



**HAL**  
open science

**Application de la spectrométrie de masse COINTOF à  
l'étude de la dissociation de petits agrégats d'eau  
protonés par collision sur un atome d'argon :  
développement d'une cible de nano-gouttes de gaz rare**

Victor Buridon

► **To cite this version:**

Victor Buridon. Application de la spectrométrie de masse COINTOF à l'étude de la dissociation de petits agrégats d'eau protonés par collision sur un atome d'argon : développement d'une cible de nano-gouttes de gaz rare. Agrégats Moléculaires et Atomiques [physics.atm-clus]. Université Claude Bernard - Lyon I, 2013. Français. NNT : 2013LYO10262 . tel-01825570

**HAL Id: tel-01825570**

**<https://theses.hal.science/tel-01825570v1>**

Submitted on 28 Jun 2018

**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.

## Thèse

présentée devant

l'Université Claude Bernard Lyon 1

École Doctorale de Physique et d'Astrophysique

pour l'obtention du

DIPLÔME de DOCTORAT  
Spécialité : Physique des Agrégats

(arrêté du 7 août 2006)

par

Victor BURIDON

### **Application de la spectrométrie de masse COINTOF à l'étude de la dissociation de petits agrégats d'eau protonés par collision sur un atome d'argon. Développement d'une cible de nano-gouttes de gaz rare.**

Soutenue le 13 Décembre 2013  
devant la Commission d'Examen

Jury :

M.	G.	Chanfray	Président du jury
M.	H.	Abdoul-Carime	Directeur de thèse
M.	M.	Farizon	co-Directeur de thèse
M.	S.	Ouaskit	Rapporteur
M.	A.	Clouvas	Rapporteur
M.	P.	Moretto-Capelle	Examineur



# UNIVERSITE CLAUDE BERNARD - LYON 1

## Président de l'Université

M. François-Noël GILLY

Vice-président du Conseil d'Administration

M. le Professeur Hamda BEN HADID

Vice-président du Conseil des Etudes et de la Vie Universitaire

M. le Professeur Philippe LALLE

Vice-président du Conseil Scientifique

M. le Professeur Germain GILLET

Secrétaire Général

M. Alain HELLEU

## COMPOSANTES SANTE

Faculté de Médecine Lyon Est – Claude Bernard

Directeur : M. le Professeur J. ETIENNE

Faculté de Médecine et de Maïeutique Lyon Sud – Charles Mérieux

Directeur : Mme. la Professeure C. BURILLON

Directeur : M. le Professeur D. BOURGEOIS

UFR d'Odontologie

Directeur : Mme la Professeure C. VINCIGUERRA.

Institut des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques

Directeur : M. le Professeur Y. MATILLON

Institut des Sciences et Techniques de la Réadaptation

Directeur : M. le Professeur P. FARGE

Département de formation et Centre de Recherche en Biologie Humaine

## COMPOSANTES ET DEPARTEMENTS DE SCIENCES ET TECHNOLOGIE

Faculté des Sciences et Technologies

Directeur : M. le Professeur F. De MARCHI

Département Biologie

Directeur : M. le Professeur F. FLEURY

Département Chimie Biochimie

Directeur : Mme le Professeur H. PARROT

Département GEP

Directeur : M. N. SIAUVE

Département Informatique

Directeur : M. le Professeur S. AKKOUCHE

Département Mathématiques

Directeur : M. le Professeur A. GOLDMAN

Département Mécanique

Directeur : M. le Professeur H. BEN HADID

Département Physique

Directeur : Mme S. FLECK

Département Sciences de la Terre

Directeur : Mme la Professeure I. DANIEL

UFR Sciences et Techniques des Activités Physiques et Sportives

Directeur : M. C. COLLIGNON

Observatoire de Lyon

Directeur : M. B. GUIDERDONI

Polytech Lyon

Directeur : M. P. FOURNIER

Ecole Supérieure de Chimie Physique Electronique

Directeur : M. G. PIGNAULT

Institut Universitaire de Technologie de Lyon 1

Directeur : M. C. VITON

Institut Universitaire de Formation des Maîtres

Directeur : M. A. MOUGNIOTTE

Institut de Science Financière et d'Assurances

Administrateur provisoire : M. N. LEBOISNE



## Remerciements

Je dédie ces pages de mon manuscrit à tous ceux qui m'ont apporté leur soutien et m'ont permis de vivre cette expérience enrichissante dans de bonnes conditions.

Dans un premier temps, je souhaite remercier les membres de ma famille, mon père Jean-Yves et ma mère Marie-Christine pour leur présence et leur réconfort constant, pendant ces trois années de thèse, mes frères David, Pierre-Edouard et Arthur et mes sœurs Eve et Anne-Sophie pour les conseils et les encouragements qu'ils m'ont apportés, en cas de besoin.

Dans un second temps, je souhaite remercier, Messieurs Bernard Ille et Guy Chanfray, directeurs de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon (IPNL) au cours de mon doctorat, de m'avoir accueilli au sein du laboratoire, ainsi que Madame Bernadette Farizon, de m'avoir permis d'intégrer le groupe Interaction Particule Matière (IPM).

De plus, je remercie mon directeur de thèse, Monsieur Hassan Abdoul Carime, et mon co-directeur de thèse, Monsieur Michel Farizon. Leurs remarques avisées m'ont permis, insensiblement, de faire preuve d'autonomie et de m'aiguiller tout au long de mon travail de thèse. Je souhaite également remercier l'ensemble des stagiaires et des doctorants du groupe que j'ai pu côtoyer et avec qui j'ai pris beaucoup de plaisir à apprendre et à travailler. Parmi eux figurent Mario Alcocer, Thibaud Trizna, Ugo Mureddu, Emeric Bergmann, Fabien Leperson, Zaccharie Behel, Guillaume Bouchard, Guillaume Bodinier, Guillaume Coston, Abdul Amadou Ba, Francis Berthias, Khalid El Farkh, Guillaume Bruny, Cécile Teyssier et Stefan Feil.

Par ailleurs, je remercie les membres du personnel technique de l'IPNL, pour leur soutien technique, leur savoir-faire et le plaisir que j'ai eu à travailler en leur compagnie. Parmi eux figurent Messieurs Raphaël Fillol, Rodolphe Della Negra, Thierry Dupasquier, Lionel Germani, Jean Michel Solbes, Georges Verdier et Thierry Alliaume.

Ensuite, je tenais à remercier les membres de mon jury de thèse : Monsieur Guy Chanfray, président du jury, Messieurs Alexandro Clouvas et Said Ouaskit, rapporteurs et Monsieur Patrick Moretto-Capelle, examinateur, pour leurs remarques constructives sur le manuscrit et la présentation orale.

Je voulais également remercier les enseignants, les chercheurs et les enseignants-chercheurs avec qui j'ai effectué mon monitorat : Sonia Fleck, Nathalie Millard-Pinard, Corinne Augier, Clothilde Gaillard, Yves Pison, Nicolas Bererd, Dimitrios Tsimpis et Hélène Vandenbroucke.

Je tenais également à remercier, Monsieur Christophe Dujardin, directeur de l'école doctorale PHAST, pour sa gentillesse, sa disponibilité et son suivi tout au long de ma thèse.

Je ne remercierai jamais assez ma marraine, Sylvie Flores, pour sa gentillesse, son aide, son écoute, ses conseils et son acharnement à mon égard. Tu t'es beaucoup investi et battu pour moi et je t'en suis très sincèrement reconnaissant.

Pour finir, je souhaiterais également remercier les membres de l'institut que j'ai appris à connaître au cours de mes trois années de thèse et avec qui j'ai pris du plaisir à discuter.

Parmi ces personnes, je voudrais d'abord remercier le personnel administratif : Marie Berthier Henriquet, Annick Blainville, Claudie Bogiovanni, Maryte Costa, Monique Croizé, Marie-France De Marinis, Karine Doizon, Genevieve Gateaud, Dominique Girod, Sandra Goncalves, Sandrine Hernandez, Florence Jacmart-Gambut, Katy Narcisse.

Ensuite, je souhaiterais remercier, Anella Naizot, pour sa gentillesse, son écoute, ses conseils. Je voulais aussi adresser mes plus sincères remerciements aux camarades de la machine à café : David Ducimetièrre, Clément Chauvet, Martin Mommey, Alain Rulliere, Jean-Paul Narcisse, Claude Di Ruzza et Hubert Hansen pour les nombreuses discussions conviviales que nous avons eu et qui m'ont souvent permis de me changer les idées.

Par ailleurs, je remercie également Dany Davesne, Karim Bennaceur, Hélène Courtois de m'avoir proposé leur aide sur le plan scientifique à plusieurs reprises et, également, l'ensemble des étudiants et des doctorants que j'ai côtoyé et qui m'ont soutenu tout au long de mon doctorat.





## *Introduction générale*

L'action des rayonnements ionisants, dans les systèmes biomoléculaires, fait l'objet d'un champ de recherche ouvert, tant sur le plan fondamental que sur le plan de l'avancée technologique. Jusqu'à présent, l'effet de l'irradiation par des rayonnements ionisants d'un tissu organique est évalué par la dose associée à l'énergie déposée par unité de masse. Cette dose moyenne, calculée à l'échelle macroscopique, est corrélée à la survie cellulaire sous irradiation, et permet d'estimer la dose associée à la mort de la cellule pour des rayonnements gamma, électrons, protons, ions multichargés de différentes énergies. Le changement d'échelle dans l'interprétation des phénomènes cellulaires associé à l'observation des mécanismes à l'échelle moléculaire rend nécessaire l'étude des mécanismes d'irradiation à l'échelle du nanomètre. C'est dans ce contexte, qu'a été conçu le Dispositif d'Irradiation d'Agrégats Moléculaires (DIAM) de l'Institut de Physique Nucléaire de Lyon (IPNL).

Le dispositif DIAM permet de produire un faisceau intense d'agrégats biomoléculaires, sélectionnés en masse et en vitesse, et accélérés, selon les expériences, entre 2 et 10 keV. Ces agrégats peuvent être mis en interaction soit avec une cible gazeuse (Ar, Ne, He...), soit avec un faisceau de protons dont l'énergie est dans le domaine du pic de Bragg : 20-150 keV. Ces petits agrégats, agrégats d'eau protonés ou agrégats mixtes eau-molécule organique, sont des systèmes modèles permettant des études de référence pour la description de la dose à l'échelle du nanomètre. L'énergie est déposée dans chaque système modèle par une collision unique et cela provoque la dissociation. L'irradiation par les rayonnements ionisant présente une large gamme de dépôt d'énergie à l'échelle moléculaire et une grande variété de canaux de dissociation sont possibles. Cela situe l'enjeu d'une étude statistique à partir de l'observation d'un grand nombre d'événements de dissociation. Les expériences permettent de sonder la structure et les énergies de liaisons des agrégats produits, d'observer leur dynamique et de comprendre les problématiques liées au transfert d'énergie, lors de la collision. La méthode COINTOF (COrrrelated Ions and Neutral fragments Time Of Flight) mise au point très récemment à l'IPNL donne accès à des caractéristiques nouvelles comme la production de fragments neutres mesurée en corrélation avec la production des fragments chargés pour chaque événement de dissociation.

Le principe de la technique d'analyse COINTOF est basé sur la détection sur un même détecteur, des fragments chargés et neutres, issus de la dissociation d'un même agrégat précurseur. Le système d'acquisition associé est constitué de plusieurs instruments de mesures utilisés pour exploiter l'information contenue dans les signaux délivrés par le détecteur. Son objectif est d'enregistrer et d'étiqueter les signaux de détection pour chaque événement de dissociation. L'enregistrement événement par événement est obtenu à partir d'un système de déclenchement adapté. L'ensemble des données collectées par chaque instrument de mesure est traité puis réorganisé événement par événement par l'analyse « off-line ». Ces données sont, ensuite, intégrées dans le format ROOT<sup>®</sup>, adapté pour l'analyse statistique des corrélations, sur un grand nombre d'événements de fragmentation.

Parallèlement à l'observation des corrélations dans la production des fragments neutres et chargés, la mesure de sections efficaces et des rapports de branchement pour les différentes voies de fragmentation observées après irradiation présentent un enjeu pour le développement des modèles théoriques.

Nous montrons dans ce manuscrit que la méthode COINTOF permet aussi la mesure des rapports de branchement ainsi que de la section efficace de dissociation. Les mesures ont été effectuées pour la dissociation induite par collision (CID) -capture électronique exclue- d'agrégats d'eau protonés  $H^+(H_2O)_n$  accélérés à 8keV, le nombre de molécules  $n$  variant de 2 à 7. Une des clés permettant la réalisation de ces mesures quantitatives est la connaissance de l'efficacité de détection. Parallèlement à la mesure de cette efficacité de détection à partir de l'observation d'un canal de dissociation particulier, nous avons développé l'étude de la distribution d'amplitude des signaux de détection associée à une particule unique.

Dans une dernière partie, l'avancement de la construction d'une source de gouttelettes de gaz rare est présenté. Ces gouttelettes doivent constituer une nouvelle cible sur laquelle les agrégats seront déposés avant irradiation.

Ce manuscrit s'articule ainsi autour de six chapitres :

- Le premier chapitre présente la technique de détection COINTOF mise en œuvre dans le dispositif d'irradiation d'agrégats moléculaires (DIAM) ainsi que la caractérisation du système de détection.
- Le second chapitre décrit le système d'acquisition conçu pour exploiter et enregistrer l'information des signaux en sortie du détecteur.
- Le troisième chapitre présente le traitement des données, leur réorganisation et leur intégration au format ROOT®, à travers l'analyse « off-line ».
- Le quatrième chapitre est consacré à quelques applications du dispositif COINTOF à travers des expériences de CID des ions ( $8keV-H^+(H_2O)_{2 \leq n \leq 7}$ ), sur une cible gazeuse d'argon.
- Le cinquième chapitre est consacré à l'analyse des distributions d'amplitudes des signaux de détection d'une particule unique. Nous analyserons ces distributions en fonction de la masse, des vitesses des particules détectées.
- Le sixième chapitre décrit l'étude du dispositif permettant de produire des gouttelettes de gaz rares froides. La problématique concernant la caractérisation de la taille des gouttelettes sera discutée.





# Chapitre 1 : La méthode de détection COINTOF (COrrrelated Ion and Neutral Time Of Flight)

## *Introduction*

Le dispositif d'irradiation d'agrégats moléculaires (DIAM) permet d'étudier les mécanismes de dissociation (CID) ou de multi fragmentation [1, 2], produit par collision, de nanosystèmes de tailles données sélectionnés en masse et en vitesse, en ayant recours à une technique expérimentale que nous avons développée : la méthode de détection COINTOF (COrrrelated Ion and Neutral Time Of Flight) [3, 4, 5]. Cette méthode donne accès aux différents processus de dissociation ou de multi-fragmentation possibles et permet d'évaluer ceux qui sont majoritaires. De cette manière, elle permet de comprendre comment s'effectue le dépôt d'énergie sur des nanosystèmes biologiques et, ainsi, d'étudier leurs propriétés physico-chimiques.

Ce chapitre se décompose en quatre parties. La première explique le principe de la méthode de détection COINTOF. La seconde insiste sur la manière dont sont produits les ions précurseurs sélectionnés en masse et en énergie. La troisième partie sera consacrée à la description du système de détection COINTOF ainsi qu'à ses différentes fonctionnalités. Dans la dernière partie, nous présenterons deux exemples de mesures. Le premier exemple montrera comment est obtenu spectre de masse des fragments chargés, à travers la méthode COINTOF. Le deuxième portera sur la calibration d'un des éléments de déviation du temps de vol linéaire : le pusher.

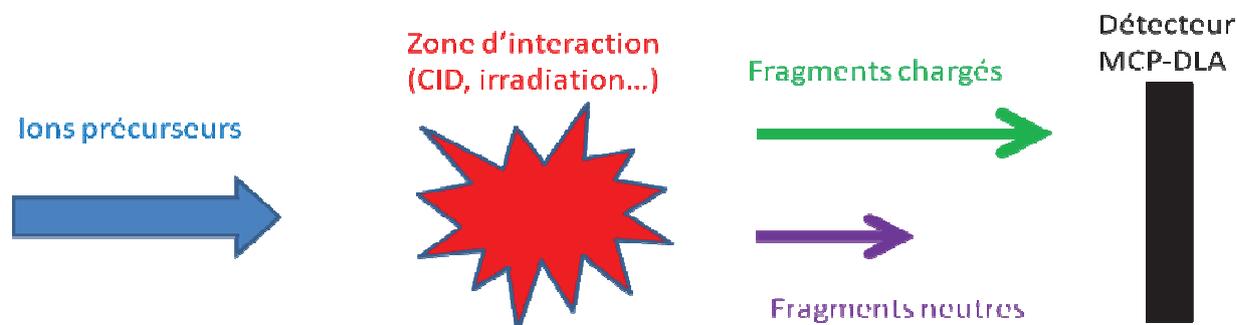
## **1. Principe de la méthode de détection COINTOF**

Nous travaillons sur un dispositif MS/MS capable de détecter, directement, au moyen d'un seul détecteur, les fragments chargés et neutres produits, lors de la dissociation d'un ion précurseur sélectionné en masse et en vitesse.

Le principe de cette méthode de détection par temps de vol appelée COINTOF (COrrrelated Ion and Neutral Time Of Flight) est schématisé, sur la Figure 1.1. Son fonctionnement repose, sur les principes suivants :

Un ion précurseur, sélectionné en masse et en vitesse, entre en collision avec un atome cible, en condition de collision unique. A la suite de cette collision, il se dissocie et produit plusieurs fragments. Parmi eux, se trouvent des fragments chargés et des fragments neutres. Au moment où la dissociation se produit, chaque fragment a la même vitesse que l'ion précurseur. Toutefois, les fragments chargés sont accélérés et arrivent sur le détecteur en premier. Leur instant d'arrivée dépend de leur masse. Les fragments neutres, quant à eux sont toujours à la même vitesse et leur temps de vol est connu. Par conséquent, leur instant d'arrivée sur le détecteur reste le même et est utilisé comme référence pour l'identification des fragments chargés.

A travers cette technique, nous sommes également capables de détecter les particules neutres. Le système de détection utilisé est composé de deux galettes à micro-canaux (MCP) [6] et d'une anode à fils (DLA) [7]. Pour qu'un fragment neutre puisse être détecté via ce système, son énergie cinétique doit être suffisante. C'est pourquoi, il est nécessaire que notre dispositif expérimental accélère les ions précurseurs en amont de la zone d'interaction.



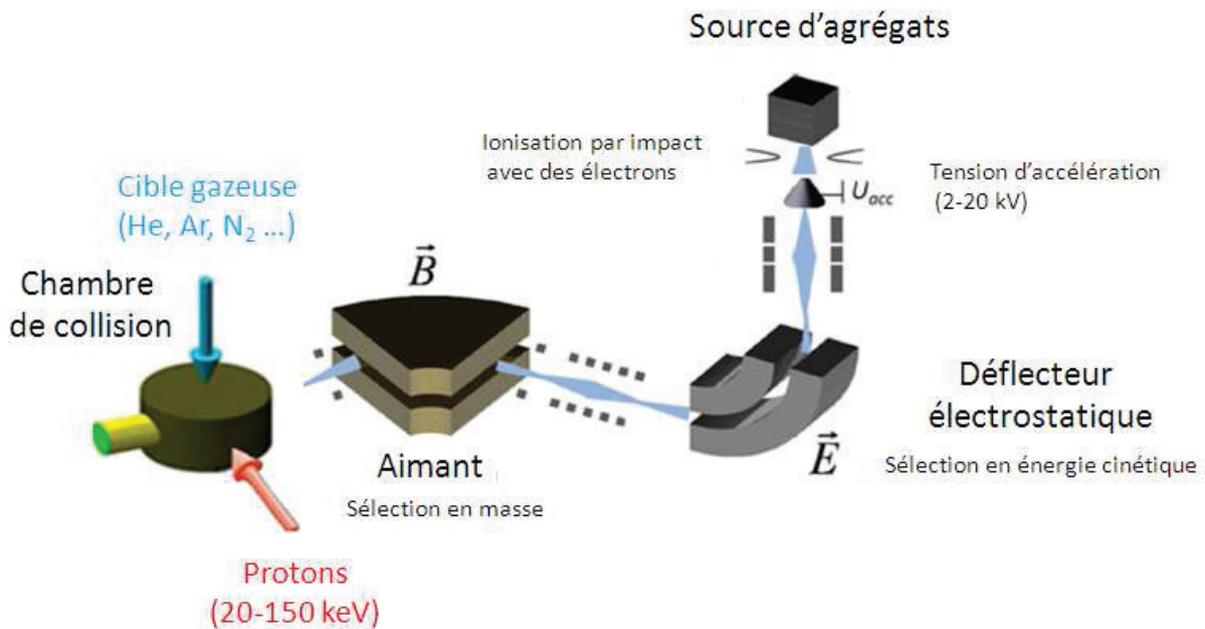
**Figure 1.1 : Principe de la méthode de détection COINTOF [3].**

Par ailleurs, cette technique fonctionne sans référence temporelle externe. Elle permet alors de travailler avec un faisceau continu de forte intensité et d'avoir un fort taux de répétition. Toutefois, nous veillons à ce que la fenêtre d'acquisition de chaque instrument de mesure, ne possède que les fragments issus de la dissociation du même ion précurseur. Pour se faire, nous regardons le rapport entre l'intensité et la largeur de la fenêtre d'acquisition. Dans les expériences effectuées, l'intensité du faisceau sur les deux galettes MCP est d'environ 1 000 coups/s. La largeur de la fenêtre d'acquisition de chaque instrument de mesure est de l'ordre de la microseconde (cf. Chapitre 2). De ce fait, le rapport entre ces deux valeurs nous assure que le travail se fait bien événement par événement. L'information résultante est ensuite étiquetée pour chaque ion précurseur dissocié.

Cette méthode permet de corréler les fragments chargés et neutres produits par la dissociation d'un même ion précurseur. Ces processus de dissociation peuvent être observés sur un certain nombre d'évènements en utilisant des stratégies d'analyses statistiques empruntées à la physique à haute énergie (cf. Chapitre 3). Ce traitement statistique permet de franchir une nouvelle étape dans la caractérisation des ions moléculaires et offrent de nouvelles perspectives concernant l'étude de leurs structures (cf. Chapitre 4).

## **2. Production et sélection des ions précurseurs**

La méthode de détection COINTOF [3, 4, 5] a été mise en place, au sein du Dispositif d'Irradiation d'Agrégats Moléculaires (DIAM), dont l'objectif est d'étudier l'irradiation de nanosystèmes biomoléculaires. DIAM permet de produire des faisceaux d'agrégats de forte intensité sélectionnés en masse et en vitesse et de les guider jusqu'à une zone d'interaction : collision sur une cible gazeuse (Ar, He) ou irradiation par impact de protons.



**Figure 1.2: Le spectromètre de masse doublement focalisant.**

La description de la voie de faisceau « agrégats », peut se scinder en trois parties : la partie dite source, la partie dite ligne de faisceau et pour finir la partie dite fragmentation et détection [3, 8].

La source permet de produire, de manière continue, un faisceau d'agrégats, par condensation, lors d'une détente. Cette détente dépend du diamètre de l'orifice, de la pression en amont et en aval de celui-ci et de la température de stagnation.

La source agrégats est équipée d'un four. Ce four contient l'échantillon à partir duquel les agrégats vont être formés. En l'occurrence, dans notre cas de l'eau. En chauffant le four, l'échantillon se met en phase gazeuse et circule vers l'orifice. En amont de l'orifice, la pression est contrôlée en fixant la température ainsi que la pression d'un gaz porteur (He, Ar), qui est injecté dans la source.

L'orifice, utilisé, a un diamètre de  $20 \mu\text{m}$ . Il est monté sur une première chambre dont la pression résiduelle est de  $10^{-4}$  mbar. Il est également chauffé à une température proche de  $120^\circ$  afin d'éviter que la condensation ne le bouche. La seconde chambre, en aval de la première, a une pression résiduelle plus faible :  $10^{-6}$  mbar. Les deux chambres sont en contact l'une de l'autre au moyen d'un skimmer de diamètre 2 mm et dont le rôle est de sélectionner la partie la plus intense du faisceau.

Pour pouvoir guider les agrégats le long de la voie, nous les ionisons par impact avec un faisceau d'électrons dont l'énergie peut varier entre 50 et 90 eV. Ces électrons sont produits au moyen de deux filaments de Tungstène montés juste en dessous de l'orifice et parcourus par un courant allant de 5 à 20 A. L'impact électronique provoque l'ionisation et la dissociation des agrégats neutres. Ceci a pour conséquence de produire de nombreux agrégats de tailles variables. Ces agrégats peuvent être des cations, des anions ou des neutres. Dans les

expériences menées, nous nous sommes intéressés aux ions positifs. C'est pourquoi, l'ensemble de la source est porté à une tension positive (8 kV typiquement) et la seconde chambre à la masse afin d'accélérer les ions positifs formés.

La présence d'agrégats ionisés est déterminée, en mesurant l'intensité du faisceau, au moyen d'une cage de Faraday escamotable. L'intensité de ce faisceau varie en fonction du courant appliqué sur les filaments de Tungstène. Au départ, le courant est réglé de sorte que le faisceau produit ait une intensité d'une dizaine de nA. Toutefois, pour ne pas endommager les détecteurs, nous ajustons ce courant de manière à ce que l'intensité liée au faisceau produit ne soit que de 1 nA ou moins.

Le faisceau produit est constitué d'agrégats de toutes tailles, avec des vitesses et des masses différentes. Nous sélectionnons un faisceau d'agrégats de masse et de vitesse donnée à l'aide d'un spectromètre  $E \times B$ , à secteurs électrique et magnétique. Le principe de fonctionnement du spectromètre de masse  $E \times B$  repose sur deux éléments : un déflecteur électrostatique et un électro-aimant.

Le déflecteur électrostatique, en forme de secteur hémisphérique, permet l'analyse, de l'énergie cinétique des agrégats, dans le plan vertical. Il a un rayon de 0,500 m et un angle de déviation de  $90^\circ$ . Il focalise le faisceau, dans les deux directions perpendiculaires à la direction de propagation. Une paire de fentes verticales est placée au point de focalisation du déflecteur : ce qui permet, en sortie, d'avoir une sélection fine de la dispersion en énergie du faisceau.

Un quintuplet de quadrupôles assure une transmission maximale du faisceau entre le déflecteur et l'électro-aimant. Il permet également une rotation du faisceau d'un angle de  $90^\circ$ . De ce fait, la dispersion en énergie verticale à la sortie du déflecteur est transformée en une dispersion en énergie horizontale à l'entrée de l'électro-aimant. A la sortie du quintuplet de quadrupôles, une autre paire de fentes, horizontales, permet encore une sélection fine de la dispersion en énergie du faisceau.

La visualisation et la caractérisation du faisceau, en termes de position, de profil et d'intensité, sur la voie « agrégats », se font au moyen de deux chambres à fils [8]. Une première est située en aval de la paire de fentes verticales et la seconde, en aval de la paire de fentes horizontales, à environ 25 cm, dans les deux cas. Elles sont toutes deux composées de 32 fils, 16 verticaux et 16 horizontaux. L'impact d'un ion avec un fil génère un courant. Ce courant est amplifié et converti en tension. Les signaux, qui en résultent, sont observés au moyen d'une interface faite sur Labview<sup>®</sup>. Cette observation directe sert de diagnostic, lors de l'optimisation du guidage du faisceau.

D'autres éléments, les « steerers », sont positionnés avant l'électro-aimant. Il y en a également d'autres avant le déflecteur électrostatique. Leur rôle est d'optimiser le guidage du faisceau. Ils sont constitués de quatre paires de plaques parallèles qui permettent de le dévier dans les deux directions perpendiculaires à la direction de propagation.

L'électro-aimant permet l'analyse en masse des agrégats, une fois la sélection en énergie cinétique effectuée. Il a un angle de déviation de  $60^\circ$  et son champ magnétique maximal est de 1,6 T. La masse maximale possible d'atteindre dépend de l'énergie cinétique sélectionnée. En effet, plus l'énergie cinétique est faible et plus cette masse limite sera grande. De plus,

l'aimant permet de focaliser le faisceau dans le plan horizontal. La focalisation, dans le plan vertical, est assurée par deux quadrupôles, un à l'entrée et un à la sortie de celui-ci.

En aval du quadrupôle, situé à la sortie de l'électro-aimant, nous avons placé un collimateur. Sur ce collimateur, il est possible de sélectionner deux diamètres : 1 ou 2 mm. Son rôle est d'affiner le faisceau d'agrégats.

L'ensemble du spectromètre est mis sous vide secondaire soit  $10^{-6}$  mbar.

Les agrégats, sélectionnés en masse et en vitesse, entrent à l'intérieur de la chambre de collision. Dans cette enceinte, ils collisionnent soit avec un atome d'argon : la cible d'argon est produite à partir d'un jet effusif, soit avec un proton : la cible de protons est produite par un faisceau intense de protons monocinétiques.

### **3. Le système de détection COINTOF**

Le système de détection COINTOF [3, 4, 5] est constitué d'un spectromètre à temps de vol linéaire : le LTOF (Linear Time Of Flight) et d'un détecteur MCP-DLA.

#### **3.1. Spectromètre à temps de vol linéaire**

Le système de détection COINTOF est équipé d'un temps de vol linéaire (Figure 1.3 [3]). Ce temps de vol linéaire est un spectromètre par temps de vol. Par principe, il permet, au moyen d'un champ électrique, de séparer entre eux les espèces chargés. Cette séparation est temporelle car le temps de parcours de ces différentes espèces, dans la zone de « vol libre », va dépendre de leur masse.



**Figure 1.3: Photo du LTOF [3].**

De plus, ce temps de vol linéaire est un temps de vol Wiley-McLaren [9]. De ce fait, il est composé de trois zones bien séparées : une zone d'extraction, une zone d'accélération et une zone de vol libre. Chaque zone possède un champ électrique spécifique.

Le champ électrique appliqué sur les zones d'extraction et d'accélération va déterminer la position du plan de focalisation. En effet, cette position dépend du rapport  $E_{\text{ext}}/E_{\text{acc}}$  [3]. Par contre, aucun champ électrique n'est appliqué dans la zone de « vol libre ».

Le temps de vol linéaire, que nous avons conçu, contient un certain nombre d'électrodes comme nous pouvons le voir sur la Figure 1.4. Ces électrodes sont numérotées de 1 à 12.

Les électrodes de 1 à 4 sont situées dans la zone d'extraction délimitée par le volume externe du temps de vol linéaire et une partie du volume de la chambre de collision. La valeur du champ électrique de la zone d'extraction est fixée par le potentiel des électrodes 2, 3 et 4.

Les électrodes de 4 à 7 sont situées à l'intérieur de la zone d'accélération. Cette zone est située entre les volumes du temps de vol linéaire mis au potentiel des électrodes 4 et 5. Elle mesure 2,5 cm. La valeur du champ électrique de la zone d'accélération est fixée par le potentiel des électrodes 4, 6, 7 et 5.

L'électrode 5 et celles numérotées de 8 à 13 sont situées à l'intérieur de la zone de « vol libre » délimitée par le volume du temps de vol linéaire mis au potentiel de l'électrode 5. Cette zone mesure 21 cm. Comme nous l'avons mentionné précédemment, aucun champ électrique n'est appliqué dans cette zone. C'est pourquoi, toutes ces électrodes sont mises au même potentiel : le potentiel de « vol libre » fixé par l'électrode 5.

Les électrodes 8, 10, 11 et 12 permettent de dévier les espèces chargées vers un temps de vol orthogonal OTOF [3]. Ces électrodes ont été mises en place : nous pouvons modifier leur potentiel. Cependant, ce temps de vol n'a pas été encore mis en place. Par conséquent, nos mesures sont toujours faites en mode linéaire et, dans cette configuration, elles ont toujours le même potentiel que celui de l'électrode 5.

Toutefois, ce temps de vol linéaire a été utilisé pour faire deux types d'expériences : expérience dite « sans pusher » et expérience dite « avec pusher ». La fonction du pusher est assurée par l'électrode 9. Cette électrode est positionnée à 7,2 cm du centre de la chambre de collision.

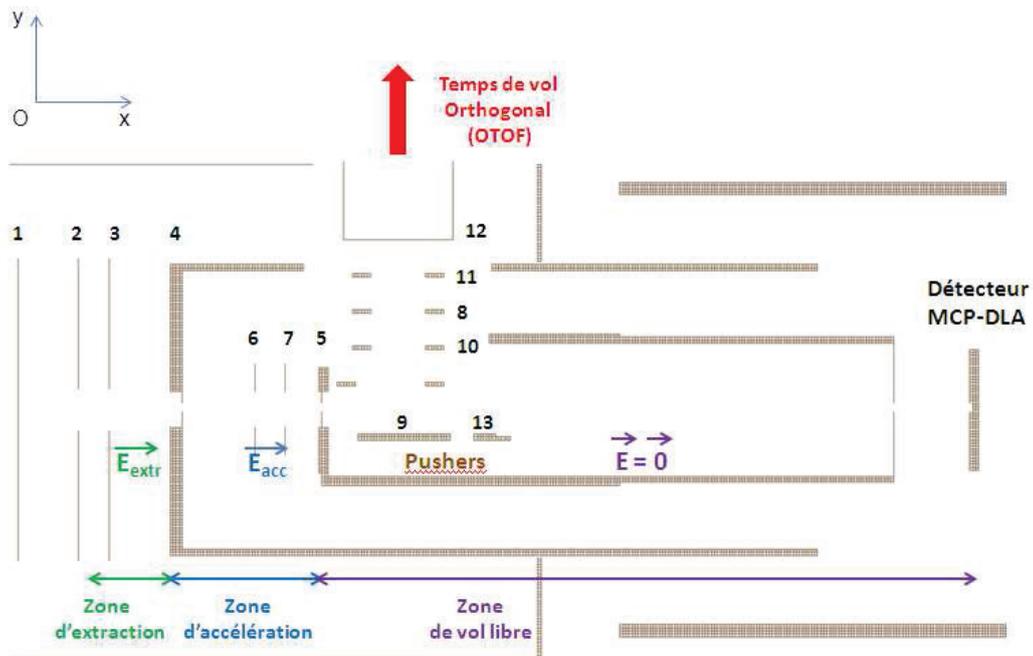


Figure 1.4: Les trois zones du LTOF [3].

La zone de « vol libre » décrite, précédemment, fait référence au cas « sans pusher ». En effet, dans cette configuration, le potentiel de l'électrode 9 est identique à celui de toutes les autres situées dans la zone de « vol libre ».

Dans le cas des expériences « avec pusher », l'électrode 9 a un potentiel différent de celui des autres électrodes présentes dans la zone de « vol libre » et donc différent de celui de l'électrode 5. Par conséquent, le champ électrique à l'intérieur de la zone de « vol libre » est différent de 0.

Dans le cas des expériences effectuées « sans pusher », le potentiel des électrodes 2, 3 et 4 est mis à 0 V. Ce qui veut dire qu'il n'y a pas de champ électrique dans la zone d'extraction. L'accélération des ions chargés est assurée par les électrodes 4, 6, 7 et 5 sur lesquels nous appliquons respectivement un potentiel de 0, -680 V, -1190 V et -1700 V. Le champ électrique, dans la zone de « vol libre », est nul. Par conséquent, le potentiel des électrodes 8, 9, 10, 11, 12 et 13 est égal à -1700 V.

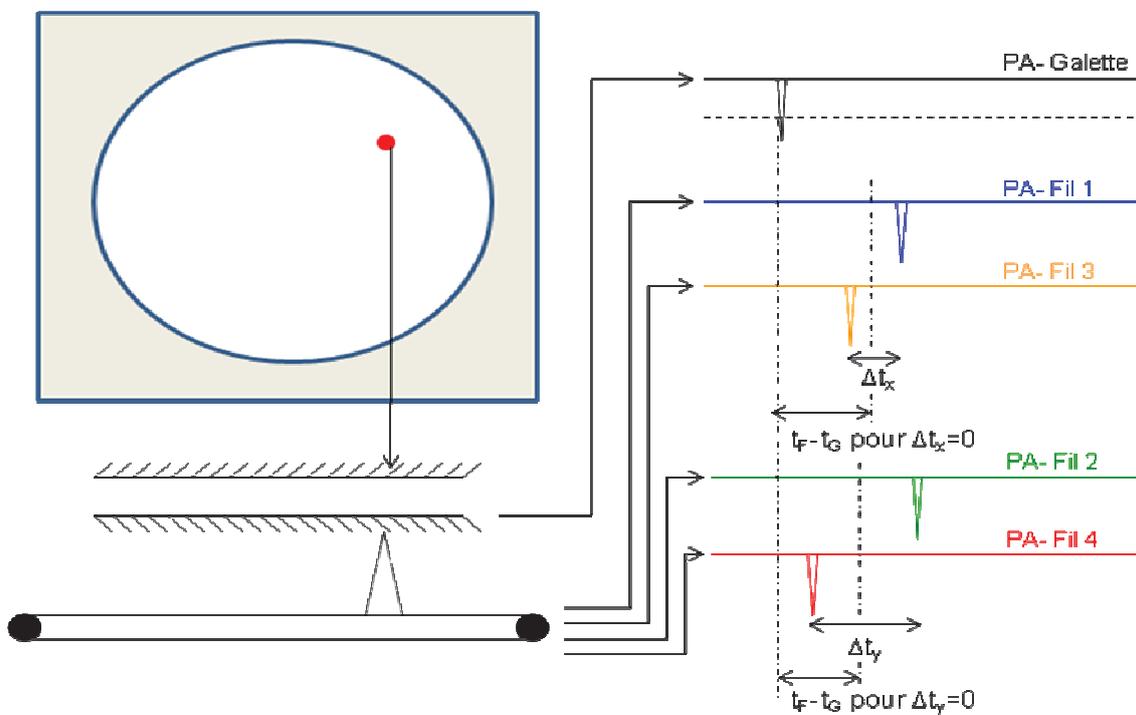
Dans le cas des expériences effectuées « avec pusher », le potentiel des électrodes, situées dans les zones d'extraction et d'accélération, reste identique à celui des électrodes, dans le cas « sans pusher ». En revanche, la zone de vol libre a un champ électrique orienté, vers le bas, suivant  $O_y$ , à l'endroit où se trouve le pusher. En effet, le potentiel des électrodes 8, 10, 11, 12 et 13 est égal à -1700 V. Par contre, nous appliquons un potentiel à l'électrode 9 (typiquement -2050 V). La fonction et la calibration de ce pusher seront détaillées, dans la partie 4.2 de ce chapitre.

