en utilisant conjointement un champ magnétique et un champ électrique, est pour le moment le seul piège capable de mesurer les masses avec une très grande précision. Dans le chapitre 5 dédié à l'expérience ISOLTRAP, nous verrons également comment les mesures de masse sont effectuées avec ce type de piège. Pour utiliser un piège de Penning, il est important de maîtriser la dynamique des faisceaux radioactifs (dispersions angulaires) et leur énergie lors de l'injection des ions.

A titre de conclusion, la figure 1.10 montre l'incertitude relative sur les mesures de masse effectuées par différentes expériences en fonction du temps de demi-vie des noyaux (en secondes). On remarque clairement que dans la majorité des cas les mesures de masse de haute précision sont effectuées avec des noyaux relativement proches de la vallée de stabilité donc à des demi-vies supérieures à une seconde. Alors que les masses des noyaux plus exotiques ont des incertitudes relatives comprises entre 10^{-7} et 10^{-4} . Peu d'expériences peuvent offrir une précision comparable entre les masses de tous les noyaux instables (c'est le cas de TITAN). Les expériences ISOLTRAP, LEBIT, TITAN, JYFL, CPT et SHIPTRAP utilisent des pièges à ions de type Penning (chapitre 2). L'introduction des anneaux de stockage et des pièges de Penning dans le domaine de la spectrométrie de



FIGURE 1.10 – Comparaison de l'incertitude relative obtenue dans différentes expériences de mesure de masse en fonction du temps de demi-vie (en secondes) des noyaux

masse a instauré deux approches remarquables pour la mesure de haute précision des noyaux stables et à courte demi-vie [11]. Les pièges à ions sont donc un outil indispensable pour explorer la structure nucléaire.

Chapitre 2 50 ans de Pièges à ions

Ce chapitre est consacré aux pièges à ions, lesquels sont devenus depuis plusieurs décennies les instruments de référence dans le domaine de la spectrométrie de masse. Notamment pour les noyaux radioactifs qui par leur faible taux de production et temps de demi-vie contraignent l'erreur sur leur mesure de masse. La grande précision et exactitude atteintes par les pièges à ions ont permis d'obtenir des incertitudes relatives sur les mesures de masse de noyaux exotiques autour de 10^{-8} . Quelle est donc la définition d'un piège à ions ? C'est un objet capable de confiner des particules chargées dans un volume donné pendant une durée de temps fixée. Les atomes en sont un bon exemple. L'interaction électrostatique entre les électrons et les protons du noyau engendre un potentiel [12]qui crée une force de rappel (comme dans un ressort) capable de piéger l'électron autour du noyau. Un piège à ions extérieures donnant l'opportunité de se focaliser sur les caractéristiques fondamentales de l'élément piégé (comme par exemple nucléaires) et si nécessaire pendant une longue durée de temps.

Dans les années 20, K.H. Kingdon proposa un piège très simple composé d'un filament d'un millimètre de diamètre et d'un cylindre fermé qui l'entourait [13]. Les ions se trouvant entre ces deux électrodes portées à des tensions continues différentes décrivent des orbites autour du filament jusqu'à ce qu'ils perdent assez d'énergie par collisions avec les molécules du gaz résiduel pour l'atteindre. En s'appuyant sur les travaux effectués par Knight en 1980 sur l'application d'un potentiel quadrupolaire sur ce piège obtenue en modifiant l'électrode externe, Makarov proposa en 1999 l'orbitrap pour la spectrométrie de masse moléculaire. Les deux grandes familles de pièges à ions qui se sont développées jusqu'à nos jours ont en commun l'utilisation d'un potentiel quadrupolaire : soit de manière statique (piège de Penning) ou dynamique (piège de Paul). L'idée qui donna naissance à la première famille, fut proposée en 1936 par le physicien néerlandais F.M. Penning en montrant l'amélioration des jauges de vide à ionisation par l'ajout d'un champ magnétique perpendiculaire à la direction des ions produits. Quelques années plus tard J.R. Pierce suggéra d'ajouter également des électrodes perpendiculaires au champ magnétique. C'est seulement à partir du milieu des années 50 que furent construits les premiers pièges à ions des deux familles par Hans G. Dehmelt et Wolfgang Paul, tout les deux prix Nobel de physique en 1989 "pour le développement de la technique de piège à ions". Les premiers travaux de Dehmelt avaient comme objectif de piéger des électrons isolés et au repos tandis que Paul voulait mettre au point un séparateur de masse [14].

Ces pièges étaient au départ dédiés à la physique atomique puis le domaine d'application s'est élargi aujourd'hui jusqu'à la physique nucléaire. Nous verrons dans le chapitre 5 l'exemple du spectromètre de masse de haute précision ISOLTRAP situé au CERN.

2.1 Le confinement des ions

Non seulement il existe deux types de pièges à ions utilisant des champs électriques quadrupolaires : les pièges de Paul et de Penning mais il existe également différents types de géométries pour ces pièges. De nos jours, le confinement des ions dans les pièges est renforcé en employant des méthodes capables de diminuer l'énergie (transverse et longitudinale) des particules chargées (refroidissement).

2.1.1 Les pièges à champ électrique quadrupolaire

Pour confiner les ions on a besoin d'une force de rappel capable de minimiser le déplacement des ions autour d'un point d'équilibre (généralement au centre des électrodes qui composent le piège). En électromagnétisme classique, cela revient à soumettre la particule chargée à un potentiel (électrostatique) quadratique à trois dimensions :

$$\phi(x, y, z) = \alpha_0(\alpha_1 x^2 + \alpha_2 y^2 + \alpha_3 z^2)$$
(2.1.1)

L'intensité du champ électrique engendré par ce potentiel croît linéairement avec la distance par rapport au centre du piège. Alors les particules chargées se trouvant au centre seront soumises à une force de rappel importante sur des faibles déplacements.

La décroissance en $\frac{1}{r^2}$ du champ électrostatique \vec{E} créé par une charge ponctuelle est à l'origine des formes globale et locale du théorème de Gauss. Localement (dans le vide) nous savons que : div $\vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0}$ et également que $\vec{E} = -\overrightarrow{\text{grad}}\phi$. Ces relations mettent en évidence l'équation de poisson : $\Delta\phi = -\frac{\rho}{\epsilon_0}$. En l'absence de charges, cette équation se simplifie et donne l'équation de Laplace :

$$\Delta \phi = \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} = 0$$
(2.1.2)

Le potentiel (2.1.1) doit satisfaire l'équation de Laplace, cela entraîne la relation suivante : $\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3 = 0$ (hormis la solution triviale $\alpha_0=0$), ainsi deux solutions sont possibles :

$$\begin{cases} \alpha_1 = 1, & \alpha_2 = -1, & \alpha_3 = 0 \\ \alpha_1 = 1, & \alpha_2 = 1, & \alpha_3 = -2 \end{cases}$$
(2.1.3)

Donc deux types de potentiels quadratiques sont possibles : un potentiel à deux dimensions

$$\phi_{2D}(x,y) = A(x^2 - y^2) \tag{2.1.4}$$

ou un potentiel à trois dimensions :

$$\phi_{3D}(x, y, z) = A(x^2 + y^2 - 2z^2) \tag{2.1.5}$$

L'équation (2.1.2) montre qu'avec un potentiel électrostatique au moins une des directions est opposée aux deux autres, rendant impossible le confinement des ions dans toutes les dimensions. On retrouve également cette conclusion dans le théorème d'Earnshaw -une conséquence du théorème de Gauss- dès 1842, qui établit qu'un ensemble de charges ponctuelles ne peut être maintenu dans un équilibre stable uniquement par des interactions d'ordre électrostatique entre les charges.

Pour confiner les ions dans deux ou trois dimensions il est nécessaire soit de coupler un autre champ supplémentaire (Piège statique ou de Penning), soit de modifier le champ électrique quadrupolaire (piège dynamique ou de Paul).



Le piège de Penning

FIGURE 2.1 – Représentation du fonctionnement d'un piège de Penning

Dans un piège de Penning, les ions sont confinés dans l'espace grâce à l'action combinée d'un champ magnétique axial homogène et d'un champ électrique quadrupolaire. Le champ électrique utilisé est statique (identique à ϕ_{2D} ou ϕ_{3D}). La figure 2.1 est une représentation du potentiel ϕ_{2D} . Comme nous l'avons vu auparavant, ce potentiel peut piéger les ions selon une seule direction (axe de piégeage) tandis que dans l'autre ils peuvent s'échapper (axe de fuite). L'utilisation du champ magnétique dans le cas du piège de Penning condamne l'axe de fuite.

On va étudier le confinement des ions dans le cas du piège à 3 dimensions; le potentiel quadrupolaire sera donc de la même forme que dans (2.1.5). La figure 2.2 (à gauche) montre une vue schématique de ce type de piège : une électrode centrale toroïdale et deux électrodes qui l'encadrent. La surface de ces électrodes est hyperbolique (l'explication sera donnée quand on abordera le piège de Paul); il en découle la relation géométrique suivante : $z_0 = \frac{r_0}{\sqrt{2}}$ avec r_0 le rayon défini dans le plan xOy. La forme du potentiel quadrupolaire ϕ_{2D} devient alors :

$$\phi(r,z) = -\frac{\phi_0}{2r_0^2}(r^2 - 2z) \tag{2.1.6}$$

Et comme le champ magnétique utilisé est de la forme : $\vec{B} = B\vec{U_Z}$. D'après le principe fondamental de la dynamique, on obtient les équations du mouvement :

$$\begin{cases}
m\ddot{x} = -e(\frac{\phi_0}{r_0^2}x + \frac{dy}{dt}B) \\
m\ddot{y} = -e(\frac{\phi_0}{r_0^2}y - \frac{dx}{dt}B) \\
m\ddot{z} = -e\frac{2\phi_0}{r_0^2}z
\end{cases}$$
(2.1.7)

On remarque que selon la direction z, on retrouve l'équation d'un oscillateur harmonique, ainsi la solution en z sera de la forme : $z(t) = z_0 \cos(\omega_z t + \phi_z)$ avec ω_z la pulsation définie par :

$$\omega_z = \sqrt{\frac{2e\phi_0}{mr_0^2}} = \frac{1}{z_0}\sqrt{\frac{e\phi_0}{m}}$$
(2.1.8)



FIGURE 2.2 – Représentation de la trajectoire des ions confinés (à droite) dans un piège de Penning à trois dimensions (à gauche)

L'ensemble d'équations (2.1.7) nous montre également qu'en x et y les équations sont couplées. Donc, en remplaçant $\frac{eB}{m}$ par ω_c , la fréquence cyclotron [15], [16], les équations deviennent (avec u = x + iy, terme complexe permettant la résolution de l'équation) :

$$\frac{d^2u}{dt^2} = \frac{\omega_z^2}{2}u - i\omega_c \frac{du}{dt}$$
(2.1.9)

Les solutions de cette équation sont de la forme : $u = e^{-i\omega t}$, ce qui nous conduit à l'équation : $2\omega^2 - 2\omega_c\omega + \omega_z^2 = 0$. Si on considère que $\omega_c^2 > 2\omega_z^2$, alors les solutions (de pulsations) de cette équation seront :

$$\begin{cases} \omega_{+} = \frac{1}{2}(\omega_{c} + \sqrt{\omega_{c}^{2} - 2\omega_{z}^{2}}) \\ \omega_{-} = \frac{1}{2}(\omega_{c} - \sqrt{\omega_{c}^{2} - 2\omega_{z}^{2}}) \end{cases}$$
(2.1.10)

On vérifie donc, que la combinaison des 2 mouvements dans le plan xOy conduit à $\omega_c = \omega_+ + \omega_-$ [17]. En conclusion, les solutions des équations (2.1.7) montrent que la trajectoire des ions dans un piège de Penning est la somme de trois mouvements de pulsations différentes : ω_z , ω_+ et ω_- . Le mouvement axial n'aura lieu que selon l'axe z selon la pulsation ω_z et ne dépendra que du champ électrique ϕ_0 . Et le mouvement radial sera composé de deux mouvements caractérisés par les pulsations : ω_+ (qui réduit la valeur de la pulsation cyclotron) ω_c et ω_- (qui crée un mouvement circulaire ou mouvement magnetron) qui sont engendrées par la combinaison des champs électriques et magnétiques. Et finalement, la condition de trajectoire stable (les caractéristiques et les conditions initiales des ions bornent les paramètres de piégeage, notion qui sera plus détaillée dans la section sur le piège de Paul) dépendra du terme $\sqrt{\omega_c^2 - 2\omega_z^2}$ et va entraîner :

$$\frac{m}{e} \le \frac{B^2 r_0^2}{4\phi_0} \tag{2.1.11}$$

qui découle simplement de la condition $\omega_c^2 > 2\omega_z^2$. La figure 2.2 (à droite) montre une trajectoire stable d'un ion confiné dans un piège de Penning à 3 dimensions. On peut identifier les trois mouvements qui composent la trajectoire.

Le piège de Paul



FIGURE 2.3 – Représentation du fonctionnement d'un piège de Paul

Les pièges de Paul confinent les ions à partir d'un potentiel quadrupolaire modulé en radiofréquence. La figure 2.3 reprend comme dans la figure 2.1 la représentation du potentiel ϕ_{2D} . L'idée de fonctionnement des pièges de Paul consiste à inverser les dimensions de piégeage et de fuite alternativement dans le temps (axe de rotation). On va donc redéfinir le potentiel $\phi_{2D}(x, y)$ (relation 2.1.4) en remplaçant le terme constant A par le terme $c_{geom}\phi_0(t)$. Le terme c_{geom} est une constante qui dépend de la forme des électrodes du piège et $\pm \frac{\phi_0(t)}{2}$ est la tension appliquée sur la surface des électrodes en fonction du temps. L'expression de $\phi_0(t)$ est la suivante :

$$\phi_0(t) = V_{DC} - V_{RF} \cos \Omega t \tag{2.1.12}$$

où V_{DC} correspond à la tension continue, V_{RF} à la tension radiofréquence et $\Omega = 2\pi f$ avec f la fréquence de piégeage.



FIGURE 2.4 – Coupe schématique à deux dimension d'un piège de Paul théorique

Pour déterminer la constante c_{geom} , il faut connaître la forme des électrodes du piège. D'après l'équation de Laplace, celle qui est la mieux adaptée pour le confinement des ions est la forme hyperbolique. En effet, la représentation du potentiel quadrupolaire correspond à une paraboloïde hyperbolique (figure 2.3). Ainsi dans le cas idéal les électrodes du piège à deux dimensions doivent être à surface hyperbolique comme le montre la figure 2.4. Dans le repère xOy, la géométrie des électrodes est donnée par la relation :

$$\frac{x^2}{r_0^2} - \frac{y^2}{r_0^2} = \pm 1 \tag{2.1.13}$$

où r_0 caractérise la demi-distance entre la surface de deux électrodes portées au même potentiel. D'après (2.1.4) avec $A = c_{geom}\phi_0(t)$, nous aurons comme condition $\phi(r_0, 0, t) = \frac{\phi_0(t)}{2} = c_{geom}\phi_0(t)(r_0^2)$ ce qui entraîne :

$$c_{geom} = \frac{1}{2r_0^2} \tag{2.1.14}$$

On peut remarquer que la démarche pour obtenir la valeur des c_{geom} est similaire pour un piège en 3 dimensions avec des surfaces hyperboliques. Il est difficile en pratique d'avoir des surfaces hyperboliques aussi parfaites que la figure 2.4 car cela demande un travail de précision mécanique. D'ailleurs lorsqu'on travaille avec ce type d'électrodes, les surfaces hyperboliques sont moins étendues car cela n'affecte pas la définition du champ entre les électrodes. Toujours pour des raisons de fabrication, on utilise parfois des électrodes cylindriques. Le paramètre r_0 est alors la donnée importante à conserver. Pour reproduire des lignes de champ quadrupolaires similaire au cas précédent, il faut adopter l'approximation [18], [19] :

$$r = 1,148r_0\tag{2.1.15}$$

où r représente la valeur du rayon de l'électro de cylindrique. Cette approximation marche très bien dans la pratique même si elle entra îne quelques perturbations sur les lignes de champ.

Equations de mouvement

Il est important de connaître la trajectoire des ions dans un piège de Paul pour déterminer avec exactitude les zones où les trajectoires des ions sont stables et donc les zones où le piège fonctionne de façon optimale. Nous allons faire cette étude uniquement dans le cas du piège à deux dimensions. D'après les relations (2.1.12) et (2.1.14), le potentiel à deux dimensions va s'écrire ainsi :

$$\phi(x, y, t) = \frac{\phi_0(t)}{2r_0^2} (x^2 - y^2)$$
(2.1.16)

D'après le principe fondamental de la dynamique, on aura selon les dimensions x et y les relations suivantes :

$$\begin{cases} m\ddot{x} = -e\frac{d\phi(x, y, z)}{dx} \\ m\ddot{y} = -e\frac{d\phi(x, y, z)}{dy} \end{cases}$$
(2.1.17)

Si on pose pose u = x, y, on obtient l'équation suivante :

$$\frac{d^2 u(t)}{dt^2} + \frac{e}{mr_0^2} (V_{DC} - V_{RF} \cos \Omega t) u(t) = 0$$
(2.1.18)

De plus, si on introduit les changements de variable suivants :

$$\tau = \frac{\Omega t}{2} \tag{2.1.19}$$

$$a_u = \frac{4eV_{DC}}{mr_0^2\Omega^2} \tag{2.1.20}$$

$$q_u = \frac{2eV_{RF}}{mr_0^2\Omega^2} \tag{2.1.21}$$

Alors l'équation (2.1.18) devient :

$$\frac{d^2 u(\tau)}{d\tau^2} + (a_u - 2q_u \cos 2\tau)u(\tau) = 0$$
(2.1.22)

Cette équation porte le nom d'équation de Mathieu. Les termes a_u et q_u , appelés les "paramètres de Mathieu", sont sans dimension et dépendent de la géométrie du piège, de la masse des ions et des paramètres de confinement. De plus, $a_x = -a_y$ et $q_x = -q_y$. Les caractéristiques de ce type d'équations sont bien connues, notamment la forme générale de ses solutions :

$$u(\tau) = \rho' e^{\mu\tau} \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty} c_{2k} e^{2ik\tau} + \rho'' e^{-\mu\tau} \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty} c_{2k} e^{-2ik\tau}$$
(2.1.23)

L'ensemble des solutions ne nous intéresse pas, on veut seulement connaître les solutions qui proposent des trajectoires stables aux ions piégés, c'est-à-dire des trajectoires ayant une amplitude finie dans deux dimensions. Tout d'abord, il est clair que la nature du mouvement des ions va dépendre du terme $e^{\pm\mu\tau} \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty}$, qui dans notre cas ne doit pas

diverger.

Les coefficients c_{2k} et μ sont des constantes sans dimension qui dépendent uniquement des paramètres de Mathieu a_u et q_u introduits précédemment. Tandis que les coefficients ρ' et ρ'' sont des constantes en rapport avec la vitesse et la position des ions au moment de leur injection dans le piège. Ainsi, le mouvement des ions dans le piège va seulement dépendre des paramètres de Mathieu. Par conséquent, tous les ions piégés avec les mêmes paramètres (a_u,q_u) auront une périodicité de mouvement identique. Et finalement, les conditions initiales des ions (vitesse, position) ne vont déterminer que l'amplitude du mouvement.

Cependant, pour connaître la stabilité des solutions obtenues, il faut s'intéresser à la nature du coefficient μ . Ce n'est que dans le cas $\mu = i\beta$ (nombre imaginaire pur) que les solutions seront périodiques. Dans ce cas, si β est :

– un entier, les solutions sont périodiques instables.

– un réel non entier, les solutions sont périodiques stables.

Donc, selon les paramètres de fonctionnement (a_u,q_u) , nous aurons des trajectoires stables ou instables. Avec la condition $\mu = i\beta$, La solution (2.1.23) peut se simplifier :

$$u(\tau) = (\rho' + \rho'') \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty} c_{2k} \cos(2k+\beta)\tau + i(\rho' - \rho'') \sum_{k=-\infty}^{k=+\infty} c_{2k} \sin(2k+\beta)\tau \quad (2.1.24)$$

En conclusion, les solutions périodiques stables sont une superposition d'oscillations de fréquences :

$$\omega_k = (2k+\beta)\frac{\Omega}{2} \tag{2.1.25}$$

Les coefficients c_{2k} décroissent très rapidement avec k, et finalement ce sont seulement les termes d'ordre k = 0, 1 et 2 qui interviennent dans les calculs. Donc, les conditions de stabilité et le spectre en fréquences de ces oscillations sont définis par le paramètre β .

Afin d'étudier le mouvement des ions piégés, on va s'intéresser uniquement aux deux premiers ordres k = 0 et 1. Le mouvement des ions est alors la somme de :

- une oscillation qui a une amplitude \mathcal{U} et une fréquence ω_0 (la plus basse des fréquences). Cette oscillation correspond au macro-mouvement.
- une oscillation qui a une amplitude δ et une fréquence ω_1 proche de l'excitation radiofréquence. Cette oscillation correspond au micro-mouvement.

Dans ces conditions, le mouvement des ions selon x ou y est donné par l'approximation :

$$u(\tau) = \mathcal{U}(\tau) + \delta(\tau) \tag{2.1.26}$$

Si on considère que $\delta(\tau) \ll \mathcal{U}(\tau)$ (alors $\frac{d^2\delta(\tau)}{d\tau^2} \gg \frac{d^2\mathcal{U}(\tau)}{d\tau^2}$), l'expression (2.1.22) devient :

$$\frac{d^2\delta(\tau)}{d\tau^2} + (a_u - 2q_u\cos 2\tau)\mathcal{U}(\tau) = 0$$
(2.1.27)

En admettant que sur un cycle radiofréquence $a_u \ll q_u$ et \mathcal{U} est constante, alors l'intégration de cette expression nous donne :

$$\delta(\tau) = -\frac{q_u}{2}\mathcal{U}(\tau)\cos 2\tau \tag{2.1.28}$$

On constate que l'amplitude du micro-mouvement augmente linéairement avec l'amplitude du macro-mouvement. Alors la nouvelle expression de (2.1.26) sera : $u(\tau) = \mathcal{U}(\tau) - \frac{q_u}{2}\mathcal{U}(\tau)\cos 2\tau$. Si à nouveau on remplace $u(\tau)$ dans (2.1.22), on aura :

$$\frac{d^2 u(\tau)}{d\tau^2} = \left[-a_u + \frac{a_u q_u}{2} \cos(2\tau) - q_u^2 \cos^2(2\tau) \right] \mathcal{U}(\tau)$$
(2.1.29)

Comme la valeur moyenne du macro-mouvement sur une période de radiofréquence est définie par $\frac{d^2 \mathcal{U}(\tau)}{d\tau^2} = \frac{1}{\pi} \int_0^{\pi} \frac{d^2 u(\tau)}{d\tau^2} d\tau$, nous pouvons avoir une équation avec comme seule inconnue $\mathcal{U}(\tau)$:

$$\frac{d^2 \mathcal{U}(\tau)}{d\tau^2} = -\left(a_u + \frac{q_u^2}{2}\right) \mathcal{U}(\tau)$$
(2.1.30)

Et en remplaçant τ par (2.1.19) et en posant $\omega_{0,u}^2 = \frac{\Omega^2}{4} [a_u + \frac{q_u^2}{2}]$, elle devient :

$$\frac{d^2\mathcal{U}(t)}{dt^2} = -\omega_{0,u}^2\mathcal{U}(t) \tag{2.1.31}$$

On reconnaît l'équation du mouvement d'un oscillateur harmonique à la fréquence $\omega_{0,u}$ dont les solutions sont de la forme : $\mathcal{U}(t) = C'e^{-i\omega_{0,u}t} + C''e^{i\omega_{0,u}t}$. La profondeur du puits de potentiel pour cette oscillation harmonique est :

$$D_u = \frac{eV_{RF}^2}{4m\Omega^2 r_0^2} = \frac{q_u V_{RF}}{8}$$
(2.1.32)

Par ailleurs, cette oscillation harmonique peut être décrite comme le mouvement d'un pseudo-potentiel harmonique Ψ , tel que : $e\Psi = \frac{m\omega_{0,u}^2 \mathcal{U}^2}{2}$. Son expression générale est donc :

$$\Psi = \frac{m\Omega^2}{8e} \left(a_u + \frac{q_u^2}{2} \right) \mathcal{U}^2 \tag{2.1.33}$$

Soit encore : $\Psi = \left(\frac{V_{DC}}{2} + \frac{eV_{RF}^2}{4mr_0^2\Omega^2}\right) \left(\frac{\mathcal{U}}{r_0}\right)^2$. Et dans le cas particulier où $a_u = 0$, on aura :

$$\Psi = D_u \left(\frac{\mathcal{U}}{r_0}\right)^2 \tag{2.1.34}$$

En conclusion, les ions dans un piège de Paul vont ressentir le pseudo-potentiel Ψ qui représente la moyenne dans le temps de la force engendrée par le potentiel ϕ . Leur trajectoire sera celle d'une oscillation harmonique dans un puits de potentiel parabolique de profondeur D_u . Bien que cette approximation soit surtout valable lorsque le micro-mouvement est négligé, elle s'applique néanmoins dans des conditions plus larges. Ainsi ce modèle reste toujours valable dans l'approche adiabatique qui est définie selon les paramètres de contrôle $a \approx 0$ et $q \leq 0, 4$. Dans cette région, on considère que les ions n'échangent pas d'énergie avec le système extérieur, ils sont isolés. Lorsque le micro-mouvement n'est plus négligeable, cette fois l'ion va échanger de l'énergie avec le système extérieur par l'intermédiaire du champ électrique.

La figure 2.5 représente une simulation d'un piège de Paul à électrodes cylindriques (en haut à gauche) d'une longueur de 200 mm avec $r_0 = 5$ mm. L'ion de masse 28 u est injecté dans le piège à 1,5 mm du centre des électrodes selon x avec une énergie longitudinale $E_z = 20$ eV. On peut voir trois vues en coupe qui montrent la trajectoire de l'ion confiné avec une fréquence de 1,4 MHz. Les paramètres de contrôle utilisés sont : $(3 V_{pp})$

- En haut à droite	: a = 0	et $q = 0, 3$ (84,2933)
	0	

- En bas à droite : a = 0et $q = 0, 7 (196,684 V_{pp})$ - En bas à gauche : a = 0, 1 (14,0489 V) et $q = 0, 7 (196,684 V_{pp})$

On constate bien que les trajectoires sont composées d'un micro-mouvement d'une plus grande fréquence que le macro-mouvement.



FIGURE 2.5 – Simulation de la trajectoire d'un ion ($m \leq 28, E_z = 20 \text{ eV}$) dans un piège de Paul (f = 1, 4 MHz)

Diagramme de stabilité

Le terme β dépend uniquement des paramètres (a_u, q_u) . Il est calculé à partir des relations de récurrence du paramètre c_{2k} . Une approximation assez précise de β est donnée par [20] :

$$\beta \simeq \sqrt{a_u - \frac{(a_u - 1)q_u^2}{2(a_u - 1)^2 - q_u^2} - \frac{(5a_u + 7)q_u^4}{32(a_u - 1)^3(a_u - 4)} - \frac{(9a_u^2 + 58a_u + 29)q_u^6}{64(a_u - 1)^5(a_u - 4)(a_u - 9)}}$$
(2.1.35)

A partir de cette relation, on peut étudier graphiquement les diverses solutions de β en fonction des valeurs de a_u et q_u . Comme nous l'avons vu auparavant, les valeurs possibles de β vont donner des trajectoires périodiques stables ou instables selon chaque dimension de confinement.

La représentation graphique de toutes les solutions possibles en fonction de a_u et q_u correspond au graphe I de la figure 2.6. On remarque donc que l'intersection des solutions possibles selon x ou y vont créer différentes zones de trajectoires stables ou instables selon une ou deux directions. On peut le remarquer en détail sur le graphe II, qui représente la zone où a_u et q_u sont inférieurs à 1. On voit clairement deux zones où les trajectoires des ions selon x et y seront stables (zones symétriques car il s'agit du piège à deux dimensions). Les graphes de la figure 2.6 portent le nom de diagramme de stabilité, puisqu'ils répertorient les zones où les trajectoires des ions seront stables selon les dimensions de confinement en fonction des paramètres de contrôle (a_u,q_u) .

Le graphe III montre le détail de la première zone de stabilité, en mettant en évidence les différentes solutions de β selon x ou y. On peut remarquer, que pour tracer ce diagramme de stabilité, il n'est finalement nécessaire que de connaître les relations entre a_u et q_u dans les cas où β vaut 1 ou 0. Ainsi, l'approximation (2.1.35) dans le cas $\beta_x = 1$, nous donne [21] :

$$a_u \simeq -\frac{q_u^2}{2} + \frac{q_u^4}{128} - \frac{29q_u^6}{2304} + \frac{68687q_u^8}{18874368}^2$$
(2.1.36)

Et pour $\beta_y = 0$, on a :

$$a_u \simeq 1 - q_u - \frac{q_u^2}{8} + \frac{q_u^3}{64} - \frac{q_u^4}{1536} - \frac{11q_u^5}{35864}$$
(2.1.37)

Dans la pratique, ce n'est pas l'approximation (2.1.35) qui est la plus utilisée, car on travaille généralement avec l'approche adiabatique [22], donc le cas $a_u \approx 0$ et $q_u \leq 0, 4$:

$$\beta \simeq \sqrt{a_u + \frac{q_u^2}{2}} \tag{2.1.38}$$

Pouvoir de résolution

Dans un piège de Paul, à partir d'un couple de valeurs (a_u, q_u) , on est en mesure de fixer une trajectoire stable pour confiner les ions selon toutes les dimensions. Or nous savons que a_u et q_u dépendent de la masse des ions, des paramètres géométriques du piège et des paramètres de confinement. Donc si on fixe les conditions de piégeage à un paramètre de contrôle (a_u, q_u) , on va pouvoir distinguer les ions piégés en fonction de leur masse. La capacité à trier les ions en masse est évaluée par le pouvoir de résolution (voir section 1.2.2) :

$$R = \frac{m}{\Delta m} \tag{2.1.39}$$



FIGURE 2.6 – Différentes régions du diagramme de stabilité

Il existe un lien entre le pouvoir de résolution maximum et le nombre N de cycles RF possibles pendant le piégeage des ions. Ce postulat fut proposé par W. Paul [23] et vérifié expérimentalement par Zahn [24] (depuis d'autres expériences l'ont également vérifié). A partir d'une des zones stables des diagrammes de stabilité, on peut calculer le nombre maximum de déplacement possibles (selon x ou y) des ions piégés en se positionnant sur le point maximum de la zone de stabilité ($a_u \simeq 0, 23, q_u \simeq 0, 7$). Ainsi, il a été montré expérimentalement que :

$$R_{max} \approx \frac{N^2}{12,25} \tag{2.1.40}$$

où N représente le nombre de cycles RF effectués pendant le piégeage des ions. Le nombre de cycles RF, se calcule comme étant $N = \frac{t_{trap}}{T} = ft_{trap}$. t_{trap} est le temps de piégeage et une estimation rapide de ce temps à partir uniquement de la vitesse longitudinale (selon la direction z), nous donne la relation : $N \approx fL\sqrt{\frac{m}{2E_z}}$. Dans ce cas :

$$R_{max} \approx 0,0408 \frac{f^2 L^2 m}{Ez}$$
 (2.1.41)

Dans un piège linéaire, la longueur L va limiter le pouvoir de résolution du piège. De plus, pour f, L et m fixés, plus la valeur de l'energie des ions sera petite et plus le pouvoir de résolution sera important. Nous reviendrons sur le pouvoir de résolution dans le chapitre suivant.

2.1.2 La dynamique des faisceaux : l'espace des phases

Nous avons vu que le confinement des ions est possible en utilisant des champs électriques et/ou magnétiques pour une géométrie donnée. Dans l'étude des trajectoires stables, nous avons uniquement parlé du cas d'un ion se trouvant au centre des électrodes et ayant une direction longitudinale (d'où le terme E_z qui intervient dans les formules). Cependant, le nombre d'ions par seconde transportés par les faisceaux peut être très grand (jusqu'à 10¹⁶ pour les stables, entre 10⁵ - 10⁸ pour les radioactifs et seulement entre 1 et 10² pour ceux à très courte durée de vie) et leur position dans l'espace n'est évidemment pas identique et encore moins leur direction. On peut ainsi avoir des ions très divergents qui ne seront pas correctement ou pas du tout piégés. Il est donc important de connaître la dynamique en fonction du temps du faisceau avec lequel on travaille pour confiner convenablement les ions.