### 3.2. Le système de détection MCP-DLA

Le système de détection MCP-DLA [6, 7] est positionné en aval du temps de vol linéaire et plus précisément à 29,4 cm par rapport au centre de la chambre de collision. Il a un diamètre de 42 mm.

#### 3.2.1. Description du système de détection MCP-DLA

Ce détecteur est composé de deux galettes à micro-canaux (MCP, Hamamatsu, Photonics) [6] équipées d'une anode à fils DLA (Roentdek) [7]. La combinaison de ces deux systèmes permet de mesurer l'instant d'arrivée et la position des produits de dissociation. Ce détecteur produit cinq signaux. Un signal est généré par les deux galettes à micro-canaux. Les quatre autres sont produits par la DLA. La Figure 1.5 schématise le détecteur MCP-DLA et illustre les cinq signaux qu'il génère, dans le cas de l'impact d'une particule.



**Figure 1.5 : Signaux produits en sortie du détecteur MCP-DLA après impact d'une particule.**

Les deux galettes à micro-canaux sont placées en amont. Chacune possède des canaux dont le rapport  $z/d$  vaut 40 (avec  $z$  la longueur et  $d$  le diamètre). Ces canaux occupent 60 % de la surface de détection [6]. Lorsqu'une particule arrive sur le détecteur, elle dépose de l'énergie dans ces canaux. Des électrons sont alors arrachés de leur paroi et se déplacent tout du long. En heurtant à plusieurs reprises les parois, ils créent des électrons secondaires qui agissent de la même manière : c'est l'avalanche électronique. Cette avalanche électronique se poursuit sur la deuxième Galette et provoque la libération d'électrons. Ces électrons génèrent un pulse : le Pulse Galette, sur le signal de sortie des deux galettes MCP : le Signal Galette. Le flux d'électrons produit se propage ensuite sur la DLA.

La DLA est constitué de deux fils de tailles assez proches. Ces deux fils sont enroulés de manière à former un réseau horizontal et un réseau vertical (il quadrille un plan par pas de 0,5 mm) [7]. Lorsque le flux d'électrons arrive sur la DLA, il se déplace le long des deux fils. Ainsi, il génère un pulse, sur chaque signal produit aux extrémités des deux fils. Au final, les quatre signaux de sortie de la DLA possèdent chacun un pulse. Deux d'entre eux, le Pulse Fil 1 et le Pulse Fil 3, sont associés aux signaux du réseau horizontal : le Signal Fil 1 et le Signal Fil 3. Les deux autres, le Pulse Fil 2 et le Pulse Fil 4, sont associés aux signaux du réseau vertical : le Signal Fil 2 et le Signal Fil 4.

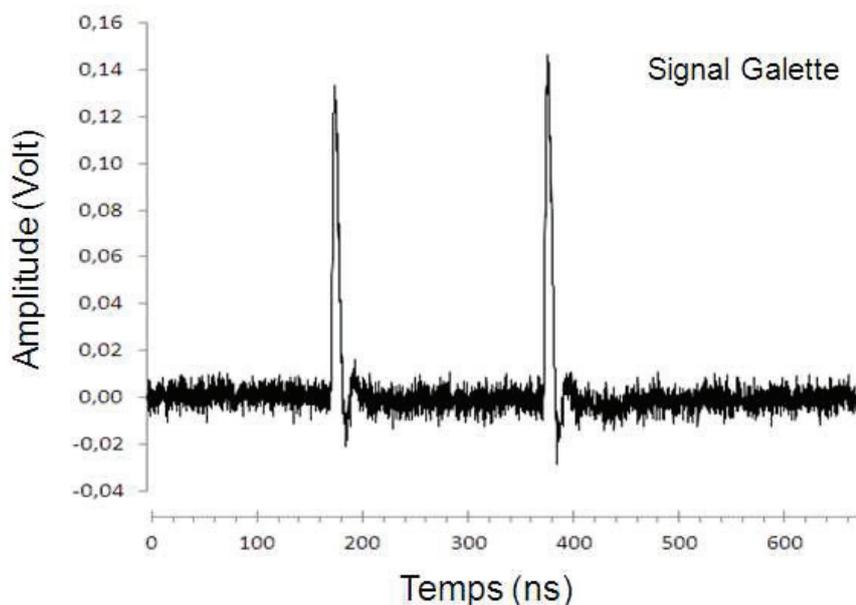
Le temps d'arrivée des électrons, à l'extrémité de chaque fil, donne accès à la position de la zone d'impact. En effet, si  $T_{Fil1}$  et  $T_{Fil3}$  désignent le temps d'arrivée des électrons aux extrémités du fil du réseau horizontal et  $T_{Fil2}$  et  $T_{Fil4}$  celui aux extrémités du fil du réseau vertical alors les différences de temps  $\Delta t_x = (T_{Fil1} - T_{Fil3})$  et  $\Delta t_y = (T_{Fil2} - T_{Fil4})$  nous permettent de mesurer cette position en ns. Pour avoir cette position en mm, nous prenons également en compte la vitesse de propagation des électrons. Cette vitesse, notée  $v_{\perp}$ , vaut 0,69 mm/ns, dans notre cas [7]. Ensuite, nous appliquons les conversions suivantes :

$x = \Delta t_x \cdot v_{\perp}$  pour la position horizontale.

$y = \Delta t_y \cdot v_{\perp}$  pour la position verticale.

### 3.2.2. Exemple de signaux

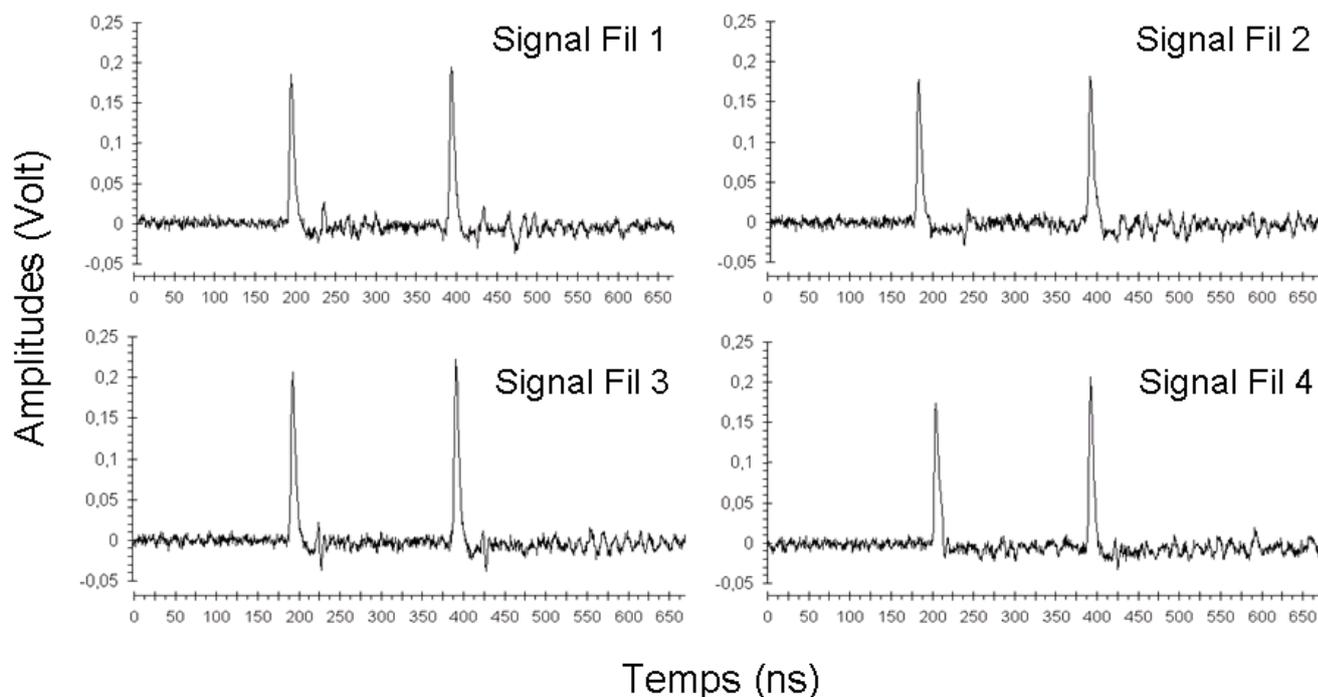
Les Figures 1.6 et 1.7 présentent un exemple des cinq signaux produits par le détecteur MCP-DLA [6, 7]. Ces cinq signaux sont associés à un même évènement extrait d'une expérience CID du dimère d'eau protoné  $H^+(H_2O)_2$ , accéléré à 8 keV, sur un atome d'argon.



**Figure 1.6 : Exemple de Signal Galette.**

La Figure 1.6 montre le signal de sortie des deux galettes MCP. Ce signal possède deux pulses. Les pulses sont associés à l'impact des produits de dissociation de l'ion  $H^+(H_2O)_2$ , sur

le système de détection. Le premier est associé à l'impact de l'ion  $H^+(H_2O)$ , le second à l'impact de la molécule d'eau. Ce signal est enregistré, par le système d'acquisition, sur une fenêtre de 670 ns. Le choix de la fenêtre se détermine, à partir de la différence des instants d'arrivée du fragment neutre  $H_2O$  et du fragment chargé  $H^+(H_2O)$ , sur le détecteur, mesurée au moyen du logiciel SIMION<sup>®</sup> [3]. Toutefois, pour être sûr de bien enregistrer tous les pulses associés à l'évènement, l'étape d'enregistrement débute un peu avant le premier pulse et s'achève un peu après le second pulse (cf. Chapitre 2).

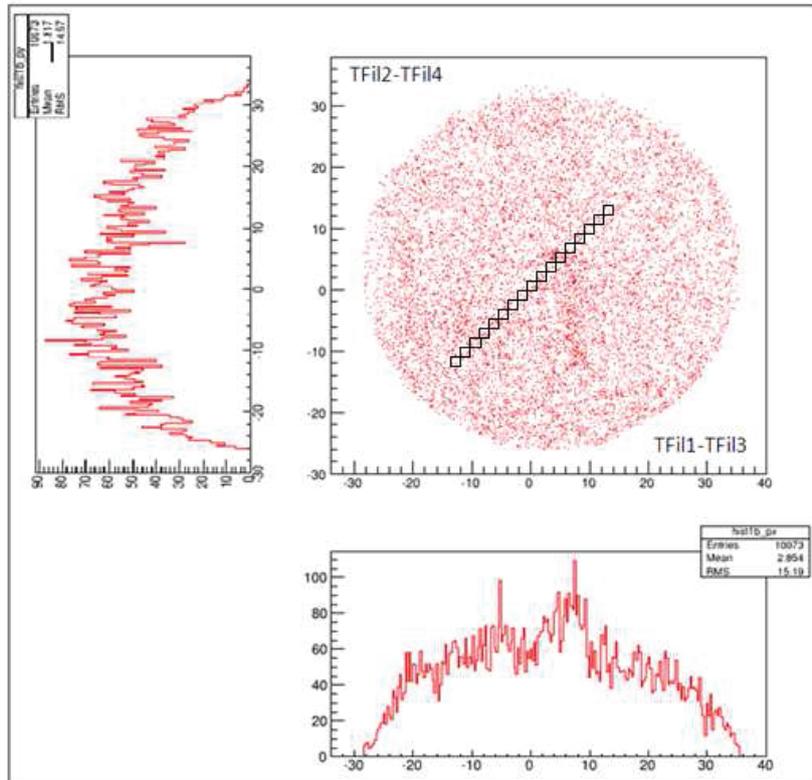


**Figure 1.7 : Exemple de signaux fils.**

La Figure 1.7 montre les quatre signaux de sortie de la DLA. Chacun d'entre eux possède deux pulses également associés à l'impact de l'ion  $H^+(H_2O)$  et de la molécule d'eau, sur le détecteur. Ces quatre signaux sont également enregistrés par le système d'acquisition, sur une fenêtre de 670 ns. Nous avons positionné l'origine de cette fenêtre d'enregistrement de manière à ce qu'elle coïncide avec celle utilisée pour le Signal Galette. Il en est de même pour sa taille (cf. Chapitre 2).

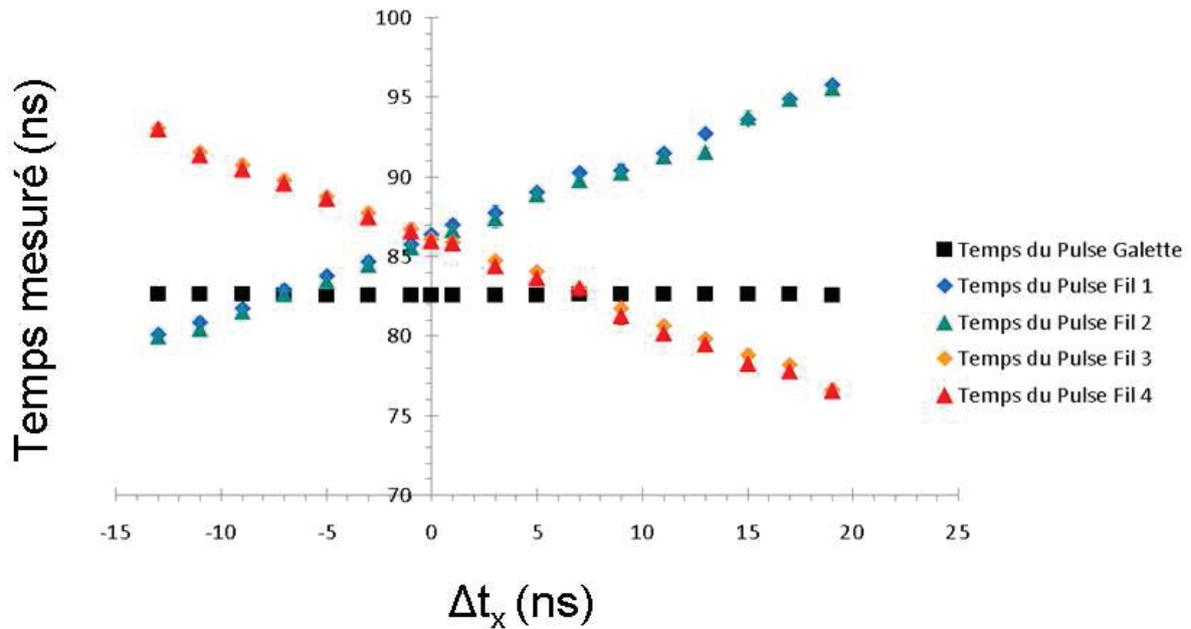
### ***3.2.3. Corrélation entre le signal Galette et le signal des fils pour la détection d'une seule particule***

La Figure 1.8 montre les impacts associés au bruit sur le détecteur MCP-DLA. Cette image est obtenue, après un long comptage, en polarisant le système de détection, en l'absence de faisceau d'agrégats. Si nous nous référons aux distributions des positions horizontale et verticale, mesurées respectivement par les différences de temps  $\Delta t_x$  et  $\Delta t_y$  en ns, nous constatons que la tâche obtenue est assez homogène : ce qui permet de comparer les différentes zones d'impacts (représentées en carré noir) entre elles. Ces zones d'impact sont espacées les unes des autres par pas verticaux et horizontaux de 2 ns, le long de la diagonale principale du détecteur.



**Figure 1.8: Image du bruit sur le détecteur MCP-DLA, obtenue après un long comptage avec ses projections verticale (TFil2-TFil4 en ns) et horizontale (TFil1-TFil3 en ns).**

Cette étude a été effectuée sur des événements pour lesquels un seul fragment est détecté : c'est à dire que tous les signaux Galette et fils enregistrés contiennent un seul pulse. Pour chaque zone d'impacts sélectionnée, sur la Figure 1.8, nous mesurons le temps du pulse Galette et des pulses fils, par rapport à l'origine de leurs fenêtres d'enregistrement respectives. Cette origine des temps est commune (cf. Chapitre 2). Le résultat de ces mesures est présenté sur la Figure 1.9.



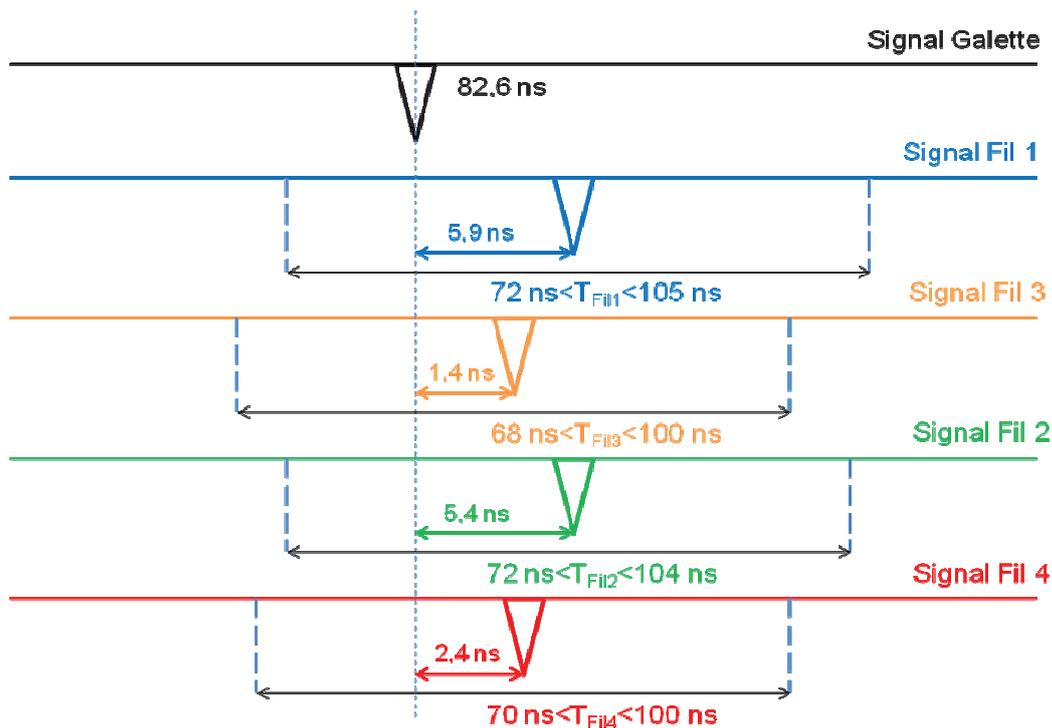
**Figure 1.9: Mesure du temps (ns) du Pulse Galette et des pulses fils, effectuée pour 18 zones d'impacts sélectionnées, le long de la diagonale principale du système de détection.**

La série en noir est associée aux mesures du temps du pulse Galette. Nous constatons que ce temps est constant et ceci quelque soit le lieu de l'impact de la particule sur le détecteur.

Pour le fil du réseau horizontal, nous mesurons le temps du Pulse Fil 1 et celui du Pulse Fil 3. A travers les séries de mesures représentées en bleu et en orange sur la Figure 1.9, nous constatons que ces deux temps évoluent de manière opposée. En effet, si l'impact se fait au centre du réseau horizontal, les électrons générés parcourent la même distance pour atteindre les extrémités du fil. Ce cas est illustré, sur la Figure 1.9, par l'intersection de ces deux séries de mesures, lorsque  $t_x=0$ . En revanche, si l'impact est excentré, les électrons produits sont plus proches d'une des extrémités et arrivent sur celle-ci plus rapidement. C'est ce que nous observons sur la Figure 1.9, de part et d'autre, de l'intersection entre ces deux séries de mesures. De plus, à travers les mesures que nous avons effectuées, nous remarquons que  $\Delta t_x < 0$ , si l'impact est en bas à gauche par rapport au centre du réseau horizontal et que  $\Delta t_x > 0$ , si l'impact est situé en haut à droite de cette même référence.

Par ailleurs, nous observons un comportement analogue pour le fil du réseau vertical, à travers les séries de mesures en vert et en rouge. Ces séries sont, respectivement, associées aux mesures du temps du Pulse Fil 2 et du temps du Pulse Fil 4. Cette analogie est liée à la symétrie de la surface de détection et au choix de zones le long de la diagonale principale du détecteur par pas de temps identiques et réguliers. En effet, cette sélection assure le parallélisme entre les séries de mesures associées au fil du réseau horizontal et celles associées au fil du réseau vertical.

Par conséquent, un pulse Galette, avec un temps fixe, est associé à quatre pulses fils dont les temps peuvent varier sur un certain intervalle en fonction de la position de la zone d'impacts. Ces différents intervalles sont illustrés, sur la Figure 1.10.

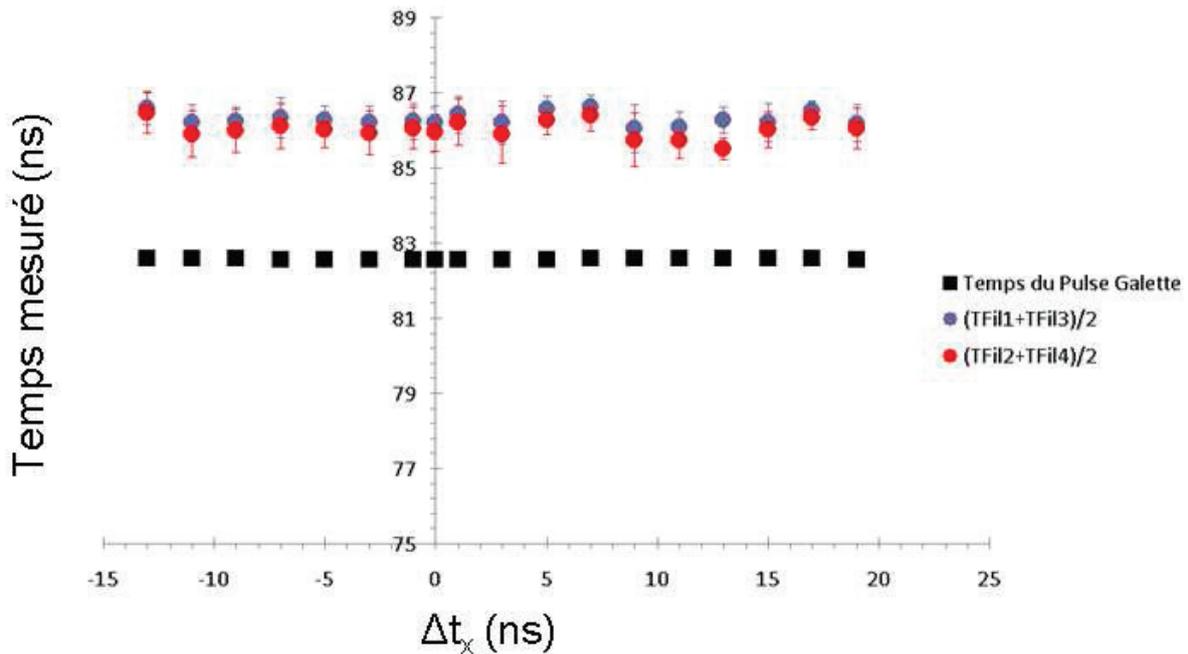


**Figure 1.10: Intervalle de temps du pulse de chaque signal, associé à l'impact d'une particule, sur le détecteur MCP-DLA.**

La Figure 1.10 schématise le Signal Galette et les signaux fils qui lui sont associés, pour l'impact d'une particule sur le détecteur. Dans le cas du Signal Galette, ce pulse est fixé à un temps de 82,6 ns, comme nous pouvons le voir sur la Figure 1.10. Les signaux fil contiennent un pulse dont le temps peut varier sur un certain intervalle, en fonction du lieu de l'impact. En effet, pour un Pulse Galette à 82,6 ns, le Pulse Fil 1 a un temps qui peut varier entre 72 ns et 105 ns, le Pulse Fil 2 a un temps qui peut varier entre 68 ns et 100 ns, le Pulse Fil 3 a un temps qui peut varier entre 72 ns et 104 ns et le Pulse Fil 4 a un temps qui varie entre 70 ns et 100 ns. De plus, nous remarquons que ces intervalles en temps mesurent environ 30 ns. Par conséquent, s'ils sont sommés pour deux pulses appartenant au même fil, nous retrouvons bien le diamètre de la surface de détection en ns.

Par ailleurs, la Figure 1.10 indique l'écart en temps entre le Pulse Galette et les pulses fil, lorsqu'ils sont placés au centre de leur intervalle de temps respectif. Cet écart est compris entre 1,5 et 6 ns. Ce résultat est semblable à celui présenté sur la Figure 1.9. En effet, à  $\Delta t_x=0$ , nous voyons que l'écart en temps entre le Pulse Galette et pulse de chaque fil mesure 4 ns. Par conséquent, nous pouvons affirmer que lorsque le pulse de chaque fil est au centre de sa fenêtre respective, le point d'impact est proche du centre du détecteur.

La Figure 1.9 montre que le temps du Pulse Galette reste fixé quelque soit la zone d'impact choisie. Il en est de même pour la somme des temps de deux pulses associées à un même fil. Si nous calculons la moyenne des temps du Pulse Fil 1 avec celui du Pulse Fil 3 et idem pour le Pulse Fil 2 et le Pulse Fil 4, nous obtenons les résultats présentés sur le graphe de la Figure 1.11.



**Figure 1.11: Mesure du temps (ns) du Pulse Galette et de la moyenne des temps (ns) des pulses associés à un même fil (réseau horizontal et vertical), effectuée pour 18 zones d’impacts sélectionnées, sur le système de détection.**

A travers les séries de mesures représentées en rouge et en violet sur le graphe de la Figure 1.11, nous montrons que la moyenne des temps des pulses associés à un même fil reste fixe, quelque soit le lieu de l’impact de la particule sur le détecteur. Ce comportement dénote la stabilité dans le positionnement de la fenêtre d’enregistrement car les temps sont tous mesuré par rapport à l’origine des temps de cette fenêtre (cf. chapitre 2). L’incertitude mesurée est de l’ordre de 0,5 ns. Ces deux séries de mesures suivent la même tendance. Toutefois, nous observons un léger écart en temps entre elles. Cet écart vaut 0,3 ns. Son origine peut être attribuée à la différence de longueur entre le fil du réseau horizontal et le fil du réseau vertical ou à l’électronique d’acquisition. Néanmoins, nous notons que cet écart reste inférieur à l’incertitude de mesure.

## 4. Exemples de mesures

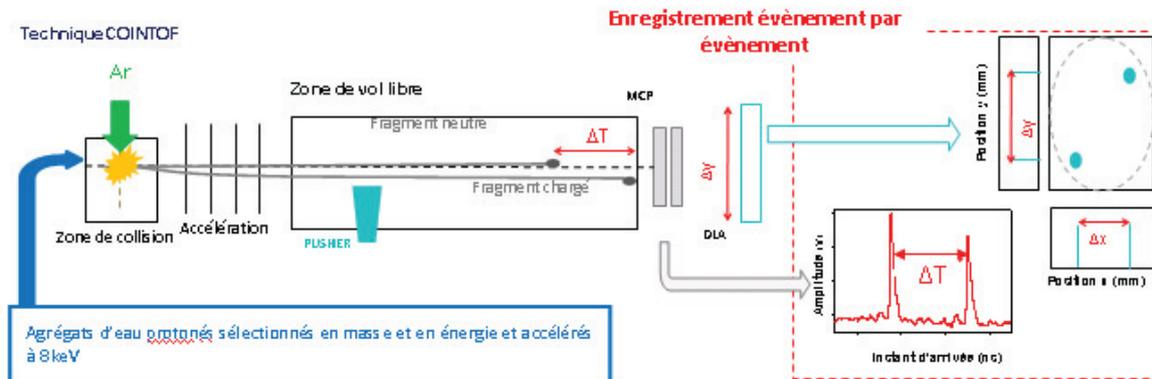


Figure 1.12: Schéma du dispositif COINTOF [10].

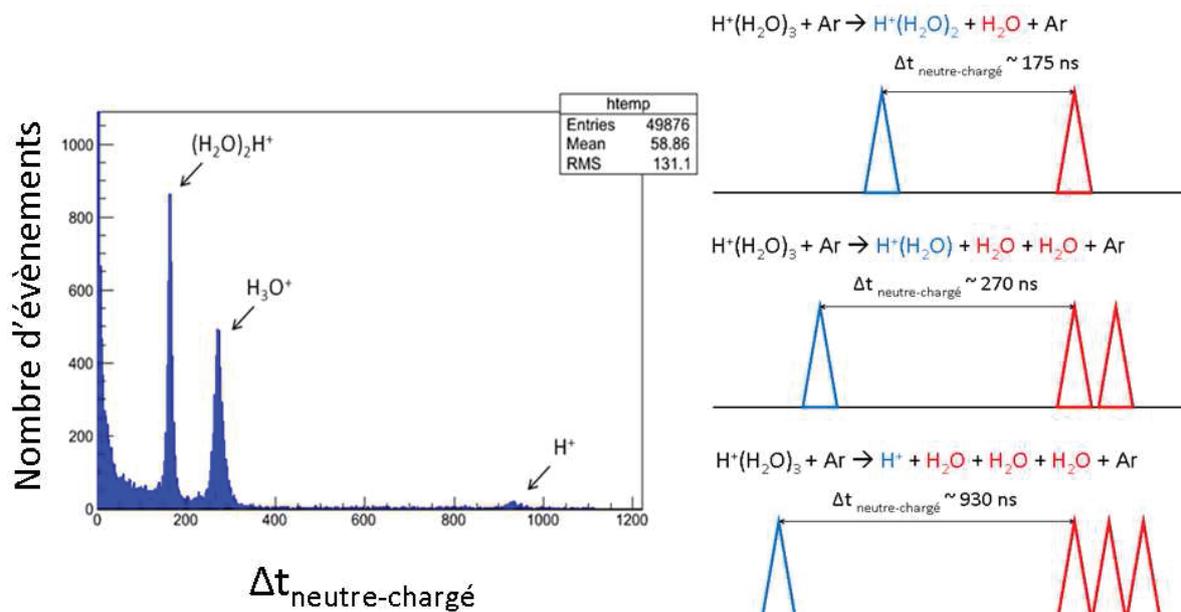
Dans ce paragraphe, nous mettons en avant deux exemples de mesures qu'il est possible de faire avec le dispositif COINTOF.

Le premier exemple montre comment la méthode de détection COINTOF permet d'obtenir le spectre de masse des fragments chargés, produits par la dissociation d'un même ion précurseur, sélectionné en masse et en vitesse. Pour traiter cet exemple, nous mesurons, pour un lot d'environ 50 000 évènements, l'instant d'arrivée des produits de dissociation sur le système de détection et plus précisément sur les deux galettes MCP.

Le deuxième exemple montre l'action du pusher sur un faisceau d'ions de taille donnée. Pour traiter cet exemple, il est nécessaire d'observer l'impact de ce faisceau d'ions sur le système de détection : ce qui est possible avec la DLA.

### 4.1. Spectre de masse

Pour cet exemple de mesures, nous utilisons une expérience faite « sans pusher ». Dans ce cas, le champ électrique, dans la zone de « vol libre » est nul. Dans l'expérience choisie, nous appliquons un champ électrique uniquement dans la zone d'accélération. Cette zone est alors utilisée pour accélérer les fragments chargés. La vitesse des fragments neutres restent inchangées au premier ordre. Par conséquent, les fragments chargés atteignent la surface de détection en premier.



**Figure 1.13 : Spectre de masse des fragments chargés obtenu avec la méthode COINTOF, dans le cas d'une expérience de CID du trimère d'eau protoné  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_3$  accéléré à 8 keV, sur un atome d'argon (à gauche) [3]. Les évènements de dissociation à partir desquels ce spectre de masse est obtenu (à droite).**

La Figure 1.13 (schéma de droite), nous montre les différents évènements de dissociation d'une expérience de CID du trimère d'eau protoné, accéléré à 8 keV, sur une cible gazeuse d'argon. Ces différents évènements sont enregistrés par le système d'acquisition (cf. Chapitre 2). Pour chaque évènement, le fragment chargé est représenté par un pulse bleu et les fragments neutres par un pulse rouge. L'évènement du haut montre un processus de dissociation avec la perte d'une molécule d'eau. Celui du milieu en montre un avec la perte de deux molécules d'eau. Celui du bas en montre un avec la perte de trois molécules d'eau. A travers SIMION<sup>®</sup> [3], il est possible de définir les instants d'arrivée de chaque fragment chargé et neutre, sur le détecteur MCP-DLA. A partir de ces instants d'arrivée, nous pouvons déterminer la différence de temps entre le fragment chargé et le premier fragment neutre détecté noté  $\Delta t_{\text{neutre-charge}}$ , sur le schéma. Nous savons également que la vitesse des fragments neutres est identique à celle de l'ion précurseur et ceci quelque soit le canal de dissociation. Comme ces fragments neutres parcourent également la même distance pendant leur vol libre, ils arrivent sur la surface de détection en même temps ou à des temps proches. C'est pourquoi, l'instant d'arrivée du premier fragment neutre détecté peut être pris comme référence.

En cumulant un certain nombre d'évènements, nous obtenons le graphe de gauche de la Figure 1.13. Ce graphe montre la distribution de la durée  $\Delta t_{\text{neutre-charge}}$ , définis plus haut. Il fait ressortir 4 pics. Un est aux alentours de 0 ns, un autre aux alentours de 175 ns, un autre aux alentours de 270 ns et un dernier aux alentours de 930 ns. En utilisant les résultats obtenus à partir de SIMION<sup>®</sup> [3], il est possible d'identifier les évènements de dissociation associés à chacun de ces pics et, ainsi, de déduire la nature du fragment chargé associé. De cette manière, nous en déduisons que le pic à 175 ns correspond à des évènements de dissociation pour lesquels le fragment chargé est l'ion  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$ , celui à 270 ns correspond à des évènements de dissociation pour lesquels le fragment chargé est l'ion  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})$  et celui à 930 ns à des évènements de dissociation pour lesquels le fragment chargé est l'ion  $\text{H}^+$ . Le pic à 0 ns correspond à des évènements de dissociation pour lesquels le fragment chargé n'a pas été

déecté. Par conséquent, le  $\Delta t_{\text{neutre-charge}}$  est mesuré à partir des instants d'arrivée de deux fragments neutres.

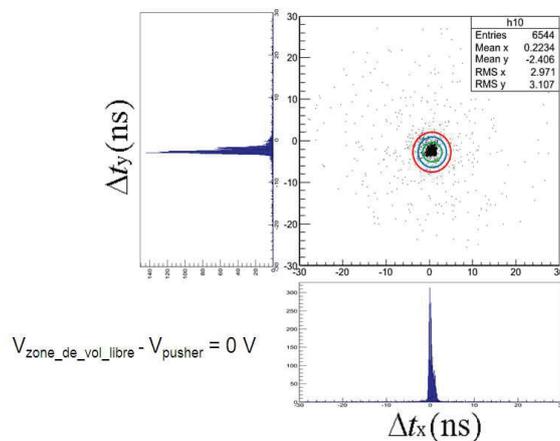
La partie gauche de la Figure 1.13 représente le spectre de masse des fragments chargés obtenu par la méthode COINTOF. Contrairement à un spectre de masse classique, l'axe des x est une différence de temps et cette différence de temps est liée à un rapport  $m/z$  décroissant.

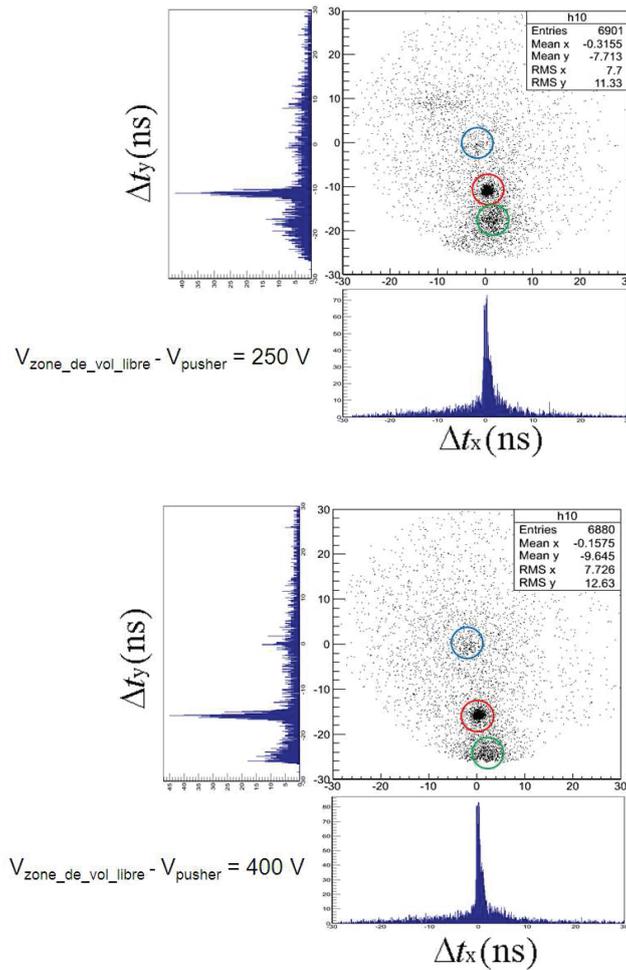
De plus, nous constatons que l'aire, sous chaque pic du spectre de masse, est différente. Cette observation montre que certains processus de dissociation sont majoritaires par rapport à d'autres. En effet, à travers cet exemple, nous pouvons dire que les événements de dissociation pour lesquels le fragment chargé est l'ion  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$  sont prédominants par rapport à ceux pour lesquels le fragment chargé est l'ion  $\text{H}^+$ . Cette étude sera détaillée dans le chapitre 4, au moment où nous effectuerons la mesure des rapports de branchement.

Par ailleurs, nous remarquons également que ces pics n'ont pas tous la même finesse. En effet, le pic associé aux événements de dissociation avec la perte d'une molécule d'eau est plus fin que ceux associés aux autres événements de dissociation. La mesure de  $\Delta t_{\text{neutre-charge}}$  est donc plus précise, lorsque l'événement de dissociation met en jeu la perte d'un seul fragment neutre. Ceci est lié au fait que la mesure de  $\Delta t_{\text{neutre-charge}}$  se fait à partir de la différence des instants d'arrivée des deux premiers fragments détectés.

## 4.2. Calibration du pusher

Comme nous l'avons mentionné dans le paragraphe 3.1, le temps de vol linéaire est équipé d'un pusher. Cette fonction est assurée par l'électrode 9, représentée sur la Figure 1.4. Son rôle est de dévier les ions de l'axe du faisceau incident : ce qui a pour conséquence de déplacer leurs zones d'impacts, sur le détecteur. L'effet du pusher est observé lorsque la tension appliquée sur l'électrode 9 est différente de celle appliquée sur l'ensemble des électrodes, situées dans la zone de vol libre. Le but de cette étude est de calibrer cet élément de déviation, au moyen d'un faisceau d'ions de taille donnée, en faisant varier la tension que nous lui appliquons.





**Figure 1.14: Impact du faisceau d'ions  $H^+(H_2O)_2$  (entouré en rouge), sur le détecteur, obtenu pour différentes tensions de pusher, données par rapport à la tension de vol libre. Trois cas sont présentés : un pour  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}} = 0\text{V}$  (en haut), un autre pour  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}} = 250\text{V}$  (au milieu) et un dernier pour  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}} = 400\text{V}$  (en bas). Chaque graphe affiche la distribution des positions horizontales et verticales. Ces positions sont mesurées respectivement avec les différences de temps  $\Delta t_x$  et  $\Delta t_y$ , en ns, définies dans le paragraphe 3.2. Les impacts (entourés en bleu et en vert) sont associés aux produits de dissociation de l'ion  $H^+(H_2O)_2$ , respectivement  $H_2O$  et  $H^+(H_2O)$ .**

Dans cet exemple, nous calibrons le pusher au moyen d'un faisceau d'ions  $H^+(H_2O)_2$ . Les mesures ont été faites en utilisant des expériences de CID du dimère d'eau protoné  $H^+(H_2O)_2$ , accéléré à 8 keV, sur une cible gazeuse d'argon. Dans ces expériences, aucun champ n'est appliqué, dans la zone d'extraction. Par contre, il y en a un, dans la zone d'accélération. Une partie des résultats, que nous avons obtenus, est présentée sur la Figure 1.14. Cette figure montre trois graphes sur lesquels nous observons l'impact du faisceau d'ions  $H^+(H_2O)_2$  (entouré en rouge), sur le détecteur. Les autres impacts présents, sur l'ensemble de la surface de détection, sont associés à du bruit ou aux produits de dissociation de cet ion précurseur (entourés en bleu et en vert). Chaque graphe est le résultat d'une expérience pour un lot d'évènements, compris entre 6 000 et 60 000 évènements, dans laquelle nous avons appliquée une tension spécifique au pusher.

Dans nos mesures, la tension du pusher est donnée par rapport à une référence. En effet, celui-ci est placé dans la zone de « vol libre » où la tension de l'ensemble des électrodes est à - 1700 V (cf. paragraphe 3.1). De plus, cette tension est la même, dans toutes les expériences que nous utilisons, pour effectuer cette calibration. Par conséquent, elle sert de référence et nous permet de définir un autre paramètre plus pertinente, notée  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$ , sur la Figure 1.14. Ce paramètre varie uniquement avec la tension appliquée au pusher et est directement associée à la valeur du champ électrique, produit par la différence de potentiel entre celui-ci et la zone de vol libre.

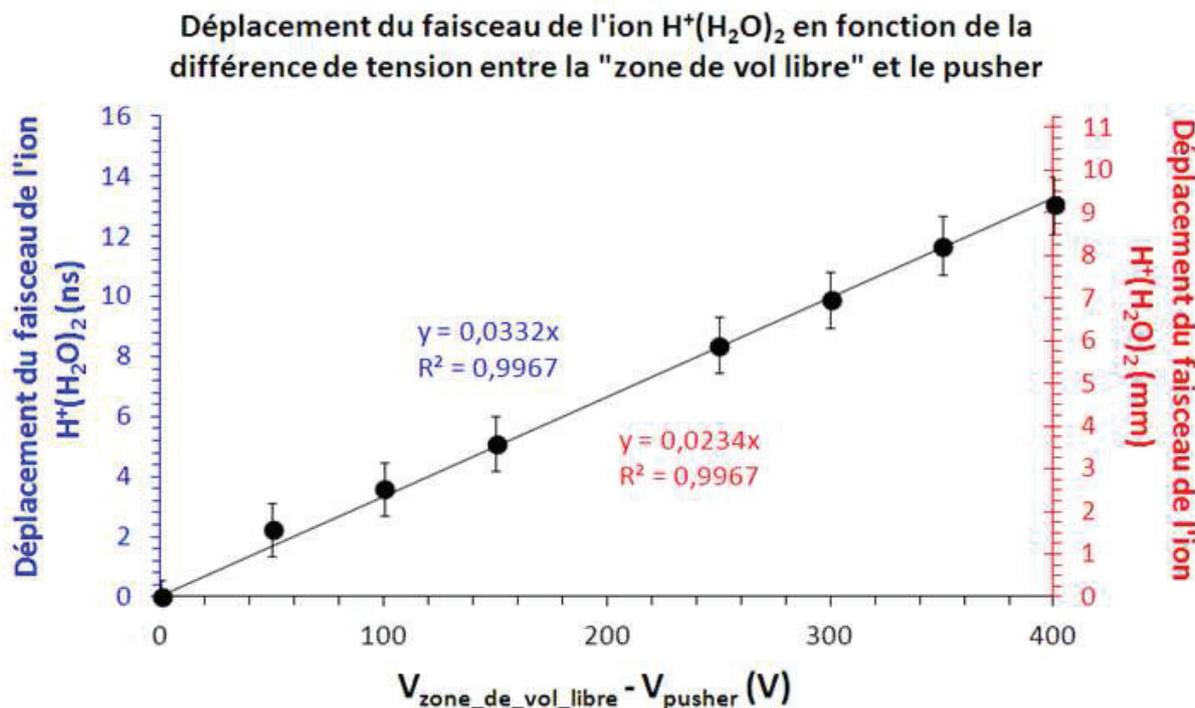
Le graphe du haut montre l'impact du faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$  sur le détecteur, lorsque  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}} = 0$  V. Dans ce cas, le faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$  n'est pas dévié. Les autres graphes montrent l'impact de ce même faisceau d'ions, sur le détecteur, lorsque  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}} = 250$  V (graphe du milieu) et  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}} = 400$  V (graphe du bas). Dans ces deux situations, nous voyons que le faisceau est dévié. A travers l'observation de ces trois graphes, nous constatons que plus la valeur de  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$  est grande et plus le faisceau est dévié. De plus, nous remarquons que cette déviation se fait uniquement, sur l'axe vertical, vers le bas, car, dans cet exemple, nous utilisons un faisceau de cations et les valeurs de  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$  sont positives ou nulles.

Pour mesurer, la position de l'impact du faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$ , sur le détecteur, nous avons tracé, pour chaque graphe de la Figure 1.14, la distribution des positions horizontale et verticale. Ces positions sont données, en ns, via les différences de temps  $\Delta t_x$  et  $\Delta t_y$ . Elles peuvent être converties, en mm (cf. paragraphe 3.2). Comme la déviation se fait sur l'axe vertical, nous utiliserons uniquement ( $y$ ,  $\Delta t_y$ ), pour effectuer cette mesure.

Pour mesurer le déplacement de cet impact, nous définissons une référence. Cette référence est fixée par la position de l'impact du faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$ , dans le cas où celui-ci n'est pas dévié. Nous la notons ( $y_0$ ,  $\Delta t_{y0}$ ). Par conséquent, nous définissons le déplacement de la manière suivante :

$$\Delta y = y_0 - y \quad (1)$$

Avec  $y$  la position de l'impact du faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$ , sur le détecteur, pour une valeur de  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$ , donnée.



**Figure 1.15:** Courbe de calibration du pusher qui mesure, dans ce cas, le déplacement de l'impact du faisceau d'ions  $H^+(H_2O)_2$ , sur le détecteur. Ce déplacement est mesuré par rapport à la position de l'impact du faisceau d'ions  $H^+(H_2O)_2$ , dans la cas où celui-ci n'est pas dévié. Cette étude est effectuée pour différentes tensions appliquées sur le pusher. Les déplacements mesurés sont donnés en nanosecondes (axe en bleu à gauche) et en millimètres (axe en rouge à droite). Le passage d'une unité de mesure à l'autre se fait en utilisant la vitesse de propagation des électrons sur la DLA (cf. paragraphe 3.2).

En utilisant les expériences de CID du dimère d'eau protoné  $H^+(H_2O)_2$ , accélérés à 8 keV, sur une cible gazeuse d'argon, que nous avons faite pour des valeurs de  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$  comprises entre 0 et 400 V, nous traçons la courbe de calibration du pusher, présentée sur la Figure 1.15. Cette courbe montre comment se déplace l'impact du faisceau d'ions  $H^+(H_2O)_2$ , sur le détecteur, en fonction de  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$ . Ce déplacement est, à la fois, donné en ns (axe en bleu) et en mm (axe en rouge). Le graphe affiche également les erreurs de chaque mesure. Ces erreurs sont mesurées, à partir de l'écart-type des pics associés à l'impact, sur la distribution des positions verticales  $\Delta t_y$ .

Cette figure montre que le déplacement de cet impact évolue linéairement avec la valeur de  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$ . Lorsque nous appliquons une tension au pusher, un champ électrique est généré dans la zone de vol libre. Ce champ électrique est produit par la différence de potentiel entre la zone de vol libre et le pusher. Par conséquent, les fragments chargés, qui quittent la zone d'accélération et arrivent au niveau du pusher, sont soumis à ce champ. Ce qui entraîne leur déviation et a, pour conséquence de déplacer leur position d'impact, sur le détecteur. La tendance observée, sur la Figure 1.15, permet de dire que le champ électrique auquel sont soumis ces ions est uniforme. En effet, en prenant en compte cette hypothèse, nous pouvons montrer (ANNEXE A) que le déplacement  $\Delta y$  de l'impact produit par un ion de masse  $m$ , sur le détecteur, s'exprime de la manière suivante :

$$\Delta y = \frac{q \cdot (V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}) \cdot x^2}{4 \cdot T \cdot d} \quad (2)$$

Cette expression montre bien que le déplacement de l'impact évolue de manière linéaire avec  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$ . De plus, nous notons que le coefficient directeur de cette droite dépend de la charge  $q$  et de l'énergie cinétique  $T$ , de l'ion considéré, à la sortie de la zone d'accélération.

Pour un ion précurseur, qui ne se dissocie pas, nous pouvons montrer (ANNEXE B) que cette énergie cinétique s'exprime de la manière suivante :

$$T = q \cdot U_0 + q \cdot U_1 \quad (3)$$

Avec  $U_0$ , le potentiel qui permet d'accélérer les agrégats, produits par la source et  $U_1$ , celui qui permet de les accélérer de nouveau, dans la zone d'accélération du temps de vol linéaire.

La Formule (3) montre que l'énergie cinétique  $T$  ne dépend pas de la masse de l'ion précurseur. Par conséquent, en utilisant la même démarche, nous aurions obtenu la même courbe de calibration du pusher (Figure 1.15), en mesurant le déplacement de l'impact d'un faisceau d'ions précurseurs de masse différente.

Par ailleurs, en observant la Figure 1.14, nous constatons la présence d'autres zones d'impacts sur le détecteur. Ces zones d'impacts sont moins « marquées » que celle du faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$ . Nous en notons deux associées aux produits de dissociation de cet ion. Celle entourée en bleu est associée aux fragments neutres  $\text{H}_2\text{O}$ . Nous remarquons qu'elle reste toujours à la position de référence  $y_0$ , définie plus haut, et ceci quelque soit la valeur de  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$ . En effet, ces fragments ne sont pas déviés par le pusher. Celle entourée en vert est associée au faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})$ . Nous constatons que, pour une même valeur de  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$ , ce faisceau d'ions est plus dévié que le faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$ . En effet, le pusher dévie les fragments en fonction de leur énergie cinétique, comme le montre la Formule (2). Si le faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})$  est plus dévié que le faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$ , c'est que son énergie cinétique est plus faible.

De manière générale, nous pouvons montrer (ANNEXE C) que l'énergie cinétique d'un fragment chargé de masse  $m'$ , issu de la dissociation d'un ion précurseur de masse  $m$ , s'exprime de la manière suivante :

$$T' = \frac{m'}{m} q \cdot U_0 + q \cdot U_1 \quad (4)$$

En comparant, les Formules (3) et (4), nous voyons bien que  $T' < T$  car  $m' < m$ . Par conséquent, le faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})$  est toujours plus dévié que le faisceau d'ions  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_2$ , de l'axe du faisceau incident, car sa masse est plus faible.

Le pusher est un outil qui permet de séparer spatialement les ions en fonction de leur masse. Comme l'indique la Formule (2), cette séparation s'accroît lorsque nous augmentons la valeur de  $V_{\text{zone\_de\_vol\_libre}} - V_{\text{pusher}}$ . Nous observons ce comportement, sur les trois graphes, de la Figure 1.14. En effet, sur le graphe du haut, nous pouvons voir que l'impact des faisceaux

d'ions  $H^+(H_2O)_2$  et  $H^+(H_2O)$  se situe au même endroit sur le détecteur, lorsque  $V_{zone\_de\_vol\_libre} - V_{pusher} = 0$ . A travers les deux autres graphes (au milieu et en bas), nous voyons bien deux tâches déviées et espacées de plus en plus au fur et à mesure que  $V_{zone\_de\_vol\_libre} - V_{pusher}$  augmente.

## Conclusion

COINTOF est une technique de spectrométrie de masse MS/MS [3, 8].

Le premier spectromètre de masse est utilisé pour produire un faisceau d'agrégats intense sélectionnés en masse et en vitesse. Ce faisceau d'agrégats peut interagir avec un atome de gaz rare (Ar, He) ou un faisceau de proton. L'interaction, qui en résulte, peut provoquer leur dissociation ou leur multi-fragmentation [1, 2]. Les produits de dissociation sont analysés dans le second spectromètre de masse [3, 8].

Le second spectromètre de masse est un analyseur à temps de vol linéaire LTOF. C'est autour de celui-ci que s'est développée la méthode de détection COINTOF [3, 4, 5]. Il permet la mesure corrélée du temps de vol des fragments chargés et neutres issus de la dissociation ou de la multi-fragmentation d'un même ion précurseur.

L'originalité de cette méthode est qu'elle permet de collecter, sur un même détecteur, les fragments chargés et neutres, issus de la dissociation d'un ion précurseur. De plus, elle permet de traiter et d'enregistrer ces processus de dissociation agrégat par agrégat. Ainsi, à la fin d'une expérience, il est possible d'obtenir une distribution statistique des paramètres physiques associée à un lot d'évènements (typiquement entre 1 000 et 100 000 évènements) tout en conservant la corrélation sur les caractéristiques des fragments issus d'un même agrégat.

Par ailleurs, pour un ion précurseur donné, il existe plusieurs canaux de dissociation. Chacun d'entre eux est caractérisé par la nature du fragment chargé produit. Ces différents canaux sont mis en avant de deux manières : la séparation temporelle et la séparation spatiale des produits de dissociation. La séparation temporelle des produits de dissociation permet d'obtenir le spectre de masse des fragments chargés, à partir de l'analyse d'un grand nombre d'évènements. La séparation spatiale des produits de dissociation se fait en utilisant le pusher qui va dévier les fragments chargés en fonction de leur masse.

Le choix du détecteur MCP-DLA [6, 7] suit la stratégie que nous avons développée. En effet, la séparation temporelle est spécifique au MCP [6] dont le but est de détecter les fragments et de déterminer leurs instants d'arrivée sur la surface de détection. La séparation spatiale est une fonction assurée par la DLA [7], dont le rôle est de mesurer la position des zones d'impacts de chaque fragment.

## Sommaire

Chapitre 1 : La méthode de détection COINTOF (CORrelated Ion and Neutral Time Of Flight) .....	13
1. Principe de la méthode de détection COINTOF .....	13
2. Production et sélection des ions précurseurs .....	14
3. Le système de détection COINTOF .....	17
3.1. Spectromètre à temps de vol linéaire .....	17
3.2. Le système de détection MCP-DLA .....	20
3.2.1. Description du système de détection MCP-DLA .....	20
3.2.2. Exemple de signaux .....	21
3.2.3. Corrélation entre le signal Galette et le signal des fils pour la détection d'une seule particule .....	22
4. Exemples de mesures .....	27
4.1. Spectre de masse .....	27
4.2. Calibration du pusher .....	29

## Table des figures

Figure 1.1 : Principe de la méthode de détection COINTOF [3].	14
Figure 1.2: Le spectromètre de masse doublement focalisant.	15
Figure 1.3: Photo du LTOF [3].	17
Figure 1.4: Les trois zones du LTOF [3].	19
Figure 1.5 : Signaux produits en sortie du détecteur MCP-DLA après impact d'une particule.	20
Figure 1.6 : Exemple de Signal Galette.	21
Figure 1.7 : Exemple de signaux fils.	22
Figure 1.8: Image du bruit sur le détecteur MCP-DLA, obtenue après un long comptage avec ses projections verticale (TFil2-TFil4 en ns) et horizontale (TFil1-TFil3 en ns).	23
Figure 1.9: Mesure du temps (ns) du Pulse Galette et des pulses fils, effectuée pour 18 zones d'impacts sélectionnées, le long de la diagonale principale du système de détection.	24
Figure 1.10: Intervalle de temps du pulse de chaque signal, associé à l'impact d'une particule, sur le détecteur MCP-DLA.	25
Figure 1.11: Mesure du temps (ns) du Pulse Galette et de la moyenne des temps (ns) des pulses associés à un même fil (réseau horizontal et vertical), effectuée pour 18 zones d'impacts sélectionnées, sur le système de détection.	26
Figure 1.12: Schéma du dispositif COINTOF [10].	27
Figure 1.13 : Spectre de masse des fragments chargés obtenu avec la méthode COINTOF, dans le cas d'une expérience de CID du trimère d'eau protoné $H^+(H_2O)_3$ accéléré à 8 keV, sur un atome d'argon (à gauche) [3]. Les évènements de dissociation à partir desquels ce spectre de masse est obtenu (à droite).	28
Figure 1.14: Impact du faisceau d'ions $H^+(H_2O)_2$ (entouré en rouge), sur le détecteur, obtenu pour différentes tensions de pusher, données par rapport à la tension de vol libre. Trois cas sont présentés : un pour $V_{zone\_de\_vol\_libre} - V_{pusher} = 0V$ (en haut), un autre pour $V_{zone\_de\_vol\_libre} - V_{pusher} = 250V$ (au milieu) et un dernier pour $V_{zone\_de\_vol\_libre} - V_{pusher} = 400V$ (en bas). Chaque graphe affiche la distribution des positions horizontales et verticales. Ces positions sont mesurées respectivement avec les différences de temps $\Delta t_x$ et $\Delta t_y$ , en ns, définies dans le paragraphe 3.2. Les impacts (entourés en bleu et en vert) sont associés aux produits de dissociation de l'ion $H^+(H_2O)_2$ , respectivement $H_2O$ et $H^+(H_2O)$ .	30
Figure 1.15: Courbe de calibration du pusher qui mesure, dans ce cas, le déplacement de l'impact du faisceau d'ions $H^+(H_2O)_2$ , sur le détecteur. Ce déplacement est mesuré par rapport à la position de l'impact du faisceau d'ions $H^+(H_2O)_2$ , dans la cas où celui-ci n'est pas dévié. Cette étude est effectuée pour différentes tensions appliquées sur le pusher. Les déplacements mesurés sont donnés en nanosecondes (axe en bleu à gauche) et en millimètres (axe en rouge à droite). Le passage d'une unité de mesure à l'autre se fait en utilisant la vitesse de propagation des électrons sur la DLA (cf. paragraphe 3.2).	32

## Bibliographie du chapitre 1

- [1] F. Gobet, *Fragmentation de molécules et d'agrégats moléculaires induite par collision avec un atome à haute vitesse (vitesse relative de l'ordre de  $c/100$ )*, Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1 (2001)
- [2] Z. P. Wang, P. M. Dinh, G. Bruny, C. Montano, S. Feil, S. Eden, H. Abdoul-Carime, B. Farizon, M. Farizon, S. Ouaskit, T. D. Mark, P.-G. Reinhard, E. Suraud, *Microscopic studies of atomic collision with water*, Intern. Journ. of Mass Spectr. 285, Pages 143–148 (2009)
- [3] C. Teyssier, *Spectrométrie de masse COINTOF : Conception d'un analyseur à temps de vol et développement de la méthode d'analyse*, Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1 (2012)
- [4] G. Bruny et al, *A new experimental setup designed for the investigation of irradiation of nanosystems in the gas phase: A high intensity mass-and-energy selected cluster beam*, Rev. Sci. Instr. 83, 013305 (2012)
- [5] M. Farizon, B. Farizon, H. Abdoul-Carime, G. Bruny, S. Eden, S. Feil, C. Montano, *Method for tandem time of flight analysis and analysis appliance using said method (EN). / Procédé d'analyse à temps de vol en tandem et appareil d'analyse en faisant application (FR)*. Université Claude Bernard Lyon 1, Dépôt de brevet n° 09 58991 du 15 Décembre 2009, PCT/FR2010/052733 patent ; Jul, 7 2011: WO 2011/080455
- [6] *MCP & MCP Assembly*, Selection Guide Hamamatsu
- [7] Notice Roentdek <http://www.roentdek.com/>
- [8] G. Bruny, *Production et caractérisation d'agrégats moléculaires protonés contenant un nombre donné de molécules d'eau auprès du dispositif DIAM*, Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1 (2010)
- [9] W.C. Wiley, I.H. Mc Laren, *Time of Flight Mass Spectrometer with Improved Resolution*, Rev. Sci. Instrum., 26 1150 (1955)
- [10] F. Berthias, *Collision-induced dissociation cross sections of protonated water clusters*, Rapport de stage M2 Pro Physique Médicale (2013)

## Annexes du chapitre 1

ANNEXE A : Déplacement de l'impact d'un faisceau d'ions précurseurs de masse  $m$ , sur le détecteur.

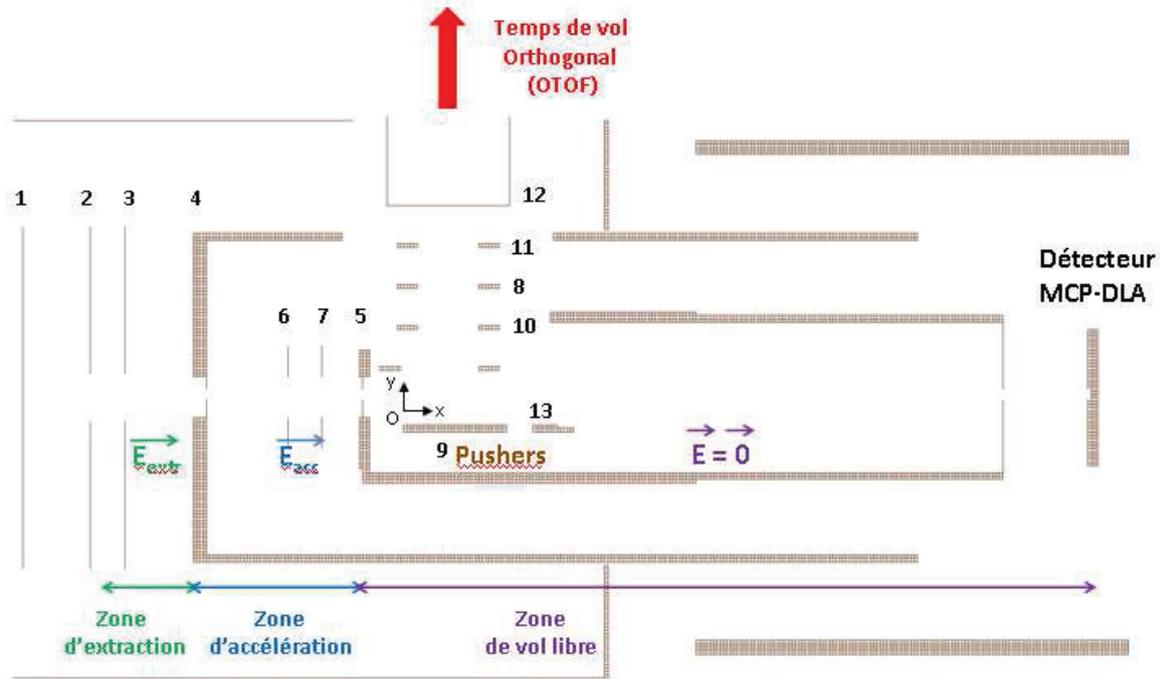


Figure A1 : Les trois zones du LTOF.

La vitesse initiale des ions précurseurs, à la sortie de la zone d'accélération, est orientée suivant l'axe  $O_x$  et est noté  $v_0$ . L'origine des axes est fixée par la position de l'ion précurseur, lorsque celui-ci est à l'entrée du pusher. Par conséquent, d'après la relation fondamentale de la dynamique, nous pouvons écrire les équations suivantes :

$$m \cdot \frac{d^2x}{dt^2} = 0 \quad (\text{A1.1})$$

$$m \cdot \frac{d^2y}{dt^2} = qE \quad (\text{A1.2})$$

Avec  $m$  la masse de l'ion précurseur et  $q$  sa charge.

Ces deux équations, nous amène aux résultats suivants :

$$x = v_0.t \quad (A2.1)$$

$$y = \frac{q.E.t^2}{2.m} = \frac{q.E.x^2}{2.m.(v_0)^2} \quad (A2.2)$$

Avec x et y les positions horizontale et verticale de l'ion, t le temps et E la valeur du champ électrique produit par la différence de potentiel entre le pusher et la zone de vol libre.

Si nous émettons l'hypothèse que le champ électrique E est uniforme, dans cette zone, alors il est possible de l'exprimer de la manière suivante :

$$E = -\frac{(V_{Zone\_de\_vol\_libre} - V_{pusher})}{d} \quad (A3)$$

Avec d la distance qui sépare le pusher de l'électrode mise à la tension de vol libre.

En reprenant, les Formules (A2.2) et (A3), nous pouvons exprimer la position y de la manière suivante :

$$y = -\frac{q.(V_{Zone\_de\_vol\_libre} - V_{pusher}).x^2}{2.m.d.(v_0)^2} \quad (A4)$$

Nous mettons notre position de référence  $y_0$  à 0. Par conséquent, à partir de la Formule (A4), nous pouvons en déduire l'expression du déplacement de l'impact  $\Delta y$  :

$$\Delta y = \frac{q.(V_{Zone\_de\_vol\_libre} - V_{pusher}).x^2}{4.T.d} \quad (A5)$$

## ANNEXE B : Energie cinétique d'un ion précurseur de masse $m$ , à la sortie de la zone d'accélération du temps de vol linéaire.

A la sortie de l'aimant, l'ion précurseur est sélectionné en masse et en vitesse (cf. paragraphe 2). A cet endroit du dispositif, son énergie cinétique  $T_{init}$  peut s'exprimer de la manière suivante :

$$T_{init} = q.U_0 \quad (B1.1)$$

Où  $U_0$  est le potentiel d'accélération des agrégats produits par la source puis sélectionnés en masse et en vitesse.

De la Formule (B1.1), nous pouvons en déduire la vitesse initiale de cet ion précurseur :

$$v_{init} = \sqrt{\frac{2.q.U_0}{m}} \quad (B1.2)$$

Comme cet agrégat parent ne s'est pas dissocié, dans la chambre de collision, il traverse la zone d'accélération du temps de vol linéaire. A sa vitesse de départ va alors s'ajouter une vitesse d'accélération. Nous notons  $U_1$ , le potentiel électrique qui permet cette accélération. Par conséquent, l'expression de sa vitesse devient :

$$v_0 = \sqrt{v_{init}^2 + v_{acc}^2} = \sqrt{\frac{2.q.U_0}{m} + \frac{2.q.U_1}{m}} \quad (B2.1)$$

A partir de cette vitesse, nous en déduisons son énergie cinétique  $T$ , à la sortie de la zone d'accélération :

$$T = q.U_0 + q.U_1 \quad (B2.2)$$

**ANNEXE C : Energie cinétique d'un fragment chargé de masse  $m'$ , issu de la dissociation d'un ion précurseur de masse  $m$ , à la sortie de la zone d'accélération du temps de vol linéaire.**

Après dissociation, le fragment chargé de masse  $m'$  récupère une partie de l'énergie cinétique de l'ion précurseur, de masse  $m$ , dont il est issu. Son énergie cinétique initiale peut s'exprimer de la manière suivante :

$$T'_{init} = \frac{m'}{m} \cdot q \cdot U_0 \quad (C1)$$

Par conséquent, à ce stade, ce fragment a exactement la même vitesse initiale que celle de l'ion précurseur.

Ensuite, ce fragment traverse la zone d'accélération du temps de vol linéaire : ce qui ajoute à sa vitesse initiale, une vitesse d'accélération. Par conséquent, l'expression de sa vitesse devient :

$$v'_0 = \sqrt{v_{init}^2 + v_{acc}^2} = \sqrt{\frac{2 \cdot q \cdot U_0}{m} + \frac{2 \cdot q \cdot U_1}{m'}} \quad (C2.1)$$

En comparant les formules (B2.1) et (C2.1), nous voyons que la vitesse du fragment chargé est plus grande que celle de l'ion précurseur, dont il est issu.

A travers la formule (C2.1), nous pouvons en déduire l'énergie cinétique de ce fragment :

$$T' = \frac{m'}{m} q \cdot U_0 + q \cdot U_1 \quad (C2.2)$$



# Chapitre 2 : Le système d'acquisition

## *Introduction*

Le système d'acquisition est conçu pour la méthode de détection COINTOF. Ce chapitre expose son fonctionnement. Plusieurs instruments de mesures sont utilisés pour exploiter l'information contenue dans les signaux délivrés par le détecteur [1].

Les différents instruments de mesure fonctionnent en parallèle et possèdent une fonction bien spécifique. En effet, certains enregistrent l'ensemble des événements, tout au long de l'expérience. D'autres se limitent aux événements d'un canal de dissociation spécifique. D'autres encore permettent de surveiller le fonctionnement du dispositif expérimental et du système de d'acquisition [1, 2]. Ce chapitre montre à quels instruments de mesure sont affiliées ces différentes tâches et la manière dont celles-ci sont effectuées.

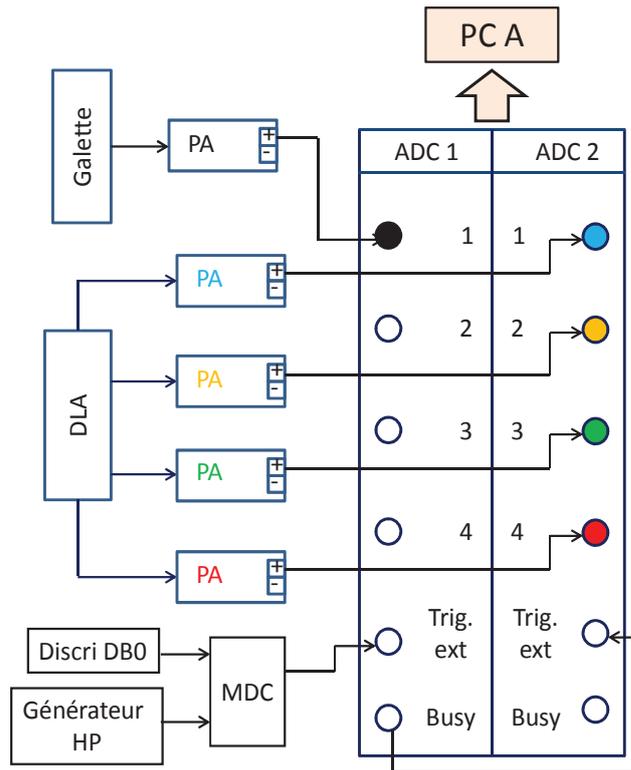
## **1. Electronique d'acquisition**

Le système d'acquisition est constitué de deux cartes ADC (Analog to Digital Converter) : ADC1 et ADC2, de deux cartes TDC (Time to Digital Converter) : TDCE et TDCL et d'une échelle de comptage : le Scaler. Chaque signal est dupliqué par un préamplificateur. Ceci permet de les traiter, d'une part, par les deux cartes ADC et, d'autre part, par un discriminateur. Le discriminateur fournit plusieurs voies de sortie utilisées pour la mesure des temps (TDC), le comptage (Scaler) ou la réalisation du signal de déclenchement (Trigger) [1,3].

L'objectif du système d'acquisition est d'enregistrer et d'étiqueter les signaux, à la sortie du détecteur, issus d'un même événement. Le traitement événement par événement est réalisé à partir d'un système de déclenchement adapté.

### **1.1. Les voies ADC**

L'ADC, Acqiris<sup>®</sup> [4], est un convertisseur analogique/numérique rapide. Il possède quatre entrées à 2 GHz. La carte ADC 1 est utilisée pour échantillonner un signal, à une fréquence de 8GHz/10bits, au moyen d'une seule voie. Ainsi, l'intervalle entre deux points d'échantillonnage est de 125 ps. La carte ADC2 est utilisée pour échantillonner quatre signaux, à une fréquence de 2GHz/10bits, au moyen de ses quatre voies. Ainsi, l'intervalle entre deux points d'échantillonnage est de 500 ps. Ces cartes enregistrent l'évolution temporelle du Signal Galette et de chaque signal fil, sur une fenêtre d'acquisition de taille donnée.



**Figure 2.1: Voies d'acquisition ADC.**

La Figure 2.1 montre un schéma des voies d'acquisition ADC. En sortie positive du préamplificateur, le Signal Galette est envoyé dans la première voie de la carte ADC 1. En sortie positive de leur préamplificateur respectif, les quatre signaux fils sont envoyés dans les quatre voies de la carte ADC 2. Le Signal Galette sera alors numérisé à 8 GHz et les signaux fils à 2 GHz chacun. Pour chaque signal, la numérisation se fera sur une durée préalablement réglée. Cette durée définit la largeur de leur fenêtre d'acquisition respective.

Nous souhaitons pouvoir enregistrer de manière sélective les signaux qui ont une structure temporelle particulière, comme par exemple, des signaux avec une différence de temps donnée entre le premier pulse et un autre pulse potentiellement présent dans la fenêtre d'acquisition. Pour se faire, chaque carte ADC dispose d'une voie (Trigger externe) qui permet le déclenchement de l'enregistrement par signaux externes.

Pour la carte ADC1, le déclenchement de l'enregistrement est effectué par un module de coïncidence (MDC), connecté en entrée au discriminateur DB0 et au générateur HP et en sortie à la voie Trigger externe. Le signal de la voie Trigger externe est adapté à la structure temporelle des événements recherchés. Dans notre cas, c'est un pulse généré par le MDC.

A chaque acquisition, la carte ADC1 génère également un pulse dans le signal Busy. Ce signal Busy est envoyé au Trigger externe de la carte ADC2. De ce fait, il déclenche l'enregistrement de l'évènement sur cette carte. Ainsi, au moyen des deux cartes, pour chaque

évènement recherché, les cinq signaux de sortie du détecteur MCP-DLA sont enregistrés, étiquetés et envoyés au PC A.

## 1.2. Les voies TDC et comptages

La carte TDC, Roentdek<sup>®</sup> [5], est équipée de huit voies. Chacune de ces voies peut enregistrer 16 pulses au maximum, sur un signal de durée préalablement réglée. Pour chaque pulse de chaque voie, il mesure un temps d'arrivée, avec une précision de 25 ps.

L'échelle de comptage : le Scaler est une carte PCI, qui possède huit voies de comptage indépendantes.

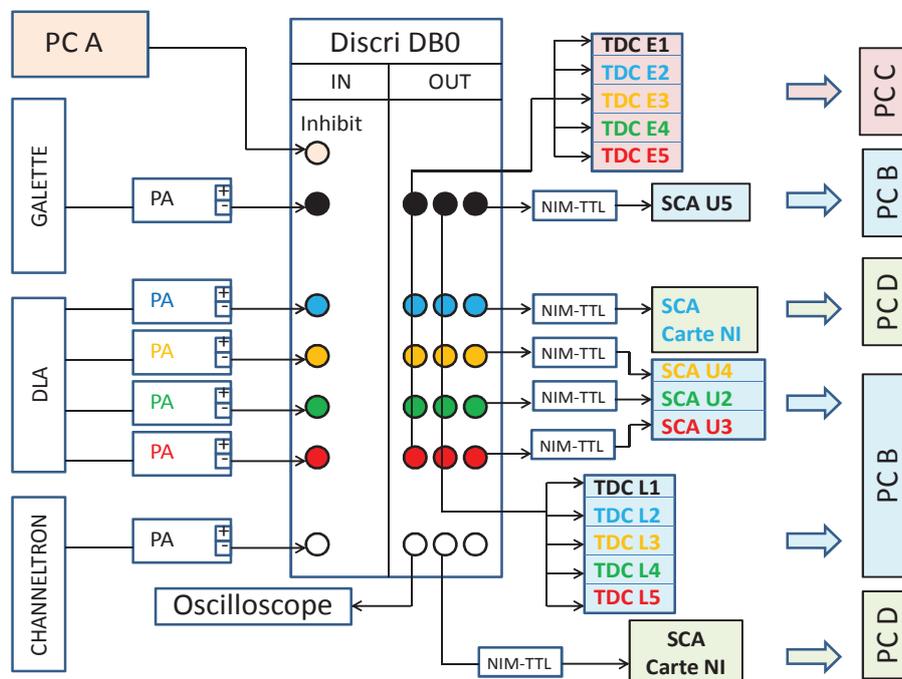


Figure 2.2: Voies TDC et comptage.

La Figure 2.2 montre un schéma des voies TDC et comptage. En sortie négative de leur préamplificateur respectif, chaque signal est envoyé dans une voie en entrée du discriminateur DB0. Ce discriminateur possède un seuil en amplitude et génère, pour chaque signal en entrée, un signal en sortie, qui ne contient que des pulses. Un pulse est généré, par le discriminateur DB0, lorsqu'un pulse du signal en entrée dépasse le seuil en amplitude. Les signaux en sortie sont envoyés dans les voies des deux cartes TDC : la carte TDCE et la carte TDCL et aux voies d'une échelle de comptage : le Scaler.