Une particule est définie par sa position dans l'espace (x, y, z) et sa quantité de mouvement (P_x, P_y, P_z) . Par conséquent, chaque particule se déplace dans un espace à

six dimensions qu'on appelle l'espace des phases. Alors, les particules qui composent le faisceau vont définir un hypervolume dans cet espace :

$$\xi = \int_{V} dx dp_x dy dp_y dz dp_z \tag{2.1.42}$$

Dans la pratique, lorsqu'on travaille avec des pièges quadrupolaires, on considère que le mouvement d'une particule dans un degré de liberté donné est indépendant des deux autres puisqu'on travaille dans des limites de petits déplacements et que les équations de mouvements dans les trois dimensions sont découplées.

Alors on utilise $\xi = \varepsilon_x \varepsilon_y \varepsilon_z$ avec $\varepsilon_u = \int_d u dp_u$ (et u = x, y, z) représentant une projection à deux dimensions dans le plan (u, p_u) de l'hypervolume. On nomme ε_u l'émittance du faisceau selon la dimension u.

La propriété fondamentale de l'émittance se trouve dans le théorème de Liouville, qui nous dit que sous l'action de forces conservatives la densité d'un groupe de particules demeure constante dans l'espace des phases. Cela veut dire que l'émittance des faisceaux demeure inchangée dans un dispositif électrique et/ou magnétique (comme un piège) puisque les forces utilisées dérivent d'un potentiel.

En général, on associe aux déplacement des ions la dimension z comme le plan longitudinal (axe de propagation du faisceau) et les dimensions x et y perpendiculaires à zcomme les plans transverses. En l'absence d'accélération, la quantité de mouvement dans le plan longitudinal est constante, ainsi la trajectoire selon l'axe z est considerée comme la trajectoire de référence. On peut alors définir les directions des deux autres dimensions selon la dimension de référence, en introduisant :

$$x' = \frac{P_x}{P_z} = \frac{v_x}{v_z} \tag{2.1.43}$$

$$y' = \frac{P_y}{P_z} = \frac{v_y}{v_z}$$
(2.1.44)

Les émittances ε_x et ε_y sont définies dans des plans à deux dimensions (x,x') et (y,y'). Graphiquement l'émittance va représenter l'aire de la surface de l'ensemble des particules représentées dans le repère. Il est donc nécessaire de définir l'enveloppe qui englobe toutes les trajectoires des particules. D'après l'équation de Lorentz, la surface théorique qui représente les trajectoires des ions dans les plans (x,x') et (y,y') est une ellipse. L'aire de cette l'ellipse sera la valeur attribuée à l'émittance. Expérimentalement, on calcule une émittance rms : l'ellipse qui englobe la plus forte densité de particules représente un pourcentage (68%, 95%) de la distribution totale des particules.



FIGURE 2.7 – Emittance dans le plan (x,x'), $\alpha > 0$ convergence, $\alpha < 0$ divergence

L'équation d'une ellipse centrée à l'origine dans le plan (x,x') est :

$$\frac{x^2}{a^2} + \frac{x'^2}{b^2} = 1 \tag{2.1.45}$$

Et l'aire de cette ellipse est πab . Sur la figure 2.7, on peut voir le graphique de cette équation (en trait plein) dans le cas a > b et $\frac{a}{b} = 6$. L'émittance est donc $\varepsilon_x = \pi ab$, l'unité généralement utilisé est π mm.mrad . En ce qui concerne l'orientation de l'ellipse, elle va fournir une information supplémentaire sur la dynamique des ions qui composent le faisceau. Dans le cas de la rotation de l'ellipse d'un angle α , on va passer des points de coordonnées (x,x') à des points de coordonnées (x_R,x'_R) selon la transformation :

$$x = x_R \cos(\alpha) - x'_R \sin(\alpha)$$

$$x' = x_R \sin(\alpha) + y_R \cos(\alpha)$$
(2.1.46)

Par conséquent l'équation (2.1.45) devient :

$$\left[\frac{\cos^2(\alpha)}{a^2} + \frac{\sin^2(\alpha)}{b^2}\right] x_R^2 + \left[\frac{\sin^2(\alpha)}{a^2} + \frac{\cos^2(\alpha)}{b^2}\right] x_R'^2 + \left[\frac{1}{b^2} - \frac{1}{a^2}\right] \sin(2\alpha) x_R x_R' \quad (2.1.47)$$

L'orientation de l'ellipse va dépendre du signe du terme $\left[\frac{1}{b^2} - \frac{1}{a^2}\right]\sin(2\alpha)$ et donc plus particulierement du signe de α . Les trois cas de figure sont representés sur la figure 2.7. Dans le cas $\alpha = 0$, on parle d'un faisceau parallèle (on retrouve l'équation (2.1.45)). Dans le cas $\alpha < 0$ le faisceau sera divergent, et si $\alpha > 0$ le faisceau sera convergent.



FIGURE 2.8 – Déformation de l'émittance d'un faisceau dans le plan transverse durant son transport

L'émittance dépend de la source d'ions. A l'aide d'outils d'optique pour la focalisation, on peut changer la convergence ou la divergence des faisceaux. Mais la convergence sur une dimension entraîne la divergence sur l'autre car l'émittance globale doit se conserver. La figure 2.8 illustre l'évolution de l'émittance d'un faisceau dans le plan transverse (u = x ou y) pendant son transport. On constate qu'à différents endroits le faisceau est convergent, puis parallèle et finalement divergent cependant la valeur de son émittance reste inchangée d'après Liouville.

Dans le cas particulier, des faisceaux pulsés, où la quantité de mouvement dans le plan longitudinal n'est plus constante, on peut écrire :

$$\varepsilon_z = \int m dv_z v_z dt = \int dE_z dt \tag{2.1.48}$$
avec E_z l'énergie cinétique des ions et t le temps (unité : $eV\mu s$). Dans ce cas précis, la composante longitudinale exprime la dispersion en énergie du faisceau pulsé et sa focalisation en temps. Donc travailler en mode pulsé plutôt qu'en mode continu implique de connaître la dynamique du faisceau selon une dimension supplémentaire.

2.1.3 Température d'un faisceau

Dans le référentiel du faisceau, l'ensemble des particules peut être considéré comme un système statistique classique en équilibre thermodynamique. La densité des particules en un point particulier de l'espace des phases est alors donnée par l'expression [25] :

$$\frac{d^6n}{dS} = n_0 e^{-\frac{E}{kT}} \tag{2.1.49}$$

où n_0 est la densité d'espace de phase au centre de la distribution, E est l'énergie du point particulier de l'espace des phases, k est la constante de Boltzman et T est la température de l'ensemble d'ions piégés. Dans le cas du mouvement harmonique simple, la projection de la distribution de densités dans le repère (x, p_x) est une distribution gaussienne :

$$\frac{d^2n}{dxdp_x} = n_{A0}e^{-\left(\frac{x^2}{2\sigma_x^2} + \frac{p_x^2}{2\sigma_{p_x}^2}\right)}$$
(2.1.50)

où n_{A0} est la distribution de densité au centre du repère (x, p_x) et les paramètres standards de cette distribution sont :

$$\sigma_x = \frac{1}{\omega} \sqrt{\frac{kT}{m}} \quad , \qquad \sigma_{p_x} = \sqrt{mkT} \tag{2.1.51}$$

où ω est donné par les paramètres de Mathieu. La représentation graphique de cette distribution est une ellipse. Donc, si on diminue l'émittance du faisceau on baisse sa température; cela revient à limiter l'étendue spatiale et la vitesse de l'ensemble de particules.

Le refroidissement

Le théorème de Liouville n'est plus valide si le faisceau est soumis à des forces nonconservatives. En particulier, lorsqu'un faisceau comporte un grand nombre d'ions, le nombre de charges par unité de volume augmente et de la même manière la répulsion coulombienne. La charge d'espace est une force non-conservative et qui ne peut être contrôlée : on ne pourra pas empêcher l'émittance du faisceau d'augmenter. Expérimentalement, la seule possibilité d'éviter ce cas de figure est de contrôler l'intensité des faisceaux. A l'inverse, on va essayer de diminuer l'émittance du faisceau en introduisant des forces non-conservatives. On parle alors de techniques de refroidissement.

Les méthodes de refroidissement dépendent du domaine d'application [26]. Par exemple, dans les anneaux de stockage, on privilégie le **refroidissement stochastique**. Cette technique, développé par Simon Van der Meer (prix Nobel en 1984 conjointement avec Carlo Rubbia), repose sur la détection et la correction de la trajectoire de l'ion dans différents segments de l'anneau. En répétant un nombre important de fois cette opération, on arrive à refroidir les ions. On peut également employer le **refroidissement par électrons** dans les anneaux de stockage. En superposant au faisceau ionique, un faisceau d'électrons, de vitesse voisine très bien contrôlée, on diminue la dispersion en vitesse des ions par interaction coulombienne jusqu'à atteindre celle des électrons. Il est possible de réaliser un **refroidissement résistif** en ajoutant aux électrodes du piège un circuit externe résistif (circuit résonnant RLC) adapté à la masse des ions piégés. A partir de la charge induite par les ions dans les électrodes du piège, le circuit permet de dissiper leur énergie cinétique et ainsi d'amortir leur mouvement dans le piège. Alors l'énergie des ions dépend de la température à laquelle se trouve le circuit externe, généralement refroidi à l'hélium liquide. Cette technique est essentiellement utilisée pour refroidir des ions multichargés.

En émettant des photons sur l'axe de propagation du faisceau, les ions vont les absorber pour les ré-émettre dans une direction aléatoire. Ils vont donc reculer à chaque émission de photon et donc leur vitesse va diminuer. Cette technique est celle du **refroidissement laser**. En optique, on l'utilise également pour confiner les atomes dans les pièges magnétooptiques. En employant six faisceaux laser, opposés deux à deux dans les trois directions de l'espace, la pression de radiation va s'opposer au mouvement des atomes qui seront alors très fortement freinés (leur énergie cinétique devient très faible) comme s'ils se déplaçaient dans un liquide très visqueux, d'où le nom de mélasse optique pour ce genre de dispositifs. Cependant cela ne suffit pas à refroidir complètement les atomes de la mélasse car ils continuent à subir une agitation cinétique liée à l'absorption ou l'émission aléatoire des photons. On plonge alors la mélasse dans un champ magnétique. Ainsi en ajoutant l'effet Zeeman, le piège magnéto-optique permet d'obtenir un petit nuage dense d'atomes froids [27].

Finalement, la technique la plus générale et la plus rapide (point important pour les faisceaux radioactifs) consiste à utiliser le **refroidissement par gaz tampon** [28]. Cette technique est couramment exploitée dans les pièges de Paul ou Penning où l'on introduit le gaz tampon (souvent un gaz léger et inerte). Les ions vont rencontrer les atomes du gaz tampon et les collisions ions-atomes vont diminuer l'énergie cinétique des ions, en théorie jusqu'à la température thermique du gaz.

Toutes ces techniques de refroidissement diminuent la dispersion des ions dans le plan transverse (x, p_x, y, p_y) . Et, à l'exception de la méthode stochastique, elles diminuent également la vitesse longitudinale des ions.

2.2 La géométrie des pièges

Nous avons vu que les électrodes à surface hyperbolique sont les mieux adaptées aux piégeage d'ions car elles génèrent parfaitement les champs quadrupolaires. Il est également possible d'avoir des électrodes cylindriques en employant une bonne approximation. Le nombre d'électrodes qui composent un piège peut aussi jouer un rôle dans la distribution des champs quadrupolaires. Et finalement, la structure géométrique des pièges va participer au nombre de dimensions de confinement des ions.

2.2.1 Pièges à deux dimensions



FIGURE 2.9 – Pièges à deux dimensions

Le quadrupôle est un des pièges les plus simples pour confiner les ions dans deux dimensions. C'est un **piège linéaire** constitué de 4 électrodes comme le montre le cas A de la figure 2.9. La longueur du piège peut varier de quelques centimètres jusqu'à un mètre. En assemblant plusieurs quadrupôles, on peut faire un piège linéaire segmenté comme dans le cas B de la figure 2.9 (nécessaire lors du refroidissement avec un gaz tampon). D'autre part les exemples de la figure 2.9 montrent les deux dispositions possibles pour les électrodes d'un quadrupôle. Lorsqu'un piège linéaire à deux dimensions possède plus de 4 électrodes on parle d'un multipôle. Plusieurs exemples de pièges de Paul linéaires ayant 8 électrodes (octupôles) fonctionnant en mode RF sont actuellement utilisés.

Il existe également des **pièges circulaires** pour confiner les particules chargées dans deux dimensions. Les pièges circulaires sont semblables à des anneaux de stockage avec néanmoins quelques différences. En effet, généralement les anneaux de stockage sont utilisés pour des protons ou des ions lourds accélérés à très haute énergie et sont souvent d'une taille imposante puisqu'ils courbent les trajectoires des ions à l'aide de puissants aimants, entre lesquels se trouvent des éléments de focalisation et éventuellement d'accélération (les anneaux qui stockent le font plutôt à énergie constante) formant ainsi un treillage . Un piège circulaire utilise plutôt une structure à base d'électrodes continues qui est alors plus avantageuse pour les appareils de plus petite taille et pour des faisceaux de plus faible énergie (voir description et comparaisons dans [29] et [30]).

Les pièges circulaires ne sont pas nouveaux : la premier fut construit pour la physique des plasmas par Wolfgang Paul [31]. Sur la base de ce travail (à la suite des propositions de Hans Dehmelt), Church [32] construisit un piège circulaire quadrupolaire pour des protons avec une géométrie ovale (en forme de piste d'hippodrome) dans le but d'augmenter le temps de stockage, ainsi que d'offrir une zone d'interaction plus étendue. Un autre piège de Paul circulaire figurera plus tard dans une proposition de Deutch et al. pour la création d'anti-hydrogène [33]. Même si le concept d'anneau fut abandonné par la suite, l'appareil fut testé en utilisant le refroidissement laser sur des ions magnésium (créés à l'intérieur du piège) par Feng et al. [34].



FIGURE 2.10 – Vue schématique du piège nommé PALLAS

L'intérêt du refroidissement des ions par laser dans un piège en forme d'anneau a été brillamment démontré par le groupe de Walter à Munich [35], [36] qui créèrent les "ion rosaries". Ce type de travail sur les faisceaux d'ions cristallins a été poursuivie plus tard par Schätz [37] pour étudier les transitions de phase dans un piège circulaire similaire nommé PALLAS (the PAuL Laser cooling Acceleration System voir figure 2.10). Il y a également eu les travaux de Lammert et al. [38] qui employèrent avec succès un piège de Paul en forme d'anneau pour la spectrométrie de masse. La physique atomique a également bénéficié d'anneaux de stockage électrostatiques (lorsque le refroidissement n'était pas nécessaire) comme par exemple l'anneau ELISA à Aarhus [39]. Un piège de Paul octupolaire en forme d'anneau [40] et un piège en forme d'hippodrome combinant un champ magnétique et RF pour faire de la spectroscopie laser [41] furent proposés mais visiblement jamais construits. Le travail de recherche et développement de cette thèse porte sur la réalisation d'un nouveau type de piège de Paul circulaire segmenté : le Cirque d'ions. C'est un dispositif unique en son genre car il combine refroidissement, piégeage RF et séparation en masse. Nous verrons en détail le fonctionnement de ce piège dans le chapitre 3.

2.2.2 Pièges à trois dimensions



FIGURE 2.11 – Piège à trois dimensions, le piège complètement à droite est un piège toroïdal [43]

Le confinement des ions à trois dimensions permet le ralentissement des ions. La géométrie la plus répandue de ce genre de piège est basée sur l'assemblage d'une électrode centrale en forme d'anneau ("ring electrode") et de deux électrodes en forme de chapeau ("end cap electrodes"). Les surfaces de ces électrodes sont généralement hyperboliques comme le montre l'image centrale de la figure 2.11. Nous retrouverons ce type de piège dans le chapitre 5 lorsqu'on parlera du "piège de précision" de l'expérience ISOLTRAP.

Si on regarde uniquement une coupe 2D de ce type de piège et qu'on effectue une rotation par rapport à un axe parallèle à son axe de symétrie mais placé à une certaine distance de cette coupe, on obtient un piège toroïdal circulaire (comme le montre l'image de droite de la figure 2.11). Cependant ce type de piège ne permet pas de confiner les ions dans 3 dimensions mais seulement dans 2. On peut le voir plus simplement comme un quadrupôle linéaire courbé et fermé. En théorie par rapport à un piège à trois dimensions classique le piège toroïdal (ayant la même valeur pour la distance r_0 voir figure 2.11) est capable de stocker un plus grand nombre d'ions. Les expériences réalisées avec ce genre de pièges [42] ont montré qu'il était préférable d'avoir un piège toroïdal non symétrique pour se débarrasser des perturbations des lignes de champ introduites par la géométrie du piège. Cependant la résolution en masse obtenue était faible. Ces recherches se sont orientées vers un spectromètre de masse toroïdal miniature [43] (échelle 1/5 par rapport à l'autre version). Les premiers résultats montrent qu'il conserve à peu près la même capacité de piégeage des ions que dans un piège à 3 dimension classique et la résolution en masse obtenue (pour des molécules) est de l'ordre de l'unité.

2.3 Emploi des pièges en physique nucléaire

Les faisceaux radioactifs produits dans les installations nucléaires sont toujours accompagnés de contaminants isobariques. Les séparateurs magnétiques ne peuvent pas éliminer l'ensemble des contaminants. Pour faire des mesures de masse de haute précision, il faut se tourner vers les pièges à ions qui sont devenus la référence pour la spectrométrie de masse. L'étape importante pour utiliser les pièges dédiés à la mesure de masse est la préparation du faisceau radioactif.

Dans les hall expérimentaux, une optique de guidage est utilisée pour transporter le faisceau vers les pièges. On exploite l'équivalence entre le mouvement d'un faisceau d'ions dans un champ électrostatique et la propagation de la lumière dans un milieu d'indice de réfraction proportionnel à la racine carrée du potentiel électrique. Cette optique est généralement composée de plaques déflectrices pour orienter le faisceau (selon le plan horizontal ou vertical du plan transverse) et des quadrupôles statiques pour focaliser le faisceau. Par exemple, une tension positive sur les deux électrodes du plan horizontal permettront de focaliser le faisceau dans un point de ce plan et à l'inverse une tension négative le fera diverger.

On peut également focaliser un faisceau à l'aide d'une lentille "Einzel" qui est composée d'un ensemble de trois électrodes cylindriques. Le principe de fonctionnement consiste à porter les électrodes d'entrée et sortie au même potentiel (en général à la masse) et celle du milieu à un potentiel différent (même ordre de grandeur que l'énergie cinétique des ions qui vont la traverser). Il est intéressant de remarquer qu'on retrouve également ces lentilles dans les résonateurs électrostatiques dont le principe de fonctionnement est similaire à un résonateur optique de Fabry Pérot. Les ions dans un résonateur rebondissent entre deux miroirs électrostatiques (lentilles Einzel). Le confinement des ions dans le plan transverse est possible si la distance L entre les lentilles et leur distance focale f vérifient la relation : $\frac{L}{4} \leq f \leq \infty$. Et pour que les ions puissent être confinés dans le plan longitudinal il faut que la barrière de potentiel dans la direction du mouvement des ions soit supérieure à leur énergie cinétique. Actuellement l'utilisation de ce type de pièges s'oriente vers le tri isotopique et/ou isobarique des ions [44] avec des pouvoirs de résolution autour de 10^5 [45].

2.3.1 Préparation d'un faisceau

Lors du transport jusqu'aux expériences, les faisceaux radioactifs sont focalisés dans le plan transverse et également triés en masse (essentiellement de façon isotopique). A ce stade, il n'est pas possible de faire une mesure de haute précision. En effet, il faut préparer le faisceau c'est-à-dire adapter son énergie et son émittance aux pièges de mesure et éliminer les contaminants. Il est souvent nécessaire de ralentir les ions car l'énergie des faisceaux est souvent plusieurs ordres de grandeurs plus grande que l'énergie d'injection optimale pour les pièges de mesures. L'émittance des faisceaux doit être reduite afin de correspondre au mieux à l'acceptance des pièges et donc optimiser la transmission.

Les pièges capables de préparer les faisceaux radioactifs provenant des installations nucléaires sont les pièges de Paul linéaires segmentés, on les appelle également "RFQ Beam Coolers" (RFQ : Radio Frequency quadrupole). Ces pièges sont capables de confiner les ions et de faire une selection en masse en travaillant avec les paramètres de Mathieu adéquats ($a_u \operatorname{et} q_u$). Pendant que les ions sont piégés, ils sont également refroidis à l'aide d'un gaz tampon léger et inerte (généralement de l'hélium). Ainsi, les ions seront totalement confinés au centre des électrodes et leur vitesse longitudinale sera également réduite. Le faisceau en sortie des RFQ possède typiquement une énergie de quelques eV et une émittance de l'ordre de 5π mm.mrad. Un très grand nombre d'expériences travaillant avec des faisceaux radioactifs utilisent des RFQ. La table 2.1 regroupe quelques exemples.

Les RFQ ne sont pas toujours exploités en tant que filtre de masse (c'est par exemple le cas du RFQ d'ISOLTRAP) car leur pouvoir de résolution est plus adapté au tri d'isotopes

qu'au tri de noyaux isobariques de masse importantes. Il est alors nécessaire d'utiliser un autre type de piège de plus grande résolution : le piège de Penning.

RFQ	L / r_0 (mm)	P_{He} (mbar)	Faisceau d'injection / éjection
COLETTE	504 / 7	0,01	60 keV / 10 eV
SHIPTRAP	1140 / 3,9	$5 \cdot 10^{-3}$	60 keV / 10 eV
JYFL	400 / 10	0,1	40 keV / 4 eV
ISOLTRAP	860 / 6	$2 \cdot 10^{-2}$	60 keV / 10 eV

TABLE 2.1 – Caractéristiques techniques de quelques RFQ

Il est fréquent de coupler deux pièges de Penning : un pour la purification et l'autre pour la mesure de masse (TITAN à TRIUMF, ISOLTRAP à ISOLDE). Le pouvoir de résolution d'un piège de Penning dépend du temps d'observation T_{obs} de l'ion confiné à la fréquence cyclotron ω_c . La largeur à mi-hauteur $\Delta \omega_c$, avec laquelle est déterminée la fréquence, est approximativement égale à $\frac{1}{T_{obs}}$. Ainsi, on a la relation [46] :

$$R = \frac{m}{\Delta m} = \frac{\omega_c}{\Delta \omega_c} \approx \omega_c \cdot T_{obs}$$
(2.3.1)

Pour $\omega_c = 1$ MHz (ion monochargé avec M= 120 u et B = 4 T) et $T_{obs} = 1$ s, on a un pouvoir de résolution de l'ordre de 10^6 (en pratique leur résolution peut atteindre 10^5). Les pièges utilisés pour le tri en masse, refroidissent également les ions à l'aide de gaz tampon comme dans le cas du RFQ. C'est nécessaire pour une injection optimale des ions dans le piège de mesure.

Les expériences WITCH [47] à ISOLDE et LPCtrap [48] au GANIL utilisent les pièges à ions pour tester la théorie électrofaible en effectuant des mesures de précisions, à basse énergie, des désintégrations β . Le spectromètre WITCH mesure le spectre de recul en énergie du ³⁵Ar grâce à deux pièges de Penning cylindriques. Le premier accumule et refroidit les ions provenant de REXTRAP, qui fournit un faisceau refroidi et pulsé, et le deuxième mesure leur décroissance. Les ions qui se sont désintégrés vont ensuite traverser un spectromètre de retardement où leur énergie cinétique radiale est convertie en énergie longitudinale (technique similaire à celle de la section 5.2.3) puis seront détectés par un MCP (voir section 4.2.3). L'expérience LPCtrap détecte les particules chargées émises lors de la désintégration β du noyau ⁶He. Le faisceau ionique d'hélium 6 provenant de la ligne basse énergie LIRAT de SPIRAL traverse d'abord un RFQ utilisant de l'hydrogène comme gaz tampon. Ensuite les ions sont guidés jusqu'à un piège de Paul "transparent" où ils seront confinés dans trois dimensions. A partir du temps de vol entre les ions de recul et les électrons en coïncidence, il est possible de déduire la corrélation angulaire.

Des pièges de Penning cylindriques sont également utilisés pour tester la symétrie matière-antimatière (test CPT pour la physique des particules). Les antiprotons fournis par le CERN sont utilisés par les expériences ALPHA et ATRAP pour former des atomes d'antihydrogène [49]. Le piège refroidit les antiprotons à l'aide d'électrons puis, en appliquant des potentiels axiaux, ils sont mélangés à des positrons pour former des atomes neutres d'antihydrogène. L'antimatière neutre est confinée par son moment magnétique à l'aide d'un piège Ioffe-Pritchard [50].

2.3.2 Mesure des Masses

Le piège de Penning à trois dimensions est actuellement l'appareil le plus sensible et le plus précis pour la mesure des masses. Il confine uniquement les ions dont la fréquence cyclotronique est identique à la fréquence du piège. Ces ions seront ensuite éjectés et mesurés à l'aide d'un détecteur sensible aux très faibles nombres d'ions permettant de faire une mesure en temps de vol. Le fonctionnement optimal de ce piège nécessite de refroidir et de purifier les faisceaux radioactifs pour n'injecter ensuite qu'un nombre d'ions proche de l'unité dans le piège.

La mesure la plus précise au monde a été réalisée sur le noyau stable ${}^{133}Cs~(2 \cdot 10^{-10})$ avec un piège de Penning [51]. Les mesures de masse des novaux exotiques sont réalisées avec une précision qui atteint 10^{-8} à 10^{-10} . Nous verrons l'exemple des mesures de masse obtenues lors de la campagne de mesures de 2008 avec ISOLTRAP (chapitre 5). La table 2.2 résume l'ensemble des expériences utilisant des pièges de Penning pour la mesure de masse de haute précision. A l'exception de SMILETRAP qui mesure les noyaux stables multichargés, elles mesurent toutes des masses radioactives. Certaines expériences ont été comparées dans la figure 1.10 à la fin du chapitre 1. La deuxième colonne de la table 2.2 regroupe les autres pièges employés : cellule de gaz, EBIS, EBIT, RFQ. Les cellules de gaz sont des instruments capables de stopper les fragments énergétiques en vol puis de les guider à l'aide de tensions RF. Comme dans les techniques de refroidissement par gaz tampon, l'hélium est le gaz communément utilisé, excepté qu'il est sous une pression de plusieurs centaines de mbar. La source EBIS (Electron Beam Ion Source) est capable de refroidir les ions à l'aide de particules chargées légères par interactions coulombiennes. Alors que la source EBIT (Electron Beam Ion Trap) peut créer et piéger des ions multichargés à l'aide d'un faisceau d'électrons et la combinaison d'un champ magnétique et de tensions électriques. Cette table montre bien que les efforts actuels et futurs pour les mesures de masse de haute précision, à l'aide de pièges de Penning, sont nombreux. En outre, les expériences récentes et futures intègrent les derniers développements afin d'améliorer la précision des mesures et d'explorer toujours plus loin la carte des noyaux.

Expériences en fonctionnement				
N	Pièges supplémentaires			
ISOLTRAP	(ISOLDE/CERN)	RFQ		
SHIPTRAP	(GSI/Darmstadt)	Cellule de gaz, RFQ		
JYFLTRAP	(IGISOL/Jyväskylä)	RFQ		
SMILETRAP	(MSL/Stockholm)	EBIS		
CPT	(ANL/Chicago)	Cellule de gaz, RFQ		
LEBIT	(MSU/East Lansing)	Cellule de gaz, RFQ		
TITAN	(TRIUMF/Vancouver)	RFQ, EBIT		
Expériences futures				
Nom		Pièges supplémentaires		
RIKEN-TRAP	(RIKEN/Tokyo)	Cellule de gaz, RFQ		
MATS	(GSI-FAIR/Darmstadt)	Cellule de gaz, RFQ, EBIT		
HITRAP	(GSI/Darmstadt)	Cellule de gaz, RFQ		
MLLTRAP SPIRAL2	(GANIL/Caen)	Cellule de gaz, EBIS, RFQ		

TABLE 2.2 – Liste des expériences dédiées aux mesures de masse de haute précision employant des pièges de Penning [11]

Chapitre 3

Le Cirque d'ions : un piège multitâche

La résolution des séparateurs magnétiques est limitée à quelques milliers. Ils sont donc bien adaptés au tri isotopique où un minimum de résolution de 300 est requis. Pour remédier aux problèmes de contaminants isobariques par contre, une résolution de l'ordre de 10^5 est nécessaire (voir section 1.2.2). Les pièges de Penning répondent à ce critère. Néanmoins, ils exigent une parfaite optimisation de l'énergie et de l'émittance des ions injectés dont le nombre est généralement inférieur à quelques centaines. A l'inverse si ce nombre dépasse 10^6 , la charge d'espace conduit à une expansion du nuage des ions piégés ce qui entraîne un décalage des fréquences de résonance [52].

Ce sont donc les RFQ -pièges de Paul linéaires- qui vont préparer le faisceau provenant directement des installations nucléaires en le confinant et en le refroidissant. Ils sont rarement exploités en tant que spectromètres notamment pour des problèmes de très faible transmission (rapport entre le nombre d'ions éjectés et injectés). Par ailleurs, ils devraient faire une longueur de 20 mètres pour atteindre un pouvoir de résolution de 10^5 . Etant donné que leur longueur est généralement limitée à 1 mètre pour des raisons d'encombrement, si on veut atteindre un "pouvoir de refroidissement" important, ils doivent travailler avec des pressions comprises entre 10^{-3} et 10^{-1} mbar qui sont élevées pour les expériences. Il est important de souligner que la transmission globale du faisceau diminue à chaque fois qu'il traverse une nouvelle machine (séparateur, piège à ions) puisque chacune possède une acceptance propre (émittance maximale pouvant être acceptée).

Le piège que nous développons, le "Cirque d'ions", est une nouvelle alternative pour trier en masse les faisceaux, il peut être considéré comme l'extension du piège de Paul linéaire. Sa géométrie circulaire permet de confiner, à l'aide d'une tension RF, les ions sur un grand nombre de tours. Ceci permet de les refroidir avec une pression de gaz tampon comprise entre 10^{-6} et 10^{-4} mbar. Pendant que les ions sont confinés et refroidis, ils peuvent également être triés en masse. Nous verrons dans la section suivante que le pouvoir de résolution que peut atteindre le Cirque d'ions est en théorie suffisant pour trier des isobares. Sa géométrie particulière permet en plus d'aiguiller les ions prêts à être éjectés sur quatre points d'éjection différents et selon deux directions possibles. Un autre avantage du Cirque d'ions est la faible surface au sol qu'il requiert, tandis que la longueur effective de la trajectoire des ions peut être optimisée à la demande selon la résolution et la transmission souhaitées.

3.1 Un piège de Paul particulier

Le Cirque d'ions est un piège de Paul qui confine les ions dans deux dimensions dans une géométrie circulaire. Les ions confinés vont donc tourner à l'intérieur du piège. La distance que les ions vont parcourir est une donnée très importante pour atteindre l'objectif principal du Cirque : la séparation en masse des ions. Donc piéger et trier sont deux opérations à faire simultanément. De plus, pour s'assurer que le piégeage est optimal, il est nécessaire de refroidir les ions, portant ainsi à 3 le nombre d'opérations à gérer en même temps.

3.1.1 La séparation en masse

La séparation en masse ne peut s'effectuer que pendant le piégeage. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, le pouvoir de résolution dans un piège de Paul est lié à la longueur du piège selon la relation (2.1.41). Le graphique de la figure 3.1 montre l'évolution de R_{max} en fonction de la longueur du piège pour des ions ayant une masse de 10 ou 200 u et une énergie longitudinale de 200 ou 1000 eV. La fréquence de piégeage est fixée à 1,4 MHz. Le pouvoir de résolution maximal théorique est proportionnel à la longueur totale du piège. Pour une même masse, le pouvoir de résolution est divisé par 5 quand l'énergie passe de 200 à 1000 eV.