Les huit voies du Scaler mesurent, respectivement, l'intensité du faisceau : le nombre de pulses dans le Signal Galette, le nombre de pulses trigger G&D, le nombre de pulses Busy

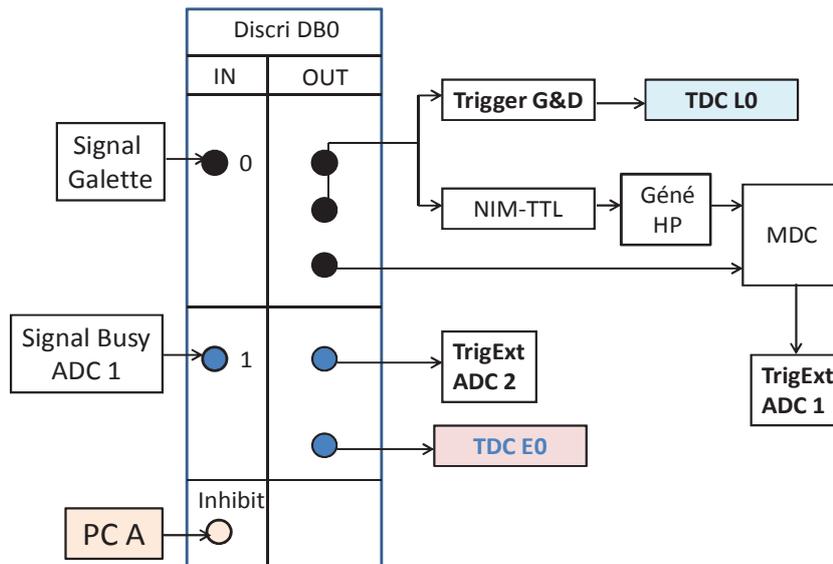
générés par la carte ADC1, le nombre de pulses dans le signal Fil 1, le nombre de pulses dans le signal Fil 2, le nombre de pulses dans le signal Fil 3, le nombre de pulses dans le signal Fil 4, le nombre de pulses associé au temps entre deux itérations et le nombre de pulses associé au temps d'une itération. Le Scaler est également géré par le PC B.

La carte TDCE, pour TDC « esclave », prend en compte les évènements, pour lesquels la carte ADC 1 a déclenché un enregistrement. Pour chacun de ces évènements, elle mesure le temps d'arrivée des pulses, sur le Signal Galette, à travers le canal TDCE1 et le temps d'arrivée des pulses, sur le signal de chaque fil, à travers les canaux TDCE2, TDCE3, TDCE4 et TDCE5. Ces temps d'arrivée sont mesurés, par rapport à une référence commune (cf. paragraphe 1.3). Cette carte est gérée par le PC C.

La carte TDCL, pour TDC « libre », possède la même fonction. Toutefois, elle prend également en compte les évènements, qui ne sont pas pris en compte par les cartes ADC. De la même manière, elle mesure le temps d'arrivée des pulses, sur le Signal Galette, à travers le canal TDCL1 et le temps d'arrivée des pulses, sur chaque signal fil, à travers les canaux TDCL2, TDCL3, TDCL4 et TDCL5. Ces temps d'arrivée sont mesurés, par rapport à une référence commune (cf. paragraphe 1.3). Cette carte est gérée par le PC B.

### *1.3. Déclenchement de l'enregistrement d'un évènement*

Le déclenchement de l'enregistrement d'un évènement s'effectue, pour chaque instrument de mesure, au moyen d'un signal de déclenchement appelé trigger. Toutefois, ces instruments ne prennent pas tous en compte les mêmes évènements. C'est pourquoi, nous avons conçu un système de déclenchement adapté à l'enregistrement des évènements de chaque appareil de mesure.



**Figure 2.3: Production des signaux de déclenchement de chaque module d'acquisition.**

La Figure 2.3 schématise la production des signaux de déclenchement de chaque module d'acquisition.

La carte ADC 1 peut être utilisée pour enregistrer le Signal Galette associé aux évènements d'un canal de dissociation spécifique : c'est-à-dire des évènements avec une différence de temps donnée entre le premier et second pulse détecté. Le Signal Galette est envoyé dans l'une des voies en entrée du discriminateur DB0. Si les deux pulses détectés dépassent le seuil en amplitude du discriminateur alors celui va générer en sortie deux pulses respectifs. La différence de temps entre ces pulses restent conservée. Le signal en sortie du discriminateur est envoyé sur deux périphériques : le module de coïncidence MDC et un générateur HP. Ce générateur est déclenché par le premier pulse du signal en sortie du discriminateur. Il génère alors une porte, dont la taille est réglée en fonction de la structure temporelle des évènements recherchés. Ce signal créneau est ensuite envoyé dans la seconde entrée du module de coïncidence. Le module de coïncidence générera en sortie un pulse, si, au moins, un des pulses du signal en sortie du discriminateur se trouve à l'intérieur de la porte produite par le générateur HP. Le signal en sortie du module de coïncidence est envoyé dans la voie Trigger externe de la carte ADC 1. Celle-ci déclenche l'enregistrement d'un évènement, à chaque fois que le module de coïncidence génère un pulse.

A chaque acquisition, la carte ADC 1 génère un pulse dans le signal Busy. Ce signal Busy passe par une voie en entrée du discriminateur DB0 pour être envoyé, en sortie, sur la voie Trigger externe de la carte ADC 2 et le canal TDCE0, de la carte TDCE. Par conséquent, à chaque acquisition de la carte ADC 1, le pulse Busy généré déclenche l'enregistrement d'un

évènement sur la carte ADC 2 et sur la carte TDCE. Le temps de ce pulse est mesuré à travers le canal TDCE0 et sert de référence aux temps d'arrivée mesurés à travers les autres canaux de cette même carte. De cette manière, les cartes ADC 1, ADC 2 et TDCE prennent en compte les mêmes évènements.

De plus, le Signal Galette, en sortie du discriminateur DB0, est également envoyé vers un générateur de Gate and Delay. Ce générateur est déclenché par le premier pulse de ce signal. Il délivre une porte, décalé en temps. Cette porte joue le rôle de trigger externe pour la carte TDCL. Le temps de ce pulse est mesuré à travers le canal TDCL0 et sert de référence aux temps d'arrivée mesurés à travers les autres canaux de cette même carte. Ce signal de déclenchement n'est pas associé au signal Busy de la carte ADC 1. C'est pourquoi, le TDCL prend en compte également les évènements autres que ceux pour lesquels les cartes ADC et la carte TDCE ont déclenché un enregistrement.

## 2. Positionnement des fenêtres d'enregistrement du système d'acquisition

L'enregistrement d'un évènement par la carte ADC 1 peut se faire suivant deux modes possibles : le mode Simple Déclenchement (SD) ou le mode Double Déclenchement (DD). Pour ces deux modes, la condition de sélection des signaux en sortie du détecteur MCP-DLA est l'amplitude du pulse à l'origine du déclenchement (SOD) sur le Signal Galette.

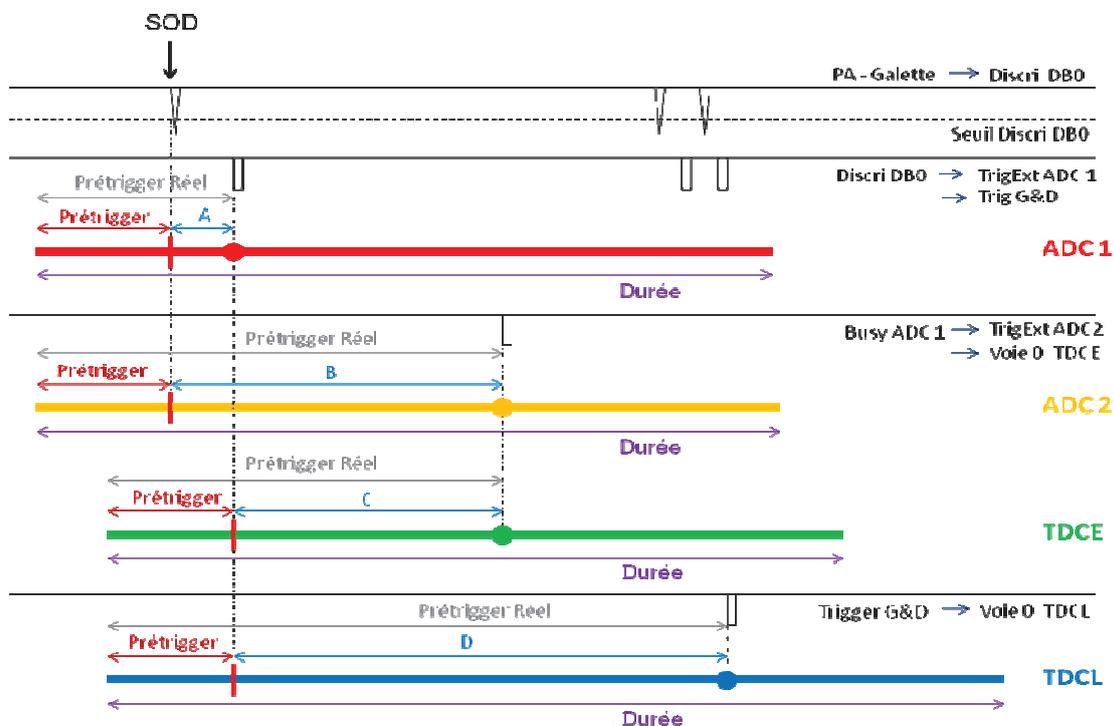


Figure 2.4: Positionnement de la fenêtre d'enregistrement par rapport au signal à l'origine du déclenchement, pour chaque voie d'acquisition, en mode SD.

La Figure 2.4 montre le positionnement de la fenêtre d'enregistrement par rapport au SOD, pour chaque voie d'acquisition, lorsque la carte ADC 1 fonctionne en mode SD. A la sortie du préamplificateur, le Signal Galette, schématisé en haut sur la Figure 2.4, est envoyé dans une des voies en entrée du discriminateur DB0. Ce signal possède trois pulses. Dans ce mode de déclenchement, le premier pulse détecté est le SOD. Sur la Figure 2.4, nous montrons que chaque pulse dépasse le seuil en amplitude du discriminateur. C'est pourquoi, trois pulses sont présents dans le signal en sortie de celui-ci. Les pulses produits par le discriminateur sont légèrement retardés par rapport à ceux du Signal Galette. Ce retard est noté A sur la Figure 2.4. Le SOD, sur le signal en sortie du discriminateur, déclenche l'enregistrement de l'évènement sur la carte ADC 1. L'instant de déclenchement de ce pulse sert de référence en temps (point rouge) pour positionner la fenêtre d'enregistrement de l'évènement de la carte ADC 1 (trait horizontal rouge). Ce positionnement se fait au moyen de deux paramètres : le prétrigger réel et la durée. Le prétrigger réel fixe la durée de l'enregistrement de l'évènement avant le pulse de déclenchement et pose l'origine des temps de la fenêtre d'enregistrement de la carte ADC 1. La durée définit la largeur de cette fenêtre. Cette largeur est réglée en fonction de la structure temporelle des évènements recherchés.

De plus, à chaque acquisition la carte ADC 1 génère un pulse dans son signal Busy. Ce signal Busy est envoyé dans la voie Trigger Externe de la carte ADC 2. Le pulse Busy permet alors le déclenchement de l'enregistrement sur la carte ADC 2. L'instant de déclenchement de ce pulse sert de référence en temps (point jaune) pour positionner la fenêtre d'enregistrement de cette carte (trait horizontal jaune). Ce positionnement se fait également au moyen de deux paramètres : le prétrigger réel et la durée. Comme, pour la carte ADC 1, le prétrigger réel fixe la durée de l'enregistrement de l'évènement avant le pulse de déclenchement : ici le pulse busy et pose l'origine des temps de la fenêtre d'enregistrement de la carte ADC 2. La durée définit sa largeur. Dans la stratégie adoptée, nous avons réglé le prétrigger réel pour que l'origine des temps des fenêtres d'enregistrement des cartes ADC 1 et ADC 2 soit commune et la durée pour que ces mêmes fenêtres soient de la même taille.

Le signal Busy de la carte ADC 1 est également envoyé dans le canal TDCE0 de la carte TDCE. Le pulse Busy joue également le rôle de trigger externe, pour cette carte. L'instant de déclenchement de ce pulse sert de référence en temps (point vert) pour positionner la fenêtre d'enregistrement de cette carte (trait horizontal vert). Ce positionnement se fait également en utilisant un prétrigger réel et une durée. Le prétrigger réel fixe la durée de l'enregistrement de l'évènement avant le pulse de déclenchement : ici le pulse busy et pose l'origine des temps de la fenêtre d'enregistrement de la carte TDCE. La durée définit sa largeur. La durée de cette fenêtre est identique à celle des deux cartes ADC. Toutefois, contrairement aux cartes ADC qui enregistrent les signaux galette et fils en sortie du préamplificateur, les cartes TDC mesurent le temps d'arrivée des pulses de ces signaux en sortie du discriminateur DB0. Par conséquent, le prétrigger réel est réglé de manière à ce que l'origine de la fenêtre d'enregistrement de la carte TDCE soit décalée de A par rapport à l'origine des fenêtres d'enregistrement des cartes ADC. De cette manière, l'évènement pris en compte par la carte TDCE est le même que celui pris en compte par les cartes ADC, malgré le décalage de sa fenêtre d'enregistrement.

Le Signal Galette, en sortie du discriminateur DB0, est envoyé dans un générateur Gate and Delay. Le premier pulse de ce signal déclenche le générateur. Celui-ci va générer une porte appelée Trigger G&D. Ce signal est envoyé dans la voie TDL0 du TDCL. Le pulse Trigger G&D joue le rôle de trigger externe, pour cette carte. L'instant de déclenchement de ce pulse sert de référence en temps (point bleu) pour positionner la fenêtre d'enregistrement de cette carte (trait horizontal bleu). Ce positionnement se fait également au moyen d'un prétrigger réel et d'une durée. Le prétrigger réel fixe la durée de l'enregistrement de l'évènement avant le pulse de déclenchement : ici le pulse Trigger G&D et l'origine des temps de la fenêtre de déclenchement. Le prétrigger réel de cette carte est réglé de manière à ce que l'origine des fenêtres d'enregistrement des deux cartes TDC soit identique. En revanche, la durée de cette fenêtre est plus longue que celle des autres cartes. Ceci permet au TDCL de prendre en compte les évènements qui ne sont pas enregistrés, par les cartes ADC et TDCE et pour lesquels la différence de temps entre le premier et le second fragment détecté est plus grande.

Par ailleurs, sur la Figure 2.4, nous montrons, pour chaque instrument de mesure, que le prétrigger réel est réglé à partir de deux paramètres : le prétrigger et la différence de temps entre le pulse de déclenchement et le SOD (A, B, C et D). La valeur du prétrigger est saisie et mise à la même valeur pour les cartes ADC et TDC. Les différences de temps A, B, C et D sont des paramètres « transparentes », prises en compte, dans les programmes associés à chacun de ces instruments.

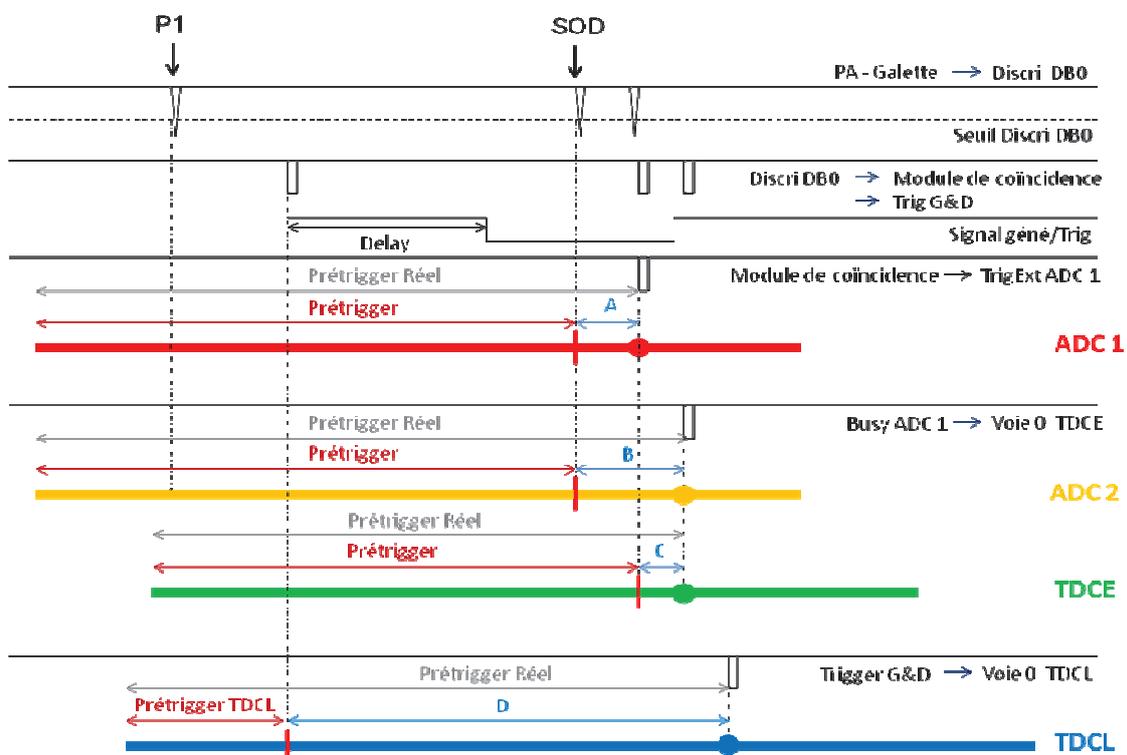


Figure 2.5: Positionnement de la fenêtre d'enregistrement par rapport au signal à l'origine du déclenchement, pour chaque voie d'acquisition, en mode DD.

La Figure 2.5 montre le positionnement de la fenêtre d'enregistrement par rapport au SOD, pour chaque voie d'acquisition, lorsque la carte ADC 1 fonctionne en mode DD. Le Signal Galette, en sortie du préamplificateur, est envoyé dans l'une des voies en entrée du discriminateur DB0. Dans cet exemple, ce signal possède trois pulses. Dans ce mode de déclenchement, le premier et le second pulse détecté sont respectivement P1 et le SOD. Sur la Figure 2.5, nous montrons que chaque pulse dépasse le seuil en amplitude du discriminateur. C'est pourquoi, trois pulses sont présents dans le signal en sortie de celui-ci. Les pulses produits par le discriminateur sont légèrement retardés par rapport à ceux du Signal Galette. Ce retard est noté A sur la Figure 2.5. Ce signal est envoyé sur un générateur HP et en entrée d'un module de coïncidence. Le générateur HP est déclenché par le pulse P1 du signal en sortie du discriminateur. Il génère alors une porte d'une certaine longueur et à un certain delay de celui-ci. La longueur et le delay de cette porte est réglée en fonction de la structure temporelle des évènements recherchés. De plus, ce signal porte est également envoyé en entrée module de coïncidence. Le module de coïncidence va alors générer un pulse que si le SOD, en sortie du signal du discriminateur, est situé dans la porte produite par le générateur HP. Ce pulse déclenche alors l'enregistrement de l'évènement sur la carte ADC 1. L'instant de déclenchement de ce pulse sert de référence en temps (point rouge) pour positionner la fenêtre d'enregistrement de la carte ADC 1. Comme pour le mode SD, ce positionnement se fait au moyen du prétrigger réel et de la durée. Le prétrigger réel fixe la durée de l'enregistrement de l'évènement avant le pulse de déclenchement et l'origine des temps. La durée définit la taille de la fenêtre. Cette taille est également réglée en fonction de la structure temporelle des évènements recherchés.

Pour les autres appareils de mesure, le positionnement des fenêtres d'enregistrement se fait exactement de la même manière que dans le mode SD de la carte ADC 1. En effet, les signaux de déclenchement restent les mêmes. Le prétrigger réel de la carte ADC 2 est réglé de manière à ce que l'origine des temps de sa fenêtre d'enregistrement soit la même que celle de la carte ADC 1, de même pour sa durée. La fenêtre d'enregistrement de la carte TDCE est de la même taille que celle des cartes ADC. Son origine des temps est retardée de A car cette dernière prend en compte les signaux en sortie du discriminateur et non les signaux en sortie des préamplificateurs comme le font les cartes ADC.

Malgré les analogies, la Figure 2.5 montre que la valeur du prétrigger (délimité par les flèches rouge) change d'un mode à un autre. En effet, elle est toujours identique mais plus longue pour les cartes ADC 1, ADC 2 et TDCE car le SOD est le second pulse détecté. En revanche, la valeur de prétrigger reste la même pour la carte TDCL quelque soit le mode de la carte ADC 1. En effet, pour cette carte, ce paramètre ne se réfère pas au SOD mais au pulse P1. Par conséquent, elle garde toujours la même configuration. C'est pourquoi, l'origine des temps de la fenêtre des deux cartes TDC n'est pas forcément la même, en mode DD.

### 3. Structuration de la prise de données

Pour effectuer l'acquisition, nous utilisons quatre PC. Le premier : le PC A (dit PC maître) gère les deux cartes ADC et l'ensemble des PC d'acquisition. Il prend l'intégralité du signal d'un évènement provenant des deux galettes MCP et de la DLA, dans une fenêtre d'acquisition donnée. Les cartes ADC peuvent être utilisées en vue de ne prendre que des évènements avec une structure temporelle particulière. Le second : le PC B gère la carte TDCL et le Scaler. Dans la fenêtre d'acquisition, il prend tous les temps d'arrivée sur les deux galettes MCP et la DLA. Les évènements pris en compte par le TDCL ne sont pas forcément associés à ceux enregistrés par les cartes ADC. Le troisième : le PC C gère la carte TDCE. Dans le fonctionnement, cette carte d'acquisition est dite « esclave » car elle prend en compte que les évènements pour lesquels les cartes ADC ont déclenché un enregistrement. Le quatrième : le PC D gère le contrôle commande de DIAM [1].

#### 3.1. Coordination des PC d'acquisition

Le PC A orchestre l'ensemble de la prise de données lors d'une acquisition. Il impose les phases d'initialisations, de comptage, d'écriture et de stop aux autres systèmes d'acquisitions. Il communique avec les différents ports parallèles des autres PC par l'intermédiaire du boîtier USB - NI 6008 qui fonctionne en TTL, comme les entrées-sorties des ports parallèles [1, 6]. Ce boîtier génère également le signal qui active le mécanisme d'« inhibit » discriminateur DB0 (Figure 2.3). De plus, la carte ADC 1 est couplée avec le PC C (Figure 2.3) par l'intermédiaire du signal Busy. L'objectif de ce chaînage est de pouvoir corrélérer les instants d'arrivées du fragment avec sa position spatiale sur le détecteur.

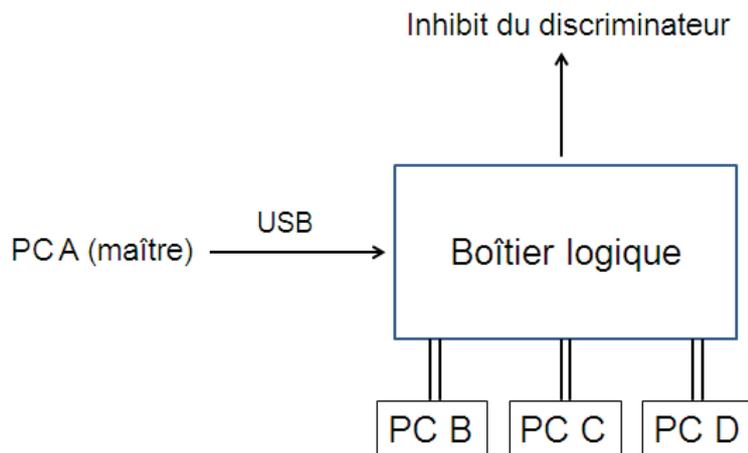


Figure 2.6: Coordination des PC d'acquisition via le Boîtier NI USB 6008.

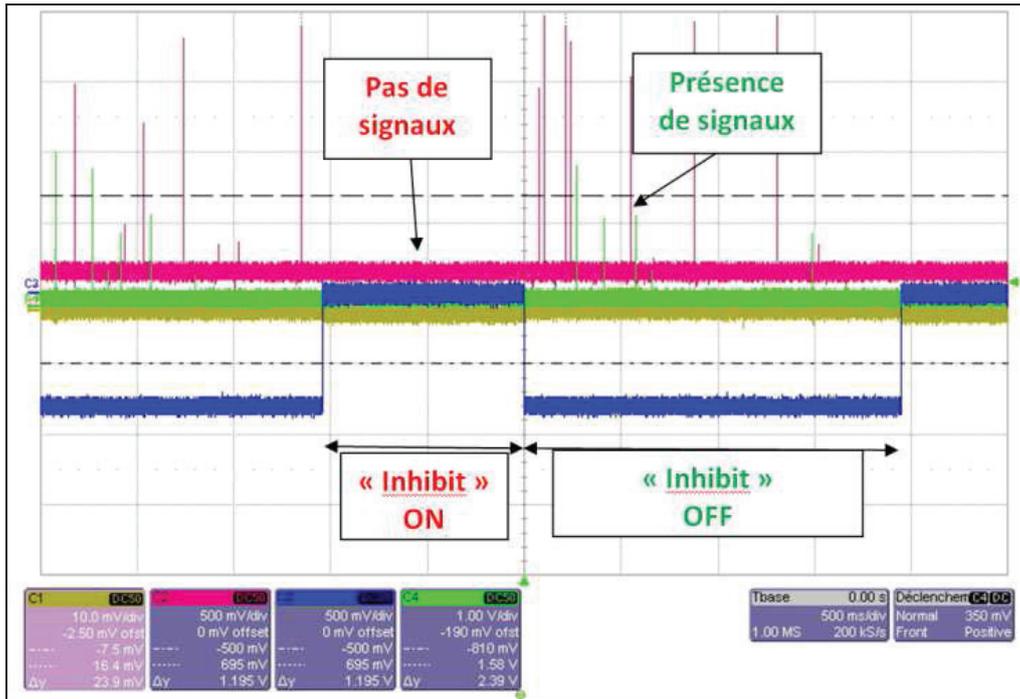
Comme le schématise la Figure 2.6, la communication entre les PC se fait par l'envoi et la réception de signaux à travers le Boîtier logique. Dans le système d'acquisition développé, chaque instrument possède son propre PC. La gestion de l'acquisition se fait via le PC A (PC maître). Les autres PC (PC B, PC C et PC D) sont dits esclaves de ce celui-ci. Ainsi lorsque le PC A est en phase de réception, les autres PC sont en phase d'envoi et inversement. L'envoi d'un signal est caractérisé par un changement d'état logique sur le boîtier USB, changement causé par un saut de tension de 0 à 5V [6].

### ***3.2. Les différentes phases d'une prise de données***

Compte-tenu de la durée d'une expérience (12 heures voire plus), il est nécessaire d'organiser la prise de données en une boucle de mesures effectuées sur des temps plus courts. La stratégie est d'enregistrer toutes les informations prises par les instruments par intervalle de temps régulier (typiquement 5 à 10 minutes) sous forme d'un bloc de données appelé itération. Ce découpage en bloc permet de gérer des fichiers de données modulaires de taille raisonnable et de contrôler la qualité des mesures au cours de l'expérience [3].

### ***3.3. Le rôle de l'inhibit***

L'inhibit est une fonction du discriminateur de la Figure 2.3. Il est activé par un signal en provenance du PC A. Il est utilisé pour découper l'acquisition en blocs appelés itérations. En effet, au cours d'une itération, l'inhibit est désactivé : ce qui permet d'avoir, en sortie du discriminateur, l'ensemble des pulses qui déclenchent les cartes ADC et TDC. Ainsi, l'acquisition des données « évènement par évènement » peut se faire. Lorsqu'un signal est placé en entrée de l'inhibit, le discriminateur bloque l'intégralité des signaux en sortie. Les différents périphériques d'acquisition ne reçoivent alors aucun signal de déclenchement sur leurs voies. L'activation de l'inhibit bloque le déclenchement de chaque module d'acquisition.

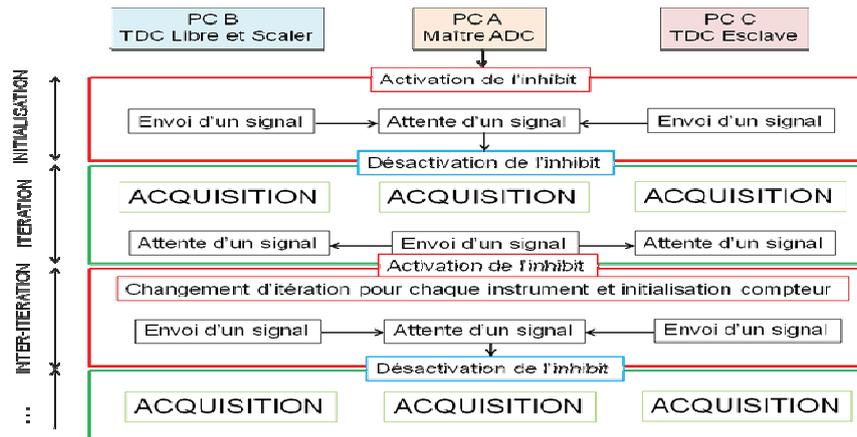


**Figure 2.7: Fonctionnement de l'inhibit permettant le découpage de l'acquisition en blocs appelés « itérations ». L'activation de l'inhibit bloque le déclenchement de chaque module d'acquisition [1].**

La Figure 2.7 montre que si le signal « inhibit » est à 0V, il n'y a plus de signaux de déclenchement, alors que ceux-ci sont observés quand le signal « inhibit » est à -0,5V.

### 3.4. Le fonctionnement de l'acquisition

La méthode, que nous avons développée [1, 3], se base sur des prises de données parallèles. L'idée-maître est que, chaque instrument (ADC, compteur, TDC) doit fonctionner au maximum de leur performance, mais dans une itération. Elle permet d'observer le même évènement de dissociation sous plusieurs angles complémentaires. C'est cette complémentarité, fournie par une acquisition corrélée, qui va fournir toute l'information sur la fragmentation de l'ion parent.



**Figure 2.8: Fonctionnement de l'acquisition [1].**

La Figure 2.8 illustre le fonctionnement de l'acquisition [1]. Le fonctionnement de l'acquisition débute par une phase d'initialisation des instruments de mesure. Cette phase est accomplie qu'une seule fois pour toute l'expérience. Le PC A commence par initialiser les différents ports de la carte NI, qui sert à la communication entre les PC. Il active l'inhibit sur le discriminateur DB0 et bloque tous les signaux de sortie. Ensuite, il envoie un fichier texte aux autres PC. Ce fichier contient la date et l'heure écrite sous cette forme AnnéeMoisJourHeureMinuteSeconde. Ce paramètre va servir à établir la corrélation entre les enregistrements de chaque appareil, en vue de regrouper les données de l'expérience enregistrées par les différents PC. A ce stade, les cartes ADC ont fini leur phase d'initialisation et se mettent en phase d'attente. Les autres appareils (cartes TDCE, TDCL et le Scaler) s'initialisent de manière indépendante. Lorsqu'ils sont prêts à compter, ils envoient un signal au PC A. Celui-ci lève l'inhibit, lorsqu'il a reçu un signal du PC B et du PC C.

L'itération débute lorsque le PC A lève l'inhibit. Ainsi, les signaux en sortie du discriminateur ne sont plus bloqués et chaque appareil de mesure commence à collecter des données événement par événement. C'est le début de l'itération. Les événements enregistrés par chaque instrument sont étiquetés. Lorsque les carte ADC 1 et ADC 2 ont collecté les données de 1000 événements rangés dans le PC A, celui-ci envoie un signal d'arrêt au PC B et au PC C et active l'inhibit. C'est la fin de l'itération. Plus aucun comptage ne se fait. Le numéro d'itération change, le PC C renvoie directement un signal au PC A. Le PC B sauvegarde les compteurs du Scaler puis les réinitialise avant d'envoyer un signal au PC A. Une fois que le PC A reçoit le signal du PC B et celui du PC C, une nouvelle itération commence.

La dernière phase est la phase de stop. Cette phase peut se faire de plusieurs manières. Elle peut être faite manuellement. Au quel cas, l'arrêt est prévu soit à la fin d'une itération, soit à la fin de l'évènement en cours, soit à la fin d'un certain nombre d'évènements sélectionnés à la base. Dans cette phase, le PC A remet en place l'inhibit et envoie un signal d'arrêt aux différents PC pour qu'ils puissent stopper leurs programmes d'acquisition.

### ***3.5. Enregistrement des paramètres de l'expérience et PC D***

Le bon déroulement de l'expérience se fait via plusieurs interfaces, qui effectuent le contrôle/commande des différentes parties de l'expérience à distance. Ainsi, il y a une interface pour les éléments de la voie agrégat et ceux du dispositif de détection. Chacune de ces interfaces renvoie les valeurs saisies et les valeurs lues d'un certain nombre de paramètres propres au dispositif comme la température des différentes parties de la source, la tension appliquée sur les filaments... L'ensemble de ces paramètres est enregistré sur le PC D ou PC « Machine », à chaque itération.

Les PC A, B, C, D sont reliés entre eux par le réseau Ethernet. Ils peuvent être pilotés directement dans la salle des machines ou bien contrôlés à distance depuis la salle d'acquisition par une liaison VNC.

## ***4. Structuration des données***

Au cours de l'acquisition, chaque appareil traite, de son côté, sur son propre PC, ses données « événement par événement ». A chaque fois que le PC A marque la fin d'une itération, plus aucune donnée est prise par les différents instruments. Tous les événements, dès lors enregistrés, sont stockés soit dans un dossier pour les cartes ADC, soit dans un fichier texte pour les cartes TDCL et TDCE, dont le nom porte le numéro de l'itération. A ce stade se trouve également les fichiers de configuration. Ils contiennent les paramètres instrumentaux. Ces paramètres restent constants au cours de l'expérience. Une fois que l'expérience est terminée, chaque appareil de mesure possède, au sein de son PC respectif, son lot de données structurées, rangé dans un dossier, dont le nom est la date et l'heure de l'acquisition [3].

L'ensemble est ensuite transféré sur un disque au centre de calcul. Une fois sur le disque les dossiers de chaque PC ont pour nom la date et l'heure de l'acquisition suivi de A pour les cartes ADC, de B pour la carte TDCL, de C pour la carte TDCE, de D pour l'interface contrôle/commande. Une fois le transfert terminé, un fichier bilanTransfert.txt est produit. Il permet de vérifier le bon déroulement de l'opération. Tout l'ensemble est contenu à l'intérieur d'un dossier, dont le nom est la date et l'heure de l'acquisition.

Le Scaler envoie une série de nombre (qui correspondent à ses comptages), à chaque itération. Cette série de huit nombres s'écrit sur une ligne dans un fichier texte. C'est pourquoi, pour éviter de générer, à chaque itération, un fichier qui contient uniquement une ligne de données, l'ensemble des valeurs obtenues sur toute l'expérience est écrit à l'intérieur d'un seul et même fichier.

Le PC D enregistre également des données itération par itération. Cependant, le nombre de données saisies est plus conséquent. C'est pourquoi, celles-ci sont rangées, dans un fichier texte, produit à chaque itération. La différence avec le reste est que ce fichier ne contient pas des données propres à l'évènement ni rangées « événement par événement ».

## 4.1. Structuration des données des deux voies ADC dans le PCA

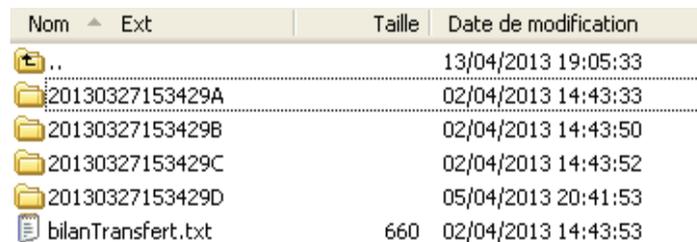
Le PCA contient les données des deux cartes ADC. Celles-ci sont stockées à l'intérieur du dossier de l'expérience. Dans l'exemple utilisé (Figure 2.9), ce dossier se nomme 20130327153429.



Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			10/04/2013 15:31:11
20130327153429			07/04/2013 14:47:32

**Figure 2.9: Dossier de l'expérience (date et heure de l'acquisition)**

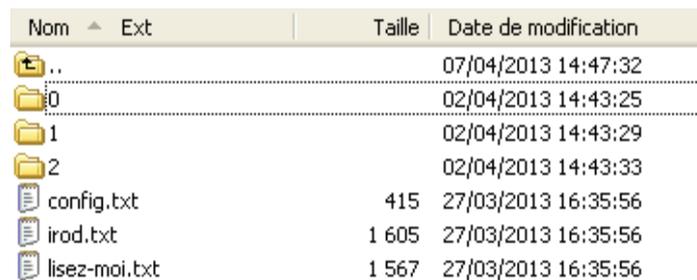
A l'intérieur de celui-ci figure le dossier 20130327153429A qui contient les données enregistrées par les deux cartes ADC, tout au long de l'expérience.



Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			13/04/2013 19:05:33
20130327153429A			02/04/2013 14:43:33
20130327153429B			02/04/2013 14:43:50
20130327153429C			02/04/2013 14:43:52
20130327153429D			05/04/2013 20:41:53
bilanTransfert.txt		660	02/04/2013 14:43:53

**Figure 2.10: Dossier qui stocke les données du PC A.**

Ce dossier contient à son tour un certain lot de dossier dont le nom est un numéro, ce sont les dossiers d'itération. En plus de ces dossiers, il y a trois fichiers textes. Ils contiennent les paramètres de configuration des deux cartes ADC.



Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			07/04/2013 14:47:32
0			02/04/2013 14:43:25
1			02/04/2013 14:43:29
2			02/04/2013 14:43:33
config.txt		415	27/03/2013 16:35:56
irod.txt		1 605	27/03/2013 16:35:56
lisez-moi.txt		1 567	27/03/2013 16:35:56

**Figure 2.11: Dossiers d'itérations et fichiers de configurations du PC A.**

Chaque dossier d'itération possède deux fichiers, un fichier Timestamp et un autre en binaire qui porte également le nom de l'itération.

Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			02/04/2013 14:43:33
TimeStamp0		36 765	27/03/2013 16:38:42
0		42 880 000	27/03/2013 16:38:42

**Figure 2.12: Fichiers de données de l'itération 0 du PC A.**

Le fichier Timestamp contient les temps des évènements, enregistrés par les deux cartes ADC et mesurés par rapport à l'horloge interne. Pour avoir la meilleure précision sur ce paramètre, celle-ci, qui est à la base codée sur un entier à 64 bits, est décomposée en deux valeurs entières à 32 bits : le Timestamp Low et le Timestamp High, exprimés en picosecondes. La valeur du Timestamp High ne peut pas excéder  $2^{32}$ . Si le temps de l'expérience est plus long, elle se remet à zéro. La valeur du Timestamp Réel se calcule à partir de la relation suivante :

$$Timestamp\ Reel = Timestamp\ Low + Timestamp\ High \times 2^{32} \quad (1)$$

Les Timestamps sont rangés sur quatre colonnes, dans cet ordre : Timestamp Low Carte ADC 1, Timestamp High Carte ADC 1, Timestamp Low Carte ADC 2 et Timestamp High Carte ADC 2 [11]. Chaque ligne est associée à un évènement des deux cartes ADC. Un exemple est présenté ci-dessous :

**TimeStamp0**

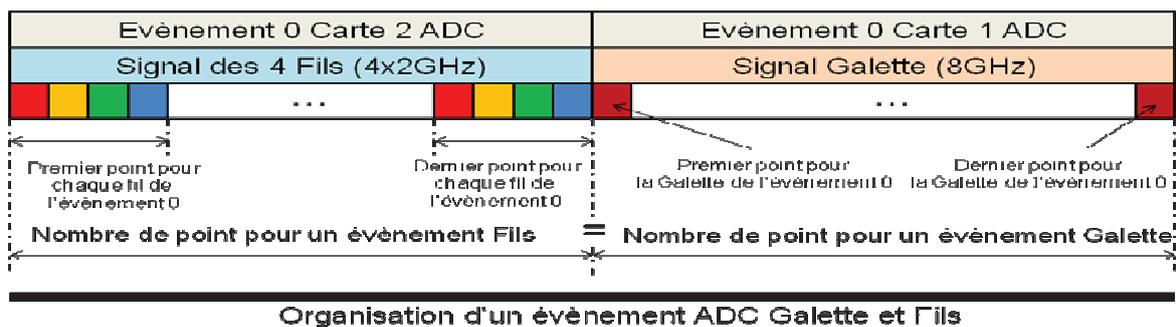
```

3.42057e+09 14452 2.41099e+09 22830
3.16745e+09 14476 2.15785e+09 22854
2.83624e+09 14596 1.82659e+09 22974
3.03108e+09 14620 2.02143e+09 22998
3.3385e+09 14660 2.32883e+09 23038
3.88248e+09 14693 2.87279e+09 23071
7.45112e+08 14714 4.03039e+09 23091

```

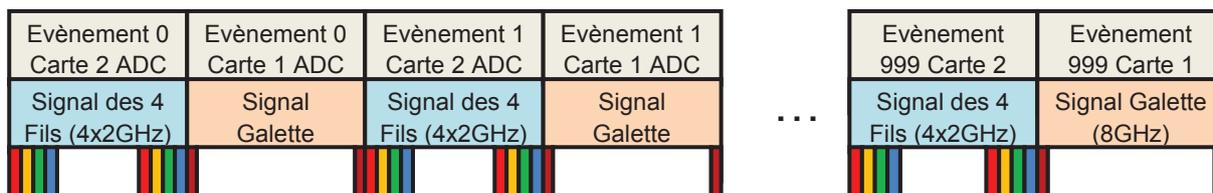
**Figure 2.13: Rangement des données dans le fichier Timestamp.**

Le fichier, dont le nom est le numéro d'itération, contient les temps et les amplitudes des signaux enregistrés par les cartes ADC 1 et ADC 2. A partir de ces données, il est possible de tracer l'allure de chaque signal galette et fils saisi.



**Figure 2.14: Rangement des données des deux cartes ADC, pour un évènement.**

La Figure 2.14 illustre le rangement des données des deux cartes ADC, pour un évènement. Pour chaque évènement, le fichier affiche en premier les amplitudes des quatre signaux fils codés à 2 GHz puis les amplitudes du Signal Galette codé à 8 GHz. Les amplitudes des quatre signaux fils sont rangées de manière entrelacée par temps d'échantillonnage. En revanche, les amplitudes du Signal Galette sont rangées les unes à la suite des autres. La Figure 2.15 montre comment cette structuration se généralise pour tous les évènements d'une même itération.



**Figure 2.15: Rangement des données des deux cartes ADC, sur l'ensemble des évènements d'une itération à 1 000 évènements.**

La taille des évènements est donnée en nombre de points. Ce nombre est défini par la taille de la fenêtre d'enregistrement. Cette taille est identique pour les cartes ADC1 et ADC2. Elle est donnée dans le fichier de configuration commun aux deux cartes : config.txt. Ainsi, l'intégralité d'un évènement est stockée sur deux fois ce nombre de point.

#### 4.2. Structuration des données du TDC Libre et du Scaler dans le PCB

Les données du PCB sont présentes à l'intérieur du dossier dont le nom est la date et l'heure de l'acquisition suivie de la lettre B. Dans l'exemple utilisé précédemment, ce dossier se nomme 20130327153429B.

Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			14/04/2013 10:35:32
20130327153429A			02/04/2013 14:43:33
20130327153429B			02/04/2013 14:43:50
20130327153429C			02/04/2013 14:43:52
20130327153429D			05/04/2013 20:41:53
bilanTransfert.txt		660	02/04/2013 14:43:53

**Figure 2.16: Dossier qui stocke les données du PC B.**

A l'intérieur de ce dossier, se trouve le fichier de configuration de la carte TDCL avec sa notice. Tous deux indiquent le nom et la valeur de ces paramètres, également globaux à l'expérience. La Figure 2.17 expose le contenu de ces deux fichiers et leur correspondance.

Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			07/04/2013 14:47:32
configTDC.txt		47	27/03/2013 16:45:40
Explication_compteur.txt		187	27/03/2013 16:45:40
NoticeTDC.txt		103	27/03/2013 16:45:40
Scaler.txt		145	27/03/2013 16:54:40
TDC_0.txt		10 162 268	27/03/2013 16:48:34
TDC_1.txt		11 168 622	27/03/2013 16:51:48
TDC_2.txt		10 796 967	27/03/2013 16:54:40

#### NoticeTDC.txt

Mode	0
AllowOverlap	0
TriggerChannel	0
GroupeRangeStart	70.00
Durée	4000.00
TriggerDeadTimeSupplémentaire	0.00
Number_of_events	1000.00

#### configTDC.txt

**Figure 2.17: Contenu des fichiers Notice.txt et configTDC.txt.**

Les fichiers de données de ce même appareil, créés à chaque itération, sont également présents. Leur contenu est divisé en quatre colonnes.

Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			07/04/2013 14:47:32
configTDC.txt		47	27/03/2013 16:45:40
Explication_compteur.txt		187	27/03/2013 16:45:40
NoticeTDC.txt		103	27/03/2013 16:45:40
Scaler.txt		145	27/03/2013 16:54:40
TDC_0.txt		10 162 268	27/03/2013 16:48:34
TDC_1.txt		11 168 622	27/03/2013 16:51:48
TDC_2.txt		10 796 967	27/03/2013 16:54:40

	Retour d'horloge	N°Voie	Nombre de hits par voie	Temps des hits
Evènement 0	73591866791	0	1	0
	73591866791	1	1	-27.5537
	73591866791	2	2	-20.772
	73591866791	2	2	12.7345
	73591866791	3	1	-14.6183
	73591866791	4	2	-30.9446
	73591866791	4	2	14.6685
	73591866791	5	1	-38.2788
Evènement 1	90982430434	0	1	0
	90982430434	1	1	-27.4784
	90982430434	2	1	-24.8159
	90982430434	3	1	-25.7202
	90982430434	4	1	-25.9965
	90982430434	5	1	-25.8206
	91928601966	0	1	0
	91928601966	1	1	-27.5537

**Figure 2.18: Organisation des données dans le fichier TDC\_0.txt.**

La première affiche le retour horloge de l'instrument. Le changement de cette valeur va délimiter un évènement. De plus, cette valeur est associée au Timestamp de la carte TDCL à travers la relation suivante :

$$Timestamp = Retour\ Horloge \times tdcbinsize \times 10^9 \quad (2)$$

Le *tdcbinsize* vaut environ 25 ps. C'est une valeur fixe. Le Timestamp obtenu est en nanosecondes [11].

La seconde colonne affiche le numéro de voie. La voie 0 est la référence en temps. Cette référence est faite par rapport au pulse de déclenchement de la carte TDCL : le trigger G&D. Les autres voies indiquent respectivement le Signal Galette, le Signal Fil 1, le Signal Fil 2, le Signal Fil 3 et le Signal Fil 4. La troisième colonne indique le nombre de pulses présents sur

chacun de ces signaux. La dernière indiquent le temps de chacun de ces pulses par rapport au Trigger G&D.

Il y a également les mesures effectuées par le Scaler à chaque itération et stockées dans un unique fichier Scaler.txt ainsi qu'une notice pour cet instrument : Explication\_Compteur.txt. Cette notice permet d'expliquer la fonction des différents compteurs.

Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			07/04/2013 14:47:32
configTDC.txt		47	27/03/2013 16:45:40
Explication_compteur.txt		187	27/03/2013 16:45:40
NoticeTDC.txt		103	27/03/2013 16:45:40
Scaler.txt		145	27/03/2013 16:54:40

62138	62138	1005	62364	61954	59513	4640	30048	1
66804	66804	1002	67291	66806	64194	226	38626	2
63448	63448	1002	64191	63768	61156	434	33970	3

**Figure 2.19: Organisation des données dans le fichier Scaler.txt.**

Les données sont rangées sur neuf colonnes qui indiquent respectivement : le nombre de coups sur la Galette, le nombre de pulse Trigger G&D, le nombre de pulse Busy sur une itération, le nombre de pulses sur les signaux Fil1, Fil 2 et Fil 3, le nombre de coup associé au temps entre deux itérations, le nombre de coups associé au temps d'une itération et le numéro de l'itération. Le nombre de pulse Trigger G&D permet de connaître le nombre d'évènement enregistré par le TDCL au cours d'une itération. Le nombre de pulse busy détermine le nombre d'évènements enregistré par les cartes ADC et le TDCE au cours d'une itération.

### 4.3. Structuration des données du TDC Esclave dans le PCC

Pour la carte TDCE, les données sont stockées dans le dossier dont le nom est la date et l'heure de l'acquisition suivie de la lettre C. Dans l'exemple utilisé précédemment, ce dossier se nomme 20130327153429C.

Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			14/04/2013 12:27:41
20130327153429A			02/04/2013 14:43:33
20130327153429B			02/04/2013 14:43:50
20130327153429C			02/04/2013 14:43:52
20130327153429D			05/04/2013 20:41:53
bilanTransfert.txt		660	02/04/2013 14:43:53

Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			07/04/2013 14:47:32
configTDC.txt		47	27/03/2013 17:01:57
NoticeTDC.txt		103	27/03/2013 17:01:57
TDC_0.txt		293 597	27/03/2013 17:04:51
TDC_1.txt		296 580	27/03/2013 17:08:06
TDC_2.txt		302 540	27/03/2013 17:10:57

**Figure 2.20: Structuration des données pour la carte TDCE (analogue à celle de la carte TDCL).**

Le rangement des données de cette carte TDC est fait, avec exactement le même format que celui de la carte TDCL.

### 4.4. Structuration des données du PC Machine dans le PCD, sur le disque SPS

Les données du PC D sont stockées dans le dossier avec la date et l'heure de l'acquisition suivie de la lettre D. Dans l'exemple, ce dossier se nomme 20130327153429D. A l'intérieur de celui-ci se trouvent des fichiers textes créés à chaque itération et la notice correspondante.

Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			14/04/2013 12:27:41
20130327153429A			02/04/2013 14:43:33
20130327153429B			02/04/2013 14:43:50
20130327153429C			02/04/2013 14:43:52
20130327153429D			05/04/2013 20:41:53
bilanTransfert.txt		660	02/04/2013 14:43:53

Nom	Ext	Taille	Date de modification
..			07/04/2013 14:47:32
Data			02/04/2013 14:43:53
Images			02/04/2013 14:43:53
config0.txt		1 832	27/03/2013 17:07:59
config1.txt		1 832	27/03/2013 17:11:14
config2.txt		1 831	27/03/2013 17:14:06
notice.txt		2 110	27/03/2013 17:05:06

**Figure 2.21: Structuration des données pour le PC D.**

Les fichiers textes contiennent des données saisies sur l'interface contrôle/commande. Parmi ces paramètres, il y a les valeurs de température aux différents points de la source, la valeur de la tension d'accélération... Sur la Figure 2.22 ci-dessous, une partie du contenu du fichier notice.txt ainsi que les valeurs correspondantes, prises sur le fichier config0.txt, sont exposées :

**notice.txt**

```
AR_Lect_1A+
AR_Lect_1A-
AR_Lect_2A+
AR_Lect_2A-
AR_Lect_3A+
AR_Lect_3A-
AR_Lect_4A+
AR_Lect_4A-
AR_Lect_5A+
AR_Lect_5A-
```

**config0.txt**

```
1.660156E-1
-1.655579E-1
1.548767E-1
1.560974E-1
2.038574E-1
-2.026367E-1
2.136230E-3
2.441406E-3
-2.593994E-3
-1.983643E-3
```

**Figure 2.22: Organisation des données les fichiers notice.txt et config0.txt.**

## 5. Analyse en Ligne

L'analyse en ligne permet d'afficher un certain nombre paramètres extraits des fichiers de données pris à intervalle régulier par les instruments de mesures, pendant les expériences. Elle permet de guider la prise de données. Elle met également à disposition plusieurs interfaces qui servent à vérifier le bon fonctionnement de l'expérience. Chaque instrument de mesure possède sa propre interface de surveillance [2].

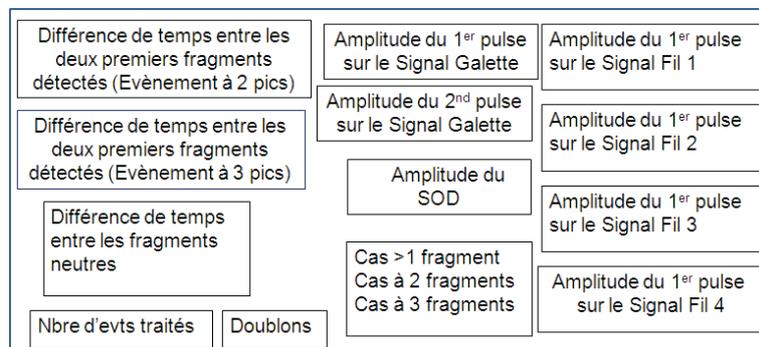
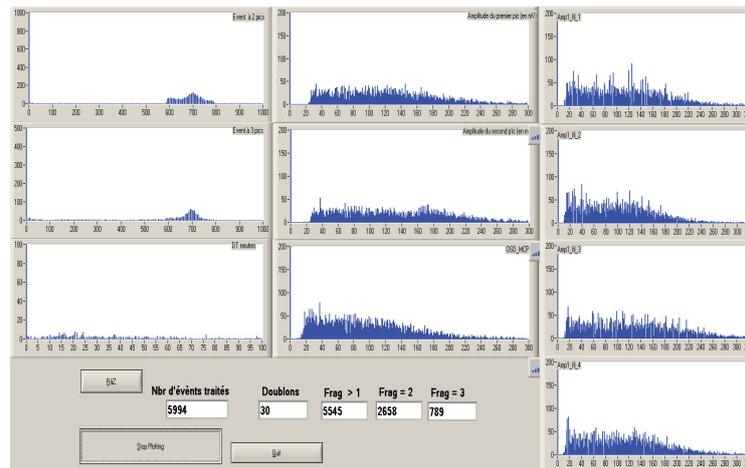


Figure 2.23: Interface de surveillance pour des cartes ADC.

Pendant la phase d'acquisition, les cartes ADC 1 et ADC 2 analysent un à un une partie des évènements (1/10) qu'elles enregistrent. Les résultats de cette analyse sont exposés sur l'interface de surveillance des cartes ADC, présenté sur la Figure 2.23. Chaque signal analysé est prétraité. Ce prétraitement se fait par passage par Transformée de Fourier. En effet, de cette manière, le rapport signal/bruit est accentué : ce qui donne plus facilement accès au nombre de pulses qu'ils contiennent. Des informations sont extraites de ces pulses (amplitudes maximales, temps associés aux amplitudes maximales...) et les histogrammes de chaque fenêtre de l'interface de surveillance se remplissent petit à petit. Après l'analyse d'un lot d'évènements, affiché dans la case : nombre d'évènements traités, ces histogrammes donnent accès aux distributions d'amplitudes de chaque pulse du signal Galette, à la distribution d'amplitude du premier pulse de chaque signal fil, à la distribution des différences

de temps entre les deux premiers pulses détectés, dans le cas de signaux à deux et à trois pics et à la distribution des différences de temps entre les fragments neutres. Ces informations permettent d'observer le fonctionnement de la chaîne d'acquisition (seuil du discriminateur à fraction constante, les « bruits » électroniques, etc...). L'analyse en ligne permet également de voir si les cartes ADC n'enregistrent pas en double les signaux associés à un même évènement à travers la case : doublon.

Tout comme les cartes ADC, le TDC analyse un à un les évènements qu'ils enregistrent. Les informations extraites permettent d'obtenir progressivement les graphes exposés sur les interfaces de surveillance, présentées sur les Figures 2.24 et 2.25.

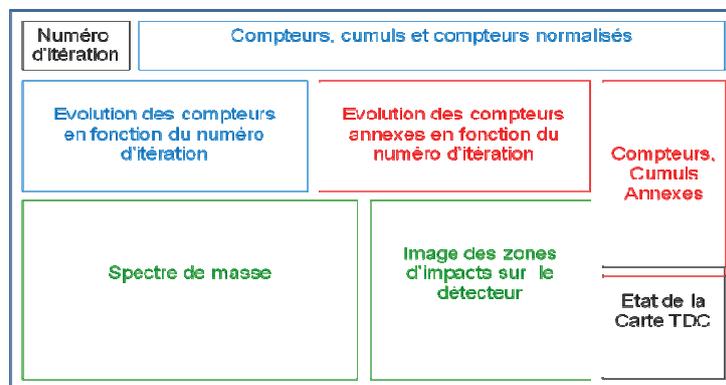
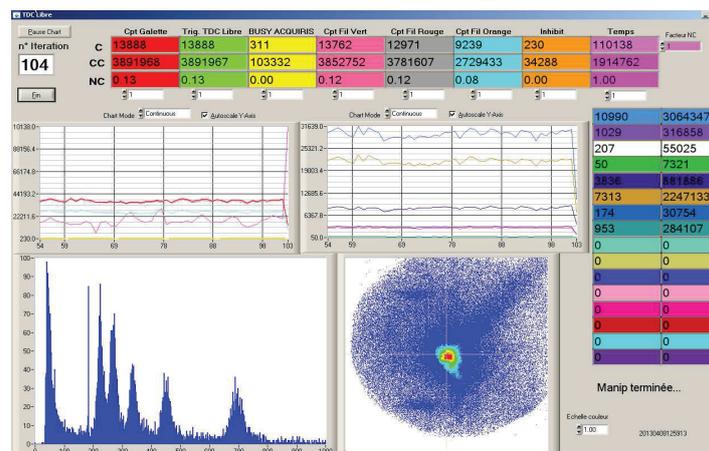


Figure 2.24: Interface de surveillance de la carte TDCL.

La Figure 2.24 montre l'interface de surveillance de la carte TDCL. Cette interface est découpée en plusieurs fenêtres. Les deux fenêtres du bas montrent deux graphes que l'analyse en ligne du TDCL permet d'obtenir. Pour chaque évènement qu'il analyse, le TDCL mesure la différence de temps entre les deux premiers fragments détectés sur le Signal Galette. Le résultat obtenu, pour un lot de 13 000 évènements, est présenté sur le graphe en bas à gauche. Ce graphe est un spectre de masse des fragments chargés (cf. Chapitre 1). De plus, pour chaque évènement qu'il analyse, le TDCL détermine la position de l'impact des fragments sur le détecteur. En effet, pour chaque pulse détecté il mesure le temps des pulses associés à l'impact d'une particule sur les signaux fils. En effectuant l'analyse sur un grand nombre

d'évènements, nous obtenons l'image représentée sur la fenêtre en bas à droite de l'interface de surveillance. Elle montre une représentation de la coupe transversale à l'axe du faisceau.

Cette interface renvoie également la valeur de chaque compteur de l'échelle de comptage et leur cumul tout au long de l'expérience. Les valeurs renvoyées par le compteur à chaque itération sont tracées sur le graphe de la fenêtre en haut à gauche.

Les valeurs sur le côté droit sont affichées sur deux colonnes notées Compteurs et Cumuls Annexes. Sur la colonne de gauche, il y a les compteurs annexes et sur celle de droite les cumuls annexes. Ces données sont rangées comme suit :

Les premiers compteurs fonctionnent sous la condition qu'il y ait au moins un pulse sur le Signal Galette et sur chaque signal fil. Sont dénombrés :

- Les évènements avec un seul pulse sur le Signal Galette
- Les évènements avec deux pulses sur le Signal Galette
- Les évènements avec trois pulses sur le Signal Galette
- Les évènements avec plus de trois pulses sur le Signal Galette

Les compteurs suivants désignent :

- Les évènements où il n'y a aucun pulse sur chaque Signal Fil
- Les évènements où il y a un pulse sur chaque Signal Fil
- Les évènements où il y a deux pulses sur chaque Signal Fil
- Les évènements où il y a plus de trois pulses sur chaque Signal Fil

Les valeurs renvoyées par ces compteurs, à chaque itération, sont tracées sur le graphe de la fenêtre en haut à droite. L'interface de surveillance affiche également le nombre d'itération et l'état de la carte TDCL.

L'interface de surveillance de la carte TDCE ressemble beaucoup à celle de la carte TDCL. Toutefois, contrairement à cette dernière la carte TDCE analyse les mêmes évènements que ceux enregistrés par la carte ADC : c'est-à-dire des évènements avec une structure temporelle particulière.



Pour enregistrer l'ensemble des informations fournies par notre système de détection, nous utilisons plusieurs instruments de mesure [1, 3] :

*-Comptage d'impulsions :*

Le dispositif compte le nombre de pulses pendant une certaine durée. Le résultat est donc un nombre lu à la fin du temps de comptage. Les 8 voies de comptage de la carte utilisée permettent de compter le nombre d'impulsions sur 8 signaux différents.

*-La mesure de l'instant d'arrivée de chaque pulse par rapport à une référence de temps commune pour cinq signaux :*

Ce type de mesure est effectué par une carte TDC équipée de 8 voies. Chacune des voies peut enregistrer 16 hits (ou temps d'arrivée de pulse) Pour chaque pulse sur chaque voie, un temps d'arrivée est enregistré. Ce temps est mesuré avec une précision meilleure que 0.1ns. Le TDC va prendre les instants d'arrivée du pulse sur le Signal Galette, mais aussi les temps des pulses de chaque signal fil.

*-L'enregistrement de l'évolution temporelle du signal complet est réalisé par deux cartes ADC (ADC 1 : 8 GHz/10bits et ADC 2 : 2 GHz/10bits) :*

Cet enregistrement est effectué pour le Signal Galette et chaque signal fil avec les cartes ADC 1 et ADC 2. Pour chaque évènement, l'amplitude du Signal Galette est codée sur 10 bits toutes les 125 ps et l'amplitude de chaque signal fil est codée sur 10 bits toutes les 500 ns. Pour un évènement, les cartes ADC enregistrent chacune 2000 à 6000 nombres.

Les cartes ADC et TDC enregistrent les informations des signaux en sortie du détecteur MCP-DLA, sur une fenêtre d'acquisition de taille donnée. Les signaux galette et fils situés, à l'intérieur de cette fenêtre, constituent un évènement. L'intensité du faisceau d'agrégat est réglée de façon que la probabilité que deux agrégats arrivent pendant la durée d'une fenêtre d'acquisition soit négligeable. Le système d'acquisition permet l'enregistrement d'un grand nombre d'évènements.

Un enjeu technique de l'acquisition est la gestion des temps morts de l'électronique d'acquisition [7]. En effet, les mesures avec les TDC sont limitées par les temps morts du discriminateur (typiquement 15 à 20 ns). La différence de temps de vols entre les fragments neutres et les fragments chargés sont plus longues que ce temps mort. En revanche ce n'est pas le cas de la différence de temps de vol entre deux fragments neutres. En effet, la différence de vitesse entre fragments neutres est liée à l'énergie cinétique de dissociation. Ainsi, les mesures réalisées avec les TDC permettent d'observer aisément les fragments chargés et au moins un des fragments neutres détectés. Cependant, ils ne peuvent pas observer deux fragments neutres pour lesquels la différence de temps de vol est inférieure au temps mort. Par contre, L'ADC va enregistrer l'évolution temporelle du signal pendant toute la fenêtre d'acquisition. Il permet l'observation de l'impact de deux particules dont l'instant d'arrivée, sur le détecteur, est espacé de moins de 10 ns.

Par contre, pour un évènement, les cartes ADC transfèrent de 2000 à 6000 nombres. Par conséquent, le temps mort entre deux évènements plus long que celui de la carte TDCE. En effet, cette carte ne transfère qu'un seul nombre par fragment détecté.

Ainsi, les cartes ADC vont enregistrer moins d'évènements, mais leur utilisation est ciblée sur la séparation des fragments neutres alors que le TDCL est utilisé pour enregistrer toute la diversité des processus et mesurer des sections efficaces. Le TDCE utilise les voies en sortie du même discriminateur que le TDCL, mais sa fenêtre de déclenchement est soumise au déclenchement du signal Busy de la carte ADC 1. Ainsi, le TDCE enregistre les mêmes évènements que l'ADC et permet la quantification des évènements enregistrés par l'ADC par rapport à l'ensemble des processus.

Par ailleurs, ce chapitre montre que chaque instrument de mesure produit, pour chaque évènement qui le concerne, sa propre fenêtre d'enregistrement, au moyen d'un signal externe. La stabilité de ces fenêtres peut être observée (cf. Chapitre 1 : Figure 1.11). A la fin d'une expérience, l'ensemble des données collectées par chaque appareil est transféré dans un PC qui lui est propre (PC A pour les cartes ADC, PC B pour le TDCL, PC C pour le TDCE et PC D pour le PC machine). Ces données sont ensuite organisées en vue de préparer l'analyse offline expliquée dans le chapitre 3.

Pendant la phase d'acquisition, chaque instrument de mesure effectue une analyse préliminaire. Chacun d'entre eux dispose d'une interface de surveillance découpée en plusieurs fenêtres sur lesquels sont tracés les graphes et les histogrammes correspondants aux résultats de cette analyse. Les interfaces de surveillance permettent de voir si les instruments de mesure fonctionnent et permettent l'observation des zones d'impacts produits par les fragments sur la surface de détection, pendant la prise de données.

## Sommaire

Chapitre 2 : Le système d'acquisition .....	43
1. Electronique d'acquisition.....	43
1.1. Les voies ADC .....	43
1.2. Les voies TDC et comptages .....	45
1.3. Déclenchement de l'enregistrement d'un évènement .....	46
2. Positionnement des fenêtres d'enregistrement du système d'acquisition .....	48
3. Structuration de la prise de données.....	52
3.1. Coordination des PC d'acquisition .....	52
3.2. Les différentes phases d'une prise de données .....	53
3.2.1. Le rôle de l'inhibit .....	53
3.2.2. Le fonctionnement de l'acquisition .....	54
3.3. Enregistrement des paramètres de l'expérience et PC D .....	56
4. Structuration des données.....	56
4.1. Structuration des données des deux voies ADC dans le PCA.....	57
4.2. Structuration des données du TDC Libre et du Scaler dans le PCB .....	59
4.3. Structuration des données du TDC Esclave dans le PCC .....	63
4.4. Structuration des données du PC Machine dans le PCD, sur le disque SPS .....	63
5. Analyse en Ligne.....	65

## Table des figures

Figure 2.1: Voies d'acquisition ADC.....	44
Figure 2.2: Voies TDC et comptage.....	45
Figure 2.3: Production des signaux de déclenchement de chaque module d'acquisition. ....	47
Figure 2.4: Positionnement de la fenêtre d'enregistrement par rapport au signal à l'origine du déclenchement, pour chaque voie d'acquisition, en mode SD.....	48
Figure 2.5: Positionnement de la fenêtre d'enregistrement par rapport au signal à l'origine du déclenchement, pour chaque voie d'acquisition, en mode DD.....	50
Figure 2.6: Coordination des PC d'acquisition via le Boîtier NI USB 6008.....	52
Figure 2.7: Fonctionnement de l'inhibit permettant le découpage de l'acquisition en blocs appelés « itérations ». L'activation de l'inhibit bloque le déclenchement de chaque module d'acquisition [1]. ....	54
Figure 2.8: Fonctionnement de l'acquisition [1]. ....	55
Figure 2.9: Dossier de l'expérience (date et heure de l'acquisition).....	57
Figure 2.10: Dossier qui stocke les données du PC A. ....	57
Figure 2.11: Dossiers d'itérations et fichiers de configurations du PC A.....	57
Figure 2.12: Fichiers de données de l'itération 0 du PC A. ....	58
Figure 2.13: Rangement des données dans le fichier Timestamp.....	58
Figure 2.14: Rangement des données des deux cartes ADC, pour un évènement.....	59
Figure 2.15: Rangement des données des deux cartes ADC, sur l'ensemble des évènements d'une itération à 1 000 évènements.....	59
Figure 2.16: Dossier qui stocke les données du PC B.....	60
Figure 2.17: Contenu des fichiers Notice.txt et configTDC.txt.....	60
Figure 2.18: Organisation des données dans le fichier TDC_0.txt.....	61
Figure 2.19: Organisation des données dans le fichier Scaler.txt.....	62
Figure 2.20: Structuration des données pour la carte TDCE (analogue à celle de la carte TDCL).....	63
Figure 2.21: Structuration des données pour le PC D.....	64
Figure 2.22: Organisation des données les fichiers notice.txt et config0.txt.....	64
Figure 2.23: Interface de surveillance pour des cartes ADC.....	65
Figure 2.24: Interface de surveillance de la carte TDCL.....	66
Figure 2.25: Interface de surveillance de la carte TDCE.....	68

## Bibliographie du chapitre 2

- [1] F. Leperson, *Développement du système d'acquisition du Dispositif d'Irradiation d'Agrégats Moléculaires (DIAM) : Structuration de système d'acquisition*, Rapport de stage M1 Pro mention GSI (2012)
- [2] Z. Behel, *Développement de l'interface graphique du système d'acquisition du Dispositif d'Irradiation d'Agrégats biomoléculaires (DIAM)*, Rapport de stage DUT GE2I (2012)
- [3] C. Teyssier, *Spectrométrie de masse COINTOF : Conception d'un analyseur à temps de vol et développement de la méthode d'analyse*, Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1 (2012)
- [4] User Manual Agilent Acquiris 10-Bit Digitizers
- [5] Notice Roentdek : <http://www.roentdek.com/>
- [6] U. Mureddu, Stage Ouvrier Telecom Saint-Etienne (2011-2012)
- [7] G. Coston, *Développement du système d'acquisition et d'analyse de données du dispositif expérimental DIAM*, Rapport de stage M1 Pro GSI (2013)



# Chapitre 3 : Traitement des données brutes

## *Introduction*

L'analyse « off-line » consiste à extraire les différentes informations enregistrées pour les organiser et les traiter événement par événement.

Ces données sont, ensuite, intégrées dans le format ROOT<sup>®</sup> [1]. L'équipe a choisi d'utiliser le logiciel ROOT<sup>®</sup> très adapté pour l'observation des corrélations. Concrètement l'analyse dans ROOT<sup>®</sup> consiste à construire des histogrammes et des graphes de corrélation et à identifier de nouvelles caractéristiques des événements en choisissant des coupes pertinentes.

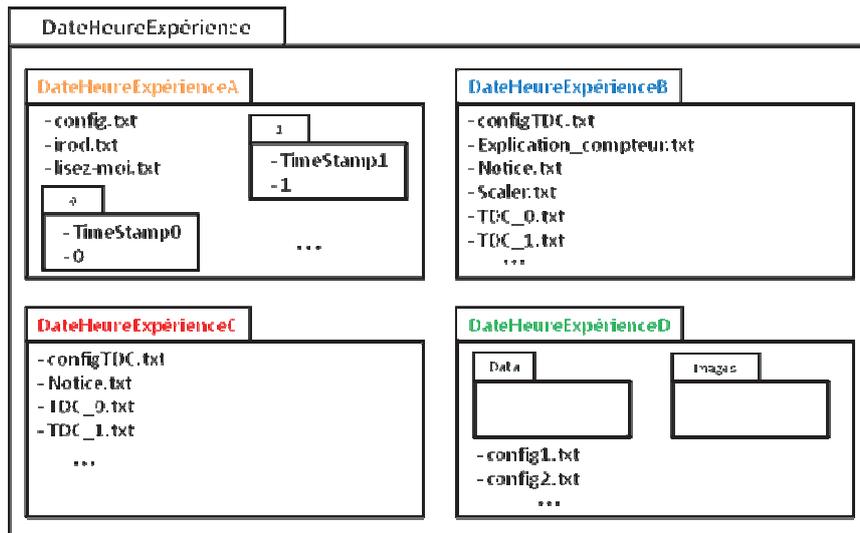
Ainsi, toute analyse de données comporte une première étape de traitement que nous allons décrire dans ce chapitre.

## **1. Organisation des données pour le traitement événement par événement**

### *1.1. Les entrées*

Les entrées sont regroupées dans deux dossiers. Le premier dossier, dont le nom est le date/heure de l'expérience (DateHeureExpérience) [2, 3], contient les données brutes et les paramètres de configuration de chaque instrument de mesure. Le second dossier : PARAM contient les paramètres annexes associés au traitement des événements.

La Figure 3.1 présente la structuration des données brutes et des paramètres de configuration de chaque instrument de mesure, dans le dossier DateHeureExpérience, une fois l'acquisition des données terminées.



**Figure 3.1: Structuration des données brutes et des paramètres instrumentaux pour chaque appareil de mesure du système d’acquisition, une fois l’acquisition des données terminées.**

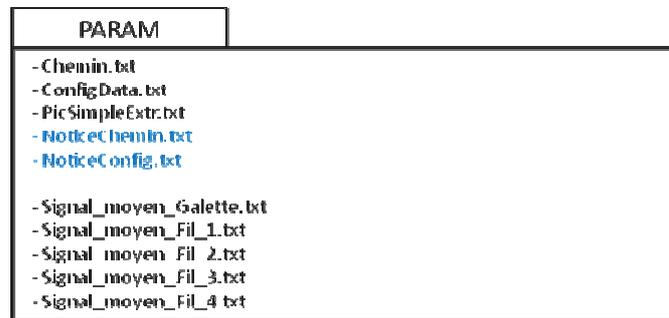
Le dossier associé au PC A (DateHeureExpérienceA) stocke les paramètres de configuration des deux cartes ADC, dans le fichier texte Config.txt. Il contient également plusieurs sous dossiers, dans lesquels se trouvent les données brutes, enregistrées par les deux cartes ADC, à chaque itération (les Timestamp et l’évolution temporelle des signaux galette et fils associés aux évènements d’un canal de dissociation particulier).

Le dossier associé au PC B (DateHeureExpérienceB) stocke les paramètres de configuration de la carte TDCL dans le fichier texte : ConfigTDC.txt. Il contient également plusieurs fichiers textes : Scaler.txt et TDC\_i.txt, dans lesquels se trouvent, respectivement, les données brutes du Scaler et celles enregistrées, par la carte TDCL, à chaque itération.

Le dossier associé au PC C (DateHeureExpérienceC) stocke les paramètres de configuration de la carte TDCE dans le fichier texte ConfigTDC.txt. Il contient plusieurs fichiers textes : TDC\_i.txt, dans lesquels se trouvent les données enregistrées par le TDCE, à chaque itération.

Le dossier associé au PC D (DateHeureExpérienceD) stocke les paramètres du contrôle/commande, enregistrés à chaque itération, dans les fichiers textes configi.txt.

La Figure 3.2 présente le contenu du dossier de paramètres : PARAM. Les paramètres annexes, utilisés pour le traitement des évènements, sont stockés dans plusieurs fichiers textes.



**Figure 3.2: Le contenu du dossier de paramètres : PARAM.**

Le fichier Chemin.txt contient une liste de mots rangés sur une colonne. Le programme de traitement lit cette liste de mots et les ordonne pour obtenir les arborescences, qui donnent accès aux données brutes et aux paramètres de configurations, rangés dans le dossier DateHeureExpérience.

Le fichier ConfigData.txt stocke un tableau de nombres, parmi lesquels se trouvent des paramètres utilisés dans le traitement des évènements (comme la taille des fenêtres d'enregistrement...) et des paramètres associés à des choix de traitement (par exemple, la possibilité de traiter qu'une partie des évènements, à chaque itération ou encore la possibilité de traiter uniquement les évènements du TDCL...).

Chaque fichier Signal\_moyen.txt contient les données d'un pulse moyen (galette ou fil), obtenu à partir d'un certain nombre de pulses normalisés par rapport à leur amplitude maximale. Ces signaux sont utilisés, dans le traitement des évènements de l'ADC, comme signaux de référence. Ce point sera discuté plus en détail, par la suite.

## ***1.2. Organigramme du traitement des données***

Une expérience (cadre bleu au centre de la Figure 3.3) est composée de plusieurs blocs de données, appelés itérations, décrits dans le chapitre précédent. Une itération (cadre vert) contient un certain nombre d'évènements ADCTDCE (cadre rouge) et TDCL (cadre orange). Pour effectuer le traitement des données, en respectant la chronologie des évènements enregistrés par le système d'acquisition, il est nécessaire de boucler sur les itérations et sur les deux groupes d'évènements contenus dans chacune d'entre elles. Ainsi, le traitement des données s'effectue de la manière suivante : le traitement des paramètres globaux à l'expérience, le traitement des paramètres spécifiques à l'itération et le traitement des paramètres spécifiques aux évènements.

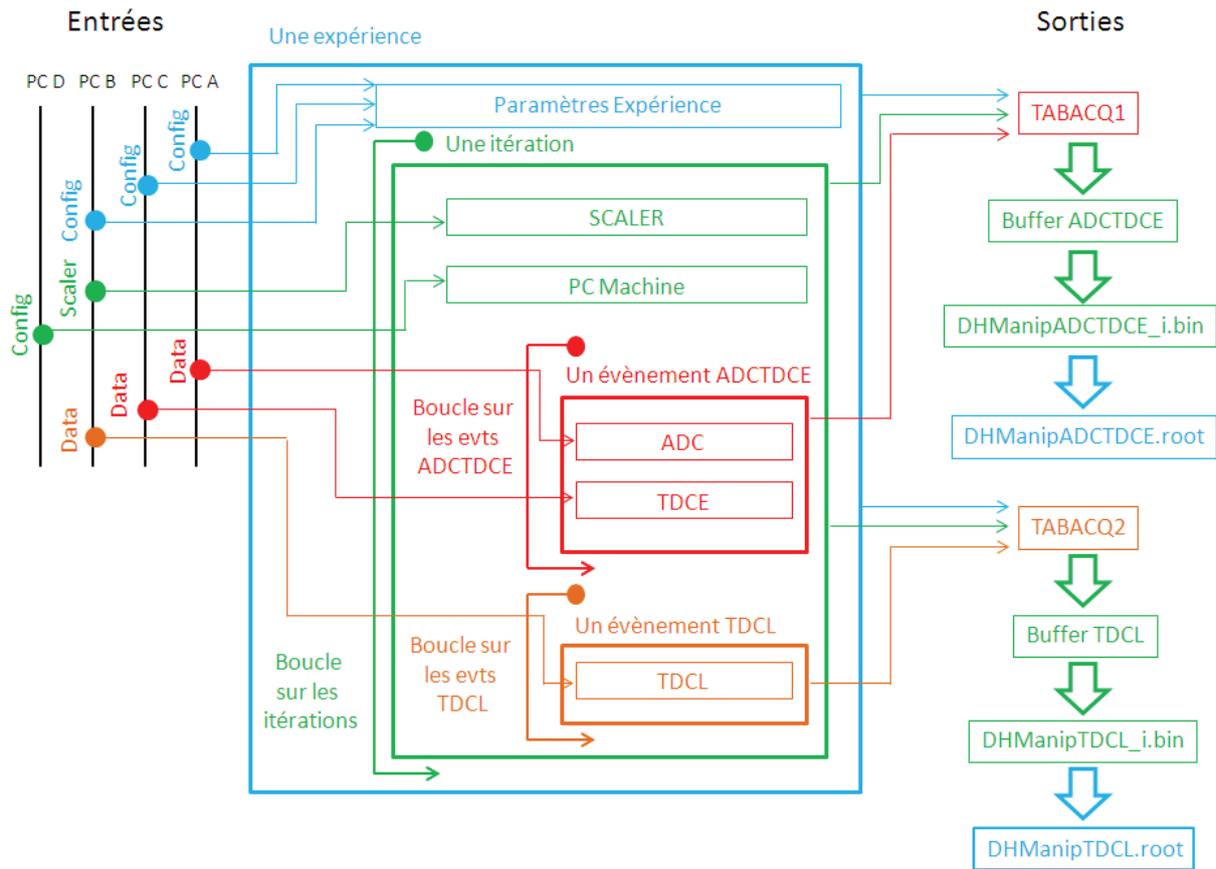


Figure 3.3: Organigramme du traitement des données [4].

Le traitement des paramètres globaux à l'expérience, comme les paramètres de configuration des instruments de mesure, s'effectue une seule fois. En effet, ces paramètres sont fixés pour toute l'expérience. Ce traitement commence par la lecture des fichiers de configuration contenu dans le PC A, le PC B, et le PC C (schématisé par un point bleu). Les paramètres lus sont ensuite stockés, en partie, dans un tableau appelé TAB-EXPERIENCE.

Une fois que les paramètres globaux à l'expérience sont traités, le traitement des paramètres spécifiques à une itération commence. Ce traitement s'effectue, au début de chaque itération, au moyen d'une boucle représentée en vert sur la Figure 3.3. Ces paramètres peuvent varier d'une itération à une autre. Toutefois, ils restent fixes pour tous les évènements, qui appartiennent à la même itération. Le traitement de ces paramètres commence par la lecture des données brutes du Scaler (PC B) et des paramètres contrôle/commande (PC D). Ces informations sont ensuite stockées dans un tableau appelé TAB-ITERATION.

A chaque itération, les évènements sont traités chronologiquement au moyen de boucles. La Figure 3.3 met en évidence deux boucles : une pour le couple d'évènements ADCTDCE (représentée en rouge) et une autre pour les évènements de la carte TDCL (représentée en orange). Ces boucles sont distinctes car les évènements enregistrés par le couple d'instrument

ADC-TDCE sont différents de ceux enregistrés par la carte TDCL. Pour chaque évènement ADCTDCE, le traitement commence par la lecture des données enregistrées par les deux cartes ADC (PC A) suivie d'une étape de pré-analyse. Cette étape de pré-analyse sera détaillée, dans la seconde partie de ce chapitre. Les informations recueillies sont stockées dans cinq tableaux de résultats RADC du même format : un pour le Signal Galette et les autres pour chaque signal fil. Ensuite, les données de la carte TDCE (PC C) sont lues et réorganisées dans un autre tableau de résultat RTDCE. Le traitement des évènements de la carte TDCL s'effectue une fois que tous les évènements ADCTDCE de l'itération sont traités. Pour chaque évènement, les données enregistrées par la carte TDCL (PC B) sont lues et réorganisées dans un tableau de résultats RTDCL.

### 1.3. Les Sorties

#### 1.3.1. Le format d'un évènement

Pour chaque évènement ADCTDCE, les informations stockées, dans les tableaux TAB-EXPERIENCE, TAB-ITERATION, RADC et RTDCE, sont regroupées dans le tableau TABACQ1.

Structuration des données dans TABACQ1								
0-9		10-199		200-2949			2950-3249	
TAB-EXPERIENCE		TAB-ITER		RADC			RTDCE	
				G	F1	F2	F3	F4
Paramètres généraux à l'expérience		Paramètres de l'itération en cours		Résultats de l'analyse de l'évènement en cours ADC Galette et ADC Fils				Résultats de l'analyse de l'évènement en cours du TDCE

**Figure 3.4: Format d'un évènement ADCTDCE.**

La Figure 3.4 montre le format d'un évènement ADCTDCE, une fois le traitement des données terminé. Le tableau stocke d'abord les paramètres globaux à l'expérience puis les paramètres spécifique à l'itération en cours puis les informations des deux cartes ADC et de la carte TDCE, associées à l'évènement traité. Ce format nous informe du contexte expérimental dans lequel un évènement ADCTDCE a été obtenu. En effet, chaque évènement contient les informations de l'expérience et de l'itération dans lesquelles il a été enregistré.

Pour chaque évènement TDCL, les informations stockées, dans les tableaux TAB-EXPERIENCE, TAB-ITERATION et RTDCL, sont regroupées dans le tableau TABACQ2.

Structuration des données dans TABACQ2		
0-9	10-199	200-499
TAB-EXPERIENCE	TAB-ITER	RTDCL
Paramètres généraux à l'expérience	Paramètres de l'itération en cours	Résultats de l'analyse de l'évènement en cours du TDCL

**Figure 3.5: Format d'un évènement TDCL.**

La Figure 3.5 montre le format d'un évènement TDCL, une fois le traitement des données terminé. Le tableau stocke d'abord les paramètres globaux à l'expérience puis les paramètres spécifique à l'itération en cours puis les informations de la carte TDCL, associées à l'évènement traité. Tout comme les évènements ADCTDCE, chaque évènement TDCL contient les informations de l'expérience et de l'itération dans lesquelles il a été enregistré. Ce format nous informe sur le contexte expérimental dans lequel un évènement TDCL a été obtenu.

A présent, regardons plus en détail le contenu des blocs de données TAB-EXPERIENCE, TAB-ITERATION, RADC et RTDC et l'organisation des résultats à l'intérieur de chacun de ces blocs.

TAB-EXPERIENCE		
0-9		
0	1	2-9
DateHeureManip	DateHeureAnalyse	Vide

**Figure 3.6: Le contenu du tableau TAB-EXPERIENCE.**

Le tableau TAB-EXPERIENCE, présenté sur la Figure 3.6, stocke deux paramètres globaux à l'expérience : le date/heure de l'expérience et le date/heure de l'analyse. Les autres paramètres, comme les paramètres de configuration de chaque instrument de mesure, sont rangés dans un fichier texte : FichierManip.txt, généré en sortie.

TAB-ITERATION						
10-199						
0	1-8	9-10	11-18	19	20-189	189-199
Numéro Itération	Scaler	Vide	Scaler Normalisé	Vide	Paramètres du PC Contrôle	Vide

**Figure 3.7: Le contenu du tableau TAB-ITERATION.**

Le tableau TAB-ITERATION, présenté sur la Figure 3.7, stocke le numéro de l'itération, les données brutes du Scaler, les résultats obtenus en normalisant les comptages de chaque voie par rapport au comptage de celle qui définit le temps d'une itération et les paramètres du PC Machine.

Résultats ADC : RADC					
0-9					
0	1	2	3	4	5-9
Numéro Itération	Numéro évènement ADCTDCE	Timestamp Carte ADC concernée	Différence de Timestamp entre 2 evts	Différence de Timestamp inter-itération	Vide

RADC			
10-13			
10	11	12	13
Doublons	SOD Max	SOD Min	SOD Différence

RADC							
14-21							
14	15	16	17	18	19	20	21
Moyenne Signal Brut	Ecart-type Signal Brut	Asymétrie Signal Brut	Moyenne Signal Filtre	Ecart-type Signal Filtre	Asymétrie Signal Filtre	Nombre de pics	Nombre de pics après Fit

**Figure 3.8: Une partie du contenu de chaque tableau RADC.**

La Figure 3.8 présente une partie du contenu d'un tableau RADC. Le tableau (du haut) montre que chaque évènement est identifié par le numéro de l'itération auquel il appartient et par son propre numéro. Chaque évènement possède également un Timestamp, qui caractérise le temps de son enregistrement sur la carte ADC concernée. Ce temps se mesure par rapport à

l'horloge interne de l'instrument de mesure. Les tableaux du milieu et du bas stockent des informations obtenues, par la pré-analyse de l'ADC (cf. Paragraphe 2).

Une case est réservée à la recherche de doublons. Elle permet de savoir si deux évènements enregistrés sont identiques ou non. Si c'est le cas, la valeur mise à l'intérieur de cette case sera à 1, autrement elle sera à 0. Cette recherche est faite pour chaque évènement et pour chaque signal brut galette et fils.

Trois cases sont réservées aux résultats associés à la recherche du pulse à l'origine du déclenchement SOD (cf. Paragraphe 2).

La pré-analyse étudie également le bruit du signal brut et le bruit du signal après « déconvolution » et filtrage (cf. Paragraphe 2). La moyenne, l'écart type, l'asymétrie et le maximum de ce bruit sont calculés, sur une zone délimitée au début de chaque signal, et stockées dans le tableau (du bas) de résultats RADC.

Ces tableaux ci-dessus présentent l'organisation des informations globales à un évènement ADC. Toutefois, un évènement est caractérisé par un signal, qui peut contenir plusieurs pulses. C'est pourquoi, d'autres tableaux ont été mis en place pour stocker les informations extraites sur dix pulses, au maximum, par évènement. Ces informations sont obtenues après la pré-analyse des évènements des cartes ADC. Elles concernent, entre autres, le maximum d'amplitude, le temps associé à ces maxima... des pulses bruts et des pulses après « déconvolution » et filtrage.

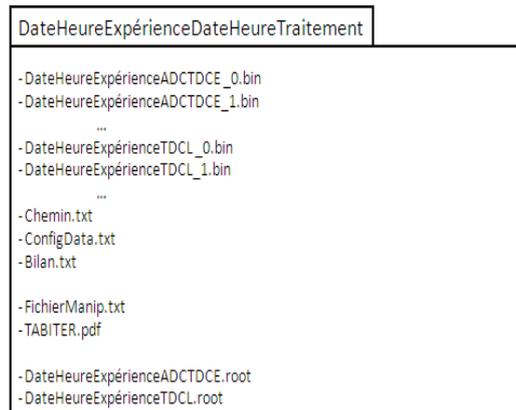
Résultats TDC : RTDC							
Paramètres généraux de l'evt			Voie 0		...	Voie 5	
0	1	2-19	20	21-36		105	106-121
Timestamp	Différence de timestamps entre 2 evts consécutifs	Vide	Nombre de hit sur la Voie 0	Temps de chaque hit		Nombre de hit sur la Voie 5	Temps de chaque hit

**Figure 3.9: Le contenu d'un tableau RTDC.**

La Figure 3.9 montre le contenu d'un tableau RTDC. L'organisation des données est la même, pour les cartes TDCE et TDCL. Elle commence par les paramètres globaux à l'évènement : le Timestamp et la différence de Timestamp entre deux évènements consécutifs. Ensuite, les informations sont rangées par voie. Nous en dénombrons 6 (Une voie pour le trigger : la voie 0 et les cinq autres pour les signaux galette et fils). Pour chacune d'entre elle, nous stockons le nombre de pulses et le temps, associé à chacun de ces pulses (soit 16 au maximum par évènement).

### 1.3.2. Création du dossier résultat et son contenu

A partir des tableaux, décrits ci-dessus, nous obtenons les fichiers de résultats, présentés sur la Figure 3.10. Ces fichiers sont stockés dans un dossier dont le nom est le Date/heure expérience suivi du date/heure traitement : DateHeureExpérienceDateHeureTraitement. De cette manière, les données d'une même expérience peuvent être traitées plusieurs fois (pour différentes valeurs de paramètres ou pour différents signaux de références...). A chaque traitement correspond un dossier pour lequel seul le DateHeureTraitement change.



**Figure 3.10: Le dossier résultat et son contenu, pour deux itérations.**

La Figure 3.10 montre le contenu du dossier de résultats. A l'intérieur de celui-ci, se trouve une copie des fichiers chemin.txt et ConfigData.txt. Ces copies informent l'utilisateur sur le nom de l'expérience traitée ainsi que sur la valeur des paramètres choisis pour effectuer la pré-analyse et le traitement des données.

A chaque itération, le couple d'instruments ADC-TDCE génère un fichier de résultats en format binaire : DateHeureExpérienceADCTDCE\_i.bin. Ce fichier stocke les informations du tableau TABACQ1 associées à chaque évènement d'une itération.

A chaque itération, la carte TDCL génère un fichier de résultats en format binaire : DateHeureExpérienceTDCL\_i.bin. Ce fichier stocke les informations du tableau TABACQ2 associées à chaque évènement d'une itération.

Le fichier texte : FichierManip.txt établit une liste des paramètres globaux à l'expérience (comme les paramètres de configuration de chaque instrument de mesure, les paramètres annexes du fichier ConfigData.txt...). Cette liste se divise en deux colonnes, l'une qui donne le nom du paramètre, l'autre qui les associe à leur valeur pour l'expérience étudiée, comme le montre la Figure 3.11.



```
Experiance faite le 20130327113421
Fichier : 20130327113421ADCTDCE.root
Fichier : 20130327113421TDCL.root

Arborescence générale : /sps/hep/ipa/
Arborescence résultat : AGREGAT/
Inoccupe : 0
DateHeure Manip : 20130327113421
Inoccupe : 0
Nom Programme : DIAManalysis
Inoccupe : 0
Initial utilisateur : MF
DateHeure Analyse : 20130422053432

Mode : 2
Nombre d'échantillons par fichier : 2080
Période d'échantillonnage (en ps) : 125
Pré - Post déclenchement (en ns) : -70
Voie 1 * Couplage : 3
Voie 1 * Bande passante : 0
Voie 1 * Pleine échelle (en V) : 1
Voie 1 * Décalage (en V) : 0
Voie 1 * Couplage du déclenchement : 3
Voie 1 * Pente de déclenchement : 0
Voie 1 * Niveau du déclenchement : -25
Voie 1 * Niveau du déclenchement 2 : 0
Voie du trigger * Couplage : 3
Voie du trigger * Bande passante : 0
Voie du trigger * Pleine échelle (en V) : 0
Voie du trigger * Décalage (en V) : 0
Voie du trigger * Couplage du déclenchement : 3
Voie du trigger * Pente de déclenchement : 1
Voie du trigger * Niveau du déclenchement : -300
Voie du trigger * Niveau du déclenchement 2 : 0
```

**Figure 3.11: Le fichier FichierManip.txt et une partie de son contenu.**

Ces paramètres sont utilisés à titre informatif et il est beaucoup plus facile de les consulter dans ce format. Par ailleurs, ils restent fixes, tout au long de l'expérience. C'est pourquoi, il n'est pas nécessaire de les intégrer dans le format ROOT<sup>®</sup>.

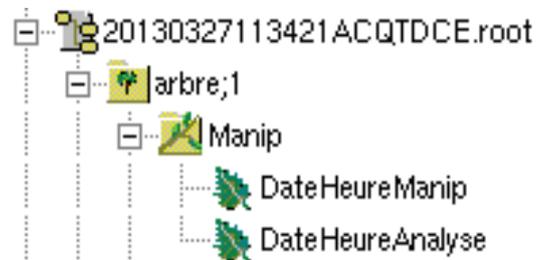
#### 1.4. Intégration des données dans ROOT<sup>®</sup>

Les informations contenues, à l'intérieur des fichiers binaires générés à chaque itération par le couple d'instruments ADC-TDCE et la carte TDCL, sont intégrées au format ROOT<sup>®</sup>. Pour le couple d'instrument ADC-TDCE, ces informations sont lues puis rangées dans le format proposé par le logiciel ROOT<sup>®</sup> [6] (structure en termes d'arbres, de branches et de feuilles). Cette étape s'effectue fichier par fichier. Un fichier ROOT : DateHeureExpérienceADCTDCE.root est généré en sortie. Il contient les informations de chaque événement ADCTDCE enregistré et traité. Cette démarche est également appliquée, pour le TDCL. C'est pourquoi, un fichier ROOT : DateHeureExpérienceTDCL.root est également généré en sortie. Celui-ci contient les informations de chaque événement TDCL enregistré et traité.

ROOT<sup>®</sup> [3] est un logiciel conçu pour établir des corrélations entre les différentes grandeurs propres à un événement. De plus, il permet d'observer ces paramètres expérimentaux de manière quantitative et statistique, tout en conservant l'étiquetage imposé aux événements. Ainsi, il est possible d'étudier les propriétés d'un groupe d'événements et/ou d'en isoler une partie. Les fichiers produits sont alors utiles pour faire de l'analyse de données

car ils offrent la possibilité d'observer l'expérience dans son ensemble aussi bien sur l'étude des processus physiques que sur le fonctionnement des instruments de mesure.

#### 1.4.1. Structuration en arbre, branches et feuilles



**Figure 3.12: Intégration des paramètres globaux à l'expérience dans ROOT®.**

La Figure 3.12 montre l'intégration des paramètres globaux à l'expérience dans ROOT® [5]. L'ensemble des informations enregistrés et traités, au cours d'une expérience, sont stockés dans un arbre. Cet arbre contient plusieurs branches, dont une : Manip est réservée aux paramètres globaux à l'expérience. Chaque branche possède plusieurs feuilles. Dans le cas de la branche Manip, nous en comptons deux : une associée au date/heure de l'expérience et une autre au date/heure de l'analyse. Chaque feuille stocke les valeurs d'un paramètre saisi sur les événements enregistrés et traités. Ces paramètres peuvent être tracés sous forme d'histogramme.

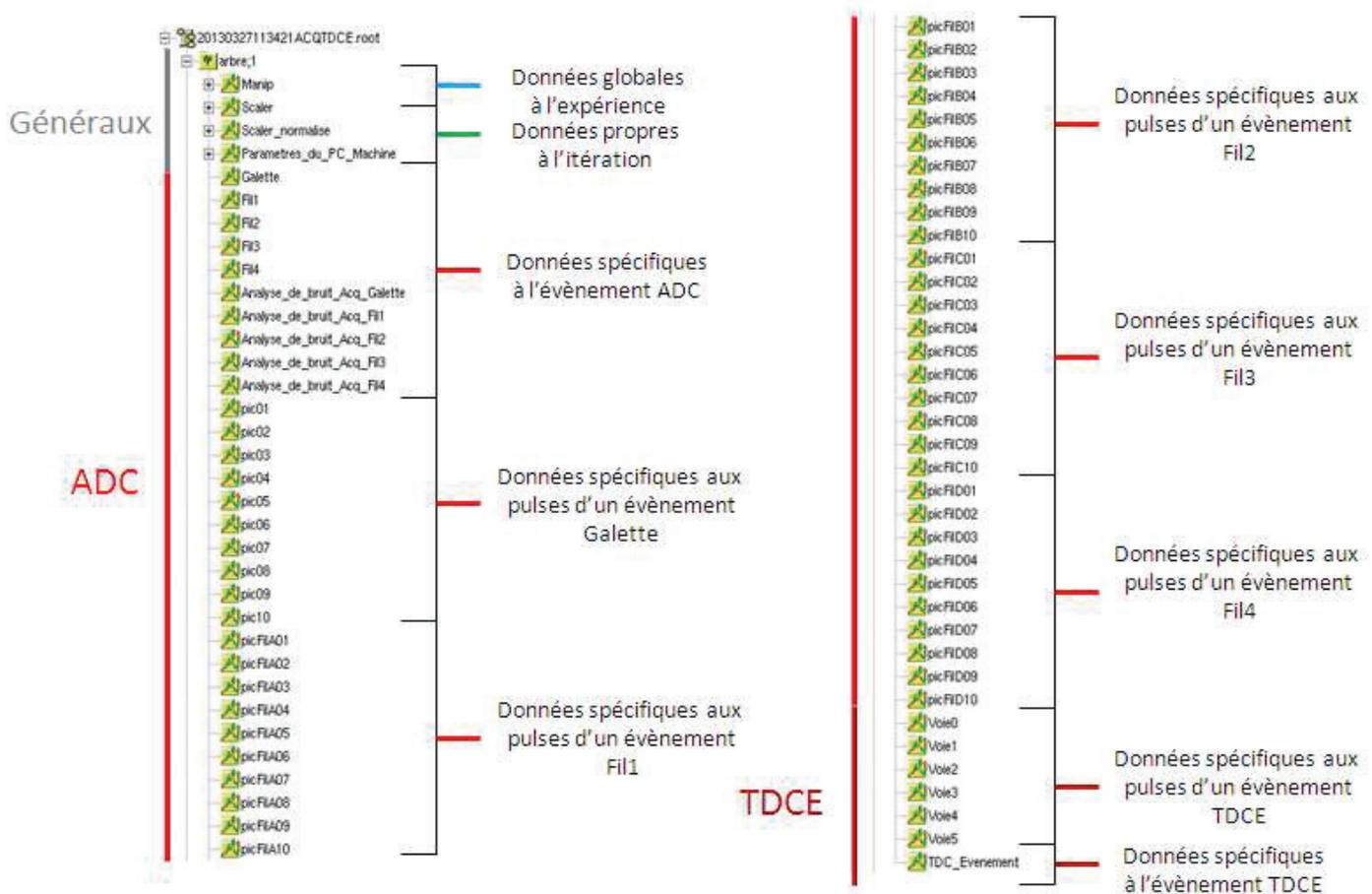


Figure 3.13: Intégration de tous les paramètres, qui caractérisent un évènement ADCTDCE, dans ROOT® (DateHeureExpérienceADCTDCE.root).

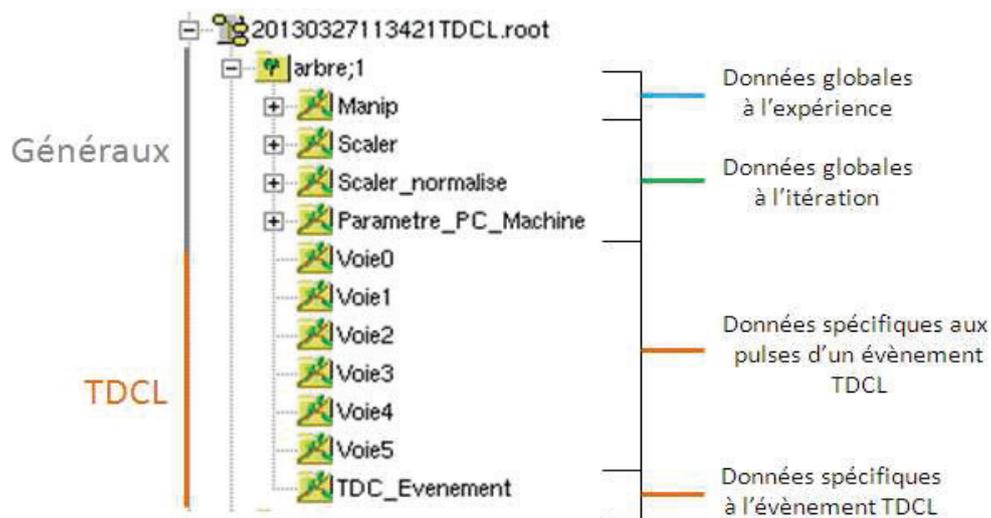


Figure 3.14: Intégration de tous les paramètres, qui caractérisent un évènement TDCL, dans ROOT® (DateHeureExpérienceTDCL.root).

Les Figures 3.13 et 3.14 montrent que cette structuration se généralise à tous les paramètres, qui caractérisent un évènement ADCTDCE et un évènement TDCL. L'ordonnement des fichiers ROOT suit la stratégie adoptée dans le traitement et la classification des données. La structuration reste la même : les paramètres généraux à l'expérience, les paramètres spécifiques à l'itération, les paramètres propres aux évènements (ADC puis TDCE ou TDCL selon les cas).

#### ***1.4.2. Tracé des paramètres mesurés à chaque itération***

L'intégration des paramètres spécifiques à une itération au format ROOT<sup>®</sup> permet de visualiser quantitativement les caractéristiques du dispositif expérimental. Cependant, avant d'envisager une analyse de données approfondie, nous vérifions s'il n'y a pas eu un problème d'ordre instrumental. C'est pourquoi, à chaque expérience, un fichier pdf, qui contient le tracé de ces paramètres, est généré. Il permet de visualiser, entre autre, l'évolution des paramètres machines, au cours d'une expérience : ce qui permet de déceler les anomalies.

AR_Lect_V_Skimmer	AR_Lect_I_Skimmer
AW_V_Filaments	AR_Lect_V_Filaments
AR_Lect_I_Filaments	AW_V_Lambda
AW_I_Lambda	AR_Lect_V_Lambda

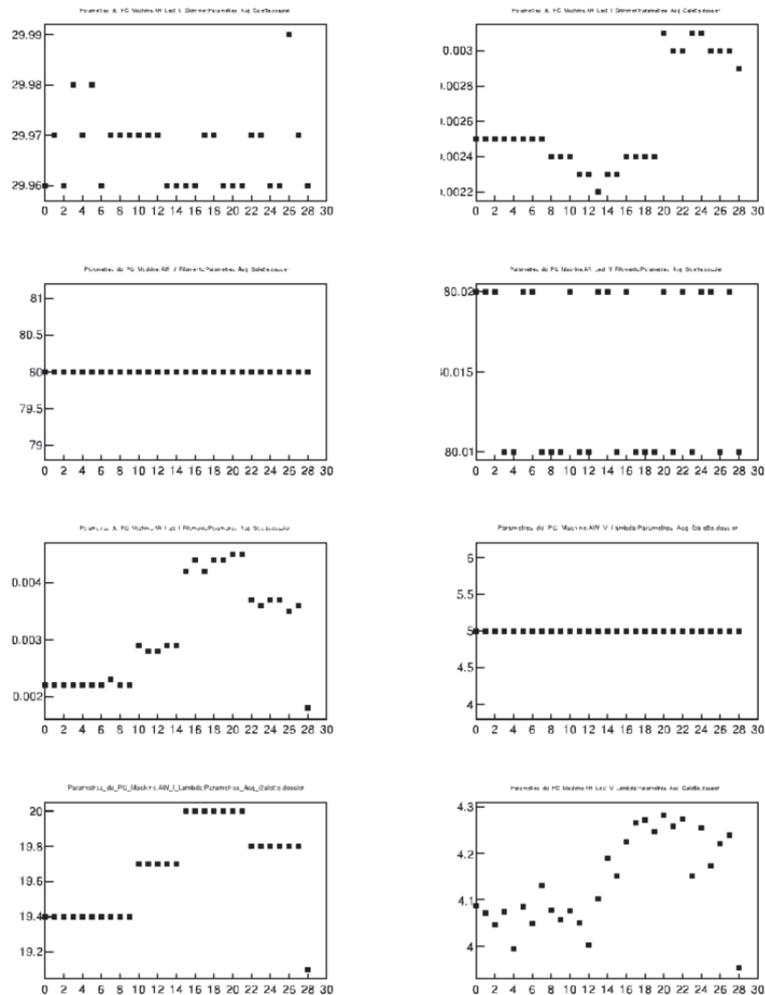


Figure 3.15: La fichier TAB\_ITER.pdf et une partie de son contenu.

La Figure 3.15 montre une page de ce pdf sur laquelle est représenté le tracé des tensions et des intensités des différents éléments en sortie de la source dont notamment les filaments et le skimmer (cf. chapitre 1). Les paramètres AW sont ceux saisis sur le contrôle/commande et les paramètres AR sont ceux lues. Pour cette expérience de 30 itérations, nous constatons que l'ensemble de ces paramètres sont stables. De plus, si nous nous référons à la tension des filaments (2<sup>ème</sup> graphes à gauche et à droite), nous remarquons que, pour un même paramètre, les valeurs saisies et lues sont proches : ce qui dénote le bon fonctionnement du contrôle/commande.

## 2. Traitement d'un évènement

Dans ce paragraphe, nous allons présenter le traitement d'un évènement. Un premier traitement permet de caractériser le pulse à l'origine du déclenchement (SOD). Ce pulse est recherché directement dans le signal brut. Le second traitement permet, pour l'ensemble d'un signal enregistré sur une voie de l'ADC (ici le Signal Galette), d'identifier les pulses et de les numéroter suivant leur ordre d'arrivée dans l'évènement, en s'affranchissant du bruit. Ce signal est traité par analyse de Fourier [1, 2]. De plus, ce traitement permet également d'associer les pulses du signal obtenu par la pré-analyse avec ceux du signal brut.

### 2.1. Caractérisation du pulse à l'origine du SOD

Le temps, associé à l'amplitude maximale du SOD, est mesuré par rapport à l'origine des temps de la fenêtre d'enregistrement. Comme nous l'avons vu, dans le chapitre 2, cette valeur est fixe, connue et correspond à la valeur du prétrigger de la carte ADC 1. C'est pourquoi, la mesure en temps de ce pulse permet de vérifier pour un lot d'évènements, caractérisé par la durée d'une expérience, la stabilité dans le déclenchement de la fenêtre d'enregistrement. Toutefois, cette valeur peut être légèrement décalée, par rapport à la valeur du prétrigger sous l'action d'un « jitter ». C'est pourquoi, pour déterminer précisément l'amplitude maximale du SOD ainsi que le temps qui lui est associé, il est nécessaire d'établir une recherche autour de la valeur du prétrigger.

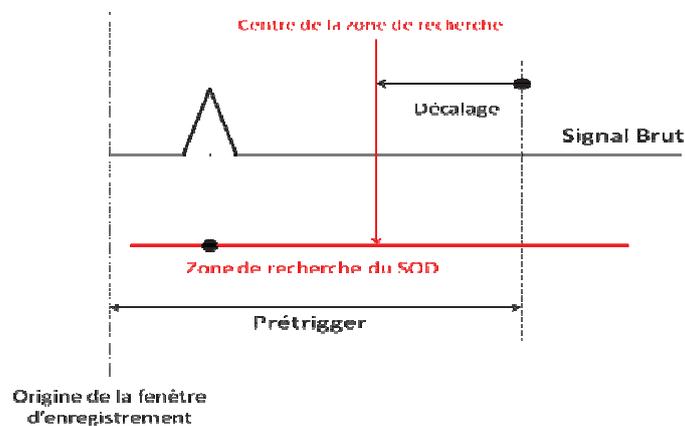
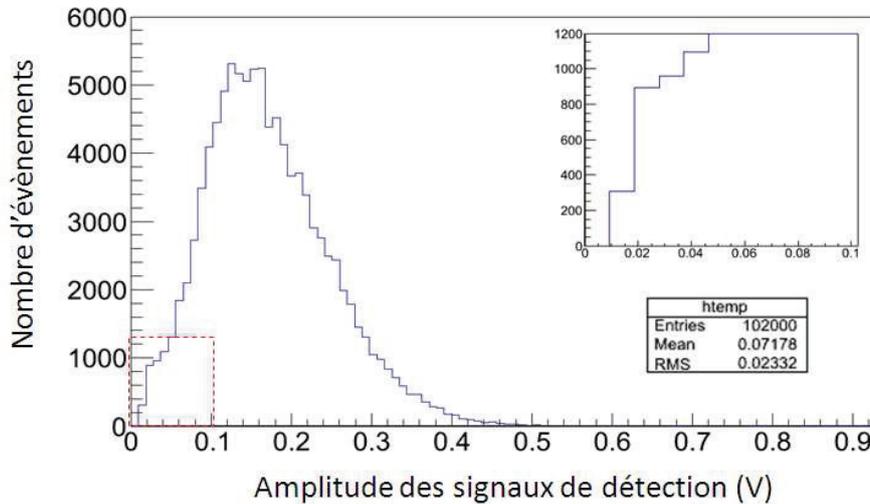


Figure 3.16: Caractérisation du SOD.

La Figure 3.16 illustre la méthode de recherche du SOD. Dans un premier temps, nous nous positionnons à la valeur du prétrigger. A cette valeur, nous soustrayons un décalage. Ce nouveau temps définit le centre de la zone de recherche dans laquelle le SOD est susceptible de se trouver. La taille de cette zone est caractérisée par sa demi-largeur. Dans un second temps, nous recherchons l'amplitude maximale du signal brut dans cette zone. Une fois trouvée, nous récupérons cette valeur d'amplitude ainsi que le temps qui lui est associé.

En mesurant l'amplitude maximale du SOD sur 102 000 évènements, prélevés sur une expérience où les ions étudiés sont des héliums  $\text{He}^+$ , accélérés à 8 keV (carte ADC 1 en mode SD), nous obtenons la distribution présentée sur la Figure 3.17.

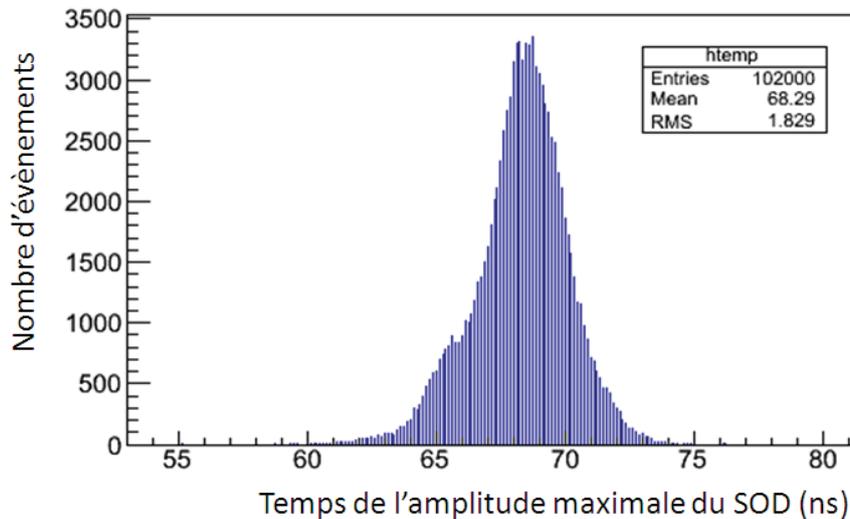


**Figure 3.17: Distribution d'amplitude maximale du SOD.**

La partie gauche de la distribution nous renseigne sur la valeur du seuil expérimental appliqué. En effet, celle-ci ne commence pas à zéro mais à 12,5 mV. C'est-à-dire que les pulses à l'origine du déclenchement ont leur amplitude maximale supérieure ou égale à cette valeur.

Par ailleurs, un palier se présente également, sur la partie gauche de la distribution, entre 12,5 et 50 mV, et l'amplitude maximale du bruit, pour cette expérience, est de l'ordre de 9 mV en moyenne (ANNEXE A). Nous savons que l'enveloppe d'un pulse sera plus affectée par le bruit, si l'amplitude maximale associée à ce pulse est plus proche de celle associée au bruit. Par conséquent, pour un pulse SOD de faible amplitude, l'amplitude maximale mesurée peut correspondre à celle d'un bruit situé n'importe où sur l'enveloppe du pulse : ce qui peut fausser la valeur de l'amplitude maximale du pulse et le temps associé à ce maximum. Comme il est difficile de séparer les différents cas, dans cette zone, les valeurs d'amplitude maximale deviennent alors toutes équiprobables, ce qui justifie la présence d'un palier sur la partie gauche de la distribution.

En mesurant le temps associé à l'amplitude maximale du SOD, pour ces mêmes évènements, nous obtenons la distribution présentée sur la Figure 3.18.