FIGURE 3.1 – Evolution de R_{max} en fonction de la longueur du piège de Paul (avec f=1,4 MHz)

On peut remarquer que pour des ions de masse moyenne, un pouvoir de résolution d'environ 10^5 est atteint pour un piège d'une longueur de 20 mètres. Comme nous l'avons vu dans la section 1.2.2, l'ordre de grandeur du pouvoir de résolution nécessaire pour trier des isotopes ou des isobares n'est pas du tout le même. Pour trier une partie non négligeable des noyaux isobariques de la carte des noyaux, il faut au moins un pouvoir de résolution de 10 000. D'après la figure 3.1, un piège de Paul linéaire d'au moins 14 mètres peut atteindre un tel pouvoir de résolution. Des pièges linéaires d'une telle longueur sont difficilement envisageables notamment par leur encombrement absurde.

L'idée la plus simple pour que le parcours des ions soit important dans un piège de Paul, est de les faire tourner. Un piège de Paul de géométrie circulaire permet aux ions de parcourir sur un seul tour une longueur de $2\pi R$. Alors pour un rayon R = 0,2 m, les ions pourront parcourir sur un tour 1,256 m et un peu plus de 20 m au bout de 16 tours (soit un pouvoir de résolution supérieur à 10^4). Un piège circulaire est donc capable d'offrir un pouvoir de résolution suffisant pour trier des isobares. En conclusion, le choix du rayon est un paramètre critique dans la construction du piège circulaire. Par ailleurs, nous pouvons exprimer le pouvoir de résolution à partir d'une autre condition.

Le diagramme de stabilité (dans la zone $a_u < 1$ et $q_u < 1$) montre qu'il existe un "sommet" au paramètre de contrôle ($a_u \simeq 0.23$; $q_u \simeq 0.7$), c'est l'apex. Il représente le dernier couple de valeur (a_u ; q_u), sur l'excursion de l'axe $q_u \simeq 0.7$, pour lequel un ion possède une trajectoire stable dans le piège selon les dimensions x et y. La masse de l'ion se trouvant à l'apex est nommée m_{max} . D'après le paramètre de Mathieu q_u (équation 2.1.21), on peut exprimer cette masse maximale en fonction de la tension V_{RF}^{max} nécessaire pour travailler avec un $q_u = 0.7$:

$$m_{max} = \frac{2eV_{RF}^{max}}{2,8\pi^2 f^2 r_0^2} \tag{3.1.1}$$

Avec cette nouvelle expression de la masse, on peut reformuler l'expression du pouvoir de résolution (2.1.41):

$$\frac{m_{max}}{\Delta m} = 2,957 \cdot 10^{-3} \frac{V_{RF}^{max} L^2}{eE_z r_0^2}$$
(3.1.2)

avec V_{RF}^{max} en Volts, eE_z en eV et L, r_0 en mètres. A l'apex, le pouvoir de résolution dépend non seulement de la longueur L du piège et de l'énergie des ions injectés E_z , mais aussi de la demi-distance r_0 entre les électrodes de même potentiel et la tension V_{RF}^{max} . Par conséquent, pour fabriquer un piège circulaire, le choix de R et r_0 va déterminer (pour une gamme de masse et d'énergie des ions injectés) le pouvoir de résolution maximal qu'on pourra atteindre.

3.1.2 Confinement des ions injectés



FIGURE 3.2 – Schéma en coupe du Cirque d'ions : l'axe x est dirigé vers l'extérieur du piège, l'axe y est perpendiculaire à l'axe x ainsi qu'à l'axe z qui indique la direction des trajectoires des ions (image de simulation)

Comme dans un piège de Paul, le confinement dans deux dimensions est assuré par la tension radiofréquence (section 2.1.1). Cependant la géométrie circulaire du Cirque d'ions

va influencer le piégeage des ions injectés de l'extérieur selon les dimensions x et y en fonction de la valeur du rayon R.

Tout d'abord, la géométrie circulaire implique d'avoir des électrodes courbées. Or cela introduit des imperfections au niveau du champ de potentiel. Il faut donc travailler avec la condition $R \gg r_0$, où r_0 représente la demi-distance entre le centre des quadrupôles et la surface des électrodes.

Piéger les ions implique de les faire tourner. Donc dans le référentiel non-galiléen des ions, il faut prendre en compte la force centrifuge. Dans la figure 3.2 on peut voir un schéma du Cirque d'ions, le centre du piège est représenté par le point O_c et le centre des quadrupôles par le point O_e . Ainsi le rayon R du Cirque correspond à la distance O_cO_e , qui représente la rayon de la trajectoire idéale lors du piégeage des ions. Si on considère le déplacement des ions selon l'axe x, la distance d'un ion par rapport au centre du piège sera R + x, où x équivaut à la distance d'un ion par rapport au centre des électrodes O_e .

Ainsi, les pseudo-forces qui s'appliquent aux ions pendant qu'ils tournent sur des trajectoires stables, doivent s'équilibrer :

$$\vec{F}_{centrifuge} + \vec{F}_{pseudo-potentiel} = 0 \tag{3.1.3}$$

La norme de la force centrifuge selon la direction z est définie par $\| \overrightarrow{F}_{centrifuge} \| = \frac{mv_z^2}{R+x}$, la relation d'équilibre devient :

$$\frac{mv_z^2}{R+x} = e\frac{\partial\Psi}{\partial x} \tag{3.1.4}$$

D'après la relation du pseudo-potentiel (2.1.34), on obtient :

$$\frac{mv_z^2}{2} = \frac{e^2 V_{RF}^2}{4mr_0^2 \Omega^2} \frac{x}{r_0^2} (R+x)$$
(3.1.5)

On peut déjà remarquer que cette équation relie les paramètres géométriques du piège $(R \text{ et } r_0)$, les paramètres RF $(\Omega \text{ et } V_{RF})$ et les caractéristiques des ions $(m \text{ et } v_z)$.

Dans la direction z, l'énergie des ions est définie par $E_z = \frac{mv_z^2}{2}$, alors la relation précédente nous donne :

$$E_z = \frac{e^2 V_{RF}^2}{4m\Omega^2} \frac{Rx + x^2}{r_0^4}$$
(3.1.6)

Dans le cas où les ions ont une vitesse transverse très faible, ils ne vont quasiment pas osciller autour de la position x (et ne vont donc pas rencontrer les surfaces des électrodes). Ainsi, on peut définir l'énergie maximale d'un ion à la position $x = r_0$:

$$E_z^{max} = \frac{e^2 V_{RF}^2}{4m\Omega^2} \frac{R+r_0}{r_0^3}$$
(3.1.7)

De même, à partir de la relation (3.1.6), on peut trouver l'expression de V_{RF} :

$$V_{RF} = \sqrt{\frac{4m\Omega^2 E_z}{e^2} \frac{r_0^4}{Rx + x^2}}$$
(3.1.8)

Ainsi que sa valeur minimale :

$$V_{RF}^{min} = \sqrt{\frac{4m\Omega^2 E_z}{e^2}} \frac{r_0^3}{R + r_0}$$
(3.1.9)

La relation (3.1.7) montre que $E_z^{max} = eD(\frac{R}{r_0} + 1)$ [53], où D est le puits de potentiel (2.1.32). Or un piège de Paul linéaire à deux dimensions peut pièger des ions d'énergie $E_z^{max} = eD$. Donc en théorie le Cirque d'ions est capable de confiner des ions injectés de l'extérieur de plus grande énergie que dans un piège linéaire (à paramètres RF égaux).

A partir de la relation (3.1.9), si on fixe les valeurs de m, E_z et r_0 et qu'on varie Rpour une valeur de f donnée, on obtient la figure 3.3. On peut remarquer que la tension V_{RF} minimale à appliquer sur les électrodes pour confiner des ions ayant une énergie E_z^{max} diminue quand le rayon R du piège augmente. Et si on regarde E_z^{max} en fonction de R à partir de l'équation (3.1.7) on constate un comportement inverse, l'énergie maximale des ions pouvant être piégés augmente avec le rayon.



FIGURE 3.3 – A gauche : représentation graphique de la relation (3.1.9) avec $E_z = 200 \text{ eV}$, A droite : représentation graphique de la relation (3.1.7) avec $V_{RF} = 200 \text{ V}$. Les autres paramètres utilisés sont $m = 28 \text{ u et } r_0 = 5 \text{ mm}$

Le rayon que nous avons choisi pour le cirque est R = 200 mm. C'était le meilleur compromis entre un piège d'une taille relativement petite et dont les conditions de fonctionnement étaient avantageuses. En effet, la possibilité de pouvoir travailler avec des tensions RF faibles donne moins de contraintes sur la réalisation de l'électronique pour le piège. Cependant, la gamme d'énergie des ions injectés doit être inférieure à 1 keV.

3.2 Modélisation du Cirque d'ions

Pour mettre au point le premier prototype du Cirque d'ions, il était nécessaire de fixer les paramètres géométriques et électroniques en fonction de nos ressources expérimentales. La manière la plus simple pour tester l'évolution de plusieurs paramètres d'ordre géométrique et radiofréquence est la modélisation. Toutes les simulations du Cirque ont été effectuées avec le programme SIMION 3D 7.0, les résultats obtenus ont permis de fixer les paramètres géométriques pour la construction de notre piège.

3.2.1 Code de simulation : Simion 7

Ce code permet de modéliser (en trois dimensions) les électrodes d'un piège quelconque et ensuite de leur appliquer des tensions électrostatiques, RF ou encore des champs magnétiques. Puis finalement, il est capable de calculer les trajectoires des ions qui sont à l'intérieur des structures créées.

Lorsque l'utilisateur définit une géométrie, il permet aux programme de distinguer chaque maille élémentaire (du volume de travail) entre l'état "Electrode" et "Non-Electrode" et donc de fixer les conditions limites pour le calcul des potentiels. SIMION détermine les potentiels V en résolvant l'équation de Laplace (chapitre 2) par la méthode des différences finies. Cela consiste à exprimer le potentiel en un point en fonction du potentiel des points qui l'entourent. Si on exprime en deux dimensions le potentiel V(x, y) autour d'un point V_0 , on obtient :

$$V(x,y) = V_0 + h\left(\frac{\partial V}{\partial x} + \frac{\partial V}{\partial y}\right) + \frac{h^2}{2!}\left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial y^2}\right) + \dots$$
(3.2.1)

La méthode des différences finies autour du point V_0 , donne :

$$V_{1} = V_{0} - h \frac{\partial V}{\partial x}$$
$$V_{2} = V_{0} + h \frac{\partial V}{\partial x}$$
$$V_{3} = V_{0} - h \frac{\partial V}{\partial y}$$
$$V_{4} = V_{0} + h \frac{\partial V}{\partial y}$$

soit au premier ordre :

$$V_0 = \frac{V_1 + V_2 + V_3 + V_4}{4}$$

Ce mode de calcul est suivi d'un certain nombre d'itérations pour faire converger avec une bonne précision les valeurs des potentiels.

Ainsi, le calcul précis des potentiels va surtout dépendre du maillage, c'est-à-dire du nombre de points qui définissent la géométrie des électrodes. Pour cela, SIMION propose d'exploiter la symétrie des structures créées : au lieu de définir le volume total, on ne définit qu'un volume partiel et c'est le programme qui se charge de compléter tout le volume en appliquant les bonnes symétries. Plus le nombre d'axes de symétrie est important et plus le volume partiel à modéliser sera petit et par conséquent le nombre de points disponibles sera grand. Au niveau de la création des géométries, il existe de nombreux outils pour créer quasiment tout type de structure. SIMION permet également de calculer les trajectoires des ions qui se déplacent dans les structures modélisées. On peut même développer des programmes pour commander ou avoir accès à différents paramètres de contrôle en temps réel de calcul.

Bien que ce code de simulation offre un grand nombre de fonctions très variées, il possède de nombreuses limites. Tout d'abord le nombre de points maximum par volume est de 50 millions et un faisceau ne peut être composé de plus de 10 000 ions. SIMION ne peut pas résoudre l'équation de Poisson ($\Delta V = -\frac{\rho}{e}$), il ne peut donc pas prendre en compte la charge d'espace à moins d'utiliser un programme externe. De plus, il n'est pas capable de prendre en compte le type de matériaux utilisés pour les électrodes. Lorsqu'on

travaille avec un nombre de points par volume très important, le programme n'arrive pas à charger plusieurs potentiels à la fois.

Le manque de symétries du Cirque d'ions (à cause de la disposition des électrodes) a nécessité de travailler avec des simulations dans les conditions limites du logiciel. Heureusement, ne pas prendre en compte la charge d'espace n'a pas été un grand problème car les courants envisagés dans nos expériences ne sont pas trop importants.

3.2.2 Influence sur le montage du cirque

La construction mécanique de notre prototype demandait de fixer en premier lieu :

- Le rayon R du piège.
- La disposition des électrodes.
- La type de surface des électrodes.
- Le nombre de segmentations.

L'optimisation de ces paramètres était essentielle pour s'assurer du piégeage stable des ions sur plusieurs tours.

Les premières simulations se sont donc portées sur le rayon R, dans le cas simple de 4 anneaux non segmentés (voir image de gauche de la figure 3.7), ayant une valeur de $r_0 =$ 5 mm. Les tests pour R = 100, 150 et 200 mm ont permis d'optimiser les calculs de lignes de champ et des potentiels. On a vérifié que la tension RF à appliquer sur les électrodes pour faire tourner des ions (ayant la même masse et énergie) sur au moins un tour, était (pour une même fréquence) plus importante pour les pièges avec faible rayon. Concernant la distance $2r_0$ entre les électrodes ayant la même tension RF, la valeur de r_0 n'a jamais été variée, elle a été fixée à 5 mm en fonction des premiers calculs obtenus avec les relations (3.1.2), (3.1.7) et (3.1.9). D'ailleurs, la valeur de r_0 dans les RFQ varie généralement entre 3 et 10 mm.



FIGURE 3.4 – Coupe 2D des quadrupôles. Configuration A : disposition des électrodes en losange, Configuration B : disposition des électrodes en carré

Une fois R et r_0 fixés, c'était au tour des électrodes d'être testées. Lors des premières simulations, la surface des électrodes était cylindrique car cette solution semblait mieux adaptée à une fabrication mécanique simple et rapide. En théorie, la surface des électrodes doit être hyperbolique pour guider au mieux les lignes de champ mais avec l'approximation $r = 1,148 r_0$ (équation 2.1.15), on obtient un résultat similaire avec des surfaces cylindriques. Dans les premières simulations, la valeur du rayon des cylindres était de 5,74 mm. Les ions dans ce piège circulaire à électrodes cylindriques n'avaient aucun problème pour être confinés selon x et y tout en effectuant plusieurs tours. En plus de la surface des électrodes, il fallait également penser à la disposition des électrodes. Deux solutions étaient possibles (comme le montre la figure 3.4) : soit une disposition en losange des électrodes, soit une disposition en carré.

A paramètres égaux, les deux simulations étaient capables de piéger les ions exactement de la même façon. On peut remarquer sur la figure 3.4 que les lignes de champ sont optimales dans les deux cas. On peut également remarquer que dans le cas A, les électrodes du Cirque étaient placées à l'intérieur d'un tore porté à la masse, c'était utile lors des tests sur la perturbation et l'optimisation des lignes de champ avec le code de calcul.

La différence essentielle entre ces deux configurations est au niveau de l'injection et de l'éjection. Dans la disposition des électrodes en losange, il était nécessaire de percer au moins une des électrodes pour injecter les ions. Or la modification de la structure d'une électrode entraîne inévitablement des perturbations (plutôt importantes) au niveau des lignes de champ et par conséquent perturbe le piégeage des ions. De plus le problème devait se poser aussi à chaque point d'éjection possible.



FIGURE 3.5 – Electrodes à surface hyperbolique, disposition des électrodes en carré. Le détail des lignes de champ est également indiqué

A l'inverse, la configuration B, permet une injection et une éjection des ions sans rien changer à la structure du piège. L'ouverture pour injecter les ions selon la dimension x est assez large (même si ce n'est pas indispensable : voir section 3.3.2). Et la distance entre les électrodes de tension RF opposées va fixer l'ouverture selon la dimension y.

Les premiers dessins techniques des pièces mécaniques du Cirque étaient basés sur des électrodes cylindriques. En simulation il n'est pas nécessaire de s'inquiéter du support qui tient les électrodes. Pourtant c'est ce point qui a déterminé la surface finale des électrodes de notre prototype. L'idée d'avoir des électrodes complètement cylindriques n'était pas facilement compatible avec le support réalisable pour les maintenir. Différentes versions ont été pensées et étudiées, mais ce sont finalement des électrodes avec $\frac{1}{4}$ de surface cylindrique et $\frac{3}{4}$ de surface plate qui ont été choisies. Et pour finir, le $\frac{1}{4}$ de surface cylindrique s'est transformé en $\frac{1}{4}$ de surface hyperbolique grâce aux retours positifs des entreprises capables de fabriquer les anneaux pour le Cirque.

On peut voir le résultat sur la figure 3.5. Encore une fois cette modélisation représente une forme schématique des quadrupôles (la vraie forme des quadrupôles est en annexe A et B). On distingue également sur cette figure les lignes de champ engendrées par les électrodes. Une vue 3D de l'ensemble du piège modélisé avec ce type d'électrodes est montrée sur la figure 3.9. Malgré un maillage élémentaire trop lâche (le nombre de carrés qui composent la surface hyperbolique est trop restreint) en raison de la limite du nombre de points possibles atteinte par cette simulation, les lignes de champ sont très bien définies, notamment pour le confinement des ions au centre des quadrupôles. La demi-distance entre deux électrodes ayant la même tension RF (donc opposées diagonalement) est toujours $r_0 = 5$ mm. Et les points des surfaces hyperboliques sont obtenus à partir de l'équation $y = \pm \frac{12.5}{x}$.

Par rapport à la configuration B (figure 3.4), on peut constater que l'acceptance n'est plus la même. En effet, même si la configuration des électrodes est la même, la nouvelle surface entraîne des changements surtout selon l'axe y. Ainsi l'injection des ions selon l'axe x peut se faire sur 9 mm alors que selon l'axe y seulement sur 3 mm. Donc l'acceptance géométrique serait de 27 mm^2 . Cependant, nous savons que seuls les ions injectés vers l'extérieur du cirque (donc pour x > 0) seront piégés, dans ce cas l'acceptance réelle serait seulement de 13,5 mm^2 . Pour des ions se trouvant à 252 mm du point d'injection, on aura une acceptance de 0,017 mstrd. La transmission des ions dépend du rapport entre l'acceptance du piège et l'émittance du faisceau injecté (voir section 3.3.3). Par ailleurs, le refroidissement des ions contribue à l'amélioration de la transmission.



FIGURE 3.6 – Vue du potentiel électrique engendré au niveau du quadrupôle central porté à une tension - V tandis que les quadrupôles qui l'encadrent sont à la tension +V

Etant donné que les valeurs de R et r_0 , la forme et la disposition des électrodes étaient fixées, il ne restait plus qu'une étape pour pouvoir lancer la construction du Cirque : la segmentation.

La segmentation du cirque est nécessaire pour deux raisons :

- L'éjection des ions piégés n'est possible que si l'on peut permuter entre la tension RF et une tension statique d'éjection sur un ensemble d'électrodes (section 3.3.4).
- Le refroidissement des ions avec le gaz tampon ralentit les ions selon toutes les dimensions. Dans le plan transverse le champ quadrupolaire restreint le mouvement des ions mais selon le plan longitudinal il est nécessaire d'appliquer un champ axial pour contrôler le mouvement des ions et éviter qu'ils s'arrêtent (section 3.3.3).

Le piège le plus simple est celui qui est composé uniquement de 4 anneaux non segmentés comme le montre la simulation de gauche de la figure 3.7. Pour éjecter les ions du Cirque selon des directions bien définies, il est nécessaire d'abord de les arrêter pour ensuite les expulser. Avec 3 quadrupôles, il est possible de stopper les ions en appliquant une tension (continue) identique positive +V (voire nulle) sur l'ensemble des électrodes de deux quadrupôles les plus éloignés et une tension (continue) négative -V sur l'ensemble des électrodes du quadrupôle central. Le potentiel engendré par cette configuration (voir figure 3.6) est suffisant pour retenir les ions au niveau du quadrupôle central pendant une très courte durée. On comprend alors qu'au moment de l'éjection des ions il faudra permuter les tensions RF de piégeage vers des tensions continues +V et -V sur certains quadrupôles.

Si on veut exploiter complètement toutes les possibilités d'éjection du cirque (donc avoir le choix entre quatre zones d'éjection), il faut segmenter 16 fois les 4 anneaux pour obtenir la configuration de droite de la figure 3.7. Elle possède 12 quadrupôles pour l'éjection des ions (3 à chaque quart de tour) et 4 quadrupôles courbés ayant une longueur un peu plus petite que 1/4 du périmètre des anneaux non segmentés. Dans cette simulation, les électrodes des quadrupôles nécessaires à l'éjection ne suivent pas la courbure des anneaux, elles sont droites. En effet, il fallait vérifier que l'éjection des ions selon les 2 modes



FIGURE 3.7 – Vue du haut du Cirque (simulation) : à gauche 4 anneaux non segmentés (structure 4c), à droite piège à 16 segments (structure 16c-12d).



FIGURE 3.8 – Vue du haut du Cirque (simulation) : à gauche piège avec 36 quadrupôles courbés (structure 36c), à droite piège avec 36 quadrupôles droits (structure 36d).

possibles (tangentiellement et perpendiculairement : voir section 3.3.4) n'était pas sensible à la courbure des électrodes. Les simulations avec ce piège, ont surtout permis de fixer l'écart maximum entre les quadrupôles pour permettre aux ions de tourner. Les résultats des diverses simulations ont permis de montrer qu'un écart d'un millimètre ne perturbait pas le piégeage des ions, la référence étant toujours le cas des 4 anneaux non segmentés. Cet écart ne posait pas de problème ni pour l'assemblage mécanique ni vis-à-vis des problèmes éventuels de claquages. L'étude sur la courbure des électrodes d'injection a mis en évidence l'importance de l'alignement circulaire des électrodes. En effet, la trajectoire décrite par le centre des quadrupôles doit coïncider parfaitement avec la trajectoire idéale du cirque (le périmètre d'un cercle de rayon R = 200 mm). Dans le cas d'électrodes droites (d), soit on change l'orientation des électrodes soit on diminue leur longueur selon la zone où l'on se trouve. Dans la simulation de droite de la figure 3.7 la longueur des quadrupôles est suffisamment petite pour remplir cette condition.

La table 3.1 résume les résultats obtenus avec quelques structures différentes en travaillant avec des paramètres RF et des conditions initiales des ions identiques. On compare le nombre d'ions, ayant fait le même nombre de tours, de chaque structure à la structure de référence composée de 4 anneaux non segmentés. La lettre "d" correspond aux électrodes droites et la lettre "c" aux électrodes courbées. Le nombre d'électrodes "d" où "c" est indiqué par le chiffre devant chaque lettre.

Rapport entre les transmissions des structures			
par rapport à la transmission de la structure 4c			
(16c-12d / 4c)	(36c / 4c)	(36d / 4c)	
70 %	100 %	0 %	

TABLE 3.1 – Comparaison des transmissions des 4 structures modélisées

Avec un piège de 16 segments, on peut injecter, piéger et éjecter les ions. Mais le refroidissement ne pourra pas se faire correctement et par conséquent le tri en masse sera compromis. Pour contrôler le mouvement longitudinal des ions lors du refroidissement, il faut appliquer un potentiel axial sur les électrodes. On comprend bien que plus le piège sera segmenté et mieux on pourra contrôler le déplacement des ions selon l'axe z. Le choix du nombre de segments va aussi dépendre de la taille minimale des électrodes d'éjection et, du point de vue technique, du câblage nécessaire pour relier les électrodes et qui augmente la capacité totale du piège. Notre choix s'est porté sur 36 segments identiques (image de gauche de la figure 3.8). Nous n'avons pas voulu mettre des électrodes droites aux points d'éjection pour ne pas perturber le piégeage des ions à chaque passage d'une de ces 4 zones. Avec cette configuration, les ions sont piégés de la même façon que dans le cas des 4 anneaux non segmentés (voir tableau précédent).

La simulation de droite de la figure 3.8 montre le test sur une géométrie à 36 segments mais uniquement composée d'électrodes droites correctement orientées pour que le centre des quadrupôles coïncide avec le périmètre théorique du Cirque (largement en dessous d'un millimètre d'erreur). Dans ce piège, les ions ne pouvaient pas tourner, cette simulation souligne à nouveau la nécessité d'avoir un alignement "circulaire" parfait entre les différents quadrupôles qui composent le piège. Ici, le faible écart entre l'alignement du centre des quadrupôles avec le périmètre théorique du Cirque est suffisant pour que les lignes de champ entre deux quadrupôles successifs soient très légèrement décalées (selon la dimension x), empêchant les ions de suivre une trajectoire stable et les condamnant à finir leur course sur les surfaces des électrodes.

En conclusion, le prototype le mieux adapté à nos objectifs est un piège composé de 36 quadrupôles identiques ayant des électrodes courbées à surface hyperbolique et disposées en carré. Le rayon du piège est de 200 mm, la distance r_0 de 5 mm et l'écart à respecter entre chaque segment est de 1 mm (voir figure 3.9). La condition nécessaire pour un fonctionnement correct du cirque repose sur la qualité de l'alignement des électrodes.



FIGURE 3.9 – Schéma en coupe du Cirque d'ions : l'axe x est dirigé vers l'extérieur du piège, l'axe y est perpendiculaire à l'axe x ainsi qu'à l'axe z qui indique la direction des trajectoires des ions (image de simulation)

3.2.3 Modélisation du confinement des ions

Une fois que les valeurs des principaux paramètres nécessaires à la construction du Cirque furent fixées, il était possible de mettre à l'épreuve la simulation finale avec des tests plus détaillés.

Simulation du faisceau

La distribution des ions qui composent les faisceaux est considérée comme gaussienne. Pour simuler une distribution gaussienne selon la dimension x et y, il est possible d'utiliser la méthode de Box-Muller.

Soit U_1 et U_2 deux variables aléatoires indépendantes comprises entre 0 et 1, alors on démontre que les deux variables aléatoires :

$$T_1 = \sqrt{-2\ln U_1}\cos(2\pi U_2) \tag{3.2.2}$$

$$T_2 = \sqrt{-2\ln U_1 \sin(2\pi U_2)} \tag{3.2.3}$$

sont également indépendantes et vont suivre une loi gaussienne centrée réduite. Les variables (T_1,T_2) vont représenter (x,x') et (y,y'). Ainsi par cette méthode, on s'assure que les ions dans l'enveloppe de l'ellipse souhaitée ont une distribution gaussienne.

Le choix de l'émittance selon x ou y ne repose pas sur des valeurs mesurées avec notre source test, mais sur une estimation de fonctionnement possible du Cirque. Les caractéristiques des faisceaux utilisés pour les simulations présentées dans cette thèse, sont les suivantes :

masse (u)	Energie (eV)	$\varepsilon_x \ (\pi.mm.mrad)$	$\varepsilon_y \ (\pi.mm.mrad)$
28	200	80	80

Le nombre d'ions dans chaque simulation n'est pas toujours le même, et les faisceaux utilisés sont soit convergents, divergents ou parallèles. Concernant les conditions initiales de positionnement selon (x,y,z) des faisceaux simulés, on peut soit avoir les ions à l'intérieur du Cirque, au niveau du segment S01 (voir figure 3.19), soit à l'extérieur du Cirque alignés selon z avec le segment S01. On considère que les ions ont effectué un demi-tour, dès qu'ils

sont à nouveau confinés par le quadrupôle S19 (voir figure 3.19) et un tour, dès qu'ils sont à nouveau confinés par le quadrupôle S01.

Piégeage sur plusieurs tours

Le Cirque d'ions est capable de trier les ions en fonction de leur masse à condition que les ions confinés effectuent plusieurs tours. Ils doivent parcourir au moins 10 tours (soit un parcours moyen d'environ 12,5 mètres) pour que le pouvoir de résolution maximum soit suffisant pour trier des isobares (voir section 3.1.1).

Si on lance un faisceau parallèle selon x et y depuis le segment S01 (avec f = 1,28 MHz et a = 0), on peut étudier l'évolution des émittances des plans vertical et horizontal en fonction du nombre de tours effectué par les ions. Les graphes des figures 3.10 et 3.11 résument cette étude au bout de 1, 6, 12 et 18 tours avec q = 0,5 ou 0,7. La table 3.2 résume la transmission obtenue, ainsi que le temps de parcours des ions. Tout d'abord, on

q = 0.5			q = 0.7	
tour	transmission $(\%)$	$t_{moyen} \ (\mu s)$	transmission (%)	$t_{moyen} \ (\mu s)$
1	17,7	$34,\!6$	66,7	34,3
6	$3,\!93$	206,4	52,1	205,3
12	$2,\!68$	412,5	42,5	410,3
18	$2,\!35$	$618,\! 6$	37,9	$615,\!4$

TABLE 3.2 – Evolution de la transmission en fonction de q_u et du nombre de tours

constate (aussi bien dans le cas $q_u = 0.5$ ou 0.7) qu'au bout de 18 tours il y a encore des ions qui tournent dans le piège. D'autres simulations ont montré qu'il était possible de piéger les ions sur plus de 40 tours. C'est une condition importante pour l'estimation du pouvoir de résolution qu'on pourra obtenir avec ce piège circulaire. Cependant, on constate que la transmission diminue assez vite en fonction du nombre de tours. De plus la transmission du piège est bien meilleure dans le cas $q_u = 0.7$. Au niveau des émittances des figures 3.10 et 3.11, on constate que les trajectoires des ions qui orbitent dans le Cirque sont toutes orientées vers les anneaux extérieurs (x>0), ce qui est cohérent avec la théorie vue dans la section 3.1.2. Dans la direction y c'est assez symétrique.

Dans le mode filtre de masse $(a_u \neq 0)$, il sera plus difficile de garder les ions dans des trajectoires stables au bout de plusieurs tours, comme le montre la table 3.3.

a = 0,10 et q = 0,7		
tours	transmission $(\%)$	
1	12,84	
6	8,05	
12	$5,\!85$	
18	$4,\!22$	

TABLE 3.3 – Evolution de la transmission en fonction de a_u , q_u et du nombre de tours

Au bout de 18 tours, il ne reste plus que 4% des ions injectés dans le piège, ce qui donne une transmission globale très faible. Cependant, même en ayant une émittance peu adaptée à une transmission globale convenable, on voit qu'il est possible de piéger les ions sur plusieurs tours en variant les paramètre de Mathieu. Si on s'intéresse uniquement au cas $q_u = 0.7$ et qu'on travaille avec un faisceau convergent ($\alpha = 8.73$ mrad) ou divergent ($\alpha = -17.45$ mrad) dans le plan transverse, on obtient les graphiques des figures 3.12 et 3.13. La table 3.4 résume la transmission obtenue en fonction du nombre de tours.

	Faisceau convergent	Faisceau divergent
tour	transmission $(\%)$	transmission (%)
1	$62,\!6$	63,8
6	48,7	48,7
12	38,4	$38,\!8$
18	$33,\!04$	34,4

TABLE 3.4 – Evolution de la transmission en fonction de la convergence de départ du faisceau



FIGURE 3.10 - Evolution de l'émittance transverse en fonction du nombre de tours pour q = 0,5. A gauche : plan horizontal, à droite : plan vertical (l'émittance initiale est parallèle)



FIGURE 3.11 – Evolution de l'émittance transverse en fonction du nombre de tours pour q = 0,7. A gauche : plan horizontal, à droite : plan vertical (l'émittance initiale est parallèle)

Les résultats obtenus sont assez similaires à ceux des simulations avec un faisceau parallèle. Et la densité maximale des ions reste à peu près dans la même zone dans les plans horizontaux et verticaux. Par conséquent la dynamique initiale des ions dans le quadrupôle S01 à moins d'impact sur le piégeage que les conditions initiales de positionnement selon x et y.