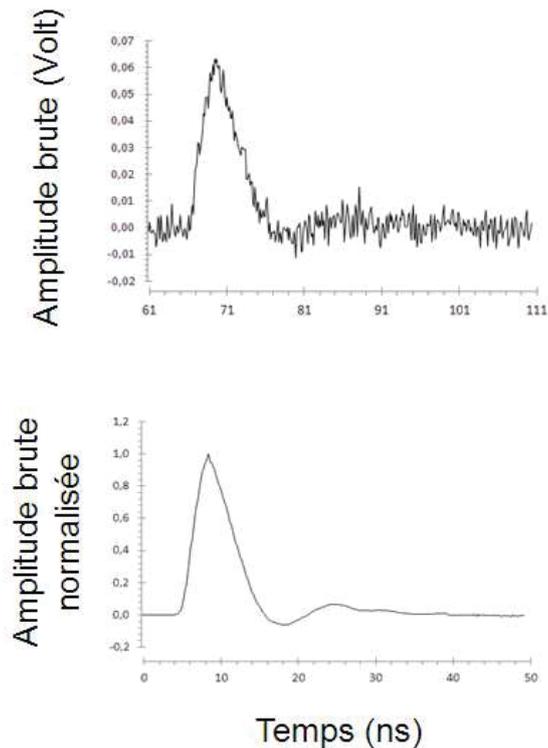
**Figure 3.18: Distribution du temps de l'amplitude maximale du SOD (Signal Galette).**

Cette distribution montre que le temps de l'amplitude maximale du SOD est assez proche de la valeur du prétrigger de la carte ADC 1. En effet, dans ce cas, la valeur du prétrigger est fixée à 70 ns alors que la valeur moyenne de la distribution est à 68,29 ns. De plus, sur cette distribution, nous voyons que le temps associé à l'amplitude maximale du SOD est compris entre 65 et 72 ns, pour la majorité des évènements. Ces deux observations confirment l'action d'un « jitter » qui avance ou retarde le SOD, par rapport à l'origine des temps de la fenêtre d'enregistrement de la carte ADC 1.

## ***2.2. Traitement de l'ensemble du signal enregistré sur une voie de l'ADC***

Ce paragraphe décrit les étapes de pré-analyse des signaux de détection mesurés via le passage par la transformée de Fourier. Le passage par la transformée de Fourier présente des avantages pour identifier les pulses bruts même si ceux-ci ont une amplitude maximale proche de celle du bruit. En effet, il sert à améliorer considérablement le rapport Signal/Bruit : ce qui permet de déterminer plus facilement le nombre de pulses présents dans chaque signal enregistré.

Dans ce paragraphe, nous décrivons ces étapes de pré-analyse en prenant l'exemple d'un Signal Galette. Ces étapes sont effectuées, de manière analogue, pour les signaux de chaque fil.



**Figure 3.19: Zoom du pulse d'un Signal brut  $S_m(t)$  Galette à 8 GHz, enregistré par la carte ADC 1, en mode SD, sur une fenêtre proche de la valeur du prétrigger (en haut) et signal moyen Galette  $h(t)$  (en bas).**

La Figure 3.19 expose, en haut, le zoom du pulse d'un Signal Galette brut, enregistré par la carte ADC 1, en mode SD, sur une fenêtre d'acquisition de 260 ns. Cet unique pulse est associé à l'impact d'un ion  $\text{He}^+$ , accéléré 8 keV, sur la surface de détection. C'est ce signal brut que nous allons pré-analyser. Il sera noté  $S_m(t)$  [3].

Par ailleurs, le groupe a montré que ces pulses étaient homothétiques [3]. Cette propriété a également été observée sur les pulses fils. Ceci a conduit à l'élaboration de cinq signaux de référence (un pour la Galette et les autres pour chaque fil). Ces signaux de référence peuvent correspondre à des signaux associés à des événements particuliers enregistrés par les cartes ADC ou, à des signaux moyens, générés à partir d'un certain nombre de signaux. Dans notre cas, nous avons choisi de travailler avec les signaux moyens. En effet, comme le montre le graphe du bas de la Figure 3.19, les effets du bruit, sur ces signaux, sont considérablement atténués. Ces signaux sont notés  $h(t)$ .

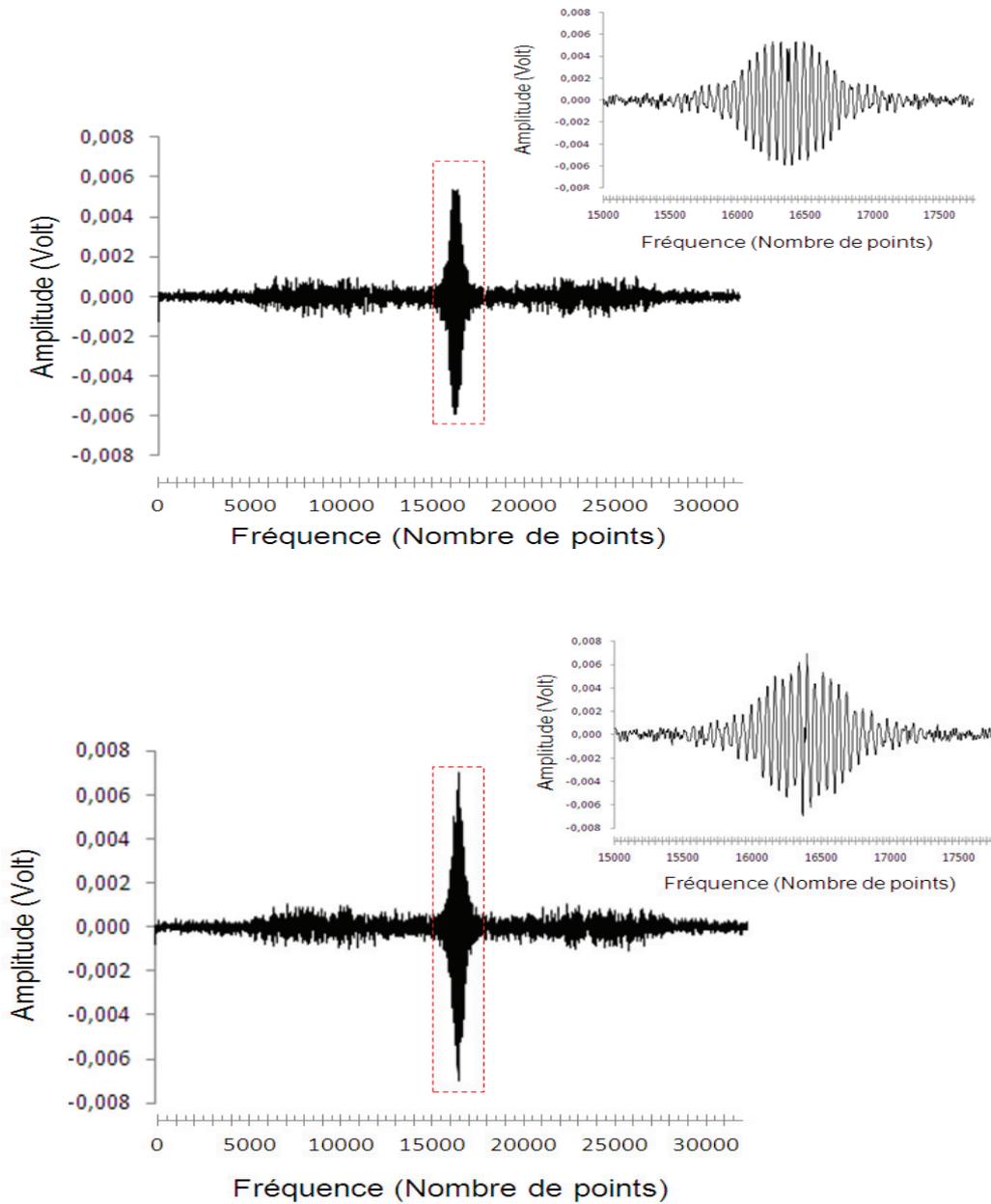
Si  $h(t)$  désigne le signal moyen,  $s(t)$  la fonction de Dirac  $\delta(t-t_0)$  (en vérité c'est un sinus cardinal car le signal n'est pas infini mais enregistré dans une fenêtre) et  $S_m(t)$  le signal brut alors nous pouvons exprimer  $S_m(t)$  de la manière suivante :

$$S_m(t) = s(t) * h(t) \quad (1)$$

Nous voulons caractériser la fonction  $s(t)$  sachant que les fonctions  $S_m(t)$  et  $h(t)$  sont connues. Pour se faire, nous calculons la transformée de Fourier du signal  $S_m(t)$ . La transformée de Fourier se fait toujours sur un nombre de points NPTS (32768 dans notre cas) et ceci pour tous les signaux bruts à traiter. Ce passage permet d'aboutir à la formule suivante dans l'espace de Fourier [6] :

$$S_m(w) = FFT[S_m(t)] = FFT[s(t) * h(t)] = s(w) \times h(w) \quad (2)$$

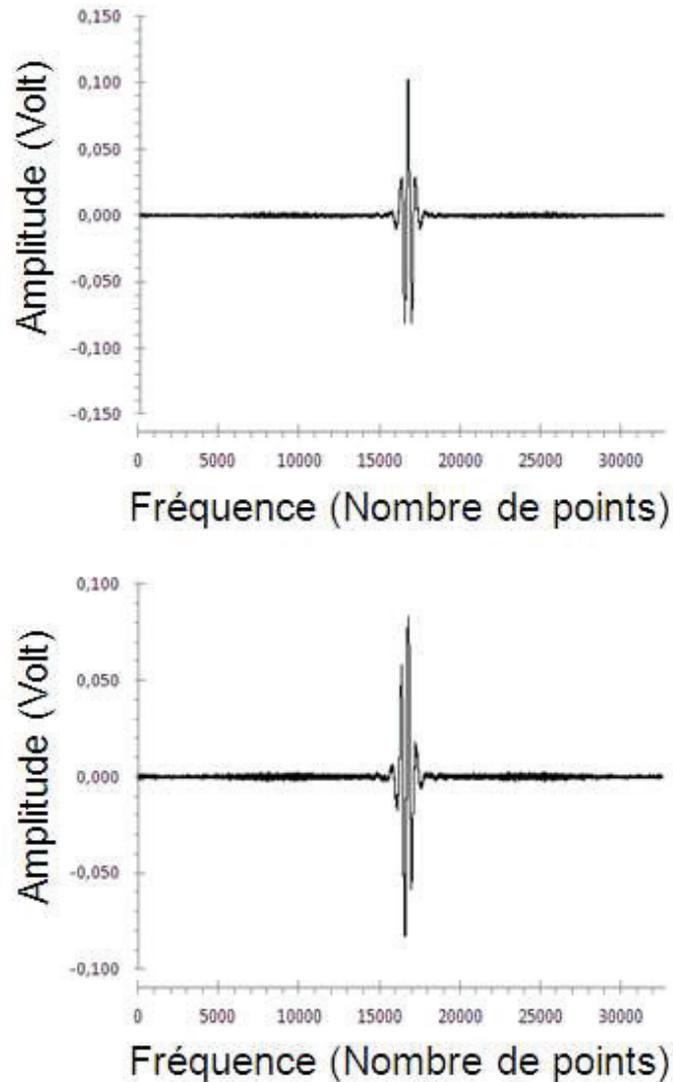
Nous obtenons alors le graphe de la partie réelle et de la partie imaginaire de cette transformée de Fourier.



**Figure 3.20: Partie réelle de la transformée de Fourier du signal  $S_m(t)$  (en haut), partie imaginaire de la transformée de Fourier du signal brut (en bas) et zoom sur la zone associée à l'information du pulse.**

La Figure 3.20 montre la partie réelle et la partie imaginaire de la transformée de Fourier du signal  $S_m(t)$ . Pour chacun d'eux, deux zones sont observables. La première est la partie centrale située entre 15 000 et 17 700 points. Cette zone délimite l'information associée au pulse. La seconde délimitée par le reste, de part et d'autre de la tâche centrale, est associée au bruit.

La fonction  $s(w)$  se détermine également à partir de la transformée de Fourier du signal moyen :  $h(w)$ .



**Figure 3.21: Partie réelle de la transformée de Fourier du signal moyen galette  $h(t)$  (en haut), partie imaginaire de la transformée de Fourier du signal moyen galette (en bas).**

Les graphes ci-dessus montre la partie réelle et la partie imaginaire de la transformée de Fourier du signal moyen galette  $h(t)$ . La transformée de Fourier de ces signaux font également apparaître deux zones : une zone centrale associée au pulse et une autre de part et d'autre associée au bruit.

La transformée de Fourier du signal  $s(t)$  se déduit de la formule suivante :

$$s(w) = \frac{S_m(w)}{h(w)} \quad (3)$$

Toutefois, lorsque la valeur de  $h(w)$  est proche de 0, la fonction  $s(w)$  diverge. C'est pourquoi, nous ajoutons à  $h(w)$  une valeur appelée TINY.

De plus, il ne faut prendre en compte que la partie du signal  $S_m(w)$  associée au pulse. C'est pourquoi, nous utilisons un filtre noté  $F(w)$ . Par conséquent, nous déterminons  $s(w)$ , à travers la formule suivante :

$$s(w) = \frac{S_m(w)}{h(w) + TINY} \cdot F(w) \quad (4)$$

Le filtre  $F(w)$  choisi est défini, par la formule suivante :

$$F(w) = \frac{1}{1 + C \cdot \exp\left(\frac{w}{w_c}\right)} \quad (5)$$

avec  $w$  la fréquence,  $w_c$  la fréquence de coupure et  $C$  une valeur empirique [3].

La fréquence  $w$  est obtenue à partir du nombre de points  $x$  de la manière suivante :

$$w = x - \frac{NPTS}{2} \quad \text{si } x \geq \frac{NPTS}{2}$$

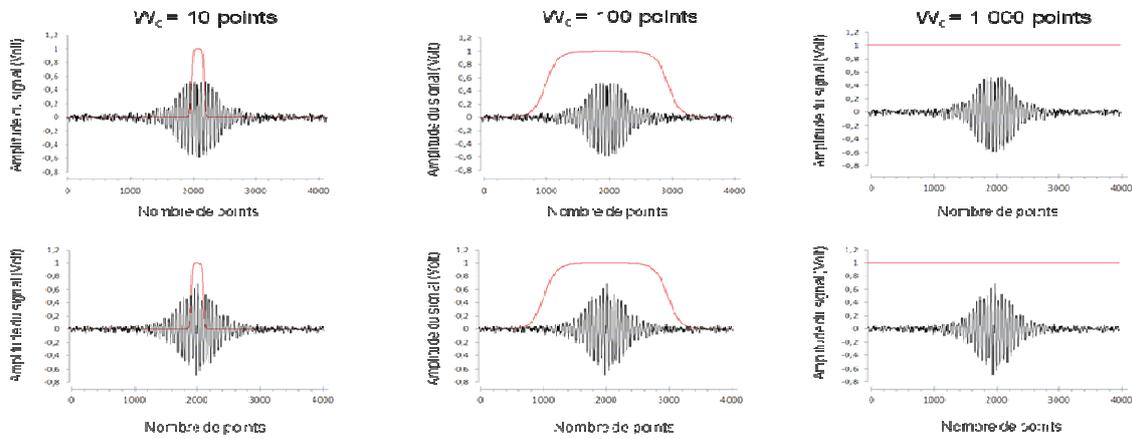
$$w = \frac{NPTS}{2} - x \quad \text{si } x \leq \frac{NPTS}{2}$$

La fréquence de coupure  $w_c$  permet de modifier la largeur du filtre  $F(w)$  et de délimiter les zones pour lesquelles la valeur du filtre passe de 0 à 1 et inversement.

Nous aurions pu utiliser une fonction porte de largeur variable. En effet, un tel filtre permet d'affiner les pulses sur le signal « déconvolué » et filtré. En revanche, il accentue les rebonds car la Transformée de Fourier d'une fonction porte est un sinus cardinal.

Le fait de délimiter les zones pour lesquelles la valeur du filtre passe de 0 à 1 et inversement réduit l'amplitude des rebonds sur le signal  $S_m(w)$  mais élargit, en contrepartie, les pulses. Toutefois, dans les études que nous avons mené, les événements possèdent soit un seul pulse soit plusieurs bien espacés en temps.

Pour que le filtre accentue le rapport d'amplitude entre le pulse principal et ses rebonds, celui-ci doit prendre en compte la zone d'information liée au pulse (partie centrale) et élimine le plus possible les contributions liées au bruit. Pour se faire, nous sélectionnons la fréquence de coupure  $w_c$  qui respecte au mieux ces propriétés.



**Figure 3.22: Influence de la fréquence de coupure sur l'allure du filtre (en rouge) appliqué au signal  $S_m(w)$  Galette (partie réel en haut et partie imaginaire en bas). A gauche  $w_c=10$  points, au milieu  $w_c=100$  points et à droite  $w_c=1000$  points. Pour une meilleure observation, l'amplitude de ces signaux a été multiplié par 3.**

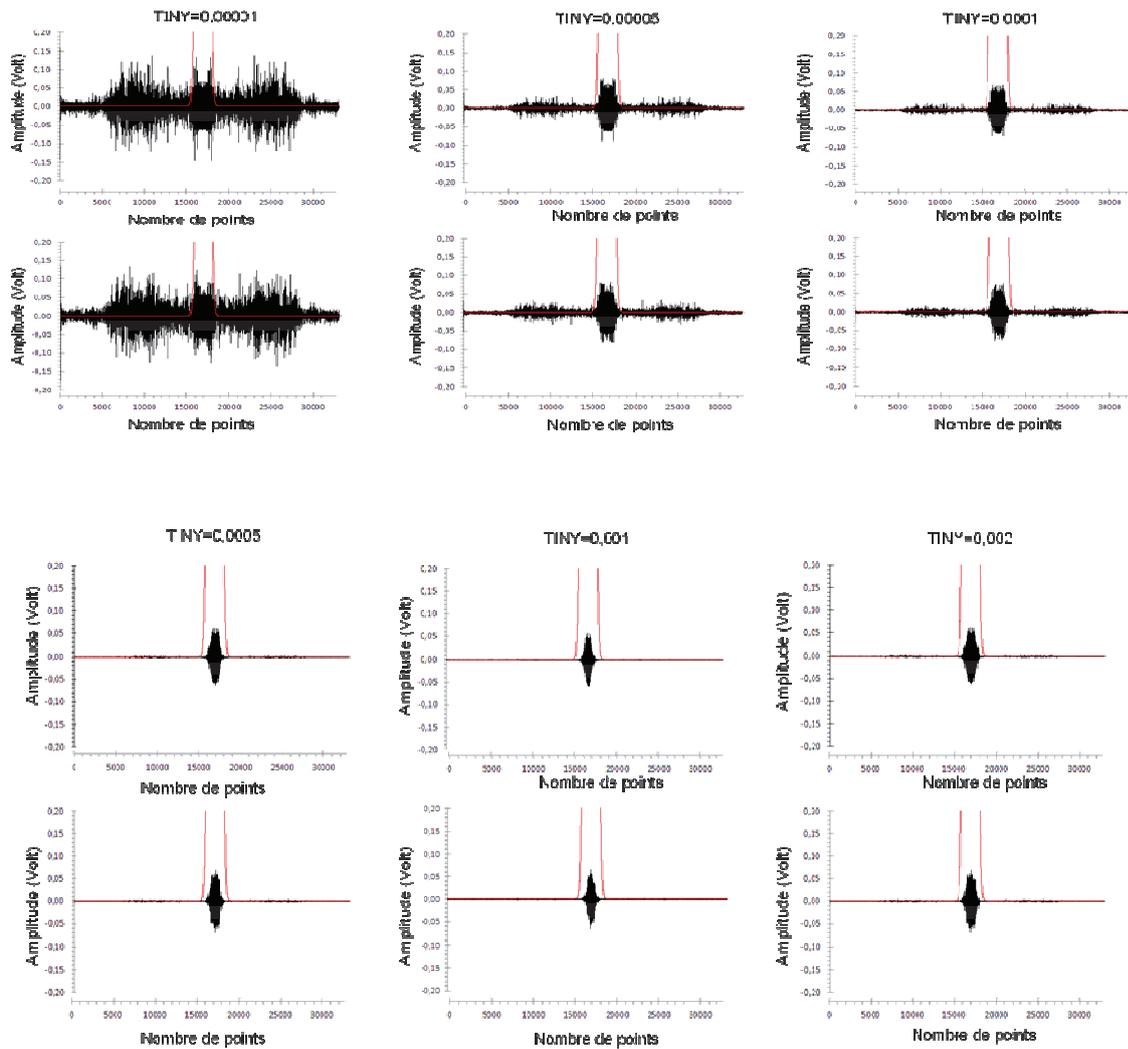
Si  $w_c$  est faible (10 points pour le graphe de gauche), les bords du filtre deviennent semblables à ceux d'une porte et sa largeur diminue. Il ne prend alors en compte qu'une partie de l'information associée au pulse.

Le graphe au centre de la Figure 3.22 montre l'allure du filtre lorsque  $w_c$  vaut 100 points. Ce filtre englobe la zone d'information liée au pulse et a ses bords arrondis. Dans cette zone, la valeur du filtre est de 1. Par conséquent, l'amplitude n'est pas modifiée. La zone associée au bruit est éliminée car, dans cette région, la valeur du filtre est proche de 0.

Si  $w_c$  est élevée (1000 points pour le graphe de droite), la zone où la valeur du filtre est proche de 1 s'élargit et englobe les zones de bruit.

En regardant, l'influence de la fréquence de coupure sur le filtre  $F(w)$ , nous avons pu l'estimer à 100 points pour le Signal Galette et à 250 points pour chaque signal fil.

Par ailleurs, la Formule (4) montre que le TINY influe également sur l'allure du signal  $s(w)$ . Nous avons observé cet effet en traçant l'allure du signal  $s(w)$  pour différentes valeurs de TINY. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 3.23.



**Figure 3.23: Influence du TINY sur le signal  $s(w)$  Galette (en noir) et représentation du filtre appliqué à ce signal (en rouge).**

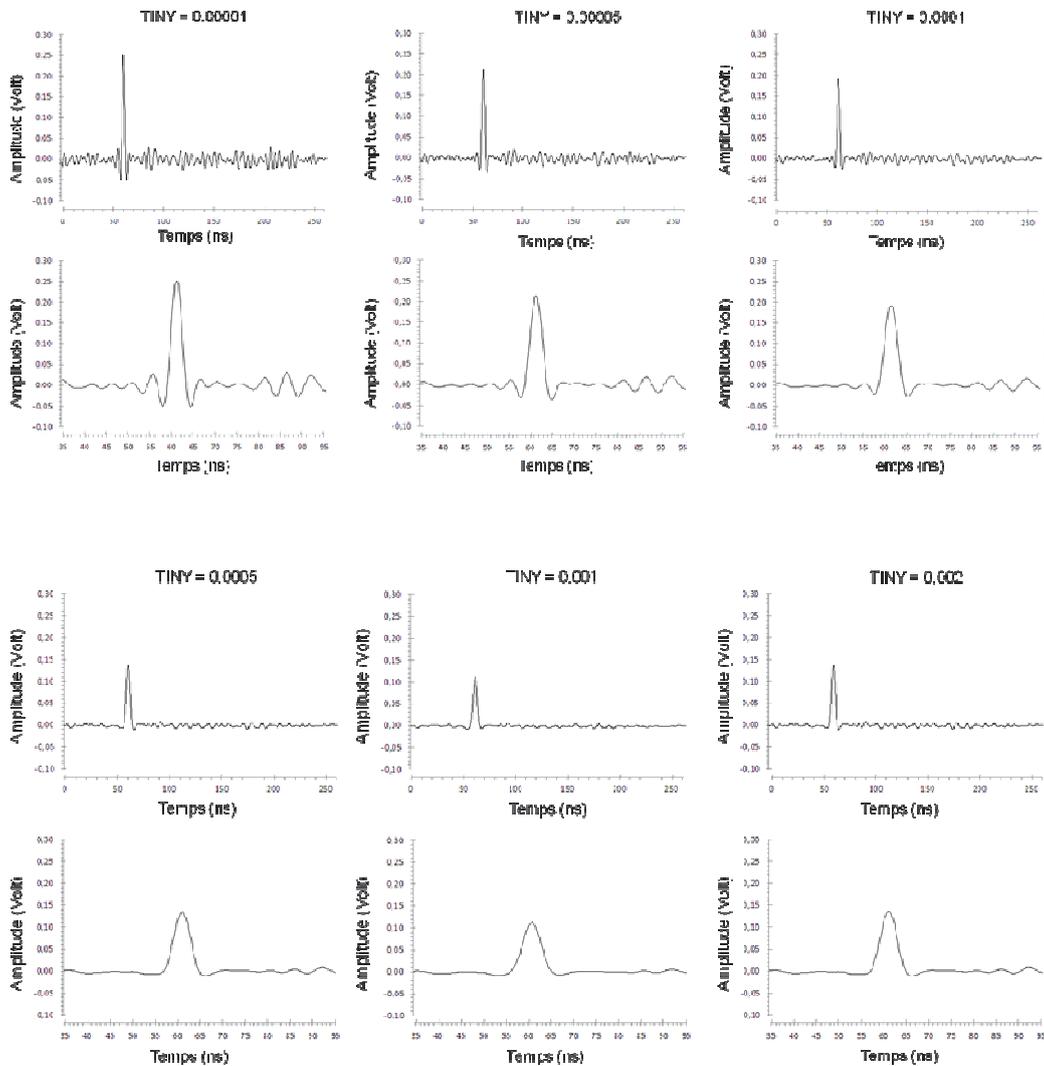
La Figure 3.23 présente l'allure du signal  $s(w)$  pour différentes valeurs de TINY allant de  $1 \times 10^{-5}$  à  $2 \times 10^{-3}$ . Ces graphes montrent, de manière générale, que plus la valeur du TINY est importante et plus la zone associée à l'information du pulse devient prédominante par rapport à celle associée au bruit. Par conséquent, le TINY est un moyen de bien séparer ces deux zones.

De plus, nous constatons que plus le TINY est important, plus la valeur absolue des amplitudes du signal  $s(w)$  diminue. Par conséquent, l'amplitude du signal  $s(t)$  sera plus faible lorsque la valeur du TINY sera grande. Cependant, cet effet est moins flagrant si nous l'observons pour les plus grandes valeurs de TINY (de  $5 \times 10^{-4}$  à  $2 \times 10^{-3}$ ).

Par ailleurs, nous pouvons voir que le TINY influe légèrement sur la largeur de la zone d'information associée au pulse. Celle-ci devient plus faible lorsque le TINY est grand.

Toutefois, le filtre choisie (en rouge) permet de bien délimiter la zone associée à l'information du pulse, quelque soit la valeur du TINY.

Comme le TINY influe sur l'allure du signal  $s(w)$ , il influe également sur l'allure du signal  $s(t)$ . Pour observer cet effet, nous avons tracé l'allure du signal  $s(t)$  pour différentes valeurs de TINY. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 3.24.



**Figure 3.24: Influence du TINY sur le signal  $s(t)$  Galette (signal  $s(t)$  dans la fenêtre d'enregistrement de la carte ADC 1 en haut et zoom sur son pulse en bas).**

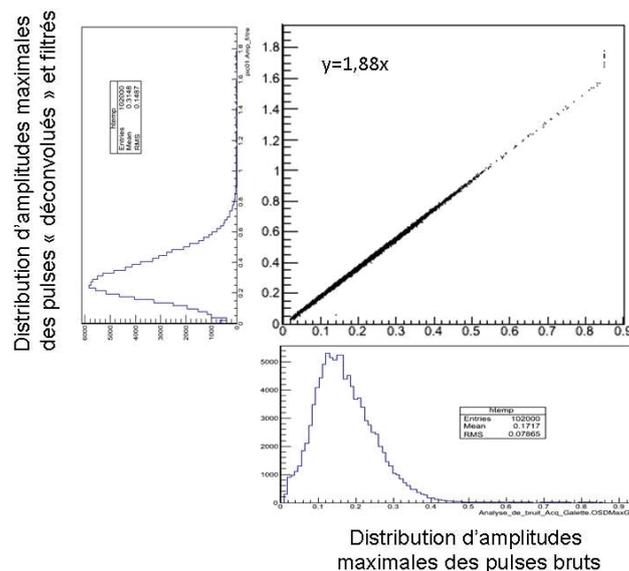
La Figure 3.24 montre l'influence du TINY sur le signal  $s(t)$  Galette. Pour chaque valeur de TINY, nous avons tracé ce signal, dans la fenêtre d'enregistrement de la carte ADC 1 (en haut) et le zoom de son pulse (en bas).

Dans un premier temps, nous voyons que l'augmentation du TINY a également tendance à provoquer l'élargissement des pulses et une baisse de leur amplitude maximale.

Dans un second temps, nous observons la présence de rebonds autour du pulse principal. Ces rebonds sont de plus grandes amplitudes et plus nombreux, lorsque le TINY est faible. Ceci est due à l'influence du bruit car, lorsque le TINY est faible, la zone associée à l'information du pulse et celle associée au bruit sont moins bien séparées.

De plus, nous utilisons le signal  $s(t)$  pour déterminer le nombre de pulses. C'est pourquoi, nous veillons également à ce que les pulses numérotés et traités soient des pulses principaux et non des rebonds, qui leur sont associés. Pour déterminer le nombre de pulses, nous appliquons un seuil au signal  $s(t)$ . Un pulse est numéroté et traité à chaque fois que l'amplitude de ce signal dépasse celle fixée par le seuil. Par ailleurs, les pulses, traités dans les mêmes conditions (même  $w_c$  et même TINY) sont homothétiques [1]. Par conséquent, l'amplitude maximale des rebonds est proportionnelle à celle du pulse principal. Ainsi, un pulse principal de faible amplitude est associé à des rebonds de faibles amplitudes et inversement. Toutefois, comme la valeur de seuil reste la même, pour le traitement de tous les événements d'une expérience, il est possible, lorsque l'amplitude maximale des pulses principaux est grande, qu'un ou plusieurs rebonds la dépassent, ce qui affecte la numérotation des pulses.

La Figure 3.24 montre que le rapport d'amplitudes maximales entre le pulse principal et ses rebonds change avec le TINY. C'est un critère qui va également jouer dans le choix de celui-ci. Toutefois, nous n'avons pas accès directement à cette information mais nous pouvons l'obtenir indirectement en étudiant la corrélation entre l'amplitude maximale de ce pulse principal et celle du pulse brut, pour un lot de 102 000 événements, comme le montre le graphe de la Figure 3.25.

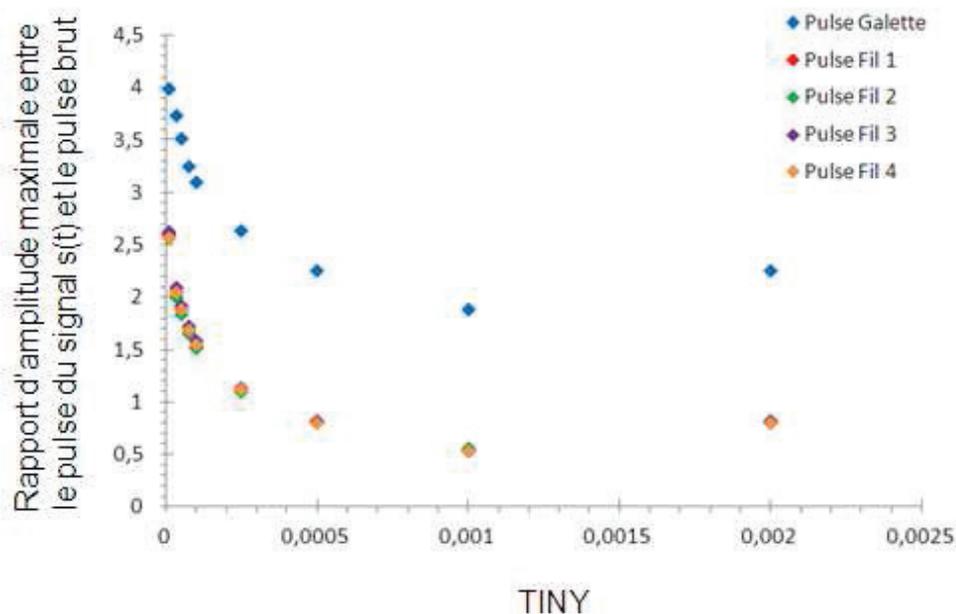


**Figure 3.25: Corrélation entre l'amplitude maximale du SOD et l'amplitude maximale du pulse du signal  $s(t)$  (pré-analyse du Signal Galette avec  $w_c=100$  points et  $TINY=10^{-3}$ ). Cette corrélation décrit une droite d'équation  $y=1,88x$  avec  $y$  l'amplitude maximale du pulse du signal  $s(t)$  et  $x$  l'amplitude maximale du pulse brut associé.**

Le graphe de la Figure 3.25 a été obtenu à partir des événements de l'expérience pour laquelle l'ion  $\text{He}^+$  est accéléré à 8 keV. Il présente, pour l'ensemble de ces événements, la corrélation entre l'amplitude maximale du pulse brut (dans ce cas SOD) et celle du pulse du signal  $s(t)$ . Dans cet exemple, la pré-analyse des signaux galette, associés à chaque événement, a été effectuée avec une fréquence de coupure  $w_c=100$  points et un  $\text{TINY}=10^{-3}$ .

Ce graphe montre que l'amplitude maximale du pulse du signal  $s(t)$  est proportionnelle à celle du pulse brut. Dans nos conditions de pré-analyse, ce coefficient de proportionnalité est à 1,88. De plus, nous constatons la présence d'un palier, lorsque l'amplitude maximale du pulse brut atteint 850 mV. Ce palier montre qu'un pulse brut, en sortie des deux galettes MCP et pré amplifié, ne peut pas avoir une amplitude maximale, qui excède cette valeur, associée au gain des deux galettes MCP et des préamplificateurs. De plus, nous voyons qu'à cette valeur d'amplitude brute correspondent plusieurs valeurs.

Par ailleurs, nous avons pré-analysé ces mêmes signaux pour différentes valeurs de TINY. Nous avons fait de même pour les signaux de chaque fil (avec  $w_c=250$  points). Les résultats, que nous avons obtenus, sont présentés sur la Figure 3.26.



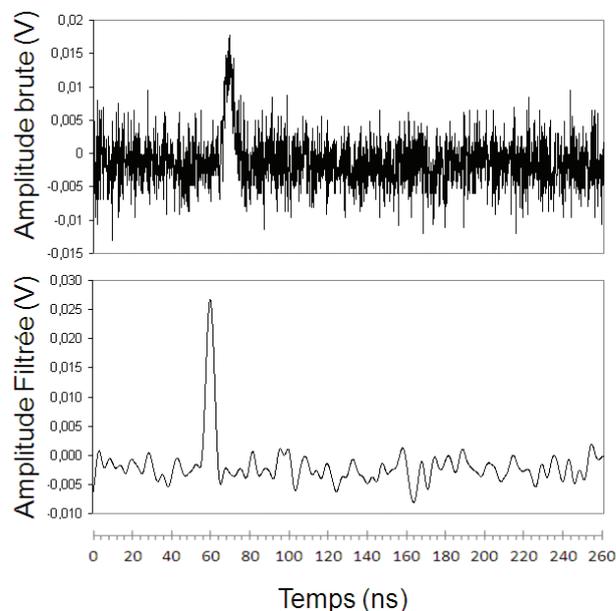
**Figure 3.26: Variation du rapport d'amplitude maximale entre le pulse du signal  $s(t)$  et le pulse brut en fonction du TINY, pour le signal Galette (en bleu), le Fil1 (en rouge), le Fil2 (vert), le Fil3 (en violet) et le Fil4 (en orange), avec  $w_c = 100$  pour la Galette et  $w_c=250$  pour les fils.**

La Figure 3.26 présente la variation du rapport d'amplitude maximale entre le pulse du signal  $s(t)$  et le pulse brut (ou de manière générale n'importe quel autre pulse brut), en fonction du TINY. Les courbes obtenues présentent la même tendance pour les pulses galette et fils et passent par un minimum pour un TINY égal à  $10^{-3}$ . Nous sélectionnons cette valeur, pour le TINY. En effet, le choix du TINY utilisé, dans la pré-analyse des signaux, modifie

uniquement l'amplitude du pulse du signal  $s(t)$ . Par conséquent, si celle-ci est petite, l'amplitude maximale des rebonds, qui lui sont associés, le sera également. C'est pourquoi, nous prenons la valeur du TINY pour laquelle les courbes passent par un minimum.

De plus, cette étude permet de mesurer le seuil minimal que nous devons appliquer au signal  $s(t)$  afin que même les pulses de faibles amplitudes puissent être numérotés et traités, tout en évitant de prendre en compte les rebonds. Pour estimer ce seuil, nous mesurons, dans un premier temps, le seuil appliqué au signal brut, fixé par le discriminateur (Figure 3.18). Ce seuil « brut » est estimé à 12,5 mV, pour le Signal Galette. Une étude analogue nous a permis de mesurer le seuil « brut » de chaque signal fil : 17,5 mV pour le Fil 1, 16,5 mV pour le Fil 2, 19,5 mV pour le Fil 3 et 16,5 mV pour le Fil 4. Ensuite, nous utilisons le coefficient de proportionnalité entre le pulse brut et le pulse du signal  $s(t)$ , obtenu lorsque le TINY vaut  $10^{-3}$  (Figure 3.26), pour estimer le seuil, que nous voulons appliquer, au signal  $s(t)$ , à partir du seuil « brut ». De cette manière, nous montrons que le seuil à appliquer au signal  $s(t)$  vaut 25 mV pour la Galette, 8,8 mV pour le Fil 1, 8,3 mV pour le Fil 2, 9,8 mV pour le Fil 3 et 8,3 mV pour le Fil 4. De plus, en nous référant à la Figure 3.25, nous voyons que, lorsque le TINY vaut  $10^{-3}$ , aucun rebond n'est pris en compte car si c'était le cas, nous verrions, sur cette figure, d'autres droites de pente plus faible (ANNEXE B) associées à la corrélation entre l'amplitude maximale des rebonds et celle du pulse brut.

Par ailleurs, l'application d'un seuil sur le signal  $s(t)$  permet d'identifier les pulses. Ces pulses seront, ensuite, associés à ceux qui leur correspondent sur le signal brut, même si ceux-ci ont une amplitude maximale petite.