FIGURE 3.12 – Evolution de l'émittance transverse en fonction du nombre de tours pour q = 0,7. A gauche : plan horizontal, à droite : plan vertical (l'émittance initiale est divergente)



FIGURE 3.13 – Evolution de l'émittance transverse en fonction du nombre de tours pour q = 0,7. A gauche : plan horizontal, à droite : plan vertical (l'émittance initiale est convergente)

Refroidissement

Le refroidissement est capital pour le fonctionnement optimal du Cirque : il est basé sur l'interaction entre les ions et les atomes du gaz tampon. Seule la simulation permet d'étudier ce type d'interaction. On peut modéliser le refroidissement en utilisant une approche soit microscopique soit macroscopique. La première méthode consiste à prendre en compte les collisions de chaque ion avec tous les atomes du gaz. Il existe plusieurs modèles pour caractériser l'interaction ion-atome ; un d'entre eux consiste à étudier l'évolution de la polarisation de l'atome lorsqu'un ion s'en approche. On utilise alors le potentiel d'interaction suivant [54] :

$$V(r) = \frac{B}{r^n} - \frac{C_6}{r^6} - \frac{C_4}{r^4}$$
(3.2.4)

où r est la distance entre l'ion et l'atome. Les termes $\frac{C_4}{r^4}$ et $\frac{C_6}{r^6}$ représentent respectivement les attraction dipolaires et quadrupolaires, le terme $\frac{B}{r^n}$ décrit la répulsion à courte distance. Ce dernier terme est empirique, il sera déterminé en ajustant les résultats obtenus avec les "intégrales de collisions" aux valeurs de mobilité expérimentales. La mobilité K gouverne la vitesse de dérive $\overrightarrow{v_d}$ d'un ion se déplaçant dans du gaz en présence d'un champ électrique constant $\overrightarrow{E_{el}}$:

$$\overrightarrow{v_d} = K \overrightarrow{E_{el}} \tag{3.2.5}$$

K peut s'exprimer à partir de :

$$K = \frac{3eE}{16N} \sqrt{\frac{2\pi}{kT_{eff}} \frac{m+M}{mM}} \frac{1}{\Omega(T_{eff})}$$
(3.2.6)

Où m et e sont la masse et la charge des ions, M la masse de l'atome du gaz tampon, E l'énergie disponible au centre de masse du système, k la constante de Boltzmann, Nla densité du nombre de molécules de gaz et T_{eff} la température effective définie par $\frac{3}{2}kT_{eff} = \frac{3}{2}kT_{gaz} + \frac{1}{2}Mv_d^2$. Le terme $\Omega(T_{eff})$ représente une des "intégrales de collisions" qui relient le potentiel V(r) à la mobilité K, il est caractérisé par [55] :

$$\Omega(T) = \frac{4\pi}{(kT)^3} \int_0^\infty exp(-\frac{E}{KT}) E^2 \int_0^\infty (1 - \cos(\chi(E, b))) b \, db \, dE \tag{3.2.7}$$

où $\chi(E,b)$ est la première intégrale de collision et détermine l'angle de dispersion :

$$\chi(E,b) = \pi - 2b \int_{r_m}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{V(r)}{E} - \frac{b^2}{r^2}}} \frac{dr}{r^2}$$
(3.2.8)

où r_m est tel que $1 - \frac{V(r_m)}{E} - \frac{b^2}{r_{rm}^2} = 0$. Ainsi $\chi(E, b)$ dépend d'un paramètre d'impact *b* et de l'énergie E. Cette approche demande l'utilisation d'un code Monte-Carlo pour résoudre les trois intégrales de collisions. La comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux simulés avec cette méthode donne un accord presque parfait.

La deuxième approche pour modéliser le refroidissement des ions est l'approche macroscopique. Cette fois on va considérer que les collisions entre les ions et atomes du gaz tampon sont suffisamment nombreuses pour s'intéresser uniquement à un aspect global de l'interaction ion-atome en travaillant exclusivement avec la mobilité K. On peut voir la mobilité comme la somme de toutes les collisions élastiques ion-atome.

Chaque gaz possède une valeur K qui varie en fonction du type d'ion et de la température du gaz. Généralement, dans les tables, nous avons accès aux mobilités réduites, notées K_0 (exprimées en $m^2 N^{-1} . s^{-1}$), liées à K par la relation :

$$K = \frac{P_0}{P} \frac{T_0}{T} K_0 \tag{3.2.9}$$

La mobilité K d'un système à une température et une pression (T, P), est normalisée par rapport à une température et une pression de référence (T_0, P_0) .

Dans l'approche macroscopique, les ions sont freinés par les atomes du gaz à travers une force de friction. La vitesse limite des ions dans le gaz est atteinte quand la force de friction est égale à la force électrique :

$$f_R = e \overrightarrow{E_{el}} = e \frac{\overrightarrow{v_d}}{K}$$
(3.2.10)

On peut alors intégrer cette force aux équations du mouvement. Dans le cas du piège à deux dimensions on obtient :

$$\begin{cases} \ddot{x} = \frac{e}{m} \left[-\frac{\Phi_0}{r_0^2} x - \frac{V_x}{K} \right] \\ \ddot{y} = \frac{e}{m} \left[\frac{\Phi_0}{r_0^2} y - \frac{V_y}{K} \right] \\ \ddot{z} = -\frac{eV_z}{K} \end{cases}$$
(3.2.11)

Les solutions de ces équations montrent que le mouvement des ions est amorti exponentiellement selon :

$$v = v_0 exp(-\frac{e}{mK}t) \tag{3.2.12}$$

Avec une décroissance en énergie :

$$E = E_0 exp(-\frac{2e}{mK}t) \tag{3.2.13}$$

Ces solutions s'appliquent uniquement dans le cas où la mobilité K est constante, c'està-dire lorsque les ions ont atteint l'énergie thermique du gaz (de l'ordre de quelques eV). En conclusion, pour simuler le refroidissement des ions il faut que la mobilité qui entre en jeu dans nos équations du mouvement s'adapte à l'énergie des ions, notamment dans la gamme des électron-volts. Pour cela, on va utiliser la paramétrisation suivante [56] :



FIGURE 3.14 – Mobilité de N_2^+ dans He, pour une pression de 10^{-4} mbar

La figure 3.14 montre l'exemple de la mobilité parametrisée pour les ions N_2^+ dans un gaz tampon composé d'atomes d'hélium. Pour une pression de 10^{-4} mbar, nous avons $C_0 = 470 \ V.s.m^{-2}$, $C_1 = 1, 1 \cdot 10^{-3} V.s.m^{-3}$, $C_2 = 1, 2 \cdot 10^{-5} V.s.m^{-4}$, et on constate que la courbe représentant K_{para} coïncide avec tout les points expérimentaux.



FIGURE 3.15 – Evolution de l'émittance transverse refroidie en fonction du nombre de tours pour q = 0,7. A gauche : plan horizontal, à droite : plan vertical (l'émittance initiale est parallèle)

Cette méthode a été utilisée pour simuler le refroidissement des ions dans le Cirque. Pour cela, il faut calculer en temps réel les valeurs de l'accélération (selon les équations 3.2.11) des ions qui se déplacent entre les quadrupôles. Dans le programme qui gère ce calcul avec SIMION, il faut rentrer les paramètres C_0 , C_1 et C_2 , P et T en fonction du choix des ions et du gaz tampon. Nous utilisons de l'hélium pour deux raisons : c'est un gaz rare (donc le risque d'échange de charge entre un ion positif et un atome neutre est diminué) et le refroidissement est plus efficace lorsque les atomes du gaz sont légers (voir équations précédentes).

On peut voir sur la figure 3.15 l'évolution de l'émittance transverse des ions refroidis au bout de 1, 6, 8 et 10 tours avec une pression de 10^{-4} mbar. Le faisceau au départ du segment S01 est parallèle, et la fréquence de piégeage est de 1,28 MHz pour q = 0,7. Au bout de 10 tours, 62 % des ions injectés tournent toujours, c'est plus important que dans le cas sans gaz. En observant l'évolution de l'émittance, on constate que les ions sont mieux confinés autour du centre des quadrupôles. Globalement l'émittance est plus faible dans le plan horizontal et dans le plan vertical (la densité d'ions est plus importante au centre des graphes). Il est vrai que sur le plan horizontal la dispersion angulaire de certains ions est encore importante au bout de 10 tours, sans doute à cause du modèle utilisé.

Les figures 3.16 à 3.18 montrent une comparaison des trajectoires d'un ion refroidi et non refroidi. L'ion part du segment S01 du centre du quadrupôle. La pression est toujours de 10^{-4} mbar dans le cas du refroidissement et les ions sont confinés avec une fréquence de 1,28 MHz et un paramètre de Mathieu de q = 0,7.

La figure 3.16 montre que l'ion refroidi est mieux confiné au centre des quadrupôles pendant qu'il tourne, notamment sur le plan vertical. La figure 3.17 est un zoom de la figure 3.16 sur une échelle de temps 100 fois plus courte. On constate alors que les oscillations, représentant le mouvement des ions, sont un peu déformées; c'est dû au fait que le mouvement des ions résulte de la somme du macro-mouvement et du micro-mouvement (voir section 2.1.1).

La trajectoire de l'ion non refroidi s'arrête plus vite car, n'étant pas ralenti, au delà de 20 tours l'amplitude de sa trajectoire est suffisante pour rencontrer la surface des électrodes. Sur le graphique de droite de la figure 3.18 on peut voir le temps en μs nécessaire pour faire effectuer un même nombre de tours à l'ion refroidi ou non refroidi. Le graphique de gauche représente l'évolution de l'énergie longitudinale des ions en fonction du temps. Ainsi dans



FIGURE 3.16 – Evolution en fonction du temps de la trajectoire d'un ion non-refroidi et refroidi (avec une pression d'hélium de 10^{-4} mbar) confiné dans le plan transverse avec f = 1,28 MHz et q = 0,7

cette simulation, il faut environ 2 ms à l'ion refroidi pour effectuer 20 tours et avoir une énergie de moins de 10 eV. Pour une même énergie des ions injectés et une même pression, ce temps augmente avec la masse des ions (de plusieurs dizaines de ms).



FIGURE 3.17 – Echelle de temps 100 fois réduite des graphiques de la figure 3.16

Les conditions de cette simulation sont adaptées à nos conditions expérimentales; le refroidissement d'un faisceau d'une plus grande énergie ($\gg 1$ keV) exige de changer de gamme de fréquence de piégeage et donc de tensions RF et DC. On peut également penser à décélérer le faisceau soit avant qu'il rentre dans le cirque, soit en utilisant trois quadrupôles au point d'injection. Cette étude sera nécessaire une fois que tous les tests de piégeage, refroidissement et séparation en masse à basse énergie auront été réalisés avec succès. En effet, à long terme, le Cirque d'ions devra être capable de refroidir des faisceaux de 60 keV comme le font déjà les RFQ dans les installations de physique nucléaire à travers le monde.

En conclusion, la première étape des simulations a permis de fixer les paramètres nécessaires à la construction de notre prototype. A partir de cette modélisation finale du Cirque d'ions, l'étude plus détaillée du piégeage des ions a permis d'estimer leur comportement en fonction de tous les paramètres de confinement (tensions RF, DC et pression du gaz). Le Cirque fonctionne en mode pulsé puisque les ions effectuent plusieurs tours avant



FIGURE 3.18 – A gauche : décroissance de l'énergie longitudinale E_z en fonction du temps, à droite : temps nécessaire pour faire effectuer un même nombre de tours à l'ion refroidi et non refroidi

d'être éjectés. Cependant la simulation de notre prototype a également été testée en mode continu (donc un piégeage des ions sur moins d'un tour) car la première étape d'optimisation expérimentale utilise ce mode. Les simulations mettent en évidence que pour obtenir une transmission globale expérimentalement raisonnable (> 4%), la valeur des paramètres de confinement devra être fixée avec précision.

3.3 Principe de fonctionnement

Trois phases sont à distinguer dans le fonctionnement du Cirque d'ions. Tout d'abord, il faut injecter de façon optimale les ions. Ensuite il faut effectuer simultanément le piégeage, le refroidissement et la séparation en masse des ions. Et finalement, il faut éjecter les ions selon une direction et un point de sortie donnés.

3.3.1 Nomenclature du Cirque

Avant de discuter des différentes phases de fonctionnement du cirque, il est nécessaire de définir la nomenclature adoptée pour notre piège. Le Cirque d'ions est un piège de Paul circulaire, composé de 36 quadrupôles, soit au total 144 électrodes. On peut voir sur la figure 3.19, représentant une vue de haut (schématique) du Piège, les 36 segments qui composent le Cirque, portant le nom de S01 à S36. Le segment S01 correspond au segment dont le quadrupôle est le premier à piéger les ions injectés. De plus, on appelle anneaux internes, les anneaux proches du centre du piège O_c et externes ceux qui sont le plus éloignés de O_c . Ainsi, chaque électrode de chaque quadrupôle pourra être identifiée selon son numéro de segment, son type d'anneau (Externe ou Interne) et selon sa position par rapport aux 4 anneaux (Haut ou Bas). Par exemple les noms des électrodes du quadrupôle 11 seront : S11IH, S11IB, S11EH et S11EB.

3.3.2 Conditions d'injection

Les ions piégés dans le Cirque ont une trajectoire circulaire, par conséquent l'injection la plus logique est l'injection tangentielle puisque les ions rentrant de cette manière vont immédiatement se mettre à tourner. Sur la figure 3.19, le point d'injection se fait au niveau du segment S01.



FIGURE 3.19 – Vue de haut schématique du Cirque et nomenclature utilisée.

D'après la relation (3.1.7), les paramètres géométriques (R, r_0) et RF (f, V_{RF}) vont limiter l'énergie des ions injectés. Expérimentalement, on fixe tous les paramètres sauf V_{RF} qu'on ajuste. Sur la figure 3.20, on peut voir que l'énergie maximale des ions injectés augmente avec la tension de piégeage RF.

De plus, le point d'injection dans le repère (x,y) est également important. A partir de la relation (3.1.6) (voir aussi les simulations de la section 3.2.3), on peut voir qu'a priori seuls les ions injectés se trouvant entre le centre des quadrupôles et les anneaux externes pourront tourner. Par conséquent, lors de l'injection il est nécessaire de focaliser le faisceau au mieux autour du centre des électrodes et dans le cas idéal uniquement selon x>0.

Un autre point important pour l'injection est le temps à partir duquel on démarre le piégeage. Au moment où les tensions RF seront appliquées sur les électrodes, les ions doivent déjà se trouver niveau du quadrupôle S01. Dans le cas contraire, si les segments S32 à S36 sont déjà en mode RF, la transmission des ions injectés au niveau du segment S01 sera excessivement faible (ou quasi-nulle), même en variant la focalisation du faisceau ou la phase RF.



FIGURE 3.20 – Evolution théorique de E_z^{max} en fonction de V_{RF}

3.3.3 Les trois numéros du Cirque

Une fois que les ions sont à l'intérieur du piège, ils vont être confinés selon le plan (x,y), triés en masse et refroidis (selon les trois dimensions). Comme dans le cas du piège de Paul linéaire, on applique une tension modulée en fréquence (section 2.1.1) $+\frac{\phi_0(t)}{2}$ sur les électrodes IH et EB et $-\frac{\phi_0(t)}{2}$ sur les électrodes IB et EH des segments concernés (figure 3.21).



FIGURE 3.21 - A gauche : représentation du potentiel au niveau des électrodes à un temps donné, A droite : représentation 2D des lignes de champ générées par chaque quadrupôle

Durant le piégeage, le Cirque d'ions travaille également en mode filtre de masse. Comme nous l'avons vu, lorsqu'on fixe les paramètres de radiofréquence pour se placer à l'apex, on sélectionne également une masse donnée. En effet pour une fréquence fixée f, deux masses m_1 et m_2 auront des valeurs différentes pour V_{RF} et V_{DC} au point de contrôle (a_u $= 0,23, q_u = 0,7$). Plus m_1 et m_2 seront différentes et plus ces tensions le seront également. Dans le cas particulier où m_1 et m_2 sont les masses d'ions isobariques, les diagrammes des stabilités se confondent.



FIGURE 3.22 – Principe de la séparation en masse des ions, exemple du tri isobarique

La figure 3.22 résume le principe de fonctionnement du tri en masse dans le Cirque. Les diagrammes de stabilité correspondent aux isobares ${}^{85}Rb$ et ${}^{85}Mo$. La première étape consiste à piéger les ions avec un paramètre $q_u = 0.7$, correspondant à la masse qu'on veut garder. Ensuite, il faut augmenter progressivement le potentiel V_{DC} (donc a_u) afin d'atteindre l'apex. Cette étape est délicate à effectuer car la variation de V_{DC} introduit une perturbation au niveau des lignes de champ ce qui déstabilise la trajectoire des ions. Comme on peut le voir dans le zoom de la figure 3.22, l'apex du diagramme de stabilité des isobares diffère de moins d'un volt selon V_{DC} ou V_{RF} .

Afin de pallier la perte d'ions lors du piégeage et du tri en masse, il est nécessaire de refroidir les ions. En effet, les ions qui ne sont pas confinés au centre des quadrupôles ne peuvent pas tourner. La perte du nombre d'ions est problématique pour la transmission du piège. De plus, comme le montre la figure 3.23, la transmission du piège est directement



FIGURE 3.23 - Résultats de simulations obtenues en additionnant la transmission sur toutes les phases. Chaque courbe représente la transmission des ions pour une émittance relative à l'acceptance de (a) 4%, (b) 1%, (c) 0,25%, (d) 0,11%, (e) 0,04%. Le pouvoir de résolution est de 225 dans le cas (I) et de 1100 dans le cas (II) - Figure 2.21 dans [18]

liée à son acceptance, c'est-à-dire l'émittance maximale que peut accepter le piège lors de l'injection des ions. Donc plus l'émittance d'injection est petite par rapport à l'acceptance du piège et meilleure sera la transmission. Pour des ions confinés avec une émittance représentant 1% de l'acceptance du piège (expérimentalement réaliste), la transmission est voisine de 30% pour R = 225. Il faut souligner que le pouvoir de résolution est inversement proportionnel à l'acceptance du piège : il y a donc un équilibre à trouver entre un grand pouvoir de résolution et une grande transmission.

Pour améliorer la transmission il faut aussi diminuer au maximum l'émittance du faisceau une fois injecté. Cela est possible en refroidissant selon les dimensions x et y les ions piégés jusqu'à les confiner au centre des quadrupôles. Les ions sont refroidis en injectant dans le Cirque d'ions un gaz tampon (de l'hélium) et provoquant ainsi des collisions ionsatomes (voir section 2.1.3). La pression du gaz à utiliser est comprise entre 10^{-6} et 10^{-4} mbar car la distance parcourue par les ions peut atteindre plusieurs mètres.

Cependant, comme le refroidissement se fait également selon la dimension longitudinale z, la vitesse longitudinale des ions va diminuer jusqu'à la vitesse thermique du gaz, et les ions s'arrêtent. Il est alors nécessaire de guider les ions dans la direction axiale en appliquant entre les faces des quadrupôles un potentiel statique ou "potentiel axial". Cette condition justifie la segmentation du Cirque en 36 segments. Sur un RFQ, on applique un potentiel axial croissant sur les premiers segments pour décélérer les ions puis un potentiel axial décroissant pour guider les ions vers la sortie du piège. Cette technique ne peut s'appliquer de la même manière sur le Cirque d'ions car le potentiel axial doit être dynamique. Si on considère qu'au bout d'un temps t_m , la séparation en masse des ions a été effectuée



FIGURE 3.24 – Exemple d'application du potentiel axial sur moins d'un tour

assez près d'un point d'éjection, deux cas de figures sont possibles en fonction de l'énergie longitudinale E_z des ions :

- Soit $E_z \ge 1$ eV, alors les ions peuvent être directement éjectés au prochain point d'éjection.
- Soit $E_z \ll 1$ eV alors les ions auront besoin d'être guidés jusqu'au prochain point d'éjection à l'aide du potentiel axial (appliqué au temps $t_m = t_{axial}$ jusqu'à un temps t_{stop}).

En trouvant les bons paramètres de pression et de piégeage pour un ion de masse m, on peut également faire en sorte qu'au bout du temps t_m les ions se trouvent directement au point d'éjection. Néanmoins, pour effectuer des séparations isobariques, les ions devront faire un nombre de tours important. On peut donc se trouver dans la situation où le refroidissement $(E_z \approx 1 \text{ eV})$ a eu lieu trop tôt par rapport à la séparation en masse. Dans ce cas, il sera nécessaire d'utiliser le potentiel axial (à un temps t_{axial}) pour atteindre le tri en masse des ions (au bout d'un temps t_m) puis pour les guider vers le point d'éjection souhaité (temps t_{stop}). Par rapport au cas des RFQ, il n'est pas nécessaire d'appliquer un potentiel axial croissant pour décélérer les ions, car dans tous les cas de figure les ions auront déjà une vitesse longitudinale faible. Par contre l'application du potentiel axial sur les électrodes exige l'estimation précise du temps t_{axial} . Il pourra être déterminé uniquement à partir des simulations qui vont prendre en compte la dynamique des ions piégés en fonction de la pression de gaz utilisée, de la masse des ions et de leur l'émittance initiale. La figure 3.24, montre l'application du potentiel axial sur moins d'un tour. La valeur maximale V_{axial} à appliquer sur le premier quadrupôle dépend des conditions dynamiques des ions piégés; ensuite la tension sur les quadrupôles suivants sera décroissante jusqu'au point d'éjection comme le montre le graphe de la tension en fonction du temps. Dans d'autres cas, la durée t_{axial} - t_{stop} peut représenter plusieurs tours. Alors un même quadrupôle aura différentes valeurs de tensions statiques en fonction du temps de passage des ions. Ainsi la synchronisation en temps sera indispensable pour l'application du potentiel axial.

Puisque le refroidissement augmente le temps de piégeage des ions, cela peut poser

problème pour des noyaux à courte durée de vie. Il faudra alors optimiser au mieux la pression du gaz tampon et l'application du potentiel axial sans trop perdre en transmission.

3.3.4 Ejection des ions

Lorsque les ions ont été refroidis et séparés en masse, il faut les placer au bon point d'éjection. Sur la figure 3.19 on peut voir les 4 points d'éjection possibles, les noms des segments sont indiqués (S01, S09, S18 et S27). Pour chaque point d'éjection, toutes les électrodes de 3 quadrupôles consécutifs sont indépendantes électriquement afin de préparer l'éjection. Par exemple, si on décide d'éjecter les ions au niveau du segment S27 (quadrupôle central), on va également utiliser les segments S26 et S28 (quadrupôles externes). L'éjection se fait en trois phases :

- Les ions sont stoppés au niveau du quadrupôle central au temps t_{stop} en appliquant un potentiel statique V_{trap} sur l'ensemble des électrodes des quadrupôles externes et internes.
- Les ions sont piégés entre les deux quadrupôles externes pendant une durée Δt_{trap}^{eject} .
- On applique une tension statique V_{eject} sur les électrodes des quadrupôles participant au mode d'éjection souhaitée.



FIGURE 3.25 – Schéma en coupe du principe de fonctionnement du mode tangentiel (à gauche) et perpendiculaire (à droite) pour l'éjection des ions du Cirque

La durée Δt_{trap}^{eject} doit être la plus petite possible (ordre de grandeur la μs , cela dépendra du "switch" utilisé) car il n'y a plus de RF pendant cette phase, donc le confinement des ions dans le plan transverse n'est plus assuré. Or il est nécessaire qu'au moment de l'éjection les ions soient correctement centrés pour ne pas rencontrer la surface des électrodes lorsqu'ils seront expulsés.

Le Cirque d'ions permet donc d'éjecter les ions au bout de n tours, $n + \frac{1}{4}$ tours, $n + \frac{1}{2}$ tours ou encore $n + \frac{3}{4}$ tours. A chaque point d'éjection, à la fin de la durée Δt_{trap}^{eject} , on peut choisir trois modes de sortie (voir figure 3.27) :

- le mode tangentiel : les ions sont éjectés dans la même direction de piégeage, en appliquant une tension V_{eject} sur l'ensemble des électrodes du premier quadrupôle externe selon la direction des ions.
- le mode inverse : les ions sont éjectés dans le sens inverse à la direction de piégeage, en appliquant une tension V_{eject} sur l'ensemble des électrodes du dernier quadrupôle externe selon la direction des ions.
- le mode perpendiculaire : les ions sont éjectés du cirque selon la direction de l'axe x, en appliquant une tension V_{eject} sur les deux électrodes internes du quadrupôle central.

Ces trois modes sont possibles puisque les ions sont stoppés avant de les éjecter. Ainsi le Cirque d'ions permet également d'aiguiller les ions selon différentes sorties. Cela donne une très grande liberté pour l'installation de ce type de piège dans une expérience de physique nucléaire. Les points d'entrée et de sortie peuvent être choisis en fonction des autres contraintes. On peut également penser à une utilisation plus complexe, qui pourrait par exemple éjecter des ions d'une masse m_1 au bout de n_1 tours et une masse m_2 au bout $n_1 + \frac{3}{4}$ tours.

Chapitre 4

Réalisation et premières performances du Cirque d'ions

Le projet Cirque d'ions démarra en janvier 2006. Son développement a connu 4 étapes : tout d'abord la simulation du prototype, ensuite la conception et la fabrication des pièces, puis l'assemblage complet du piège et finalement les tests et les améliorations. C'est à la fin de l'été 2007 que le Cirque complètement assemblé fut mis sous vide pour la première fois. Toute l'histoire de notre piège (assemblage et tests) s'est déroulée à Orsay dans notre laboratoire de spectrométrie au C.S.N.S.M. Un grand travail de mise au point du banc de test (source, spectromètre magnétique, systèmes d'optique) a aussi été nécessaire pour ce projet.

4.1 Le montage du chapiteau

A partir des premiers résultats des simulations qui ont permis de fixer plusieurs paramètres géométriques (section 3.2.2) nécessaires à la fabrication du piège, nous avons pu commencer la conception des pièces mécaniques. Cette étape a été réalisée après de nombreuses discussions avec Stéphane Cabaret, qui a réalisé tout les plans techniques de toutes les pièces du Cirque sous SolidWorks. Plusieurs versions furent pensées et dessinées mais une seule s'accordait parfaitement avec tous nos critères : alignement et dimensions précises des pièces mécaniques, temps de fabrication et budget du projet.

4.1.1 L'assemblage du Cirque

Les pièces les plus importantes dans la fabrication mécanique étaient les quadrupôles du Cirque. La conception et la fabrication de ces pièces ont été déterminées par la condition d'alignement circulaire des quadrupôles. L'idée adoptée pour la réalisation de nos quadrupôles fut la suivante (voir figure 4.1) :

- Tout d'abord réaliser 4 anneaux à surface hyperbolique (deux d'un rayon $R_1 = 198,5$ mm et deux d'un rayon $R_2 = 201,5$ mm), ainsi que deux disques en verre (utilisés pour l'isolation des électrodes).
- L'étape suivante était de coller sur chaque disque (à l'aide d'une colle époxy spéciale verre-inox) deux anneaux : un de rayon R_1 et un de rayon R_2 .
- Pour finir, il fallait venir découper sur chaque ensemble disque-anneaux 36 segments équirépartis.

L'avantage de cette méthode était de s'assurer que l'alignement circulaire des quadrupôles était parfait. Par contre, cette méthode produit un montage définitif des quadrupôles : on ne peut plus changer de quadrupôles ni travailler avec moins de 36 quadrupôles.

Le point important lors du collage était de s'assurer que l'écart entre les anneaux de rayon R_1 et R_2 était bien de 3 mm sur l'ensemble des périmètres. Pour cela nous avons fait un montage spécial pour le collage qui garantissait un écart constant entre les deux anneaux une fois collés sur chaque disque (voir annexe A figure A.3 et annexe B figure B.1 à B.3). Le collage a été effectué sous vide pour éviter un dégazage important de la colle par la suite.



FIGURE 4.1 – Photos du collage des anneaux sur le plateau de verre (à droite). On peut voir sur la photo de gauche le plateau de verre où l'électrode de masse est déjà collée

Une fois le collage terminé, la découpe des anneaux a été réalisée par une société extérieure. C'était une découpe par fil, qui garantissait un écart d'un millimètre entre chaque segment avec la bonne orientation par rapport au centre des anneaux (voir figure 4.2 et annexe B figures B.4 et B.5). Une fois la découpe terminée, l'écart vertical de 3 millimètres entre les électrodes du haut et du bas a été fixé à l'aide d'une pièce mécanique centrale.

L'étape de fabrication et d'assemblage des quadrupôles fut assez longue et compliquée. La structure en verre étant très fragile, chaque assemblage devait être fait délicatement et lentement. D'ailleurs lors d'une découpe, un disque a été très proche de se briser, on aurait alors perdu un montage complet d'électrodes. Tout d'abord, les 4 anneaux en inox n'avaient aucun souci au niveau des dimensions, les marges d'erreurs étaient bien en dessous du dixième de millimètre, mais avaient un léger problème de magnétisme (d'où le soupçon sur l'inox utilisé) qui fut corrigé après un traitement par la même société qui les avait fabriqués ainsi que quelques impacts de soudures. Lors du collage, les anneaux sur les disques en verre étaient placés sous vide et chauffés pour prévenir le dégazage. Cependant, nous avons vite compris que la colle n'était pas efficace à une température d'environ 60°C. et nous avons été obligé de recommencer certains collages. C'était surtout problématique avec les "électrodes de masse". Ces électrodes plates d'une épaisseur de 2 millimètres (voir figure 4.3) se trouvent collées aux anneaux en verre pour éviter que les ions percutent l'isolant pendant leur piégeage et créent des gerbes d'électrons. Durant la découpe, sur un des disques, un écart entre deux segments était presque de 1,4 millimètres. Pour finir, trois électrodes se sont décollées, à cause des traitements mécaniques et chimiques lors de la découpe des anneaux et du nettoyage supplémentaire nécessaire pour limiter le dégazage des pièces durant le pompage. Nous avons alors mis au point un système pour les coller de façon à les aligner parfaitement avec les autres électrodes.

Une fois le montage mécanique des quadrupôles effectués, le Cirque était quasiment prêt. Le piège repose sur un socle plat qui est placé dans l'enceinte à vide. L'alignement



FIGURE 4.2 – Photos des anneaux découpés en 36 segments (à gauche) et de l'assemblage complet du Cirque (à droite)

vertical et horizontal du piège se fait à partir d'un ensemble de trois pièces qui contrôlent la hauteur des pieds qui soutiennent le piège. Un résumé en image des différentes phases d'assemblage du Cirque se trouve dans l'annexe B. La construction et le principe de fonctionnement du Cirque ont été présentés et ont donné lieu à une publication [57].



FIGURE 4.3 – Vue schématique en coupe des électrodes du Cirque d'ions avec leurs dimensions

Au niveau du câblage du prototype, les 144 électrodes n'ont pas été branchées indépendamment. Au départ nous avions câblé deux à deux les électrodes des segments S03 à S16 et des segments S20 à S35 en prévoyant la tension RF. Seules les électrodes des segments S01, S02, S17, S18, S19 et S36 étaient câblées indépendamment. En tout, 28 câbles passaient par le passage étanche. Ainsi, au départ on pouvait uniquement tester une injection au bout d'un demi-tour.

Néanmoins, lors du test de refroidissement sur plusieurs tours, il sera alors nécessaire de faire sortir les 144 câbles (chaque câble correspondant à une électrode) pour pouvoir appliquer le potentiel axial.

4.1.2 Pompage différentiel

Une étude a également eu lieu pour le choix de l'enceinte à vide. Le résultat final a été une enceinte circulaire avec 12 brides de sortie. On peut voir les plans dans l'annexe A (figures A.1 et A.2) et quelques photos dans l'annexe B (figures B.6 à B.9). Les 12 brides s'alignent avec les possibles point d'éjection et d'injection des ions. Cette enceinte a également permis de placer les autres appareils nécessaires aux tests (passages étanches, jauges,
entrée de gaz, détecteurs). Le conditionnement de l'enceinte a duré 2 mois (chauffage pour dégazage) permettant d'atteindre un vide de $2 \cdot 10^{-7}$ mbar. C'est un vide parfaitement adapté à notre expérience et peu contraignant à maintenir puisqu'une seule pompe turbo-moléculaire suffit.



FIGURE 4.4 – Photo du pompage différentiel pour un détecteur. Détail des réducteurs utilisés

Le refroidissement est nécessaire pour confiner les ions au centre des électrodes et augmenter le nombre d'ions piégés après plusieurs tours. Expérimentalement, nous injectons de l'hélium, à l'intérieur de l'enceinte à vide du Cirque d'ions, à l'aide d'une vanne dosimétrique (ouverture manuelle). Cette vanne se trouve sur une des 12 brides de l'enceinte. A priori il ne peut y avoir de gradient de pression au sein de l'enceinte car la pompe utilisée pour le pompage turbomoléculaire se trouve sous l'enceinte.

La pression nécessaire pour le refroidissement est comprise entre 10^{-6} et 10^{-4} mbar. mais les détecteurs sensibles aux particules chargées fonctionnent uniquement pour des pressions en dessous de $5 \cdot 10^{-5}$ mbar. Par conséquent, il est nécessaire de réaliser un pompage différentiel entre le détecteur et le Cirque d'ions. Pour s'assurer que la pression au niveau du détecteur est toujours plus basse que celle du piège, il faut réduire l'ouverture commune entre la bride du Cirque et celle du détecteur. Le diamètre du trou qui sépare les deux volumes peut être évalué numériquement. En effet, on peut déterminer le volume qui passe en une seconde par le trou de la zone Cirque vers la zone détecteur : cette grandeur est la conductance. Elle dépend de la surface du trou et de la vitesse moyenne du gaz. La longueur du trou rentre également en jeu dans ce calcul. Pour notre expérience nous avons réalisé plusieurs réducteurs (voir figure 4.4). Sur la figure 4.5, on peut voir l'évolution de la pression au niveau du détecteur en fonction de la pression au niveau du piège lorsqu'on injecte de l'hélium pour deux réducteurs différents. Dans les deux cas, nous avons un pallier autour de 10^{-7} mbar pour le vide au niveau du détecteur lorsque la pression dans l'enceinte du Cirque est comprise entre 10^{-6} et 10^{-4} mbar, ce qui satisfait pleinement la condition nécessaire pour le refroidissement.

4.1.3 L'électronique du Cirque

Pendant la période de construction du Cirque, un travail en parallèle a été mené pour que l'électronique nécessaire soit prête. Le développement de l'électronique dépendait de la capacité totale de l'ensemble des quadrupôles. Une première mesure fut effectuée avec les anneaux non segmentés (en respectant l'écart de 3 millimètres verticalement entre les anneaux du haut et ceux du bas), elle donnait environ 600 pF (pour 2 MHz). La capacité du Cirque fut à nouveau mesurée une fois l'assemblage et le câblage des quadrupôles terminés.



FIGURE 4.5 – Pompage différentiel obtenu avec différents types d'ouvertures

Cette nouvelle valeur était exactement de 653 pF. Une capacité aussi importante pose de nombreux problèmes en terme d'amplification du signal RF.

C'est d'abord le signal RF sans composante continue qui a été mis au point (figure 4.6 à gauche). Il faut d'abord s'assurer qu'on peut pièger les ions dans les conditions ($a_u = 0$, $q_u \neq 0$). Le signal RF était produit par un générateur de fréquence (YOKOGAWA). La fréquence maximale est de 2 MHz et la tension de 10 Volts (il est également possible de changer la phase RF). Ce signal passe ensuite par un amplificateur capable d'intensifier un signal dans la gamme 1 KHz - 10 MHz avec une puissance de 100 W. Cependant, la tension RF d'entrée ne doit pas dépasser les 2 volts. Pour optimiser l'amplification on utilise un transformateur composé de deux ferrites (chacune d'un diamètre externe de 61 mm et interne de 37 mm et d'une hauteur de 12 mm) pour amplifier par résonance le signal RF.



FIGURE 4.6 – Schéma du circuit électronique des tensions envoyées sur les quadrupôles en mode RF

Cependant la fréquence de résonance dépend de la capacité du circuit. Ainsi lorsqu'on utilise le Cirque en mode $\frac{1}{4}$ tour (soit 8 quadrupôles sous tension RF) la fréquence de résonance sera de 1,28 MHz et en mode $\frac{1}{2}$ tour (soit 18 quadrupôles sous tension RF) la fréquence de résonance sera de 0,95 MHz. A la résonance, la tension la plus haute est proche de 300 Vpp (voir figure 4.7). Il était prioritaire de mettre au point un circuit électronique capable de piéger les ions en mode ($a_u = 0, q_u \neq 0$) pour tester le fonctionnement du Cirque. L'étape suivante sera de mettre au point un circuit pour intégrer la tension continue V_{DC} (figure 4.6 à droite) et le potentiel axial. Par ailleurs, d'après la relation (3.1.7) les conditions expérimentales de RF limitent l'énergie d'injection des ions. Il est donc nécessaire de travailler avec un faisceau d'énergie inférieur à 500 eV.



FIGURE 4.7 – A gauche : pic de résonance à 1,28 MHz avec une tension delivrée par le générateur de fréquence fixe égale à 1,9 V, A droite : équivalence entre la tension provenant du générateur de fréquence et la tension envoyée sur les quadrupôles à la fréquence de résonance

4.2 Banc de test à Orsay

Le prototype a été assemblé et testé uniquement au C.S.N.S.M. Nous l'avons testé auprès de notre spectromètre de masse. L'intérêt majeur était de fixer deux paramètres essentiels pour les tests du Cirque : l'énergie et la masse des ions. Ainsi, durant les étapes de conception et d'assemblage du Cirque, notre banc de test à été optimisé en parallèle.

4.2.1 Le spectromètre de masse



FIGURE 4.8 - Vue d'ensemble du banc de test

Notre spectromètre de masse est un aimant capable de trier les ions en fonction de leur rapport masse sur charge $\frac{m}{e}$. L'énergie cinétique E_z d'un ion se déplaçant dans un champ

magnétique perpendiculaire à sa vitesse est reliée à ce rapport par :

$$\frac{m}{e^2} = \frac{r^2 B^2}{2E_z} \tag{4.2.1}$$

où B est la valeur du champ magnétique et r le rayon théorique de la trajectoire des ions dans l'aimant d'analyse. Son pouvoir de résolution maximum est de 500 pour une transmission de 50% et 380 pour 100%. Sur la figure 4.8 on peut voir une vue schématique du spectromètre de masse (source, séparateur et ligne de transport) et du cirque en bout de ligne. La figure 4.9 montre deux spectres de masse (intensité des espèces mesurées en fonction de la valeur du champ appliqué) des éléments sortant de notre source. On constate que l'intensité des ions N_2^+ est plus importante que celle de toutes les autres espèces présentes y compris N^+ . Le séparateur est capable de trier en masse les ions provenant de la source mais il est très sensible à la dispersion en énergie du faisceau. Pour des énergies en dessous de 400 eV, il était nécessaire de corriger à laps de temps réguliers la valeur du champ pour conserver la même transmission.



FIGURE 4.9 – Spectres de masse d'un faisceau à 500 eV (à gauche) et 2000 eV (à droite)

Pour le transport du faisceau à la sortie de l'aimant jusqu'au segment S01 du Cirque, la ligne dispose de plusieurs éléments d'optique pour la déflection et la focalisation. On peut voir l'arrangement en 3D de l'ensemble de ces éléments de guidage sur la figure 4.10 (provenant d'une simulation).

Ainsi, à l'aide des deux quadrupôles statiques (doublet) on peut rendre le faisceau divergent ou convergent. L'orientation verticale ou horizontale dans le plan transverse est assurée par les 8 plaques déflectrices qui se trouvent devant le Cirque. Les autres éléments existaient déjà au niveau de la ligne; seules ces 8 plaques déflectrices ont été ajoutées pour le Cirque. D'ailleurs la moitié des ces plaques sont dans la bride d'injection de l'enceinte du Cirque qui est alignée avec le segment S01.

Peu avant le branchement du Cirque d'ions à la ligne du spectromètre de masse, l'optique de guidage a été testée avec un faisceau d'hélium à des énergies comprises entre 0,7 et 1,5 keV. Pour voir l'image du faisceau nous avons utilisé une galette de microcanaux (voir section suivante) couplée à un écran fluorescent (voir figure 4.11). Ce détecteur était placé exactement au niveau de l'emplacement du segment S01 du piège. On ne pouvait pas travailler avec une énergie inférieure à 0,7 keV à cause de la sensibilité du détecteur utilisé. Néanmoins, on a pu constater qu'il était possible de contrôler complètement l'orientation verticale et horizontale du faisceau avec les 8 plaques déflectrices. Au niveau de la focalisation, il n'était pas possible de faire un spot centré d'une grande intensité mais plutôt un trait épais allongé selon la dimension x comme le montre le détail en bas à droite de la figure 4.11. Donc l'injection des ions dans le Cirque se fait sur une grande longueur selon x. Comme nous l'avons vu dans la section 3.1.2, seuls les ions selon x > 0 pourront tourner, ce qui rend compliqué l'optimisation du courant injecté.



FIGURE 4.10 – Vue 3D de l'optique de guidage de la ligne



FIGURE 4.11 - Expérience test du système de focalisation et de déflection du faisceau de la ligne. Le détecteur en bout de ligne est une galette de microcanaux couplée à un écran fluorescent. Sur le détail en bas à droite, on peut voir l'image du faisceau selon les dimensions x et y

4.2.2 La Source

C'était le point le plus important à mettre au point pour les tests du Cirque. Auparavant, le banc de test était équipé d'une source à ionisation de surface. Avant de commencer l'assemblage du Cirque, les tests d'optimisation avec cette source -fournissant essentiellement les ions ${}^{23}Na^+$, ${}^{39}K^+$, ${}^{85}Rb^+$ et ${}^{87}Rb^+$ - n'ont pas permis d'avoir des courants importants (très supérieurs à 1 pA) pour des énergies inférieures à 800 eV.

Par conséquent, nous nous sommes tournés vers l'utilisation d'une source Penning (voir figure 4.12). Cette source à ionisation par plasma a été fabriquée dans notre laboratoire (hauteur : 86 mm, diamètre : 170 mm). Les sources Penning sont utilisées depuis de nombreuses années, notamment lorsqu'on veut travailler avec des courants ioniques importants.

Pour faire marcher ce genre de source, il faut amorcer une décharge électrique dans un gaz (généralement l'air ambiant) à une pression entre 10^{-4} et 10^{-3} mbar. Le plasma est composé de cations et d'électrons en même nombre le rendant électriquement neutre. Ce plasma est confiné par un champ magnétique créé par des aimants permanents. Ensuite, on introduit la matière à ioniser sous forme gazeuse dans la source. L'ionisation du gaz résulte de la collision entre les molécules du gaz et les ions du plasma.



FIGURE 4.12 – Fonctionnement de notre source Penning

Plusieurs optimisations ont été nécessaires, aussi bien mécaniques qu'électriques, avant de pouvoir utiliser et maîtriser cette source dans notre expérience. Le plasma produit par cette source n'est stable qu'à partir d'un vide d'environ $5 \cdot 10^{-7}$ mbar. L'intensité du faisceau produit est étroitement liée à deux paramètres : la pression du gaz injecté (P_{source}) et la tension utilisée pour créer le plasma (T_{source}).

A cause de la configuration de la source, on ne peut pas mesurer la pression du gaz injecté (voir figure 4.12). Cependant, on évalue que le vide dans la cavité juste avant de rencontrer le plasma est autour 10^{-3} mbar. Le débit du gaz introduit est contrôlé à l'aide d'une vanne dosimétrique. Pour étudier l'impact de la pression du gaz injecté, on observe l'évolution de la pression globale. Le plasma ne peut ioniser qu'un volume donné de molécules, ainsi dès que la pression globale dépasse 10^{-5} mbar, l'intensité du faisceau chute de plus de 80 %. Pour une pression P_{source} donnée, une seule tension T_{source} permet d'obtenir un courant ionique maximal.

L'inconvénient principal que nous avons constaté est la très grande dispersion en énergie des ions à la sortie de la source. Une estimation grossière nous donne une dispersion de 100 eV. Une mesure précise de l'émittance du plan transverse (horizontalement et verticalement) serait également une donnée importante à déterminer pour mieux cerner la dynamique des ions injectés dans le Cirque.

Nous avons utilisé comme gaz à ioniser de l'azote N_2 pur à 99,999%. Le choix de la masse 28 permet d'optimiser les paramètres de confinement pour les tests de séparation de masse possibles avec notre banc de test (par exemple N_2 et CO). La source est capable d'ioniser un très grand nombre d'éléments et aussi bien des atomes que des molécules.

Dans notre cas, les espèces abondantes sont N^+ et N_2^+ , les autres éléments qui composent l'air sont visibles à l'état de traces.

4.2.3 Les détecteurs

Pour mesurer les ions nous avions deux types de détecteurs (figure 4.13) : un multiplicateur d'électrons et un MCP (multichannel plate ou galette de microcanaux). Dans les deux cas, l'ion au contact d'une surface bien précise du détecteur va émettre plusieurs électrons de faible énergie cinétique qui seront ensuite multipliés de nombreuses fois engendrant une cascade d'électrons, créant ainsi un signal suffisamment amplifié pour pouvoir être mesuré.

Dans le cas du multiplicateur, les électrons sont accélérés et multipliés (électrons secondaires) à leur passage sur des plaques (dynodes) orientées en fonction de l'angle d'injection des ions à l'entrée du détecteur. La tension d'alimentation du détecteur est divisée entre les différentes dynodes afin de créer un potentiel croissant pour guider la cascade d'électrons.

En ce qui concerne le MCP, c'est une galette composée d'un très grand nombre de tubes ouverts, revêtus intérieurement d'une couche semi-conductrice, ayant un diamètre de l'ordre du micromètre et une longueur de quelques millimètres. Les ions incidents vont perdre leur énergie au contact des extrémités des parois des canaux, engendrant la production d'électrons secondaires. Ces nouveaux électrons vont à leur tour en créer d'autres en se propageant dans les canaux jusqu'à leur extrémité. La propagation des électrons est possible car ils sont accélérés par la tension de polarisation du détecteur. Le gain des galettes est inversement proportionnel au diamètre des microcanaux et proportionnel à leur longueur (elle conditionne la production d'électrons). Dans le but d'augmenter le gain de la MCP, on empile généralement deux galettes de microcanaux, on obtient alors un chevron. Dans ce cas l'angle d'inclinaison des canaux de chaque galette est crucial pour la multiplication du nombre d'électrons. Ce type de détecteur est souvent utilisé pour les mesures en temps de vol (TOF, voir section 1.2.2).

Dans nos tests, nous avons utilisé les deux types de détecteurs. Le multiplicateur permet de faire des mesures en mode continu, il permet de mesurer directement le nombre d'ions par seconde. Tandis que le MCP s'utilise dans le mode pulsé et le signal délivré (lu à l'oscilloscope) permet d'avoir une information sur le temps (par rapport à un temps de départ) et la distribution des ions. A l'oscilloscope nous observons des pics dont l'aire est proportionnelle au nombre d'ions qui heurtent le MCP. Le type de MCP que nous avons utilisé est un chevron.



FIGURE 4.13 – Détecteurs utilisés avec le Cirque d'ions, à gauche : deux multiplicateurs d'électrons, à droite : un MCP ou galette de microcanaux

Ces deux types de détecteurs sont utilisés quand l'intensité du faisceau est inférieure à un picoampère (soit moins de 10^7 ions/s). Lorsque les courants mesurés sont supérieurs à 1 pA, on utilise une cage de Faraday. Ce type de détecteur est simplement un cylindre en inox. Les ions qui pénètrent à l'intérieur du cylindre communiquent leur charge au moment de leur impact avec le fond du cylindre. Ce courant est ensuite mesuré à l'aide d'un picoampèremètre. Devant le cylindre on place un disque (ayant une petite ouverture) qu'on porte à une tension négative afin d'empêcher les électrons secondaires (créés par l'impact des ions) de s'échapper du cylindre. Deux cages de Faraday (voir figure 4.14) ont été utilisées pour les tests du Cirque. Une se trouvant avant les 8 plaques déflectrices (cage de Faraday 1) et une autre se trouvant sur le prolongement de la ligne derrière le Cirque d'ions (cage de Faraday 2).



FIGURE 4.14 – A gauche : photo de la cage de Faraday 2, à droite : photo de la même cage de Faraday installée dans l'enceinte du Cirque d'ions

4.2.4 Le système de contrôle-commande

Les figures de l'annexe C montrent une vue schématique des branchements électroniques de l'expérience. Le fonctionnement du Cirque d'ions est en mode pulsé puisque les ions injectés doivent faire plusieurs tours avant d'être éjectés. Pour cela, on doit pouvoir synchroniser les tensions RF et continues (potentiel axial, tensions d'éjection). Comme nous l'avons vu lors des simulations de la section 3.2.3, le temps caractéristique de piégeage des ions sur un tour est de l'ordre de la dizaine de μs et sur plus de 10 tours de l'ordre de la milliseconde. Il faut donc un programme capable de travailler avec une telle base de temps ainsi que des instruments sensibles à ces gammes de travail.

Un premier programme de contrôle-commande a été mis en place sous Labview 8.5. Deux captures d'écran illustrent les ressources de ce programme (figures 4.15 et 4.16). Il permet de piloter plusieurs appareils comme le générateur de fréquence ou les alimentations haute tension (Fug HT). Il peut également récupérer le signal lu par notre oscilloscope numérique. De plus, on peut créer un cycle pouvant avoir une durée comprise entre une micro-seconde et une seconde. Durant ce cycle on peut avoir 8, 16 ou 32 voies capables de délivrer des signaux TTL ayant chacun un temps de départ propre et une durée variable, pouvant même être de l'ordre de la micro-seconde. Par exemple, on peut jouer sur le temps de piégeage des ions en créant un cycle avec le générateur de fréquence.



FIGURE 4.15 – Programme de contrôle-commande sous LabView 8.5, fenêtre permettant de piloter toutes les tensions envoyées sur les quadrupôles du Cirque ainsi que sur les plaques déflectrices



FIGURE 4.16 – Programme de contrôle-commande sous LabView 8.5, fenêtre permettant de piloter les temps de synchronisation (ici sur 16 voies)

4.3 Premiers résultats

Le prototype que nous avons réalisé, a comme premier objectif de montrer qu'on peut piéger sur au moins un tour des ions non refroidis. Cette étape demande déjà une optimisation de l'injection des ions, des tensions de piégeage et d'éjection des quadrupôles et la maîtrise des temps de synchronisation. L'étape suivante sera alors de tester le Cirque d'ions comme filtre de masse. Pour cela il faudra gérer correctement le refroidissement (et sans doute l'application du potentiel axial) et intégrer la tension continue V_{DC} au circuit RF existant.

Les premiers tests de notre prototype nous ont permis d'améliorer les différents points de l'assemblage d'origine et de nous rapprocher du premier objectif du projet.

4.3.1 Piégeage en bout de ligne

Les tests du Cirque ont commencé avec le banc de test que nous avons décrit précédemment. Il semblait important pour les premiers tests de travailler avec des faisceaux d'énergie fixe et composés d'ions ayant la même masse.

Tout d'abord, il y a eu plusieurs améliorations au niveau de l'injection du faisceau. Une plaque rectangulaire amovible de 3 mm de largeur peut mesurer le courant sortant des 8 plaques déflectrices, juste avant de rentrer dans le Cirque. La largeur de cette plaque correspond à l'ouverture d'injection selon la dimension y du piège. Si le faisceau d'injection est correctement guidé, il peut traverser le Cirque en ligne droite en passant par les segments S33, S34, S35, S36 S01, S02 et S03, lorsque la radiofréquence n'est pas en marche. Pour contrôler la transmission correspondante, on mesure le courant du faisceau ayant traversé le Cirque à l'aide d'une cage de Faraday pour les tests en mode continu, ou d'un MCP dans le cas d'un faisceau pulsé. Le MCP se trouve aligné dans la bride qui suit le prolongement de la ligne, et un écran à la masse avec une ouverture rectangulaire est placé devant pour mesurer uniquement les ions ayant traversé le segment S01. Avec ce dispositif, on est capable d'optimiser le guidage optique du faisceau en mesurant la transmission d'injection. En règle générale la transmission d'injection entre la cage de Faraday 1 et la cage de Faraday 2 varie de 30% à 70% en fonction de l'énergie du faisceau et de sa stabilité.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 3, lors de l'injection du faisceau, on doit s'assurer qu'il passe par le centre du quadrupôle S01 et dans le meilleur des cas selon x > 0. Or les tests du système d'optique de guidage seul (section 4.2.1) avaient déjà montré (à des énergies plus hautes) qu'il était possible de focaliser le faisceau (avec une grande intensité) au niveau du centre du quadrupôle S01 uniquement en ayant un faisceau très étalé en x (symétrique en x par rapport au centre du quadrupôle). Donc au niveau de la transmission d'injection, avec le Cirque installé, on est surtout sensible à l'optimisation de l'orientation du faisceau verticalement et/ou horizontalement. Comme aucun type de détecteur ne peut être placé à l'intérieur des quadrupôles, on ne peut pas être sûr à 100 % que le point de focalisation se fait bien au niveau du segment S01 et par conséquent l'optimisation est plus compliquée. La transmission calculée prend en compte également le pourcentage d'ions qui ne pourront pas tourner.

Concernant l'éjection des ions, les simulations et les premiers tests ont permis de voir que les détecteurs étaient trop loin des points d'éjection. Les ions éjectés sont très dispersés horizontalement ; il est nécessaire de les focaliser dès leur sortie pour en collecter une grande partie (résultats des simulations). Sur la figure 4.17, on peut voir une photo des lentilles Einzel installées dans l'enceinte à vide. Deux d'entre elles sont à moitié cachées par le blindage nécessaire pour les détecteurs. L'enceinte étant remplie de pièces métalliques,



FIGURE 4.17 – A gauche : photo d'une lentille Einzel, à droite : trois lentilles Einzel installées aux points d'éjection possibles pour les tests

l'impact du faisceau avec une de ces pièces entraîne la création d'électrons parasites qui seront vus par les détecteurs.



FIGURE 4.18 – Simulation des ions éjectés en continu au bout d'un demi-tour.

La figure 4.18 est une simulation en mode demi-tour. Cette simulation en mode continu est intéressante pour l'optimisation du Cirque notamment pour se focaliser sur quelques paramètres (moins évident à faire en mode pulsé). Les ions sont injectés de l'extérieur du Cirque, le faisceau est aligné avec le segment S01 selon la dimension z, puis font un demi-tour et sont éjectés à partir du segment S19 en mode tangentiel. Les tensions sur les électrodes du segment S19 sont 95 Volts pour S19IH et S19IB et 90 volts pour S19EH et S19EB. Afin de focaliser les ions sur les détecteurs, une lentille Einzel alignée selon la dimension z est placée à l'extérieur du Cirque à 142 mm du segment S19. La tension sur le cylindre central est de 140 Volts et les deux autres sont à la masse. Sur la figure 4.18, il y a une vue (plus petite) qui résume les conditions de la simulation et une autre (plus grande) d'une coupe du piège montrant les ions ayant fait un demi-tour.

Cette simulation a été effectuée dans le cas $a_u = 0$ et f = 1,40 MHz (quadrupôles S01 à S18) avec un faisceau parallèle, convergent ou divergent (m= 28, $E_z = 200$ eV). Le graphe de la figure 4.19 représente la transmission en fonction du paramètre de Mathieu q_u . On constate qu'elle est assez faible, en dessous de 10% (surtout si le faisceau est non parallèle) et que les ions sont majoritairement éjectés sur une gamme bien précise des valeurs de q_u .

Des modifications ont alors été apportées. Le câblage RF a été revu aussi bien à l'in-



FIGURE 4.19 – Simulation de la transmission au bout d'un demi-tour en fonction du paramètre q_u .

térieur qu'à l'extérieur du Cirque, et les électrodes des quadrupôles S08, S09 et S10 sont maintenant indépendantes électriquement. Ce nouveau câblage des quadrupôles a permis le test du $\frac{1}{4}$ de tour. De plus, à l'extérieur, les câbles sortant des passages étanches furent considérablement réduits pour ne pas augmenter la capacité totale du Cirque.



FIGURE 4.20 – Evolution du nombre d'ions mesurés après avoir effectué un demi-tour en fonction du paramètre de Mathieu q. L'orientation horizontale des ions était ajustée à l'aide du quadrupôle S19

La figure 4.20 résume le premier résultat obtenu après toutes les modifications décrites précédemment. Lors de ce test, la fréquence de piégeage était de 0,95 MHz, la masse des ions était de 28 u et leur énergie de 303 eV. L'intensité du faisceau était de 110 pA au niveau de la cage de Faraday 1 et la transmission d'injection était de 49 %. La pression dans l'enceinte était de 3,7 \cdot 10⁻⁵ mbar avec de l'hélium injecté. Le bruit mesuré lors de cette expérience était de 4,6 coups/min.

Seuls les quadrupôles S01 à S18 étaient en mode radiofréquence. Les segments S20 à S36 étaient tous à la masse. Ici, le quadrupôle S19 est utilisé pour orienter horizontalement les ions éjectés en appliquant une tension de 65 volts sur S19IH et S19IB et une tension de 70 volts sur S19EH et S19EB. La légende "S19 $\neq 0$ V" correspond à ce cas de figure, alors que "S19 = 0 V" se réfère au cas où les quatre électrodes du quadrupôle S19 sont à la masse. Ainsi, les ions sont piégés sur un demi-tour en continu puis sont éjectés vers un multiplicateur d'électrons.

L'injection des ions nécessite de mettre à la masse les quadrupôles avant le segment d'injection, car la radiofréquence rend quasiment impossible l'injection des ions. Nous l'avons observé expérimentalement et les simulations le confirment également.

Comme le montre le résultat de la figure 4.20, l'optimisation de l'orientation horizontale

des ions permet de gagner en moyenne un facteur 2 sur le nombre de coups mesurés par minute. La transmission est plus importante pour q compris entre 0,2 et 0,6. Néanmoins la transmission pour q = 0,4 est environ de $2, 5 \cdot 10^{-7}$ %. Une transmission aussi faible peut s'expliquer par les difficultés à optimiser l'injection des ions. Mais c'est également la dispersion en énergie (liée à la source) qui ne permet pas un piégeage optimal des ions. Les tests réalisés en mode pulsé n'ont pas permis d'avoir des résultats significatifs en mode $\frac{1}{4}$ ou $\frac{1}{2}$ tour sans doute également à cause d'un problème de faible transmission.

4.3.2 Piégeage direct

Afin de mieux étudier les problèmes de transmission, nous avons modifié radicalement notre banc de test. Nous n'utilisons plus le séparateur magnétique, ni l'optique de guidage de la ligne. Notre source se trouve maintenant branchée sur une bride de l'enceinte à vide du Cirque comme le montre la figure 4.21.



FIGURE 4.21 – Nouvelle disposition de la source d'ions branchée directement à l'enceinte du Cirque d'ions (la flèche jaune indique l'ancienne arrivée du faisceau)

Avec ce dispositif, il est possible de tester deux types de piégeage $\frac{1}{4}$ et $\frac{3}{4}$ de tour (à cause du câblage des quadrupôles). Par ailleurs, on ne peut plus sélectionner la masse des ions, toutes les espèces ionisées par la source se trouvent dans le faisceau injecté dans le Cirque d'ions. Néanmoins, on sait qu'il y a très majoritairement des ions N_2^+ et N^+ avec N_2^+ produit plus abondamment que N^+ . De plus les conditions de piégeage sont uniquement prévues pour piéger des ions ayant une masse 28. Avec cette nouvelle configuration, il n'est pas possible de focaliser ou orienter les ions provenant de la source. Le seul repère pour l'injection est l'alignement de l'électrode d'extraction de la source avec le quadrupôle d'injection. Cependant, l'optique de guidage de la ligne était utile pour les tests en mode pulsé. Par conséquent, après les premiers tests, un doublet fut placé entre le quadrupôle d'injection et l'électrode d'extraction de la source (voir figure 4.25 et les figures B10 à B11 de l'annexe B).

Le graphe de la figure 4.22 montre la transmission des ions sur $\frac{1}{4}$ de tour en mode continu. Les conditions de piégeage sont f = 1,28 MHz et nous travaillons sans hélium. Les

quadrupôles S10 à S18 sont en mode RF et les quadrupôles S19 à S36 et S01 à S09 sont à la masse. La courbe des ions ayant une énergie de 25 eV fut obtenue après avoir installé les doublets alors que celle des ions ayant une énergie de 100 eV a été obtenue lors des premiers tests. L'intensité du faisceau injecté sans le doublet (ions à 100 eV) est de 10 nA et celle avec le doublet est de 2,8 nA. Donc la transmission dans le premier cas est de 10^{-7} % et 10^{-4} % dans l'autre. Nous sommes très loin d'une transmission raisonnable mais ces résultats soulignent qu'il faut encore améliorer l'émittance des ions injectés, notamment dans le plan horizontal.

L'allure des courbes est cohérente avec les résultats obtenus en simulation, le piégeage maximal est bien autour de q = 0.7. Par contre dans les simulations, l'émittance des faisceaux représentait un grand pourcentage de l'acceptance du Cirque et malgré cela la transmission était toujours supérieure à 1%. On peut donc se demander à quel point l'énergie des ions injectés contribue à la mauvaise transmission de notre prototype.



FIGURE 4.22 – Nombre d'ions éjectés après $\frac{1}{4}$ de tour en fonction du paramètre q_u

Le graphe de la figure 4.23 montre l'évolution de la transmission en mode $\frac{1}{4}$ de tour en fonction de l'énergie d'injection des ions. Les conditions de piégeage sont exactement les mêmes, seuls les paramètres de la source ont un peu changé. On constate que plus l'énergie des ions augmente et plus la transmission diminue. C'est cohérent puisque pour des paramètres RF et géométriques fixés, l'énergie des ions piégés ne peut dépasser une valeur limite (voir section 3.1.2). En l'occurrence, la transmission chute très vite à partir de 200 eV, or en théorie l'énergie des ions piégés avec nos conditions RF peut arriver quasiment à 600 eV. Cet écart s'explique par la grande dispersion en énergie longitudinale des ions sortant de la source.

En utilisant le même montage que précédemment, on a pu faire un test en mode $\frac{3}{4}$ de tour. L'énergie des ions est de 25 eV et ils sont piégés avec une fréquence de 0,9 MHz au niveau des quadrupôles S10 à S36. Mécaniquement, le multiplicateur était assez loin du point d'éjection et il n'était pas possible de placer une lentille Einzel à cause de la proximité du point d'injection. On constate sur le graphe de la figure 4.24 que le nombre d'ions éjectés dans cette configuration est très faible (le bruit mesuré était de 0,2 ions/s). Au problème de la dispersion en énergie des ions injectés, s'ajoute la rencontre probable entre les ions éjectés et ceux injectés. En conclusion, pour piéger les ions sur un ou plusieurs tours il sera nécessaire de mieux optimiser l'injection des ions et donc de mieux contrôler leur énergie longitudinale. De plus, pour le mode pulsé il faudra nettement augmenter le nombre d'ions injectés.



FIGURE 4.23 – Evolution de la transmission en mode $\frac{1}{4}$ de tour en fonction de l'énergie des ions injectés pour différentes valeurs du paramètre q_u



FIGURE 4.24 – Nombre d'ions éjectés après $\frac{3}{4}$ de tour en fonction du paramètre q_u



 $\label{eq:Figure 4.25-Vue schématique de la mise en place des doublets entre la source et le Cirque$

Chapitre 5

ISOLTRAP : une mixité de pièges pour la mesure de masse

Durant la campagne de mesures de masse de 2008, l'expérience ISOLTRAP a mesuré plusieurs nouvelles masses de noyaux exotiques dont les chaînes isotopiques $^{143-146}Xe$ et $^{223-229}Rn$. Les radons 223 à 228 avaient déjà été découverts entre 1964 et 1989 mais leur masse n'avait jamais été mesurée. Cependant la mesure du ^{229}Rn est particulière car ce radon est le premier isotope radioactif à avoir été découvert par un piège de Penning. La masse du ^{229}Rn a été mesurée avec une précision relative $\frac{\delta m}{m}$ égale à $6 \cdot 10^{-8}$. Pour arriver à une telle performance, ISOLTRAP utilise trois pièges à ions, dont deux sont des pièges de Penning, afin de purifier entièrement les faisceaux radioactifs. Dans ce chapitre nous allons décrire le fonctionnement de cette expérience et faire le bilan des mesures effectuées en 2008. Au préalable intéressons-nous aux faisceaux radioactifs produits à ISOLDE, dont dispose ISOLTRAP.

5.1 Le hall ISOLDE



FIGURE 5.1 – Schéma du hall ISOLDE

Le CERN est constitué d'une chaîne d'accélérateurs dont le dernier élément est le LHC (Large Hadron Collider), anneau de 27 km de circonférence dans lequel des collisions de protons de 4 TeV seront produites à partir de l'automne prochain. Un de ses éléments particulièrement glorieux est le SPS (Supersynchrotron à protons), anneau de 7 km de circonférence, mis en service en 1976, dans lequel des collisions protons-antiprotons ont permis la découverte des bosons porteurs de l'interaction faible (W et Z) qui ont valu le prix Nobel à Carlo Rubbia et Simon van der Meer en 1984. ISOLDE (Isotope On-Line Mass Separator) [58] - [60] est une installation dédiée à la production d'une grande variété de faisceaux d'ions radioactifs par la méthode ISOL (voir section 1.2). Elle est située à coté du PSB (Proton Synchrotron Booster) qu'elle exploite. Les protons produits sont accélérés par le LINAC/Booster et délivrés par paquet toutes les 1,2 secondes avec une énergie allant de 1 à 1,4 GeV et une intensité maximale de $3 \cdot 10^{13}$ ions par impulsion (2 μ A). La figure 5.1 montre une vue schématique de la totalité du hall : on peut notamment distinguer l'arrivée des protons qui vont entrer en collision avec la cible et les différentes lignes qui transportent les ions radioactifs jusqu'aux expériences. Le hall ISOLDE regroupe de nombreuses expériences dont ISOLTRAP (depuis 20 ans) que nous allons voir en détail dans les sections suivantes. Les domaines de recherche des expériences réalisées à ISOLDE sont très variés : physique atomique, nucléaire, physique des solides et sciences de la vie.

5.1.1 Création du faisceau

À ISOLDE, les nucléides radioactifs sont produits à partir de la technique ISOL (voir section 1.2) qui est basée sur la collision entre les protons de haute énergie (impulsions provenant du PS Booster) et une cible épaisse. Suite aux réactions de spallation, fission ou fragmentation les atomes radioactifs créés dans la cible sont extraits par diffusion thermique, puis ionisés par impact électronique, de surface ou par résonance laser (RILIS : Resonance Ionization Laser Ion Sources).



FIGURE 5.2 – A gauche : Table des éléments disponibles à ISOLDE (en gris), A droite : Carte des noyaux des noyaux ayant été produits à ISOLDE

Cette technique permet de créer plus de 70 éléments et environ 1100 isotopes (voir figure 5.2), de l'hélium (Z = 2) à l'actinium (Z = 89) avec des demi-vies pouvant être de l'ordre de la milliseconde (${}^{14}Be$ 4 ms ou encore ${}^{11}Li$ 9 ms). Certains noyaux sont produits avec une intensité de 10¹¹ ions par seconde. Les ions monochargés sont extraits et accélérés par un champ électrique jusqu'à 60 keV. La dernière étape avant de diriger les ions vers

les expériences est de les trier en masse à l'aide d'un des deux séparateurs magnétiques le GPS (General Purpose Separator) ou le HRS (High Resolution Separator).

Le GPS a été construit pour délivrer trois faisceaux parallèles ayant une masse comprise entre ±15 % pour être sélectionnés et délivrés ensuite aux expériences et aussi pour le contrôle des propriétés du faisceau. Son pouvoir de résolution théorique est de $\frac{m}{\Delta m} = 2400$ avec un aimant à 70° et un rayon de courbure de 1,5 mètres (image de gauche de la figure 5.3).

Le HRS quant à lui possède deux aimants successifs d'angles de déflection respectifs de 90° et 60°. Actuellement, le pouvoir de résolution couramment utilisé est de $\frac{m}{\Delta m} = 5000$, et en théorie le pouvoir de résolution maximal est de 30 000. Sur l'image de droite de la figure 5.3 on peut voir un schéma de HRS ainsi que des profils théoriques des faisceaux correspondant aux masses 99, 100 et 101. Ainsi dans la pratique, même avec le HRS, on ne peut pas éliminer la majorité des contaminants isobariques des faisceaux radioactifs sans payer trop cher en transmission.



FIGURE 5.3 – Deux séparateurs de masse en continu disponibles à ISOLDE : le GPS (à gauche) et le HRS (à droite)

Il existe néanmoins une méthode pour diminuer les contaminants isobariques des faisceaux avant qu'ils traversent les séparateurs magnétiques en utilisant les sources RILIS qui ont une très grande sélectivité chimique (il y aussi l'exemple des sources thermoïoniques pour les alcalins). Néanmoins cela n'est possible que pour certains éléments.

5.1.2 Transport du faisceau

Le faisceau à la sortie de GPS ou de HRS va être orienté à l'aide de nombreux éléments d'optique mis à disposition des expérimentateurs et pouvant tous être pilotés à partir d'une salle de contrôle.

Les lignes qui transportent le faisceau (figures 5.1 et 5.4) sont divisées en plusieurs sections, et dans chacune de ces sections on peut retrouver des déflecteurs simples (Deflector, Kicker, Bender, XY deflector, Y deflector), des lentilles de focalisation (quadrupôle, multipôle) et des lentilles de focalisation déflectrices (steering quadrupôle). Les lentilles et déflecteurs utilisent des tensions électrostatiques. Les déflecteurs sont généralement constitués de plaques verticales et/ou horizontales (éventuellement mobiles) pour diriger les faisceaux suivant les dimensions x et y et les lentilles sont constituées de 4 éléments polarisés deux à deux à des tensions inverses.

Dans chaque section, il est également possible de mesurer l'intensité du faisceau à l'aide de cages de Faraday et/ou de voir le profil du faisceau dans les 2 dimensions. Lors du transport des ions, le vide dans l'ensemble de la ligne ISOLDE est en permanence



FIGURE 5.4 – Photo d'une partie de la ligne transportant le faisceau radioactif provenant d'ISOLDE jusqu'à ISOLTRAP (on peut apercevoir les cages de mise à la masse de la source d'ions de référence et du premier piège à ions (RFQ) de l'expérience)

contrôlé par un grand nombre d'automates et ainsi de nombreuses vannes de sécurité sont prêtes à se fermer en cas de problème de pression.

L'émittance des différents faisceaux radioactifs produits par ISOLDE est environ de 35 π mm.mrad à 60 keV. La large gamme des espèces disponibles permet l'étude systématique des propriétés atomiques et nucléaires et des désintégrations loin de la vallée de stabilité.

5.2 Le dispositif expérimental

ISOLTRAP est une des nombreuses expériences se trouvant dans le hall ISOLDE, c'est une combinaison de pièges à ions capables d'aboutir à la mesure de masse de haute précision. Cette expérience fut la première à utiliser un piège de Penning en ligne. Les spectromètres de masse utilisant des pièges de Penning peuvent atteindre des pouvoirs de résolution de l'ordre de 10^5 . Le premier piège de Penning d'ISOLTRAP possède cette résolution alors que le deuxième parvient à 10^6 [61].

Le fonctionnement d'ISOLTRAP se fait en trois phases : préparation du faisceau, élimination des contaminants, mesure de masse. Pour chaque phase un piège différent est utilisé. La particularité de cette expérience est également sa disposition dans le hall expérimental : les ions provenant de la ligne de faisceau ISOLDE sont obligés de passer d'un plan horizontal vers un plan vertical puisque les deux derniers pièges du spectromètre sont installés verticalement. La mesure de masse repose sur la détermination de la fréquence cyclotronique ω_c dans un piège de Penning (équation 2.1.9). Cette technique expérimentale, a permis à ISOLTRAP de mesurer des noyaux loin de la stabilité et ayant un temps de demi-vie en dessous de 100 ms [62]. Cette expérience a également montré sa capacité à purifier les faisceaux radioactifs des contaminants isobariques et même isomériques. La figure 5.5 résume le positionnement de chaque piège.

La source d'ions de référence

ISOLTRAP possède une source de référence (voir figure 5.5) située à coté de la ligne de transport du faisceau radioactif. Cette source d'ions stables a une double utilité : tester et régler les pièges avant les mesures avec les faisceaux provenant d'ISOLDE ainsi que produire des ions dont la masse sera une référence pour les mesures de masse des ions radioactifs.



FIGURE 5.5 – Vue schématique de la disposition du piège de Paul et des pièges Penning de l'expérience ISOLTRAP



FIGURE 5.6 – Photo de l'installation de la source Penning sur ISOLTRAP

Les éléments produits par cette source à ionisation de surface sont des alcalins : ${}^{23}Na$, ${}^{39}K$, ${}^{85}Rb$, ${}^{87}Rb$ et ${}^{133}Cs$. A l'exception du potassium, leurs masses sont toutes connues avec une incertitude relative d'environ 10^{-10} .

Avant le début de la campagne de mesures de 2008, nous avons installé et testé une source Penning comme source de référence (voir figure 5.6). L'étude et la conception furent réalisées dans notre laboratoire. Elle est très similaire à celle que nous avons fabriqué pour les tests du Cirque d'ions : elle a surtout été optimisée pour avoir une plus rapide descente en vide et fonctionner à 60 keV sans claquages. Le but de ce travail était de fournir une masse de référence stable légère (A ≤ 20).

En effet, comme il était prévu de faire des mesures de masse d'éléments légers (béryllium, hélium), il était nécessaire d'avoir une masse de référence la plus proche possible (voir section 5.2.3). Dans le cas de l'hélium cela entraînait également l'utilisation d'hydrogène comme gaz tampon (le refroidissement est plus efficace quand les atomes du gaz sont plus légers que ceux à refroidir). L'expérience sur les éléments légers n'a finalement pas eu lieu en 2008. Concernant la source Penning, nous l'avons seulement testée avec le RFQ car les deux autres pièges n'étaient pas disponibles. La jauge, la moins éloignée de la source, a mesuré un vide de $1, 7 \cdot 10^{-6}$ mbar pendant nos tests. Il a été nécessaire de faire



FIGURE 5.7 – Piégeage des ions provenant de la source Penning dans le buncher. La fréquence utilisée est 1,03 MHz. Le refroidissement à l'hélium s'est effectué sous une pression de $1, 6 \cdot 10^{-6}$ mbar lorsque le gaz ionisé était de l'air (à gauche) et de $6, 2 \cdot 10^{-6}$ mbar lorsqu'on ionisait le néon 20 (à droite)

un changement au niveau de la haute tension (V) du RFQ et de la source. Sur ISOLTRAP l'ensemble RFQ et source sont portés au même potentiel entre 30 et 60 kV. Cependant pour créer un plasma avec notre source, on doit faire une différence de potentiel ΔV (< 1 kV dans nos tests) entre deux pièces mécaniques. Donc si le RFQ est porté à la tension V alors la tension sur la source doit être $V + \Delta V - 1$ kV.

Nous avons travaillé essentiellement à 30 kV (il y a eu quelques essais à 55 kV). Les premiers tests étaient d'abord avec le gaz résiduel dans la source (air) pour vérifier les conditions de piégeage. Le faisceau injecté dans le RFQ était pulsé sur une base de temps de 2 ms (beamgate) et les ions piégés par le RFQ ont été observés grâce à une galette microcanaux. Sur la figure 5.7 (à gauche) on peut voir un des scans montrant les différentes masses présentes à la sortie de la source. Ces trois pics correspondent aux masses proches de 20 (H_2O^+, H_3O^+) , 30 (N_2^+, O_2^+) et 40 (Ar^+, CO_2^+) . Nous avons également produit un faisceau de néon 20 avec la source Penning. Le graphique de droite représente le scan obtenu avec un beamgate de 0,5 ms et un temps de refroidissement haussé jusqu'à 100 ms. Comme le gaz utilisé n'était pas assez pur et que le pompage de la source avait été relativement court, beaucoup d'autres espèces étaient encore très visibles. Comme nous n'avons pas pu, lors des tests, utiliser les pièges de Penning, il n'a pas été possible de continuer nos optimisations et donc vérifier que le néon 20 était bien présent à la sortie du RFQ.

5.2.1 Préparation du faisceau

Cette première phase utilise un RFQ pour la mise en forme du faisceau en paquets d'ions groupés dans le temps (ou "bunching" d'où le nom de "buncher trap"). C'est un piège de Paul linéaire composé de 4 tiges cylindriques segmentées lui permettant d'accumuler et refroidir les ions. Il est donc capable de confiner axialement et radialement les ions. Ce RFQ travaille uniquement avec le paramètre de Mathieu q_u (voir section 2.1.1) et le refroidissement se fait à l'aide d'un gaz tampon (de l'hélium). De plus, le piège tout entier est porté à 60 kV (lié à l'énergie des ions provenant d'ISOLDE). L'injection du faisceau est assurée par une électrode en forme ovoïdale (voir figure 5.5 et 5.8) qui se trouve devant le RFQ permettant la focalisation et le ralentissement des ions de 60 keV à quelques centaines d'électronvolts. Les ions sont alors piégés avec une fréquence autour de 1 MHz et refroidis sous une pression relative de 10^{-6} mbar, en effet les quadrupôles du RFQ sont à l'intérieur d'un cylindre qui est placé dans l'enceinte à vide du RFQ, par conséquent la pression entre les électrodes est plutôt dans la gamme de 10^{-3} mbar. Il est nécessaire d'utiliser un potentiel axial afin de guider les ions refroidis. D'autre part le potentiel statique appliqué sur les quadrupôles du buncher permet d'accumuler les ions au niveau des derniers quadrupôles pendant une certaine durée pour ensuite les libérer vers le piège suivant. La transmission de ce premier piège est de l'ordre de 15 % et à la sortie du RFQ le paquet d'ions éjectés possède une émittance inférieure à 10 π mm.mrad [63] et les ions ont une énergie de 60 keV.

Afin de pouvoir injecter les ions dans le piège suivant, on les fait passer par une cavité pulsée dès leur sortie du RFQ. C'est à partir de la tension HV PulseDown qu'on contrôle le ralentissement des ions. Ainsi, l'énergie des ions avant l'injection dans le premier piège de Penning sera d'environ 3 kV.



FIGURE 5.8 – Photo de la cage contenant le piège de refroidissement et l'électronique associée. Le détail du bas montre le RFQ seul

5.2.2 Elimination des contaminants

A la sortie de la cavité pulsée, les ions quittent le plan horizontal de la ligne à l'aide du "90° Bender" et se dirigent verticalement vers le piège suivant : un piège de Penning avec des électrodes cylindriques (ou "cooler trap" voir figure 5.5 et 5.9). L'optimisation de l'optique de guidage lié au passage du plan horizontal au plan vertical est très importante pour l'injection des ions dans le cooler trap.

Le détail de la figure 5.9 montre les 13 électrodes qui composent le piège et qui créent un puits de potentiel axial pour capturer efficacement les ions. La surface des électrodes (notamment au centre) a été soigneusement conçue pour engendrer un potentiel quadrupolaire sur un grand volume. Ce piège de Penning permet de refroidir (en utilisant de l'hélium [64]), accumuler et trier en masse les ions. Le champ magnétique utilisé est de 4,7 T. Lorsque les ions sont piégés, une excitation magnétron dipolaire ω_{-} est appliquée afin d'augmenter le rayon magnétron ρ_{-} de tous les ions (voir section 2.1) et son amplitude est choisie de façon à s'assurer qu'à la fin de l'excitation le rayon des ions piégés soit plus grand que le rayon d'ouverture du piège (soit plus de 4 mm).



FIGURE 5.9 – Photo du cryostat où se trouve le piège de Penning cylindrique (on peut le voir en détail à gauche)

Pour éjecter les ions souhaités du piège, il faudra donc les recentrer sélectivement le long de la direction axiale. Par ailleurs le gaz tampon augmente aussi le rayon magnétron des ions. Alors pour diminuer l'énergie cinétique des mouvements propres des ions tout en les alignant sur l'axe du piège, on convertit le mouvement magnétron en mouvement cyclotron (en appliquant une excitation quadrupolaire ω_c). Comme ω_c dépend de la masse des ions piégés, une fréquence RF donnée permet de centrer uniquement les ions souhaités. Selon la durée de l'excitation RF, le pouvoir de résolution peut atteindre jusqu'à 10⁵ (pour une excitation durant 1 seconde) permettant ainsi d'effectuer une sélection isobarique. Il est également possible d'utiliser l'excitation dipolaire ω_+ pour éliminer les contaminants qui peuvent encore subsister.

Lors de la campagne de mesure de 2008, une séparation isobarique (A=209) utilisant le cooler trap a été effectué [65]. Le scan en fréquence de cette masse (cooling resonance) avait montré que le faisceau provenant d'ISOLDE (créé à partir d'une cible UC_x couplée à une ligne de transfert en quartz) était constitué de nombreux éléments : Rn, At, Po et Pb. On peut voir ce résultat sur la figure 5.10 ainsi que les abondances relatives entre les différents isobares (le nombre de coups observés n'est pas une moyenne mais une accumulation). Le pouvoir de résolution théorique pour séparer ces différents isobares est résumé dans la table 5.1.

$R_{Rn/Pb}$	25 729
$R_{Rn/Po}$	30 130
$R_{At/Pb}$	44 899
$R_{At/Po}$	$60\ 259$
$R_{Pb/Po}$	176 139

TABLE 5.1 – Pouvoir de résolution théorique pour trier les isobares A= 209

C'est le temps d'excitation de refroidissement (cooling time) qui va permettre d'atteindre un pouvoir de résolution suffisant pour séparer les contaminants et ainsi n'envoyer vers le piège de mesure que les ions d'intérêt.

5.2.3 La mesure de masse

Le nuage d'ions provenant du cooler trap arrive centré sur l'axe du dernier piège de Penning (ou piège de précision voir figure 5.5 et 5.11) avec une longueur d'impulsion



FIGURE 5.10 – Figure d'une "cooling resonance" pour A=209. La courbe d'ajustement a été obtenue à partir d'une fonction composée de quatre gaussiennes de même largeur. Les fréquences des pics sont calculées à partir de la fréquence de résonance de l'ion de référence $^{133}Cs^+$

d'environ 1 μ s. Ce piège à trois dimensions possède des électrodes à surface hyperbolique. Le champ magnétique utilisé est de 5,9 T et la pression à l'intérieur du piège est de 10⁻⁹ mbar. Les ions piégés ont un rayon cyclotron ρ_+ quasiment nul.

On applique une excitation dipolaire magnétron aux ions piégés afin d'augmenter leur ρ_{-} (proche de 2 mm au départ [66]) à une valeur bien précise. On peut remarquer que cette étape à été simplifiée dans les nouveaux pièges de Penning (MSU, TITAN), en injectant les ions directement aux coordonnées adéquates à l'aide d'une lentille de déflection [67], permettant ainsi d'économiser du temps de préparation et donc de mesurer des noyaux de temps de demi-vie plus court. Ensuite, on convertit le mouvement magnétron en mouvement cyclotron en appliquant une excitation RF quadrupolaire ω_{RF} . A la résonance $\omega_{RF} = \omega_c$, on aura ainsi uniquement un mouvement cyclotron et comme $\omega_+ \gg \omega_-$ l'énergie radiale est maximale.

Si des contaminants sont toujours présents à la sortie du cooler trap, on peut effectuer un dernier tri dans le piège de précision juste avant d'appliquer ω_{RF} . On applique une excitation dipolaire à la fréquence ω_+ et comme $\omega_c = \omega_+ + \omega_-$, la fréquence cyclotron des contaminants va augmenter permettant de les expulser radialement du piège, en choisissant la bonne amplitude d'excitation. Pour une durée d'excitation ω_+ d'une seconde, le pouvoir de résolution atteint est de 10⁶.

Finalement, les ions sont éjectés vers un MCP. Grâce à ce détecteur on va mesurer le temps de vol des ions. Durant le vol des ions, le fort gradient magnétique entre le piège et le détecteur crée une force sur le moment magnétique orbital des ions entraînant la conversion du mouvement radial vers un mouvement axial. Par conséquent quand l'énergie radiale E_{rad} est maximale (lorsque la conversion du mouvement magnétron en mouvement cyclotron l'est aussi ($\omega_{RF} = \omega_c$)), le temps de vol est minimal. Le calcul de ce temps est donnée par [68] :

$$TOF(\omega_q) = \int_0^{Z_{dtecteur}} \sqrt{\frac{m}{2(E_0 - eV(z) - E_{rad}(\omega_q)B(z)/B_0}} dz$$
(5.2.1)

avec E_0 l'énergie axiale de l'ion, V(z) la tension appliquée sur les électrodes, B(z) l'amplitude du champ magnétique le long de l'axe radial et B_0 la valeur du champ magnétique dans la zone de piégeage. En balayant le temps de vol en fonction de la fréquence ω_{RF} , on obtient le spectre de résonance de la figure 5.11 (à droite). Pour un spectre en temps de vol donné, la relation entre la masse de l'ion M_i , sa charge e et la fréquence d'excitation quadrupolaire RF est :

$$\omega_q = e \frac{1}{2\pi} \frac{B}{M_i} \tag{5.2.2}$$

Par conséquent, il est nécessaire de connaître la valeur du champ magnétique pour déterminer la masse de l'ion. La précision sur la masse va donc également dépendre de celle de la mesure du champ. Afin de déterminer B, on va mesurer la fréquence cyclotron $\omega_{c,ref}$ d'une masse de référence connue M_{ref} (fournie par la source d'ions de référence) avant et après la mesure de l'ion souhaité. Alors la masse atomique de l'élément mesuré sera calculée par la relation (en admettant que tous les ions ont la même charge +e):

$$M = \frac{\omega_{c,ref}}{\omega_c} (M_{ref} - M_e) + M_e \tag{5.2.3}$$

où M_e est la masse de l'électron. Donc l'erreur sur la masse à mesurer va aussi dépendre de celle de la masse de référence. Par ailleurs, pour minimiser les erreurs systématiques possibles, il est nécessaire d'avoir une masse de référence la plus proche possible de la masse à mesurer. Ainsi, il est parfois nécessaire d'utiliser une masse de référence stable produite par ISOLDE car elle est plus proche qu'une des masses alcalines produites par la source d'ions de référence d'ISOLTRAP. Dans ce cas, la précision sur la masse de référence peut être insuffisante. Afin de produire une masse de référence très bien déterminée et de disposer d'une grande gamme de masses, une source d'ions produisant des agrégats de ${}^{12}C$ $(C_1, C_2, C_3, C_4, \text{ etc, dont la masse est proportionnelle à la masse standard : <math>M_{12C}/12)$ a été développée [63] et continue a être étudiée (voir figure 5.14).



FIGURE 5.11 – La photo à gauche montre le sommet de l'expérience ISOLTRAP : le piège de précision. A droite on peut voir le spectre de résonance en temps de vol pour le radon 229 (avec un temps d'excitation de 1,2 s)

Dans la section 5.2.2 nous avons abordé l'exemple d'un scan en fréquence pour A=209 ("cooling résonance" de la figure 5.10). La figure 5.12 illustre la séparation isobarique pour A = 209. On peut voir sur cette image le temps de vol des résonances (ToF resonance) des ions ayant été envoyé vers le piège de précision (le temps d'excitation dans ce piège

était de 200 ms) après leur passage par le cooler trap. La courbe a) montre le cas où le temps d'excitation de refroidissement dans le cooler trap était de 100 ms, donc tous les contaminants se sont retrouvés dans le piège suivant. Les courbes b) à d) ont été obtenues en utilisant un temps d'excitation de refroidissement égal à 1 s et une fréquence d'excitation centrée autour du ^{209}Rn , ^{209}At ou ^{209}Pb . Ainsi, le pouvoir de résolution était de 70 000 pour les courbes b) à d). Par conséquent il est normal de constater que le radon et l'astate sont parfaitement isolés alors que le plomb et le polonium ne le sont pas. Cependant, il est par exemple possible de séparer ces deux derniers éléments en travaillant avec un temps d'excitation de refroidissement de 1,2 ou 2 secondes (habituellement utilisé). Cette mesure avait été effectuée dans le but de déterminer si le thallium 209 était présent dans le faisceau produit par ISOLDE. L'absence de résonance entre l'astate et le polonium confirme effectivement son absence dans le faisceau radioactif.



FIGURE 5.12 – Temps de vol des résonances de différents noyaux isobariques : a) sans séparation b), c) et d) après nettoyage avec le piège de Penning cylindrique [65]

En conclusion, ISOLTRAP peut atteindre un pouvoir de résolution suffisant pour écarter les contaminants isobariques qui composent les faisceaux radioactifs provenant d'ISOLDE. Néanmoins la contrainte est d'augmenter la durée des excitations. Alors si l'ion d'intérêt est entouré de plusieurs éléments isobariques, son temps de demi-vie ne devra pas être en dessous d'une seconde. Par ailleurs, si la quantité d'ions d'intérêt est trop faible par rapport à celle d'un contaminant (ou plusieurs), il sera impossible de les séparer. La mise en place et les amélioration du RFQ ont permis en partie à ISOLTRAP de faire des mesures de masse de précision avec des noyaux de demi-vie en dessous de 100 ms. Il faut alors remarquer que les ions sortant du piège de précision auront été auparavant stoppés trois fois pour être pulsés, refroidis et excités. Ceci a un impact direct sur la transmission globale. Si elle est trop faible cela peut poser problème quand la production des noyaux radioactifs l'est également.



5.3 La campagne de mesure de 2008

FIGURE 5.13 – Détails de la carte des noyaux des nucléides mesurés par ISOLTRAP

Durant cette campagne, 4 expériences ont été programmées IS413, IS473, IS461 et IS463. Nous allons aborder plus en détail les deux dernières expériences. Concernant les deux premières expériences, les masses mesurées ont été ${}^{126,128}Cd$ et ${}^{194}Hg$, ${}^{194}Au$, ${}^{202}Pb$.

L'expérience IS463 avait comme objectif de tester la faisabilité du nouveau dispositif qui va équiper ISOLTRAP : la "Tape Station" pour la spectrométrie nucléaire. Les ions éjectés du piège de précision (voir figure 5.14) sont accélérés autour de 10 keV pour être implantés sur une bande magnétique se trouvant dans une chambre à vide. A l'extérieur, des détecteurs β et γ vont mesurer la décroissance des nucléïdes implantés. Puis au bout d'une durée équivalente à trois fois la demi-vie, on déplace d'un mètre la bande afin de ne pas mesurer la radioactivité du noyau fils. Pour des noyaux de demi-vie plus longue, il est également prévu de faire une nouvelle mesure au bout d'un mètre. Puis une nouvelle implantation a lieu au niveau de la chambre. Les tests ont mis en évidence quelques soucis au niveau du transport de la bande. L'intérêt de ce dispositif est de permettre de distinguer avec certitude si l'ion sortant du piège de précision est isomérique. Les candidats pour ce test étaient le thallium et le mercure au-delà de N=126. Les contaminants isobariques dans cette région n'étaient pas un problème pour ISOLTRAP (voir figure 5.10 et 5.12). Cependant ni le thallium, ni le mercure n'étaient présent. Néanmoins des mesures de masse de haute précision ont été effectués dans la région du plomb 208 ainsi que celle du francium et radium 211 [65]. A titre illustratif, on peut voir sur la figure 5.13 l'ensemble des masses qui ont été mesurées par ISOLTRAP jusqu'à aujourd'hui dans deux régions différentes.

La motivation physique pour l'expérience IS461 était l'étude de la structure nucléaire, plus particulièrement l'interaction moyenne entre le dernier proton et le dernier neutron d'un noyau pair-pair (δV_{pn}^{ee}) et Z pair - N impair (δV_{pn}^{eo}) . Lors de cette expérience les masses des chaînes isotopiques $^{136,138-146}Xe$ [69] et $^{220,223-229}Rn$ [70] furent mesurées. Toutes ces mesures ont utilisé comme masse de référence celle du ^{133}Cs . Pour les radons, le temps d'excitation choisi était de 1,2 s pour toutes les mesures de résonance en temps de vol; le radon 229 avait également été mesuré avec des temps de 100 et 600 ms. L'incertitude relative obtenue sur la masse des radons et xénons est de l'ordre de 10^{-8} (sauf pour le $^{146}Xe : 2 \cdot 10^{-7}$).

Les noyaux ${}^{143-146}Xe$ et ${}^{223-228}Rn$ avaient déjà été observés mais leur masse n'avait jamais été mesurée. En ce qui concerne le ${}^{229}Rn$ (voir figure 5.11), il est le premier noyau radioactif à avoir été découvert par un piège à ions. La première confirmation de la mesure



FIGURE 5.14 – Vue schématique de la disposition de l'ensemble d'appareils utilisés sur l'expérience ISOLTRAP

du radon 229 fut apportée par les mesures de spectroscopie réalisées à ISOLDE qui ont estimé sa demi-vie à $12^{+1,2}_{-1,3}$ s. Les espèces radioactives produites par spallation entre les protons de 1,4 GeV et les atomes de la cible UC_x (uranium-carbone $50g/cm^2$) ont été transportées vers une nouvelle source d'ions très performante à travers le tube de transfert refroidi à l'eau liquide (dans le cas de l'expérience IS463 c'était un tube en quartz). La conception de cette source d'ions à décharge (VADIS : Versatile Arc Discharge Ion Source) par l'équipe d'ISOLDE permet d'ioniser les gaz nobles de façon plus efficace qu'avec les sources d'ions à plasma généralement utilisées à ISOLDE (un ordre de grandeur).

Comme on peut le voir sur la figure 5.13, les nouvelles mesures de masse de haute précision des noyaux de xénon et de radon donnent accès à une information plus précise (et même nouvelle) sur l'énergie de liaison dans deux zones différentes de la carte des noyaux. D'autre part, ces deux chaînes isotopiques se trouvent à environ une dizaine de noyaux de la stabilité. Cet ensemble de nouvelles mesures est donc un bon outil pour tester la prédiction des modèles théoriques actuels.

Chapitre 6

La situation de la prédiction de masses nucléaires

La mesure de masse nucléaire donne accès à l'énergie de liaison et donc aux énergies qui entrent en jeu au sein du noyau. Lors des chapitres précédents, nous avons vu que les expériences, à travers les spectromètres de masse composés de pièges à ions, ont permis et permettront de mesurer des noyaux très exotiques. Néanmoins plus les noyaux seront exotiques et plus les moyens à mettre en place seront importants, lors de la fabrication des faisceaux radioactifs et/ou de la préparation des faisceaux. Il faudra donc attendre encore plusieurs décennies avant de mesurer une grande partie des noyaux manquants. De plus, les noyaux riches en neutrons ou protons proches de la limite de stabilité (drip-line) ne pourront peut-être jamais être observés à cause de leur très faible taux de production. Or les noyaux très riches en neutrons jouent un rôle important dans la nucléosynthèse stellaire pour l'astrophysique. Grâce à eux on peut expliquer la production d'éléments lourds dans notre univers à travers le processus r (capture rapide de neutrons par des noyaux riches en neutrons). En effet, à partir de l'énergie de séparation d'un neutron on peut calculer les taux de capture neutronique et de photo-désintégration. Et grâce à l'énergie de réaction Q_{β} , on peut déterminer la durée de vie ainsi que les barrières de fission [5]. Il est donc nécessaire d'avoir un modèle théorique capable de reproduire les masses des noyaux. D'autres propriétés, comme les schémas de niveaux, sont nécessaires aussi et peuvent être décrites par des modèles microscopiques reposant sur des fonctions d'ondes.

Comme nous le verrons dans la première section de ce chapitre, depuis 1935 les efforts pour calculer les masses se sont appuyés en grande partie sur des approches macroscopiques. Pour comprendre la structure du noyau, il est nécessaire d'avoir une approche plus réaliste capable de prendre en compte l'interaction des nucléons. Bien que les modèles microscopiques n'existent que depuis seulement 30 ans, les résultats obtenus sont très encourageants. La dernière section de ce chapitre est consacrée à la dernière version du modèle microscopique développé à Bruxelles : HFB-17. En confrontant les mesures de masse expérimentales, notamment les dernières chaînes isotopiques obtenues à ISOL-TRAP en 2008, à celles calculées par ce modèle et en utilisant des outils d'interpolation, nous avons cherché à améliorer la convergence entre la théorie et l'expérience.

6.1 Les modèles de masse

Lorsqu'on parle de modèle de masse, on s'intéresse uniquement aux modèles théoriques ayant pour objectif le calcul des masses nucléaires de tous les noyaux liés. Ces modèles ont besoin, à différents niveaux, des valeurs expérimentales pour leurs calculs. La quête finale de ces modèles est la prédiction de toutes les grandeurs en rapport avec le noyau : la masse, ou encore l'énergie de déformation.

On peut classer les modèles existants selon trois types d'approches : phénoménologique, macroscopique-microscopique et microscopique [71]. Ce classement renseigne également sur la complexité des calculs nécessaires pour obtenir des résultats avec ces trois approches. Dans ce chapitre nous allons illustrer les performances de ces modèles à travers la structure nucléaire. Pour cela on va étudier la variation des énergies de séparation de deux neutrons (S_{2n}) puisque nous disposons des nouvelles masses des chaînes isotopiques Z= 54 et Z= 86. Cette énergie correspond à celle nécessaire pour enlever 2 neutrons du noyau, ainsi on n'est pas incommodé par l'énergie d'appariement entre deux nucléons. Elle se définit ainsi :

$$S_{2n} = B(N, Z) - B(N - 2, Z)$$
(6.1.1)

où B(N,Z) est l'énergie du noyau de Z protons et N neutrons. La figure 6.1 montre les lignes S_{2n} des masses évaluées par l'AME2003 (en bleu) pour les isotopes compris entre Z= 20 et Z= 100 ainsi que les nouvelles valeurs pour les chaînes isotopiques Z= 54 et Z= 86 (en vert, les deux premières chaînes à gauche correspondent au cas Z= 30 [72] et Z= 36 [73] mais elle ne seront pas utilisées par la suite). Comme on pouvait s'y attendre, on observe généralement que S_{2n} diminue assez régulièrement au fur et à mesure qu'on ajoute des neutrons dans une chaîne isotopique. Cependant, de très nombreux accidents apparaissent, et leur occurrence est justement le révélateur de changements brutaux dans la structure du noyau. En particulier, ils signent les fermetures de couches pour les nombres "magiques" (N= 28, 50, 82 et 126) au-delà desquels S_{2n} chute brutalement, ou le passage brusque d'une configuration sphérique du noyau vers une configuration déformée, comme par exemple autour de N= 60 (Z entre 37 et 44) ou N= 90 (Z entre 58 et 66).

6.1.1 Approche phénoménologique

Les modèles de masse utilisant cette approche sont plutôt des "formules de masse" puisqu'il s'agit d'approches semi-empiriques. En effet, les masses sont obtenues en extrapolant les valeurs expérimentales donc en ajustant un certain nombre de paramètres libres. La première formule de masse fut proposée dès 1935 par Weizsäcker [74], où le noyau est vu comme une goutte liquide contenant des protons et neutrons s'agitant de façon désordonnée. Cette formule de référence pour toutes les approches macroscopiques a été capable de retrouver un grand nombre de propriétés du noyau. En 1936 la formule semi-empirique de Bethe-Weizsäcker s'écrivait ainsi [75] :

$$B(A,Z) = b_{vol}A - b_s A^{\frac{2}{3}} - b_{coul}Z^2 A^{-\frac{1}{3}} - b_{sym}(A - 2Z)^2 A^{-1} + \delta$$
(6.1.2)

Le terme b_{vol} est le terme de volume qui prend en compte le fait que l'énergie qui lie chacun des nucléons est constante. b_s considère les nucléons proches de la surface : c'est le terme de surface analogue de celui d'une goutte de liquide. La répulsion coulombienne entre les protons est ajoutée à travers le terme $b_{coul} = \frac{3e^2}{5r_0}$. Concernant b_{sym} , c'est le terme de symétrie, il est répulsif et décrit la contribution liée à l'excès de neutrons (il est nul pour N = Z). Le terme d'appariement δ représente l'énergie gagnée par le noyau (A pair) quand le nombre de protons et neutrons est pair ou perdue quand ils sont impairs (il est nul quand A est impair). Le modèle de la goutte liquide a été capable de retrouver de nombreuses énergies des liaisons expérimentales. Néanmoins cette formule ne peut pas



FIGURE 6.1 – Graphe S_{2n} (pour $20 \le Z \le 100$) des masses évaluées par l'AME2003 (traits bleus) et des dernières chaînes isotopiques évaluées par la collaboration ISOLTRAP en 2008 (traits et astérisques verts)

prendre en compte la déformation du noyau puisqu'elle le considère comme une "goutte sphérique", ni la structure en couches du noyau.

Les approches utilisant le modèle de la goutte liquide sont semi-empiriques dans la mesure où l'on utilise à la fois des paramètres calculés théoriquement et des paramètres libres ajustés à partir des données expérimentales. Mais il existe également une méthode complètement empirique, où l'on extrapole les masses à partir des relations locales entre le noyau à calculer et ses voisins les plus proches : c'est la méthode Garvey Kelson [76]. Ces relations ont été établies de manière à avoir une compensation entre les effets principaux. Mais elles supposent donc une propagation de ces effets sans modifications notables. Pour un noyau donné, il existe 2 relations (6.1.3 et 6.1.4) ou (6.1.3 et 6.1.5) qui le lient à 5 masses voisines [77].

$$M(N+2,Z) - M(N,Z-2) + M(N+1,Z-2) - M(N+2,Z-1) + M(N,Z-1) - M(N+1,Z) = 0;$$
(6.1.3)

Si $N \ge Z$, alors on utilise également la relation :

$$M(N+2,Z-2) - M(N,Z) + M(N,Z-1) - M(N+1,Z-2) + M(N+1,Z) - M(N+2,Z-1) = 0;$$
(6.1.4)

Et si N < Z, c'est une autre relation qui est utilisée :

$$M(N-2,Z+2) - M(N,Z) + M(N-1,Z) - M(N-2,Z+1) + M(N,Z+1) - M(N-1,Z+2) = 0;$$
(6.1.5)

Chaque équation permet d'obtenir 6 combinaisons différentes (voir figure 6.2). L'équation (6.1.3) qui peut se réecrire selon : M(N,Z)=M(N-2,Z-2)-M(N-1,Z-2)+M(N,Z-1)-M(N-2,Z-2) 2,Z-1)+M(N-1,Z), a comme combinaisons :

$$\begin{split} &M(N,Z) = M(N-2,Z-2) - M(N-1,Z-2) + M(N,Z-1) - M(N-2,Z-1) + M(N-1,Z) \\ &M(N,Z) = M(N+2,Z+2) + M(N+1,Z) - M(N+2,Z+1) + M(N,Z+1) - M(N+1,Z+2) \\ &M(N,Z) = -M(N+1,Z+2) + M(N-1,Z) + M(N+1,Z+1) - M(N-1,Z+1) + M(N,Z+2) \\ &M(N,Z) = M(N,Z+1) - M(N-2,Z-1) + M(N-1,Z-1) + M(N-2,Z) - M(N-1,Z+1) \\ &M(N,Z) = -M(N+2,Z+1) + M(N,Z-1) - M(N+1,Z-1) + M(N+2,Z) + M(N+1,Z+1) \\ &M(N,Z) = M(N+1,Z) - M(N-1,Z-2) + M(N,Z-2) - M(N+1,Z-1) + M(N-1,Z-1) \\ \end{split}$$

Et à partir de l'équation (6.1.4) on obtient :

$$\begin{split} &M(N,Z) = M(N+2,Z-2) + M(N,Z-1) - M(N+1,Z-2) + M(N+1,Z) - M(N+2,Z-1) \\ &M(N,Z) = M(N-2,Z+2) - M(N-2,Z+1) + M(N-1,Z) - M(N-1,Z+2) + M(N,Z+1) \\ &M(N,Z) = -M(N+2,Z-1) + M(N,Z+1) + M(N+1,Z-1) - M(N+1,Z+1) + M(N+2,Z) \\ &M(N,Z) = M(N+1,Z) - M(N-1,Z+2) + M(N-1,Z+1) + M(N,Z+2) - M(N+1,Z+1) \\ &M(N,Z) = -M(N+1,Z-2) + M(N-1,Z) - M(N-1,Z-1) + M(N,Z-2) + M(N+1,Z-1) \\ &M(N,Z) = M(N,Z-1) - M(N-2,Z+1) + M(N-2,Z) - M(N-1,Z-1) + M(N-1,Z+1) \end{split}$$

Finalement, l'équation (6.1.5) donne :

$$\begin{split} &M(N,Z) = M(N-2,Z+2) + M(N-1,Z) - M(N-2,Z+1) + M(N,Z+1) - M(N-1,Z+2) \\ &M(N,Z) = M(N+2,Z-2) - M(N+1,Z-2) + M(N,Z-1) - M(N+2,Z-1) + M(N+1,Z) \\ &M(N,Z) = -M(N-1,Z+2) + M(N+1,Z) + M(N-1,Z+1) - M(N+1,Z+1) + M(N,Z+2) \\ &M(N,Z) = M(N,Z+1) - M(N+2,Z-1) + M(N+1,Z-1) + M(N+2,Z) - M(N+1,Z+1) \\ &M(N,Z) = -M(N-2,Z+1) + M(N,Z-1) - M(N-1,Z-1) + M(N-2,Z) + M(N-1,Z+1) \\ &M(N,Z) = M(N-1,Z) - M(N+1,Z-2) + M(N,Z-2) - M(N-1,Z-1) + M(N+1,Z-1) \\ \end{split}$$

Donc, une masse peut être calculée au maximum par 12 relations différentes. La méthode Garvey Kelson génère la nouvelle masse d'un noyau (N,Z) à partir de la moyenne des masses calculées.



FIGURE 6.2 – Vue schématique des noyaux voisins utilisés avec les relations de Garvey Kelson selon une combinaison

Nous avons choisi deux exemples d'approche phénoménologique pour notre étude : celle proposée par Jänecke et Masson [78] et celle de Spanier et Johansson [79]. Le premier modèle extrapole les masses non mesurées en utilisant les relations de Garvey Kelson et en faisant une distinction entre les masses des noyaux riches en neutrons et en protons pour réduire les erreurs systématiques. Au total, environ 5600 masses ont été calculées. Le deuxième exemple s'appuie sur la formule de Bethe-Weizsäcker à laquelle on ajoute des corrections du modèle en couche (une expression analytique prenant aussi en compte la déformation du noyau) et d'autres paramètres libres qui sont ajustés en fonction des données expérimentales.

6.1.2 Approche macroscopique-microscopique

Les modèles semi-empiriques ne peuvent pas interpréter tous les résultats expérimentaux car ils sont incomplets au niveau de leur approche physique. Il existe deux images célèbres du noyau :

- le modèle de la goutte liquide qui considère l'ensemble des nucléons du noyau de façon collective : ils s'agitent de façon désordonnée.
- Le modèle en couche où chaque nucléon du noyau est considéré individuellement : les neutrons et les protons sont rangés séparément dans des couches correspondant à des énergies différentes, c'est une approche similaire à celles des électrons dans l'atome (orbitales électroniques).

On doit le modèle en couches à Maria Goeppert-Mayer en 1949 [80], [81] (prix Nobel en 1963). Il attribue à chaque neutron et proton du noyau trois nombres quantiques : n(principal), l (secondaire) et j (= l + s associé au moment cinétique total du nucléon). Ainsi les nucléons vont se retrouver dans différents niveaux d'énergie (couches). Le modèle en couche a mis en évidence l'existence des nombres magiques 2, 8, 20, 28, 50, 82, 126 (c'est le nombre de neutrons et/ou protons du noyau) qui représentent le remplissage complet du niveau de même nombre quantique principal. On peut observer ces changements de couche expérimentalement en analysant les graphes S_{2n} (figure 6.1). C'est en 1934 que K. Guggenheimer constata, à partir des mesures dont il disposait, que les noyaux stables ayant 50 et 82 neutrons ou protons étaient plus nombreux, il conclut que ces nombres devaient sans doute rendre les noyaux plus stables. Il n'y avait à son époque pas encore assez de données expérimentales et par ailleurs le seul modèle théorique était celui de la goutte liquide qui est incapable de reproduire les nombres magiques.

Cependant, on ne peut pas considérer les nucléons individuellement pour tous les états excités, comme par exemple lors des désintégrations radioactives ou des chocs avec des particules rapides. Et on ne peut pas expliquer la structure du noyau uniquement en étudiant individuellement les nucléons dans des structures quantiques. Notamment pour expliquer la disparition (pour N= 20, $^{32}_{12}$ Mg) ou l'apparition (pour N= 40, $^{68}_{28}$ Ni) de nouveaux nombres magiques¹.

Durant de nombreuses années le modèle FRDM (Finite-Range Droplet model), proposé par P. Möller et ses collaborateurs [83], a été la structure de référence pour utiliser à la fois le modèle de la goutte liquide et celui en couche. Pour faire cohabiter ces deux aspects de la structure nucléaire cette approche macroscopique-microscopique introduit une correction microscopique à l'expression de l'équation généralisée de la goutte liquide (réalisé dans les années 70). Il prend en compte des corrections du modèle en couche et un terme BCS (Bardeen-Cooper-Schrieffer) pour les corrélations d'appariement. Par ailleurs, il insère le terme de Wigner (introduit par Myers et Swiatecki en 1966) car même avec les corrections d'appariement l'énergie de liaison des noyaux, dont le nombre de protons et neutrons sont identiques, est sous-estimée.

1. Bien que cette thèse n'aborde pas ce sujet, la modification des nombres magiques est peut-être la plus grande question en structure nucléaire [82].

Un autre modèle macroscopique-microscopique est celui proposé par Koura et ses collaborateurs [84] dont la dernière table de masse date de 2005 [85]. Il est composé de trois termes : les deux premiers ("gross term" et "even-odd term") décrivent la tendance générale de la masse en fonction de N et Z et le dernier (directement lié aux énergies de couche : "shell term"), montre les écarts entre les masses mesurées et la tendance décrite par les deux premiers termes. Ce dernier terme est obtenu en utilisant un potentiel à symétrie sphérique et en admettant que les noyaux déformés sont une superposition de noyaux sphériques (approche microscopique).

Une autre approche globale est celle proposée par Duflo-Zuker [86]. Le point de départ est l'utilisation d'un Hamiltonien effectif (voir approche microscopique) pouvant être séparé en une composante monopolaire et une composante multipolaire. La première sert de point de départ pour le calcul Hartree-Fock et la deuxième agit comme une interaction résiduelle qui permet d'avoir accès aux corrélations (appariement, terme de Wigner). Ce modèle aboutit à une formule à 28 paramètres dont plusieurs sont ajustés aux valeurs des tables de masses expérimentales. Il est incapable de prendre en compte l'énergie de rotation des noyaux.

Cependant seule une approche complètement microscopique est capable de concilier les deux conceptions de la structure du noyau. Ce type de modèle a pu s'épanouir grâce aux progrès assez récent de l'informatique dans le domaine du calcul. Par ailleurs, d'autres découvertes ont bouleversé notre vision de la structure du noyau. Notamment celle des noyaux à halo, dont le premier (le ¹¹Li) fut découvert par Isao Tanihata[87]. Elle révèle que les nucléons qui composent le noyau n'interagissent pas seulement deux à deux ou encore de façon individuelle et structurée selon des niveaux d'énergies mais qu'ils forment également des agrégats structurés faisant intervenir des forces à 3 corps. En plus du ¹¹Li qui est composé d'un noyau ⁹Li et de 2 neutrons à une certaine distance de celui-ci [88]; il y a les exemples du ${}^{8}_{2}$ He qui serait composé d'un noyau de ${}^{4}_{2}$ He et 4 neutrons [89] et du ${}^{4}_{2}$ Be qui serait formé de deux noyaux de ${}^{6}_{2}$ He eux mêmes étant constitués de noyaux de ${}^{4}_{2}$ He avec deux neutrons en halo [90].

Ainsi, les exigences sont considérables pour les nouveaux modèles de masse étant donné qu'ils doivent reproduire les résultats que nous avons expliqués avec les deux images du noyau depuis plus de 50 ans et à la fois intégrer nos nouvelles découvertes sur la structure du noyau.

6.1.3 Approche microscopique

En toute rigueur, le noyau est un système à N corps puisque le comportement de chaque nucléon influence tout les autres. Comme nous l'avons vu, pour résoudre ce problème il faut le simplifier en considérant que tous les nucléons subissent un même potentiel moyen et qu'ils occupent un état donné indépendamment des autres en respectant le principe de Pauli. Une autre méthode de champ moyen consiste à générer le potentiel à partir de l'interaction nucléon-nucléon. Elle permet de mieux définir le potentiel et les états individuels. On parle d'approche microscopique car elle se base sur la solution de l'équation non-relativiste de Schrödinger :

$$H\Psi = E\Psi \tag{6.1.6}$$

en utilisant des forces spécifiques entre les nucléons tout en gardant l'aspect fonction d'onde. Le formalisme du champ moyen permet de construire l'opérateur d'un nucléon i indépendant, contenant l'ensemble des interactions entre i et tous les autres nucléons

du noyau, à partir du potentiel d'interaction entre les nucléons. La forme générale de l'hamiltonien est la suivante :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2M} \sum \nabla_i^2 + \sum_{i>j} V_{ij} + \sum_{i>j>k} V_{ijk}$$
(6.1.7)

où V_{ij} et V_{ijk} sont les potentiels représentant, respectivement, l'interaction entre deux nucléons N-N ou trois nucléons N-N-N. Il est difficile de résoudre l'équation de Schrödinger par diagonalisation matricielle à partir de ces potentiels car dès l'interaction N-N la force de répulsion est déjà très grande sur une échelle très courte.

Pour trouver les solutions, on va employer la théorie Hartree-Fock qui permet d'exprimer d'une autre manière le champ moyen. On introduit une fonction d'onde qui s'écrit comme un déterminant de Slater : $\Phi = \det \{\phi_i(x_i)\}$ qui est le produit antisymétrique des fonctions d'ondes individuelles $\phi_i(x_i)$. Il n'est pas possible de retrouver exactement la valeur de Ψ à partir de Φ (peu importe le choix de $\phi_i(x_i)$) et par ailleurs la valeur $< \Phi \mid H \mid \Phi >$ est plus grande que E (équation 6.1.6). Ainsi il est nécessaire de remplacer l'hamiltonien H par un hamiltonien effectif H^{eff} si l'on souhaite, à partir de la méthode Hartree-Fock, approximer de manière raisonnable l'énergie exacte E. Ce nouvel hamiltonien s'écrit :

$$H^{eff} = -\frac{\hbar^2}{2M} \sum \nabla_i^2 + \sum_{i>j} V_{ij}^{eff}$$

$$(6.1.8)$$

avec V_{ij}^{eff} représentant le potentiel effectif (en pratique la composante N-N-N est négligée). Il n'est pas égal au vrai potentiel de l'interaction N-N, celui qu'on peut mesurer lors des diffusions entre nucléons. Pour déterminer cette force, il faut comparer la valeur calculée

$$E_{HF} = \langle \Phi \mid H^{eff} \mid \Phi \rangle \tag{6.1.9}$$

aux valeurs mesurées de E. Pour minimizer E_{HF} il faudra modifier les fonctions d'ondes inconnues $\phi_i(x_i)$ qui sont les solutions propres de l'équation de Hartree-Fock :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2M}\sum \nabla_i^2 + U\right)\phi_i = \epsilon_i\phi_i \tag{6.1.10}$$

où U est le champ moyen à un nucléon. Cette équation est résolue en effectuant plusieurs itérations. En ce qui concerne la force effective V_{ij}^{eff} , il est possible d'utiliser la force de Skyrme ou de Gogny. Ces deux forces contiennent un certain nombre de paramètres ajustés en fonction des propriétés connues des noyaux et dépendent fortement de la densité nucléaire où a lieu l'interaction N-N. La force de Skyrme est une force de contact. En remplaçant seulement quelques termes de contact par des gaussiennes on obtient la force de Gogny. Ainsi le terme dépendant de la densité et le terme spin-orbite sont de contact dans les deux forces. La force de Gogny est une force à portée finie. Elle permet de décrire à la fois le champ moyen et l'appariement. Il existe depuis peu un modèle de masse nucléaire basé sur cette force effective [91]. Les modèles de masse utilisant la méthode Hartree-Fock ne décrivent pas les noyaux ayant moins de 8 protons et/ou neutrons car l'approximation d'un champ moyen n'est plus légitime quand le nombre de nucléons est trop faible. Par ailleurs dans ce type de calcul, il faut également intégrer le terme de Wigner.

Le modèle Hartree-Fock-Bogoliubov (HFB) construit par l'équipe de Bruxelles - Montréal [92] s'appuie sur l'approche décrite auparavant. Dans ce modèle la valeur Φ est différente d'un déterminant de Slater, elle est le résultat d'une superposition d'états de paires


FIGURE 6.3 – Graphe S_{2n} à partir de la table de masse de J. Jänecke et P.J. Masson



FIGURE 6.4 – Graphe S_{2n} à partir de la table de masse de L. Spanier et S.A.E. Johansson



FIGURE 6.5 – Graphe S_{2n} à partir de la table de masse du modèle FRDM



FIGURE 6.6 – Graphe S_{2n} à partir de la table de masse de H. Koura et ses collaborateurs



FIGURE 6.7 – Graphe S_{2n} à partir de la table de masse de J. Duflo et A.P. Zuker



FIGURE 6.8 – Graphe S_{2n} à partir de la table de masse HFB-17

de nucléons (selon l'approximation BCS). La dernière version de cette approche est HFB-17 comme nous le verrons dans la section (6.2).

6.1.4 Quelle approche utiliser?

Les figures 6.3 à 6.8 montrent les courbes S_{2n} des différentes approches introduites précédemment. Tout comme dans le graphe S_{2n} issu de l'expérience, on retrouve la chute brutale des lignes au niveau des nombres magiques. Néanmoins, on constate graphiquement deux cas de figures : soit les lignes sont trop lisses, étant presque des équations de droites affines, soit elles sont trop fluctuantes, similaire à du bruit parasite. On peut ainsi rapidement identifier les approches où l'ajustement de paramètres libres est important ; les exemples les plus marquants sont les approches phénoménologiques et le modèle de Duflo-Zuker. A l'inverse, on constate que plus les modèles intègrent des notions microscopiques et plus les fluctuations locales des lignes S_{2n} sont importantes. L'allure des lignes S_{2n} de HFB-17, correcte dans la moyenne, est fortement marquée par des oscillations. Celles-ci sont des artefacts numériques, dues à la difficulté de modéliser correctement les fonctions d'onde dans le modèle.

Le choix d'un modèle va dépendre de sa capacité à prédire les nouvelles masses mesurées. Nous avons à notre disposition les chaînes isotopiques Z= 54 (4 nouvelles masses) et Z= 86 (7 nouvelles masses), soit deux régions différentes dans la carte des noyaux. Si on compare les masses calculées par les modèles pour ces deux chaînes isotopiques (ΔM_{exc}), on obtient les figures 6.10 et 6.11. Dans les deux cas, HFB17 est pris comme référence. On constate que plus on s'éloigne des valeurs connues et plus les prédictions des modèles divergent. Il est par conséquent difficile de voir une tendance pour les masses lointaines.

Pour évaluer la validité d'un modèle par rapport à la table de masse expérimentale, on utilise σ_{rms} ("root mean square" ou erreur rms). Ce paramètre est défini par :

$$\sigma_{rms}^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{i=N} \left(m_{exp}^i - m_{th}^i \right)^2 \tag{6.1.11}$$

N représente le nombre de masses expérimentales. On peut soit calculer le σ_{rms} global c'est-à-dire pour les 2149 masses évaluées par l'AME2003 où simplement le σ_{rms} local donc l'erreur sur une chaîne isotopique au complet ou partielle. La table 6.1 regroupe le calcul des σ_{rms} entre les modèles et l'expérience.

Modèle	σ_{rms} en MeV	σ_{rms} en MeV	σ_{rms} en MeV
	Ref: AME2003	Ref : xénon	Ref : radon
JÄNECKE	$0,\!3267$	1,1466	0,3371
SPANIER	$0,\!8801$	1,5383	1,0520
FRDM	$0,\!6511$	0,3856	$0,\!6797$
KOURA	$0,\!6555$	0,9436	1,7801
DUFLO	0,3600	0,5433	0,5203
HFB-17	$0,\!5811$	0,9908	0,7800

TABLE 6.1 – Comparaison des valeurs σ_{rms} entre différents modèles par rapport aux valeurs de l'AME2003 (2149) et les nouvelles masses du xénon (4) et du radon (7) mesurées par ISOLTRAP

Lorsqu'on regarde la première colonne, on constate que l'erreur globale est faible pour les modèles de Jänecke, Duflo et HFB-17 soit en dessous de 0,6 MeV. Donc HFB-17 fait aussi bien que les deux modèles dont l'extrapolation des masses s'appuie complètement ou en partie sur un ajustement de paramètres en fonction des mesures. Cependant, lorsqu'on compare localement l'erreur rms uniquement pour les nouveaux isotopes du xénon (4) et du radon (7), ce ne sont plus les mêmes modèles qui donnent les meilleurs résultats. Ainsi les modèles de Jänecke, Spanier et Koura donnent des résultats trop éloignés (à l'exception des radons pour le modèle de Jänecke) avec une erreur rms nettement supérieure à la valeur globale. On s'aperçoit que FRDM est plutôt bon dans les deux zones avec des σ_{rms} très voisins du global, mais c'est Duflo qui reste le plus précis. HFB-17 est assez moyen mais reste en dessous de 1 MeV.



FIGURE 6.9 – Graphe S_{2n} (pour $20 \le Z \le 100$) des masses évaluées par l'AME2003 (traits bleus) et des dernières chaînes isotopiques évaluées par la collaboration ISOLTRAP en 2008 (traits et astérisques verts) ainsi que des masses calculées par HFB-17 (en rouge)

La plupart des modèles ajustent un certain nombre de leurs paramètres en fonction des mesures, ils sont donc capables d'extrapoler les masses assez proches des mesures. Quand on compare avec l'ensemble des masses, on s'aperçoit qu'aucun modèle n'a une erreur rms en dessous de 0,3 MeV. Ainsi HFB-17 qui est un modèle entièrement microscopique est capable d'obtenir des résultats comparables (et même supérieurs) aux meilleurs modèles. Lorsqu'on superpose les graphes S_{2n} de HFB17 et de l'expérience on obtient la figure 6.9. Nous avions déjà constaté que les lignes de ce modèle fluctuent et se croisent à certains endroits; la zone la plus marquée est celle du radon. Nous avons donc cherché à les rendre plus lisses afin de voir l'influence de ce bruit sur le σ_{rms} global et local.



FIGURE 6.10 – Ecarts de masse en MeV entre HFB17 pris comme référence et plusieurs modèles et données expérimentales pour la chaîne isotopique des xénons



FIGURE 6.11 – Ecarts de masse en MeV entre HFB17 pris comme référence et plusieurs modèles et données expérimentales pour la chaîne isotopique des radons

6.2 HFB-17 : le protagoniste du futur modèle de référence ?

Les résultats obtenus avec HFB-17 marquent une nouvelle étape dans la progression des tables de masse théoriques. En effet, c'est le premier modèle microscopique à obtenir un σ_{rms} en dessous de 600 keV (par rapport à l'AME2003). Pour arriver à un tel résultat, plusieurs modifications ont eu lieu depuis la première version de ce modèle (HFBCS puis HFB-1). Le travail de lissage des courbes S_{2n} a comme objectif de voir l'influence des fluctuations des lignes sur le σ_{rms} et de permettre de voir dans quelle direction des paramètres plus fondamentaux dans le code HFB devraient être changés.

6.2.1 Bref historique

Ce modèle a été développé pour l'astrophysique nucléaire, plus particulièrement pour la matière riche en neutrons. Depuis la première table de masse, mise au point par l'équipe de Bruxelles - Montréal [92], le code HFB a connu de nombreuses modifications pour modéliser au mieux le comportement des nucléons dans le noyau [93] - [104]. Par exemple, le terme de Wigner utilisé est plus complet depuis HFB-2 [94]. Concernant l'énergie de déformation elle est définie selon [104] :

$$E_{def}^{tot} = E_{def}^{HFB} + E_{coll} \tag{6.2.1}$$

où E_{def}^{HFB} est la déformation calculée à partir du champ moyen et E_{coll} est l'énergie de correction collective définie par [103] :

$$E_{coll} = E_{rot}^{crank} \left[b \tanh(c \mid \beta_2 \mid) + d \mid \beta_2 \mid e^{-l(|\beta_2| - \beta_2^0)^2} \right]$$
(6.2.2)

où E_{rot}^{crank} est la valeur de l'énergie du modèle de cranking -qui considère que le mouvement individuel des nucléons n'est pas perturbé par le mouvement collectif du noyau- pour la correction rotationnelle et β_2 représente la déformation quadrupolaire. Tous les autres paramètres sont libres. Il existe un problème au niveau du calcul des énergies de déformation avec HFB-17. Les noyaux qui viennent juste après un noyau ayant un nombre magique (en Z ou N) sont trop vite déformés. On le constate graphiquement sur la figure 6.8.

6.2.2 Lissage intégral

La figure 6.9 montre clairement que les tendances des lignes S_{2n} ne sont pas correctes. Il y a des lignes qui se croisent et on constate qu'il y a des fluctuations assez importantes localement. L'idée du travail de "lissage" était d'obtenir un graphe S_{2n} plus proche de la réalité (figure 6.1) sans changer la physique du modèle, et tout en améliorant le σ_{rms} . Pour cela, il est possible soit de retoucher directement les masses calculées (méthode Garvey Kelson) soit les énergies de déformation calculées par le modèle (méthode d'interpolation).

Lissage de masses

Comme nous l'avons vu dans la section 6.1.1, on peut recalculer la masse d'un noyau à travers les relations de Garvey Kelson. Nous avons appliqué ces équations à la table de masse de HFB-17. Ainsi la nouvelle valeur d'une masse d'un noyau donnée (N,Z) est la moyenne des masses calculés par les relations de Garvey Kelson (12 au maximum). Il est alors possible soit d'utiliser cette nouvelle masse pour le calcul des masses suivantes (propagation) soit d'utiliser uniquement les masses de la table HFB-17 de départ. Nous avons essayé les deux méthodes, mais c'est la propagation que nous avons choisi car elle

Modèle	σ_{rms} en MeV	σ_{rms} en MeV	σ_{rms} en MeV
	Ref : AME2003	Ref : xénon	Ref : radon
HFB-17	0,5811	0,9909	0,7810
HFB-17 + GK (1 it)	0,5855	0,9705	0,7693
HFB-17 + GK (5 it)	0,6021	0,9911	0,7643
HFB-17 + GK (10 it)	0,5979	0,9996	0,7620
HFB-17 + GK (15 it)	0,5946	0,9987	0,7602
HFB-17 + GK (20 it)	0,5927	0,9985	0,7589
HFB-17 + GK (50 it)	0,5948	0,9928	0,7486

permet d'obtenir les meilleurs résultats puisqu'elle est capable de changer plus rapidement les fluctuations locales.

TABLE 6.2 – comparaison des valeurs σ_{rms} de HFB-17 initial et après lissage par les relations de Garvey Kelson

La table 6.2, regroupe les valeurs de σ_{rms} obtenues avec cette méthode. Par ailleurs, nous avons appliqué cette méthode un certain nombre de fois (jusqu'à 50 itérations). On constate que le σ_{rms} global est légèrement supérieur au σ_{rms} de référence. De plus, les itérations ne font pas converger cette valeur. Si on regarde cette fois le σ_{rms} des nouveaux isotopes, on constate qu'au bout d'une itération il est plus faible dans les deux cas et après plusieurs itérations, il n'y a pas un changement notable.

Sur la figure 6.12 on peut voir le graphe S_{2n} obtenu au bout d'une itération avec la méthode Garvey Kelson. On remarque que les lignes sont plus lisses par rapport au graphe 6.8. Par conséquent le lissage des masses entraîne également un lissage des valeurs S_{2n} . Cependant il y a encore des zones de fluctuations et certaines lignes continuent à se croiser.

La précision n'est pas améliorée, mais les premiers résultats obtenus avec cette méthode montrent néanmoins que l'aspect des lignes S_{2n} de HFB-17 peut être amélioré sans affecter la précision. L'allure générale est déjà comparable à celle des autres modèles vus précédemment.

Lissage des énergies

Par conséquent cette première étape montre qu'il est nécessaire d'aller plus loin dans le lissage pour essayer d'améliorer σ_{rms} . Cette fois nous avons directement touché l'énergie E_{def}^{tot} à partir d'une méthode d'interpolation. Elle consiste à faire une moyenne des énergies voisines du noyau qu'on veut interpoler. Une première tentative a été d'utiliser l'énergie du noyau juste avant et celui juste après selon N ou Z. La meilleure méthode consiste à faire la moyenne entre les énergies des quatre noyaux voisins :

$$E_{def,moy}^{tot}(N,Z) = \frac{E_{def}^{tot}(N,Z+1) + E_{def}^{tot}(N,Z-1) + E_{def}^{tot}(N+1,Z) + E_{def}^{tot}(N-1,Z)}{4}$$
(6.2.3)

Il est également plus judicieux d'utiliser la propagation avec ce calcul. A partir des nouvelles valeurs $E_{def,moy}^{tot}(N,Z)$ on peut recalculer la masse et donc obtenir la valeur du S_{2n} pour chaque chaîne isotopique. Les premiers résultats obtenus étaient assez similaires à ceux de la méthode Garvey Kelson. Nous avons alors décidé d'appliquer la méthode d'interpolation aux composantes de E_{def}^{tot} .

Donc, nous avons interpolé les valeurs E_{coll} et E_{def}^{HFB} indépendamment. Sur les figures 6.13 et 6.14 on peut voir les courbes des deux énergies avant et après leur interpolation (pour Z= 54, 86). On constate qu'au départ ces courbes sont en dents de scie et après



FIGURE 6.12 – Graphe S_{2n} à partir de la table de masse HFB17 après lissage avec la méthode Garvey Kelson (au bout d'une itération)

l'interpolation elles sont quasiment lisses. Sur cette même figure on a l'évolution de la somme de ces deux énergies : E_{def}^{tot} . On remarque bien que le résultat obtenu est également lisse. A partir de cette nouvelle valeur de E_{def}^{tot} on calcule les valeurs des S_{2n} . Le résultat obtenu est sur la figure 6.15. Cette fois les lignes sont encore plus lisses qu'avec la méthode précédente. Si on regarde de plus près l'erreur rms, on obtient les résultats de la table 6.3.

Modèle	σ_{rms} en MeV	σ_{rms} en MeV	σ_{rms} en MeV
	Ref : AME2003	Ref : xénon	Ref : radon
HFB-17	0,5811	0,9909	0,7810
HFB-17 + interpolation	0,5747	0,9502	0,8233

TABLE 6.3 – comparaison des valeurs σ_{rms} de HFB-17 initial et après interpolation

Par rapport à l'AME2003, le σ_{rms} est légèrement plus faible (-6 keV) et par rapport aux nouvelles chaînes isotopiques les xénons sont mieux prédits (-40 keV) alors que les radons le sont moins bien (+42 keV). Si on regarde de plus près la zone qui nous intéresse (figure 6.16), on constate bien cet écart entre les lignes expérimentales et théoriques. Même si l'amélioration n'est pas visible, il est important de souligner que l'interpolation n'a pas détérioré les résultats de départ du modèle. Par ailleurs, on peut voir sur les figures 6.13 et 6.14 l'écart des masses entre HFB-17 et les données expérimentales (AME2003 et ISOLTRAP) avant et après l'interpolation, pour les chaînes isotopiques Z= 54 et 86. La tendance est très similaire dans les deux cas mais on constate que les fluctuations sont nettement plus importantes après interpolation. Donc, en lissant les masses (calculées à partir d'énergies de déformation fluctuantes) avec la méthode de Garvey Kelson, nous avons obtenu des valeurs de S_{2n} moins fluctuantes. Et en lissant directement les énergies de déformation avec la méthode d'interpolation, nous avons obtenu des valeurs de S_{2n} très lisses mais les masses fluctuent plus. Par conséquent, il faut bien agir au niveau des composantes de l'énergie de liaison pour améliorer les valeurs de S_{2n} . Par ailleurs, le lissage de l'énergie de déformation souligne encore plus les défauts dans les calculs d'énergie par HFB-17, par exemple la déformation trop rapide des noyaux après une fermeture de couche.

On peut conclure que les fluctuations au niveau des énergies de déformation ont une répercussion directe sur le graphe S_{2n} . Il est difficile d'améliorer le σ_{rms} à partir des méthodes de lissage car les énergies calculées au départ par le code sont, dans certaines régions, sous ou sur estimées. On peut bien voir sur la figue 6.16 que la tendance des lignes après la fermeture de couche N= 128 reste très au-dessus des valeurs expérimentales. Le travail effectué ici donne des nouvelles pistes pour l'optimisation des paramètres plus fondamentaux dans le code HFB. Afin d'obtenir un graphe S_{2n} comme la figure 6.15 sans passer par les méthodes de lissage, le code peut s'assurer que les énergies de déformation soient moins fluctuantes. Pour le moment les résultats obtenus avec ce code donnent une incertitude relative sur la masse de l'ordre de 10^{-5} . C'est déjà un résultat très intéressant mais insuffisant pour interpréter, par exemple, les résultats observés avec les noyaux à halos où deux ordres de grandeur supplémentaires sont nécessaires. Le travail d'optimisation du σ_{rms} à travers une méthode de lissage (après ou pendant le calcul des énergies) est simplement une première étape pour perfectionner HFB-17 sans avoir à modifier fondamentalement le code.



FIGURE 6.13 – Energies de déformation de HFB-17 et écarts de masse entre HFB17 et l'expérience (AME2003 + ISOLTRAP) avant et après l'interpolation pour Z=54



FIGURE 6.14 – Energies de déformation de HFB-17 et écarts de masse entre HFB17 et l'expérience (AME2003 + ISOLTRAP) avant et après l'interpolation pour Z=86



FIGURE 6.15 – Graphe S_{2n} (pour $20 \leq Z \leq 100$) des masses évaluées par l'AME2003 (traits bleus) et des dernières chaînes isotopiques évaluées par la collaboration ISOLTRAP en 2008 (traits et astérisques verts) ainsi que des masses calculées par HFB-17 après interpolation des composantes de l'énergie de déformation (en rouge)



FIGURE 6.16 – Zoom de la figure 6.15 autour des nouvelles masses du xénon (à gauche) et du radon (à droite) (astérisques verts) mesurées par ISOLTRAP

6.2. HFB-17 : LE PROTAGONISTE DU FUTUR MODÈLE DE RÉFÉRENCE ?

Conclusion

Dans ce mémoire, nous avons abordé l'énergie de liaison, résultante de toutes les interactions qui agissent dans le noyau de l'état le plus stable aux limites de la stabilité nucléaire, à la fois à travers la mesure et les modèles théoriques.

Mais il reste encore beaucoup à découvrir sur la structure nucléaire. Ainsi, la mesure de masse a encore un rôle important à jouer dans les décennies à venir. L'expérience et la théorie sont étroitement liées car les modèles permettent d'indiquer la direction -par exemple, la prédiction des drip-lines neutron et proton- mais ont encore besoin de mesures de référence pour être testés, ce qui nécessite d'aller étudier des noyaux de plus en plus exotiques et donc de continuer le développement de nouveaux spectromètres.

Si on compare les modèles théoriques de la physique nucléaire uniquement en fonction de leur prédiction des masses, on peut constater que le σ_{rms} -erreur rms par rapport à l'AME2003- est la plupart du temps dans la gamme des 600 kev et dans le meilleur des cas 360 keV pour Duflo-Zuker. Cela est encore insuffisant pour prédire les masses loin de la stabilité (comme on a pu le constater avec les graphes en S_{2n}). Néanmoins, il semble bien que la seule façon de comprendre la structure nucléaire et donc l'interaction des nucléons dans le noyau, est d'utiliser et améliorer les modèles microscopiques. En effet, ce genre d'approche est celle qui est la plus riche en physique et par conséquent la plus adaptée à pouvoir évoluer, comme le montre très bien HFB-17. Ainsi, toutes les approches complètement ou en partie macroscopiques qui n'incluent que peu de physique ne peuvent prédire correctement les masses des noyaux très exotiques.

Aujourd'hui, le modèle HFB-17 a essentiellement besoin d'encore plus de mesures de masse pour mieux tester la physique proposée. Ainsi, la théorie et l'expérience sont étroitement liées pour percer les mystères du noyau. Plus concrètement, la physique expérimentale a besoin de travailler avec des faisceaux radioactifs plus exotiques. Les nouvelles installations de physique nucléaire vont dans ce sens, mais comme nous l'avons vu, il faudra tenir compte des contaminants isobariques qui poseront toujours problème car ils seront plus nombreux qu'à l'heure actuelle et ce, en raison des taux de production plus élevés. C'est pour cela que nous participons aux recherches nécessaires pour pousser encore plus loin les performances de nos pièges actuels afin qu'ils puissent mieux purifier les faisceaux radioactifs. Ainsi que nous l'avons vu dans cette thèse, les pièges à ions sont actuellement la meilleure solution pour gérer les faisceaux radioactifs. De plus, en termes d'innovation, ils offrent plus de possibilités. Notre piège de Paul circulaire constitue donc une nouvelle alternative aux contaminations isobariques.

Le projet Cirque d'ions en est encore au début de son développement, mais il montre déjà de nombreux points très encourageants. Tout d'abord, le prototype réalisé à Orsay permet d'anticiper sur l'optimisation future des paramètres mécaniques et de radiofréquence pour d'autres prototypes. En outre, le temps entre l'étape de conception, de réalisation et de tests a été relativement court, ce qui prouve que ce projet peut être mis en place rapidement. C'est un point important car les développements actuels et futurs de notre piège aboutiront à une version plus adaptée aux tests avec des faisceaux radioactifs. Le premier point à souligner sur les résultats obtenus avec ce prototype, est la faible transmission, ce qui est crucial pour continuer à développer chaque mode de fonctionnement du Cirque. Aussi, faut-il optimiser simultanément l'injection et l'éjection des ions. Le second point d'achoppement est l'injection des ions. Avec ce type de piège, et malgré nos très nombreux tests, il a été très compliqué d'améliorer, à faible énergie, la transmission. Pour cette étape, il sera nécessaire de maîtriser totalement tous les paramètres du faisceau d'injection. La configuration finale de notre prototype n'a pas permis d'optimiser notre façon de détecter les ions car aussi bien les multiplicateurs d'électrons que les MCP étaient souvent assez éloignés du point d'éjection. L'optique (Einzels) mise en place a permis d'améliorer la détection des ions éjectés mais pour obtenir une transmission correcte (au moins 10 %), il faut avoir un faisceau mieux défini. On peut également étudier l'injection et l'éjection à partir d'un prototype qui puisse s'assembler quadrupôle par quadrupôle. Dans ce cas, il faudrait avoir un système d'alignement très au point. Les résultats du $\frac{1}{4}$, $\frac{1}{2}$ et du $\frac{3}{4}$ de tour ont montré que le faisceau était bien piégé et trié isotopiquement. Comme les ions ont parcouru moins d'un tour nous n'avons pas pu améliorer la transmission en le refroidissant. Le prototype actuel a encore énormément de choses à nous apprendre, d'autant plus que le programme pour travailler en mode continu ou en mode pulsé est opérationnel. Il est prévu de faire un test avec une nouvelle source (canon à ions) capable de fournir un faisceau d'ions de faible émittance transverse et ayant une énergie bien définie. Avec cette nouvelle source, on devrait pouvoir augmenter la transmission en mode continu et donc faire tourner les ions sur un et plusieurs tours.

En conclusion, les grands axes que cette thèse a abordés sont tous liés. Le développement technique de création ou d'amélioration des pièges à ions est primordial pour l'étude de la structure nucléaire puisqu'ils permettent d'explorer des noyaux de plus en plus exotiques. Par ailleurs, ce développement engendre de nouvelles solutions pour débarrasser les faisceaux radioactifs de leurs contaminants isobariques. Cette condition est nécessaire pour effectuer des mesures de masse de haute précision et accéder aux énergies de liaisons des noyaux également avec une grande précision. La connaissance de ces valeurs est essentielle pour tester et développer de nouveaux modèles théoriques. Les faibles incertitudes relatives sur les masses obtenues expérimentalement exigent plus de précision des résultats théoriques et à l'inverse les vastes prédictions des modèles requièrent des mesures de masse toujours plus loin de la vallée de la stabilité. Enfin, pendant plusieurs décennies encore, seuls les modèles théoriques pourront donner des valeurs aux masses des noyaux très exotiques. Ces prédictions ont des répercussions dans la compréhension de diverses questions en physique comme par exemple la création des noyaux lourds dans notre univers.

Bibliographie

- [1] F.W. Aston, Isotopes and Atomic Weights, Nature 105 (1921) 617-619
- [2] F.W. Aston Mass spectra and Isotopes, livre publié par Edward Arnold, London 1933 (1^{re} édition) et 1942 (2^{de} édition), 276 pages
- [3] C.S. Wu et al., Experimental Test of Parity Conservation in Beta Decay, Phys. Rev. 105 (1957) 1413-1415
- [4] E.M. Burbidge, G.R. Burbidge, W.A. Fowler and F. Hoyle, Synthesis of the Elements in Stars Rev. Mod. Phys. 29 (1957) 547
- [5] M Arnould, S. Goriely and K. Takahashi, The r-process of stellar nucleosynthesis : Astrophysics and nuclear physics achievements and mysteries, Physics Reports 450(2007) 97-213
- [6] K.N. Huang, M. Aoyagi, M.H. Chen, B. Crasemann and H. Mark, Neutral-atom electron binding energies from relaxed-orbital relativistic Hartree-Fock-Slater calculations 2 ≤ Z ≤ 106, At. Data Nucl. Data Tables 18 (1976) 243-291
- [7] F. Everling, L.A. König, J.H.E. Mattauch and A.H. Wapstra, *Relative nuclidic masses*, Nuclear Physics 18 (1960) 529-569
- [8] A.H. Wapstra, G. Audi, C. Thibault, The AME2003 atomic mass evaluation (I). Evaluation of input data, adjustment procedures, Nuclear Physics A 729 (2003) 129-336
- [9] G. Audi, A.H. Wapstra, C. Thibault, The AME2003 atomic mass evaluation (II). Tables, graphs and references, Nuclear Physics A 729 (2003) 337-676
- [10] F. Bosch et al., Experiments with stored exotic nuclei at relativistic energies, International Journal of mass Spectrometry 251(2006) 212-216
- [11] K. Blaum, High-accuracy mass spectrometry with stored ions, Phys. Rep. 425 (2006) 1-78
- [12] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, Franck Laloë, Mécanique quantique tome I et II, Hermann 1973 (page 804).
- [13] K.H. Kingdon A Method for the Neutralization of Electron Space Charge by Positive Ionization at Very Low Gas Pressures Phys. Rev. 21 (1923) 408-418
- [14] W. Paul and H. Steinwedel, A New Mass Spectrometer without a Magnetic Field, Z. Naturforsch 8a (1953), 448-450
- [15] L.S Brown and G. Gabrielse, Precision spectroscopy of a charged particle in an imperfect Penning trap, Phys. Rev. A 25 (1982) 2423-2425
- [16] L.S Brown and G. Gabrielse, Geonium theory : Physics of a single electron or ion in a Penning trap, Rev. Mod. Phys. 58 (1986) 233-311
- [17] G. Gabrielse, the true cyclotron frequency for particles and ions in a Penning trap, Int. J. Mass. Spec. 279 (2009) 107-112

- [18] P.H. Dawson, Quadrupole mass spectrometry and its applications, Elsevier scientific publishing company 1976
- [19] A.J. Reuben et al., Ion trajectories in exactly determined quadrupole fields, Int J. Mass spectrom. Ion Proc. 154 (1996) 43-59
- [20] J.P. Carrico, Dyn. Mass Spectrom., 3 (1972) 1
- [21] R.F. Wuerker, H. Shelton, R.V. Langmuir, *Electrodynamic Containement of Charged Particles*, Journal of Applied Physics 30 (1959) 342
- [22] H. Dehmelt, Radio-frequency spectroscopy of stored ions I : Storage, Advances in Atomic and Molecular Physics 3 (1967) 53-72
- [23] W. Paul, H.P. Reinhard and U. von Zahn, Das elektrische Massenfilter als Massenspektrometer und Isotopentrenner, Z Phys. 152(1958) 143-182
- [24] U. von Zahn, Diplomarbeit, University of Bonn, 1956
- [25] R.B. Moore et al., Production, Transfer and Injection of Charged Particles in Traps and Storage Rings, Physica Scripta T59 (1995) 93-105
- [26] Wayne M. Itano et al., Cooling Methods in Ion Traps, Physica Scripta. T59 (1995) 106-120
- [27] E.L. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Chu, D. E. Pritchard, Trapping of Neutral Sodium Atoms with Radiation Pressure, Phys. Rev. Lett. 59 (1987) 2631-2634
- [28] H. Dehmelt, Radio-frequency spectroscopy of stored ions II : Spectroscopy, Advances in Atomic and Molecular Physics 5 (1969) 109-154
- [29] U. Schramm and D. Habs, Crystalline ion beams, Progress in particle and Nuclear Physics 53 (2004) 583-677
- [30] L.H. Andersen, O. Heber, D. Zajfman, *Physics with electostatic rings and traps*, J. Physics B : At. Mol. Opt. Phys. 37 (2004) R57
- [31] J. Drees and W. Paul, Beschleunigung von Elektronen in einem Plasmabetatron, Zeitschrift f
 ür Physik 180 (1964) 340-361
- [32] D.A. Church, Storage-Ring Ion Trap Derived from the Linear Quadrupole Radio-Frequency Mass Filter, Journal of Applied Physics 40 (1969) 3127-3134
- [33] B.I. Deutch, L.H. Andersen, P. Hvelplund, F.M. Jacobsen, H. Knudsen, M. H. Holzscheiter, M. Charlton and G. Laricchia, *Antihydrogen by Positronium-Antiproton Collisions*, Hyperfine Interactions 44 (1988) 271-286
- [34] X. Feng, M. Rathlev, J. Hangst, H. Knudsen and M.H. Holzscheiter, Designing an RFQ ring trap for antiproton confinement and trapping and laser cooling Mg+ ions, Hyperfine Interactions 100 (1996) 91
- [35] I.Waki, S. Kassner, G. Birkl, and H. Walther, Observation of ordered structures of laser-cooled ions in a quadrupole storage ring, Phys. Rev. Lett. 68 (1992) 2007-2010
- [36] G. Birkl, S. Kassner and H. Walther, Multiple-shell structures of laser-cooled Mg-ions in a quadrupole storage ring, Nature 357 (1992) 310
- [37] T. Schätz, U. Schramm and D. Habs, Crystalline ion beams, Nature 412 (2001) 717-720
- [38] Stephen A. Lammert, Wolfgang R. Plass, Cyril V. Thompson and Marcus B. Wise, Design, optimization and initial performance of a toroidal rf ion trap mass spectrometer, International Journal of Mass Spectrometry 212 (2001) 25-40

- [39] S.P. Moller, ELISA, an electrostatic storage ring for atomic physics, Nucl. Instrum. Methods in Physics Research A 394 (1997) 281
- [40] F.W. Bliek, R. Hoekstra and R. Morgenstern, Ion storage at eV energies in an octopole ring, Hyperfine Interactions 99 (1996) 193
- [41] H.A. Schuessler, E.C. Benck and J. Lassen, A linear combined trap for on-line spectroscopy, Hyperfine Interactions 81(1993)263-273 263
- [42] S.A. Lammert et al., Design, optimization and initial performance of a toroidal rf ion trap mass spectrometer, International Journal of Mass Spectrometry 212 (2001) 25-40
- [43] S.A. Lammert, Alan A. Rockwood, Miao Wang, and Milton L. Lee, *Miniature Toroidal Radio Frequency Ion Trap Mass Analyzer*, J Am Soc Mass Spectrom 2006, 17, 916-922
- [44] W.R. Plaβ et al., Isobar separation by time-of-flight mass spectrometry for low-energy radioactive ion beam facilities, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 266 (2008) 4560-4564
- [45] D. Zajfman, Y. Rudich, I. Sagi, D. Strasser, D. W. Savin, S. Goldberg, M. Rappaport, and O. Heber, *High resolution mass spectrometry using a linear electrostatic ion beam* trap, Int. J. Mass Spectrometry 229 (2003) 55
- [46] G. Bollen and S. Schwarz, Ion traps for radioactive beam manipulation and precision experiments, Nucl. Inst. Meth. B 204 (2003) 466-473
- [47] M. Beck et al., WITCH: a recoil spectrometer for weak interaction and nuclear physics studies Nuc. Inst. Meth A 503 (2003) 567-579
- [48] X. Fléchard et al., Paul Trapping of Radioactive ⁶He⁺ Ions and Direct Observation of their β Decay, Phys. Rev. Lett. 101 (2008) 212504
- [49] M.C. Fujiwara et al., The first cold antihydrogen, Nucl. Inst. Meth. A 532 (2004) 229-236
- [50] G. Gabrielse et al., Antihydrogen Production within a Penning-Ioffe Trap, Phys. Rev. Lett. 100 (2008) 113001
- [51] S. Rainville et al., "Precise Measurements of the Masses of Cs, Rb and Na A New Route to the Fine Structure Constant", Hyperfine Interactions 132 (2001) 177-187
- [52] D. Beck et al., "Space Charge Effects in a Gas Filled Penning Trap", Hyperfine Interactions 132 (2001) 473-478
- [53] Helge Knudsen, "Radio-Frequency quadrupole Race-Track ion traps", internal working paper 1988.
- [54] S. Schwarz, "IonCool-A versatile code to characterize gas-filled ion bunchers and coolers (not only) for nuclear physics applications", Nucl. Instr. Meth. A 566 (2006) 233-243
- [55] Edward A. Mason and Earl W. McDaniel, "Transport properties of ions in gases", John WILEY & SONS 1988.
- [56] M.D. Lunney and R.B. Moore, "Cooling of mass-separated beams using a radiofrequency quadrupole ion guide", International Journal of Mass Spectrometry 190/191 (1999) 153-160
- [57] E. Minaya Ramirez, S. Cabaret and D. Lunney, The ion circus : A novel circular Paul trap to resolve isobaric contamination, Nucl. Instr. Meth. B 266 (2008) 4460-4465
- [58] E. Kugler et al., The new CERN-ISOLDE on-line mass-separator facility at the PS-Booster, Nucl. Instr. Meth. B 70 (1992) 41-49

- [59] E. Kugler The ISOLDE facility at the CERN PS Booster, Nucl. Instr. Meth. B 79 (1993) 322-325
- [60] E. Kugler The ISOLDE facility, Hyperfine Interactions 129 (2000) 23-42
- [61] M. Mukherjee et al., ISOLTRAP : An on-line Penning trap for mass spectrometry on short-lived nuclides, Eur. Phys. J. A 35 (2008) 1-29
- [62] A. Kellerbauer et al., Direct Mass Measurements on the Superallowed Emitter 74Rb and Its Daughter 74Kr : Isospin-Symmetry-Breaking Correction for Standard-Model Tests, Phys. Rev. Lett. 93 072502 (2004)
- [63] Alban Kellerbauer, A Study of the Accuracy of the Penning Trap Mass Spectrometer ISOLTRAP and Standard-Model Tests With Superallowed Beta Decays, Thèse soumise à l'Université de Heidelberg en 2002
- [64] G. Savard et al., A new cooling technique for heavy ions in a Penning trap, Phys. Lett. A 158 (1991) 247-252
- [65] M. Kowalska et al., Preparing a journey to the east of ²⁰⁸Pb with ISOLTRAP : isobaric purification at A = 209 and new masses for ^{211–213}Fr and ²¹¹Ra, Eur. Phys. J. A (2009) DOI 10.1140/epja/i2009-10835-1
- [66] Yazidjian Chabouh, Conception d'un système de détection pour ISOLTRAP et test de l'équation de masse aux multiplets isobariques, Thèse soumise à l'université de Caen/Basse-Normandie en 2006
- [67] R. Ringle et al., A "Lorentz" steerer for ion injection into a Penning trap, Int. J. Mass Spec. 263 (2007) 38-44
- [68] M. König et al., Quadrupole excitation of stored ion motion at the true cyclotron frequency, Int. J. Mass. Spec. ion proc. 142 (1995) 95-116
- [69] D. Neidherr et al., *High-Precision Penning-Trap Mass Measurements of Heavy Xe Isotopes*, en cours de publication
- [70] D. Neidherr et al., Discovery of ²²⁹Rn and the Structure of the Heaviest Rn and Ra Isotopes from Penning-Trap Mass Measurements, Phys. Rev. Lett. 102 (2009) 112501
- [71] D. Lunney, J.M. Pearson and C. Thibault, Recent trends in the determination of nuclear masses Rev. of Mod. Phys. 75(2003) 1021 - 1082
- S. Baruah et al., Mass Measurements beyond the Major r-Process Waiting Point ⁸⁰Zn , Phys. Rev. Lett. 101 (2008) 262501
- [73] P. Delahaye et al., High-accuracy mass measurements of neutron-rich Kr isotopes, Phys. Rev. C 74 (2006) 034331
- [74] C.F. von Weizsäcker, Zur Theorie der Kernmassen, Z. Phys. 96 (1935) 431
- [75] H.A. Bethe and R.F. Bacher, Nuclear Physics A. Stationary States of Nuclei, Review of modern Physics 8 (1936) 82-229
- [76] Gerald T. Garvey and Itzhak Kelson, New nuclidic mass relationship, Phys. Rev. Lett. 16 (1966) 197-200
- [77] J. Barea et al., Garvey Kelson relations and the new nuclear mass tables, Physical Review C 77(2008) 041304(R)
- [78] J. Jänecke and P.J. Masson, Mass predictions from the Garvey Kelson mass relations, Atomic Data and Nuclear Data Tables 39 (1988) 265-271
- [79] L. Spanier and S.A.E. Johansson, A Modified Bethe-Weizsäcker mass formula with deformation and shell corrections and few free parameters, Atomic Data and Nuclear Data Tables 39 (1988) 259-264

- [80] Maria Goeppert Maye Nuclear Configurations in the Spin-Orbit Coupling Model. I. Empirical Evidence, Physical Review 78 (1950) 16-21
- [81] Maria Goeppert Maye Nuclear Configurations in the Spin-Orbit Coupling Model. II. Theoritical Considerations, Physical Review 78 (1950) 22-23
- [82] O. Sorlin and M.-G. Porquet, Nuclear magic numbers : New features far from stability, Progress in Particle and Nuclear Physics 61 (2008) 602-673
- [83] P. Möller et al., Nuclear Ground-State Masses and Deformations, Atomic Data and Nuclear Data Tables, 59 No 2 (1995) 185-381
- [84] Hiroyuki Koura et al., Nuclear mass formula with shell energies calculated by a new method, Nuclear Physics A 674(2000) 47-76
- [85] H. Koura et al., Nuclidic Mass Formula on a Spherical Basis with an Improved Even-Odd Term, Progress of Theoretical Physics 113 (2005) 305-325
- [86] J. Duflo and A.P. Zuker, *Microscopic mass formulas*, Physical Review C 52 (1995) 23-27(R)
- [87] I. Tanihata et al., Measurements of Interaction Cross Sections and Nuclear Radii in the Light p-Shell Region, Phys. Rev. Lett. 55 (1985) 2676-2679
- [88] C. Bachelet et al., New Binding Energy for the Two-Neutron Halo of ¹¹Li, Phys. Rev. Lett. 100 (2008) 182501
- [89] P. Mueller et al., Nuclear Charge Radius of ⁸He, Phys. Rev. Lett. 99 (2007) 252501
- [90] A. Saito et al., Molecular states in neutron-rich beryllium isotopes, Nucl. Phys. A 738 (2004) 337-341
- [91] S. Goriely et al., First Gogny-Hartree-Fock-Bogoliubov Nuclear Mass Model, Phys. Rev. Lett. 102 (2009) 242501
- [92] S.Goriely et al., At last a Hartree-Fock + BCS mass table, Nuclear Physics A 688 (2001) 349-352
- [93] M. Samyn et al., A Hartree-Fock-Bogoliubov mass formula, Nuclear Physics A 700 (2002) 142-156
- [94] S.Goriely et al., Hartree-Fock mass formulas and extrapolation to new mass data, Phys. Rev. C 66, 024326 (2002)
- [95] M. Samyn et al., Nuclear Mass Predictions Within The Skyrme HFB Theory, Nuclear Physics A 718 (2003) 653c-655c
- [96] S.Goriely et al., Further explorations of Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov mass formulas. II. Role of the effective mass, Phys. Rev. C 68 (2003) 054325
- [97] M. Samyn et al., Further explorations of Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov mass formulas. III. Role of particle-number projection, Phys. Rev. C 70 (2004) 044309
- [98] M. Samyn et al., Further explorations of Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov mass formulas. V. Extension to fission barriers Phys. Rev. C 72, 044316 (2005)
- [99] S.Goriely et al., Further explorations of Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov mass formulas. IV : Neutron-matter constraint, Nuclear Physics A 750 (2005) 425-443
- [100] S.Goriely et al., Further explorations of Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov mass formulas; VI: Weakened pairing, Nuclear Physics A 773 (2006) 279-299
- [101] S.Goriely et al., Further explorations of Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov mass formulas. VII. Simultaneous fits to masses and fission barriers, Phys. Rev. C 75, 064312 (2007)

- [102] S. Goriely and J. M. Pearson Further explorations of Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov mass formulas. VIII. Role of Coulomb exchange, Phys. Rev. C 77 (2008) 031301
- [103] N.Chamel et al., Further explorations of Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov mass formulas. IX : Constraint of pairing force to ¹S₀ neutron-matter gap, Nuclear Physics A 812 (2008) 72-98
- [104] S.Goriely et al., Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov Nuclear Mass Formulas : Crossing the 0.6 MeV Accuracy Threshold with Microscopically Deduced Pairing, Phys. Rev. Lett. 102 (2009) 152503

Annexe A

Dessins Techniques du CIRQUE



FIGURE A.1 – Schéma mécanique de l'enceinte



FIGURE A.2 – Schéma mécanique de l'enceinte sur son châssis



FIGURE A.3 – Schéma mécanique du montage utilisé pour le collage des anneaux sur les plateaux de verre



 ${\rm Figure}~{\rm A.4-Sch\acute{e}ma}~m\acute{e}canique~de~l'assemblage~final$



 $\label{eq:Figure A.5-Défauts d'assemblage des électrodes du haut$



FIGURE A.6 – $D\acute{e}fauts~d$ 'assemblage des électrodes du bas

Annexe B

Album photo du Cirque



FIGURE B.1 – Etape de Collage. A gauche : collage des électrodes de masse, à droite : détail du collage des anneaux sur le plateau de verre (montage annexe A figure A.3)



FIGURE B.2 – Etape de Collage selon le montage en annexe A figure A.3. A gauche : positionnement du plateau de verre, à droite : collage prêt pour être mise sous vide



FIGURE B.3 – Etape de Collage. A gauche détail du collage verre - électrodes, à droite installation du montage dans l'enceinte du Cirque pour le pompage



FIGURE B.4 – Début de l'assemblage des anneaux découpés. On peut distinguer sur l'ensemble plateau-anneaux découpés (premier plan), la pièce circulaire qui maintient les électrodes du haut et du bas à trois millimètres verticalement ainsi que le socle plat qui supporte le piège dans l'enceinte



FIGURE B.5 – Détail des anneaux découpés (à droite) et d'une électrode (à gauche) ainsi que les restes de la découpe montrant la forme des électrodes



FIGURE B.6 – Raccordement du Cirque d'ions (à droite) à la ligne du faisceau et au séparateur magnétique (à gauche)



FIGURE B.7 – Photo de l'enceinte avec le socle plat pour supporter le piège, on peut également voir les pièces mécaniques d'alignement (à gauche). Vue du côté et du haut de l'assemblage et câblage complet du piège seul (à droite)



FIGURE B.8 – Photos du Cirque d'ions dans l'enceinte à vide. La photo en bas à droite est une vue à partir de la bride alignée avec le faisceau d'injection(Juillet - Août 2007)



FIGURE B.9 – A gauche : photo générale de l'expérience (juin 2008), à droite : photo de l'intérieur de l'enceinte montrant les modifications au niveau de l'optique et du câblage du piège (en détail le passage étanche pour les câbles) (Décembre 2008)



FIGURE B.10 – Assemblage de la source Penning (à gauche) et détail du doublet utilisé pour les expériences avec la source branchée directement sur l'enceinte du Cirque (à droite)



FIGURE B.11 – Photo générale de l'expérience avec la source Penning sur une bride de l'enceinte du Cirque (Février 2008)

Annexe C

Branchements électroniques



FIGURE C.1 – Partie 1 : vue schématique des branchements électroniques des électrodes du Cirque et des détecteurs



FIGURE C.2 – Partie 2 : vue schématique des branchements électroniques de l'optique de guidage et du mode pulsé