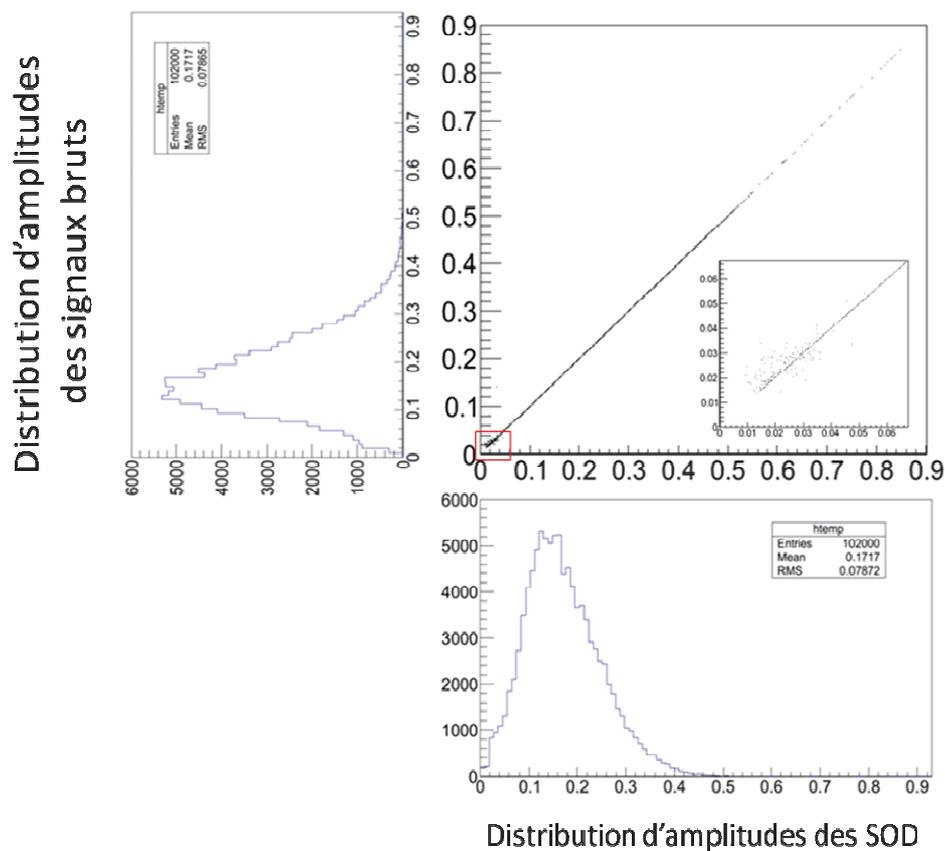


**Figure 3.27: Amélioration du rapport Signal/Bruit sur un signal Galette de faible amplitude maximale, une fois le signal déconvolué et filtré, pour un TINY=0.001 et  $W_c=100$ .**

La Figure 3.27 montre l'exemple d'un signal brut Galette (en haut) et du signal  $s(t)$  obtenu pour les conditions de pré-analyse suivante :  $TINY=10^{-3}$  et  $w_c=100$  points (en bas). Le pulse brut a une amplitude maximale très faible, proche de celle du bruit et le seuil « brut » est à 12,5 mV. Après la pré-analyse, ce pulse ressort du bruit et au moyen du seuil filtré calculé précédemment, le pulse s'identifie plus facilement. Ensuite, nous repérons le pulse brut qui lui est associé, en recherchant l'amplitude maximale du signal brut, dans une zone de temps proche de celui où se trouve le pulse du signal  $s(t)$ .

Le choix de la zone prend en compte le décalage en temps existant entre le pulse brut et le pulse du signal  $s(t)$ , visible sur la Figure 3.27. Ce décalage est lié à la différence de temps entre le pulse brut et le pulse du signal moyen  $h(t)$ .

La pré-analyse permet de numérotter les pulses, de les traiter et de les associer à ceux du signal brut. Pour savoir si les pulses du signal  $s(t)$  sont bien associés aux pulses « bruts », nous caractérisons le SOD, par cette méthode, et nous regardons, pour un lot de 102 000 événements, que les résultats sont analogues à ceux obtenus par la méthode du paragraphe 2.1.



**Figure 3.28: Comparaison des amplitudes maximales obtenues pour les signaux bruts à travers les deux méthodes et zoom sur la zone à faible amplitude.**

La Figure 3.28 présente les résultats d'une expérience faite sur ( $\text{He}^+ - 8\text{keV}$ ), pour laquelle l'enregistrement des événements se fait en mode SD. C'est pourquoi, dans ce cas, le SOD correspond au premier pulse (cf. Chapitre 2). La corrélation entre l'amplitude maximale du SOD, obtenue par une recherche directe de ce pulse sur le signal brut, et l'amplitude maximale du premier pic, obtenue après l'étape de pré-analyse, est représentée par une droite de pente 1. Ce qui montre que les deux méthodes conduisent à des résultats analogues. Toutefois, nous observons une légère tâche dans la zone des faibles amplitudes (zoom). Elle montre que, pour certains événements, le SOD ne correspond pas au premier pulse mais à un bruit et réciproquement. En effet, la recherche de l'amplitude maximale du signal brut s'effectue sur une certaine zone, pour les deux méthodes, et les zones choisies, dans les deux cas, ne se recouvrent pas totalement.

## Conclusion

Les données enregistrées par chaque instrument de mesure du système d'acquisition sont organisées en vue d'être traitées, chronologiquement, événement par événement. Les cartes ADC et la carte TDCE enregistrent les mêmes événements. En revanche, elles peuvent prendre en compte des événements différents de ceux de la carte TDCL. C'est pourquoi, les événements enregistrés par le couple d'instruments ADC-TDCE sont traités séparément de ceux enregistrés par la carte TDCL.

De plus, le traitement permet de conserver la trace du contexte dans lequel chaque événement a été enregistré (paramètre de l'expérience, paramètres machines...). A la fin du traitement, les données propres à chaque événement sont rangées dans un tableau (TABACQ1 pour les événements associés au couple d'instruments ADC-TDCE et TABACQ2 pour les événements associées à la carte TDCL). Ce tableau est découpé en trois blocs de données :

- Les paramètres globaux à l'expérience comme le date/heure de l'expérience et le date/heure du traitement : ces paramètres sont traités en premier et une seule fois. Ils sont stockés dans le tableau TAB-EXPERIENCE.
- Les paramètres spécifiques à l'itération comme les paramètres du contrôle/commande : ces paramètres sont traités en début de chaque itération. Ils sont stockés dans le tableau TAB-ITERATION.
- Les paramètres spécifiques à l'événement : ces paramètres sont traités à chaque événement. Ils sont stockés dans les tableaux RADC et RTDCE pour le couple d'instruments ADC-TDCE et dans le tableau RTDCL pour la carte TDCL.

Le traitement des deux cartes TDC s'effectue en deux étapes : la lecture des données enregistrées et leur réorganisation dans le tableau de résultats RTDC.

Le traitement des cartes ADC s'effectue sur les signaux enregistrés, dans une fenêtre de taille donnée (cf. Chapitre 2). Pour chaque signal, nous caractérisons le SOD pour en extraire

l'amplitude maximale et le temps associé à ce maximum. L'information sur le temps, nous a permis de montrer la stabilité dans le déclenchement des fenêtres d'enregistrement.

Nous déterminons également la transformée de Fourier de chaque signal, pour en extraire le nombre de pulses, les numéroter et les traiter, par ordre chronologique sur le signal. Ce traitement permet de caractériser chaque pulse dont le SOD, quelque soit son amplitude maximale, en s'affranchissant le plus possible du bruit. Ceci donne accès, pour un lot ou sur l'ensemble des évènements d'une expérience, à des distributions d'amplitudes maximales plus complètes. Les pulses obtenus, lors de l'étape de pré-analyse, sont associés à ceux du signal brut. Pour vérifier cette correspondance, nous avons comparé les amplitudes maximales extraites de la caractérisation du SOD, dans les deux méthodes. Les résultats sont analogues exceptés dans les cas où l'amplitude maximale du pulse est petite à cause de la contribution du bruit et des zones de recherche que nous avons choisi.

Les données rangées sont ensuite intégrées dans le format ROOT<sup>®</sup>, utilisés pour faire des corrélations et identifier de nouvelles caractéristiques aux évènements, en sélectionnant des coupes pertinentes.

L'analyse « off-line » associée à la méthode COINTOF comporte plusieurs objectifs que nous présenterons à travers trois principaux aspects :

- Un premier aspect est lié à la calibration de l'appareil de mesure comme la mesure des différences de temps de vol entre un fragment neutre et fragment chargé de masse donné. C'est une grandeur caractéristique de la géométrie du détecteur et des tensions appliquées. La mesure de l'efficacité de détection peut être également effectuée. Ces informations sont comparées aux simulations du détecteur, mais elles peuvent aussi être réinjectées dans le traitement des données brutes.
- Un second aspect est associé aux mesures de sections efficaces et de rapports de branchement. En effet la méthode COINTOF permet la mesure quantitative des sections efficaces pour les différents canaux de fragmentations observés ; ce point est important pour comparer de manière quantitative les résultats expérimentaux avec les modèles théoriques.
- Un troisième aspect consiste à étudier les différences de temps de vol entre les fragments neutres produits par un même agrégat. Ces différences de temps de vol mesurées sont directement reliées à l'énergie de dissociation emportée par les fragments neutres. Les fragments neutres n'étant pas influencés par les instruments de mesure, ils apportent une information directe sur la fragmentation du système.

Ces différents aspects de l'analyse ne sont pas complètement disjoints et l'analyse procède par étape sur des lots d'événements partiels avant d'être appliquée sur l'ensemble de la statistique. En particulier les allers-retours entre l'analyse dans ROOT<sup>®</sup> et le traitement des données brutes sont nombreux.

## Sommaire

Chapitre 3 : Traitement des données brutes .....	75
1. Organisation des données pour le traitement évènement par évènement.....	75
1.1. Les entrées.....	75
1.2. Organigramme du traitement des données .....	77
1.3. Les Sorties.....	79
1.4. Intégration des données dans ROOT <sup>®</sup> .....	84
2. Traitement d'un évènement.....	89
2.1. Caractérisation du pulse à l'origine du SOD.....	89
2.2. Traitement de l'ensemble du signal enregistré sur une voie de l'ADC. ....	91

## Table des figures

Figure 3.1: Structuration des données brutes et des paramètres instrumentaux pour chaque appareil de mesure du système d'acquisition, une fois l'acquisition des données terminées. .	76
Figure 3.2: Le contenu du dossier de paramètres : PARAM. ....	77
Figure 3.3: Organigramme du traitement des données [4]. ....	78
Figure 3.4: Format d'un évènement ADCTDCE. ....	79
Figure 3.5: Format d'un évènement TDCL. ....	80
Figure 3.6: Le contenu du tableau TAB-EXPERIENCE. ....	80
Figure 3.7: Le contenu du tableau TAB-ITERATION. ....	81
Figure 3.8: Une partie du contenu de chaque tableau RADC. ....	81
Figure 3.9: Le contenu d'un tableau RTDC. ....	82
Figure 3.10: Le dossier résultat et son contenu, pour deux itérations. ....	83
Figure 3.11: Le fichier FichierManip.txt et une partie de son contenu. ....	84
Figure 3.12: Intégration des paramètres globaux à l'expérience dans ROOT <sup>®</sup> . ....	85
Figure 3.13: Intégration de tous les paramètres, qui caractérisent un évènement ADCTDCE, dans ROOT <sup>®</sup> (DateHeureExpérienceACQTDCE.root). ....	86
Figure 3.14: Intégration de tous les paramètres, qui caractérisent un évènement TDCL, dans ROOT <sup>®</sup> (DateHeureExpérienceTDCL.root). ....	86
Figure 3.15: La fichier TAB_ITER.pdf et une partie de son contenu. ....	88
Figure 3.16: Caractérisation du SOD. ....	89
Figure 3.17: Distribution d'amplitude maximale du SOD. ....	90
Figure 3.18: Distribution du temps de l'amplitude maximale du SOD (Signal Galette). ....	91
Figure 3.19: Zoom du pulse d'un Signal brut $S_m(t)$ Galette à 8 GHz, enregistré par la carte ADC 1, en mode SD, sur une fenêtre proche de la valeur du prétrigger (en haut) et signal moyen Galette $h(t)$ (en bas). ....	92
Figure 3.20: Partie réelle de la transformée de Fourier du signal $S_m(t)$ (en haut), partie imaginaire de la transformée de Fourier du signal brut (en bas) et zoom sur la zone associée à l'information du pulse. ....	94
Figure 3.21: Partie réelle de la transformée de Fourier du signal moyen galette $h(t)$ (en haut), partie imaginaire de la transformée de Fourier du signal moyen galette (en bas). ....	95
Figure 3.22: Influence de la fréquence de coupure sur l'allure du filtre (en rouge) appliqué au signal $S_m(w)$ Galette (partie réel en haut et partie imaginaire en bas). A gauche $w_c=10$ points, au milieu $w_c=100$ points et à droite $w_c=1000$ points. Pour une meilleure observation, l'amplitude de ces signaux a été multiplié par 3. ....	97
Figure 3.23: Influence du TINY sur le signal $s(w)$ Galette (en noir) et représentation du filtre appliqué à ce signal (en rouge). ....	98
Figure 3.24: Influence du TINY sur le signal $s(t)$ Galette (signal $s(t)$ dans la fenêtre d'enregistrement de la carte ADC 1 en haut et zoom sur son pulse en bas). ....	99
Figure 3.25: Corrélation entre l'amplitude maximale du SOD et l'amplitude maximale du pulse du signal $s(t)$ (pré-analyse du Signal Galette avec $w_c=100$ points et $TINY=10^{-3}$ ). Cette corrélation décrit une droite d'équation $y=1,88x$ avec $y$ l'amplitude maximale du pulse du signal $s(t)$ et $x$ l'amplitude maximale du pulse brut associé. ....	100
Figure 3.26: Variation du rapport d'amplitude maximale entre le pulse du signal $s(t)$ et le pulse brut en fonction du TINY, pour le signal Galette (en bleu), le Fil1 (en rouge), le Fil2 (vert), le Fil3 (en violet) et le Fil4 (en orange), avec $w_c = 100$ pour la Galette et $w_c=250$ pour les fils. ....	101
Figure 3.27: Amélioration du rapport Signal/Bruit sur un signal Galette de faible amplitude maximale, une fois le signal déconvolué et filtré, pour un $TINY=0.001$ et $Wc=100$ . ....	102

Figure 3.28: Comparaison des amplitudes maximales obtenues pour les signaux bruts à travers les deux méthodes et zoom sur la zone à faible amplitude. .... 103

## Bibliographie du chapitre 3

[1] *ROOT<sup>®</sup> user's guide* : <http://root.cern.ch/root/doc/RootDoc.html>, V5.21, Dernière mise à jour le 18 Novembre 2008.

[2] F. Leperson, *Développement du système d'acquisition du Dispositif d'Irradiation d'Agrégats Moléculaires (DIAM) : Structuration de système d'acquisition*, Rapport de stage M1 Pro mention GSI (2012)

[3] C. Teyssier, *Spectrométrie de masse COINTOF : Conception d'un analyseur à temps de vol et développement de la méthode d'analyse*, Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1 (2012)

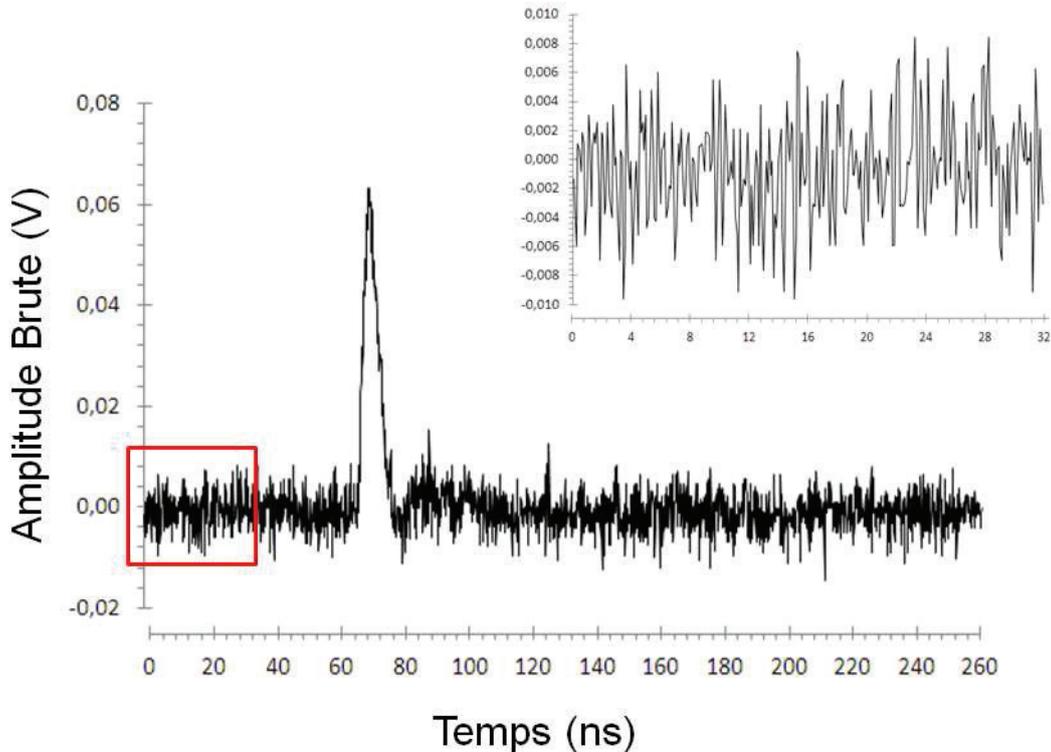
[4] G. Coston, *Développement du système d'acquisition et d'analyse de données du dispositif expérimental DIAM*, Rapport de stage M1 Pro GSI (2013)

[5] Y. Lemarechal, *Développement du dispositif d'acquisition et exploitation des données du Dispositif d'Agrégats de Molécules d'Intérêt Biologique (DIAM)*, Rapport de stage M1 Pro GSI (2009)

[6] A. Papoulis, *Signal Analysis*, McGraw-Hill International Editions, Electrical and Electronics Engineering Series, 431 pages (1977)

## Annexes du chapitre 3

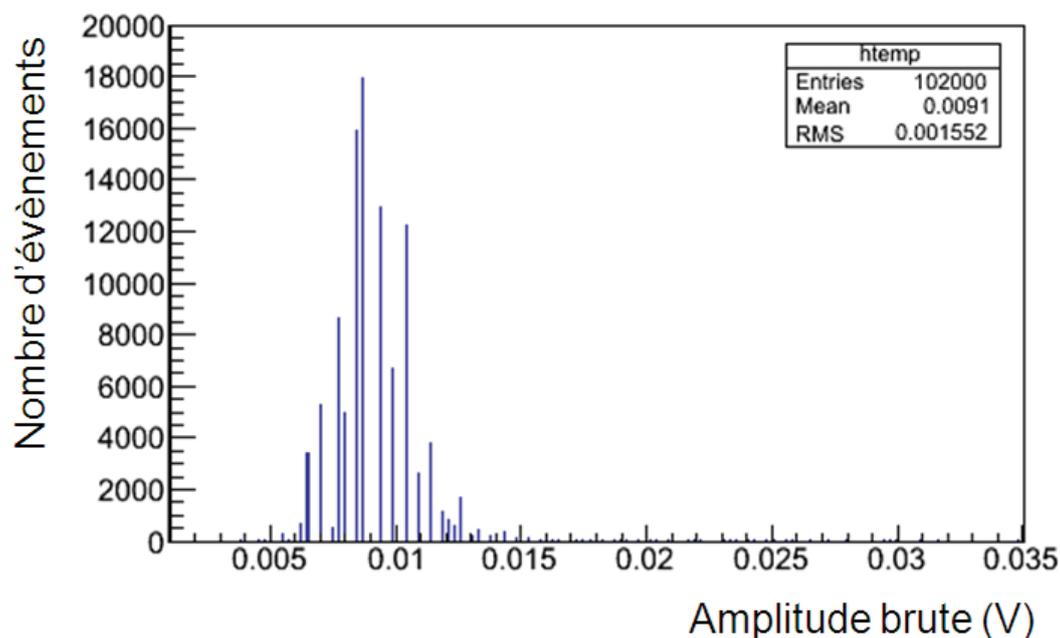
### ANNEXE A : Recherche de l'amplitude maximale du bruit sur le signal brut.



**Figure A1 : Recherche de l'amplitude maximale du bruit sur un signal brut Galette.**

La Figure A1 présente un signal extrait d'une expérience pour laquelle nous avons étudié l'impact des ions  $\text{He}^+$ , accélérés à 8 keV, sur le système de détection. C'est pourquoi, ce signal ne contient qu'un seul pulse. Cette figure permet d'illustrer la démarche, que nous avons utilisée, pour rechercher l'amplitude maximale du bruit. Cette recherche s'effectue, pour tous les événements traités, sur les 32,5 premières nanosecondes, encadrées par un rectangle rouge, sur la figure, et zoomé sur l'encart en haut à droite. Ce qui permet d'estimer en moyenne cette amplitude maximale du bruit.

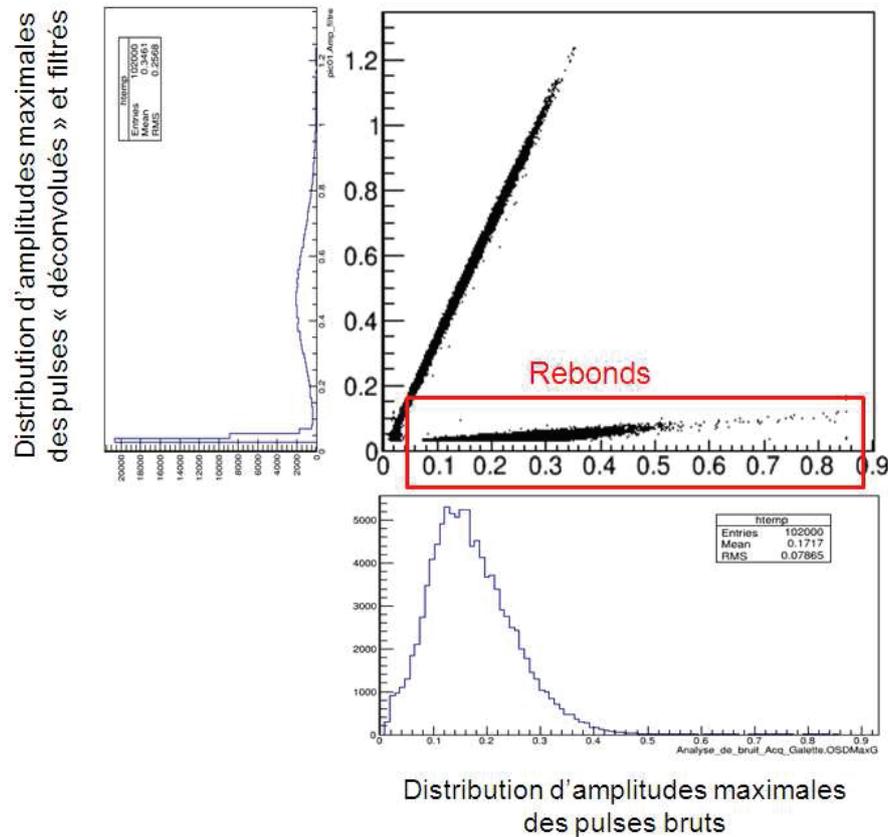
En mesurant l'amplitude maximale du bruit sur l'ensemble des événements de cette expérience, nous obtenons la distribution d'amplitudes, présentés sur la Figure A2 :



**Figure A2 : Distribution d'amplitudes maximales du bruit mesurées sur l'ensemble des événements issus d'une expérience, qui étudie l'impact des ions He<sup>+</sup>, accélérés à 8 keV, sur la surface de détection.**

La Figure A2 présente la distribution d'amplitudes maximales du bruit mesurées sur l'ensemble des événements issus d'une expérience, dans laquelle nous étudions l'impact des ions He<sup>+</sup>, accélérés à 8 keV, sur la surface de détection. Nous constatons que l'amplitude maximale du bruit brut peut atteindre 35 mV. Toutefois dans la majorité des cas, cette valeur est comprise entre 5 et 15 mV.

**ANNEXE B : Corrélation entre l'amplitude maximale du pulse « déconvolué » et filtré et celle du pulse brut, pour une valeur de TINY égale à  $3,5 \times 10^{-5}$ .**



**Figure B1 : Corrélation entre l'amplitude maximale du pulse « déconvolué » et filtré et celle du pulse brut, pour une valeur de TINY égale à  $3,5 \times 10^{-5}$ .**

La Figure B1 montre que la corrélation entre l'amplitude maximale du pulse « déconvolué » et filtré et celle du pulse brut est caractérisée en majorité par une droite de pente 3,78. Toutefois, sur ce même graphe, nous constatons la présence d'une autre droite de pente plus faible (encadrée en rouge). Cette droite montre la corrélation entre l'amplitude « maximale » associée aux rebonds et celle du pulse brut. Nous constatons que ce comportement apparaît lorsque l'amplitude du pulse brute est grande. Ces valeurs d'amplitudes brutes sont associées à de faibles amplitudes sur le signal  $s(t)$ . En effet, lorsque l'amplitude maximale du pulse principal est importante, il arrive que l'amplitude maximale des rebonds qui lui sont associés dépasse le seuil imposé sur le signal  $s(t)$ . Par conséquent, ces rebonds sont pris en compte dans la numérotation des pulses et le pulse principal du signal brut n'est plus associé au pulse principal du signal  $s(t)$ .





# Chapitre 4 : Mesure des sections efficaces de dissociation avec la méthode de détection COINTOF

## **1. Dissociation induite par collision (CID) des agrégats d'eau protonés**

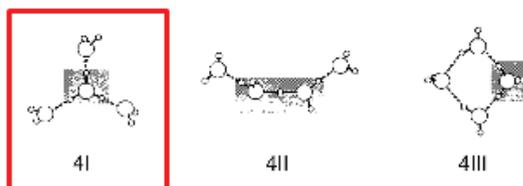
Dans ce chapitre, nous étudions la CID des ions ( $8\text{keV-H}^+(\text{H}_2\text{O})_{2\leq n\leq 7}$ ), sur un atome d'argon [1]. La CID est une technique utilisée, en spectrométrie de masse, pour sonder la structure et les énergies de liaisons à l'intérieur des ions moléculaires. Elle permet d'observer la dynamique de ces systèmes et de comprendre les problématiques liées au transfert d'énergie, lors de la collision (la manière dont ces systèmes se dissocient et se relaxent).

Dans les expériences de CID, que nous avons effectuées, l'énergie déposée, lors de la collision, provoque la dissociation des agrégats, en majorité [1, 2]. En revanche, lorsque ces agrégats seront en interaction avec des protons d'énergie comprise entre 20 et 150 keV, l'énergie déposée sur ces systèmes sera plus importante allant jusqu'à leur ionisation. Comme cette irradiation se fera sur des petits systèmes de tailles contrôlées, les résultats obtenus permettront une analyse fine des mécanismes élémentaires d'irradiation et pourront être confrontés à ceux obtenus par des modèles théoriques (comme la fonctionnelle de la densité dans sa version dépendante du temps), effectués sur des petits systèmes.

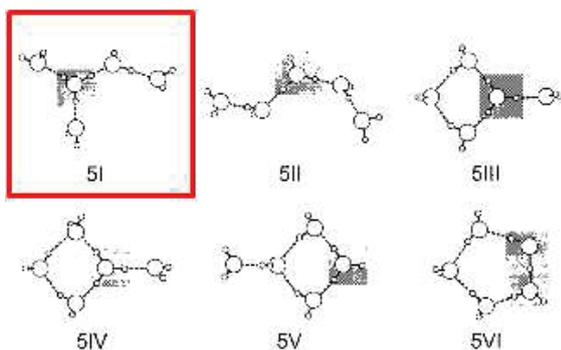
Par ailleurs, la méthode COINTOF [3, 4] permet de distinguer les processus liés à la dissociation de ceux liés à la capture électronique. Dans les expériences, que nous avons menées, nous nous sommes intéressés à la dissociation de ces agrégats, capture électronique exclue. Toutefois, des expériences, qui prennent en compte la capture électronique, ont été effectuées sur DIAM. Les résultats obtenus sont présentés dans la thèse de G. Bruny [5].

Les expériences de CID permettent également de remonter aux structures des agrégats produits par la source. L'article de J.C. Jiang et al. [6] montre les différentes structures que peuvent avoir les agrégats  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_{4\leq n\leq 7}$ , lorsque la température de la source qui les produit est à  $170 \pm 20$  K.

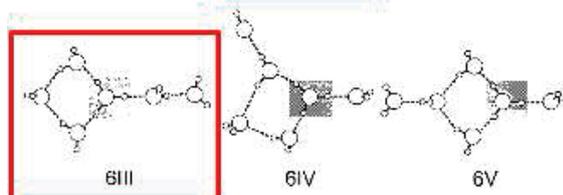
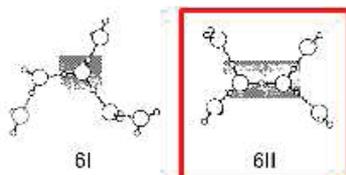
Ces structures et leur énergie totale d'interaction associée sont retranscrites à travers les figures et tableaux suivants :



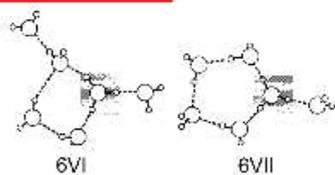
Isomère $H^+(H_2O)_4$	$\Delta E_u$ (eV/mol)
4I	-3,11
4II	-3,03
4III	-2,89

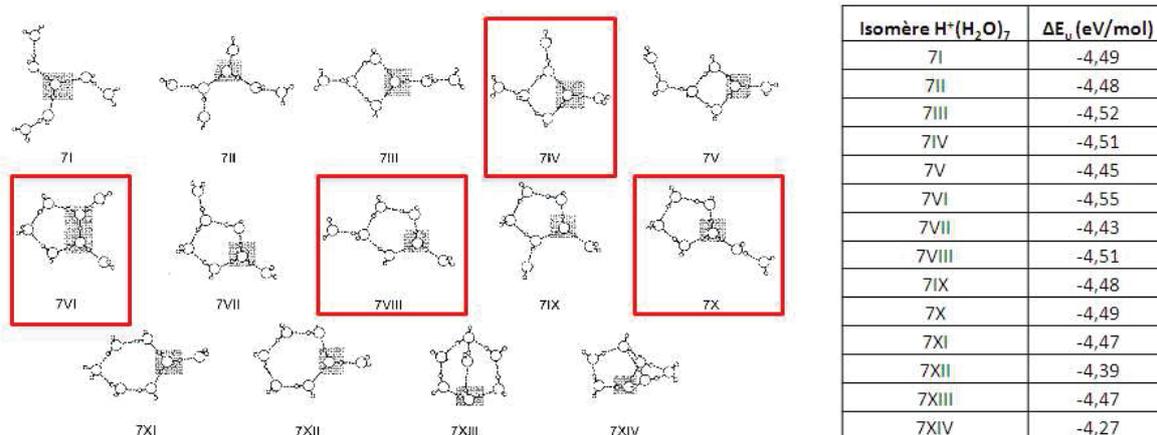


Isomère $H^+(H_2O)_5$	$\Delta E_u$ (eV/mol)
5I	-3,62
5II	-3,50
5III	-3,59
5IV	-3,50
5V	-3,42
5VI	-3,49



Isomère $H^+(H_2O)_6$	$\Delta E_u$ (eV/mol)
6I	-4,07
6II	-4,12
6III	-4,06
6IV	-4,06
6V	-4,07
6VI	-4,01
6VII	-4,05





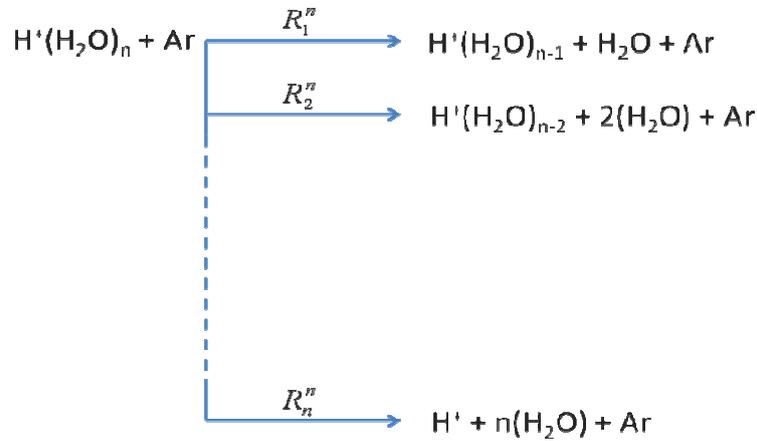
**Figure 4.1 : Structures des ions  $H^+(H_2O)_{4 \leq n \leq 7}$  produites par une source à 170 K et tableaux de l'énergie totale d'interaction associée à chacune d'entre elles. La partie grisée sur chaque structure montre la localisation du proton. Les structures encadrées en rouge sont celles observées par J.C Jiang et al. [6].**

La Figure 4.1 montre les différentes structures des ions  $H^+(H_2O)_{4 \leq n \leq 7}$  produites par une source à 170 K. La partie grisée montre pour chaque structure la localisation du proton. Les structures encadrées en rouge sont celles observées par J.C Jiang et al. [6]. Pour chaque ion  $H^+(H_2O)_{4 \leq n \leq 7}$ , nous pouvons voir la diversité des structures. Certains isomères forment des chaînes (4I, 4II, 5I, 5II, 6I, 6II, 7I et 7II), d'autres des cycles (4III, 5III- 5VI, 6III-6VII et 7III-7XIV). Nous notons que les structures linéaires ne sont pas forcément les plus stables pour les agrégats  $H^+(H_2O)_{5 \leq n \leq 7}$ , si nous nous référons aux énergies totales d'interaction associées à ces structures.

Par ailleurs, dans notre dispositif, la source est à une température supérieure ou égale à 170 K. Par conséquent, il est fortement probable que celle-ci produise des structures en forme de cycles, comme celles exposées ci-dessus.

## 2. Mesure des rapports de branchement.

L'interaction entre l'ion précurseur  $H^+(H_2O)_n$ , accéléré à 8 keV, et la cible gazeuse d'argon peut provoquer sa dissociation.



**Figure 4.2 : Différents canaux accessibles pour un agrégat d'eau protoné du type  $H^+(H_2O)_n$ , capture électronique exclue.**

La Figure 4.2 présente les  $n$  canaux, qui décrivent, respectivement, les processus de dissociation avec perte d'une, deux, ...,  $n$  molécules d'eau. Nous notons  $R_i^n$  le rapport de branchement associé au canal de dissociation mettant en jeu la perte de  $i$  molécules d'eau. Dans les cas traités, au cours de l'analyse, nous excluons les processus de capture électronique.

Par conséquent, si nous nous intéressons qu'aux cas dissociés, capture électronique exclue, nous montrons que :

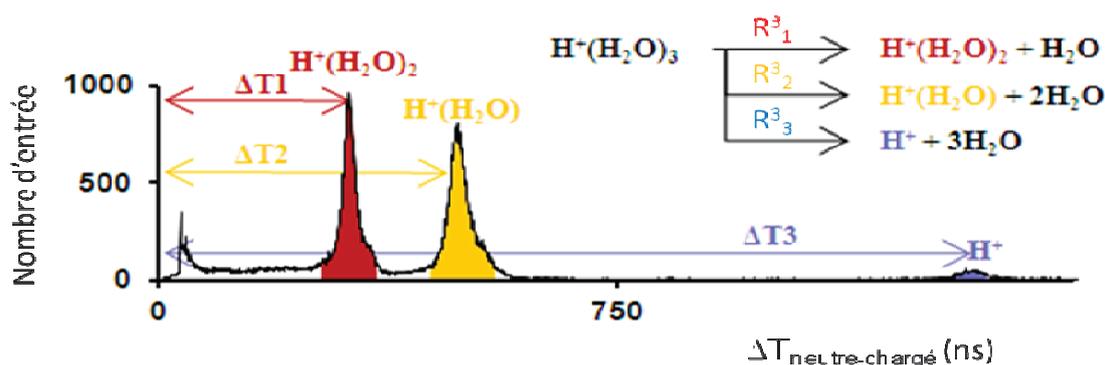
$$\sum_{i=1}^n R_i^n = 1 \quad (1)$$

### 2.1. Spectre de masse des fragments chargés obtenu par la méthode COINTOF

La Figure 4.3 montre le spectre de masse d'une expérience de CID de l'ion  $(H^+(H_2O)_3-8\text{keV})$ , sur un atome d'argon, obtenu à partir du dispositif COINTOF. Ce spectre de masse est obtenu, en mesurant sur les événements analysés par la carte TDCL, la différence entre l'instant d'arrivée des fragments chargés et neutres détectés :  $\Delta T_{\text{neutre-charge}}$ , issus de la dissociation d'un ion précurseur. Les événements sélectionnés sont associés à des signaux contenant deux pulses sur le signal galette et sur le signal à l'extrémité de chaque fil. Nous utiliserons toujours ce critère de sélection dans l'analyse.

Après la dissociation, les fragments neutres conservent la même vitesse que l'ion précurseur : leur instant d'arrivée sert de référence en temps. En revanche, l'instant d'arrivée des fragments chargés est d'autant plus proche de celui des neutres que leur masse est élevée. La distribution des différences d'instants d'arrivée entre le fragment chargé et le fragment neutre fait ressortir trois pics. A travers les simulations effectuées sur SIMION<sup>®</sup>, nous pouvons identifier, pour chaque pic, la nature du fragment chargé et le canal de dissociation associé. Sur la Figure 4.3, le premier pic situé à environ 180 ns correspond aux événements pour lesquels le fragment chargé est l'ion  $H^+(H_2O)_2$ , le second situé à environ 310 ns correspond aux événements pour lesquels le fragment chargé est l'ion  $H^+(H_2O)$  et le troisième situé à environ 1120 ns correspond aux événements pour lesquels le fragment chargé est l'ion  $H^+$  : ce qui correspond aux différents canaux de dissociation présentés sur l'encart.

Nous remarquons également la présence d'un autre pic à 40 ns, tronqué sur sa partie gauche. Ce pic correspond aux événements pour lesquels le fragment chargé n'a pas été détecté. Par conséquent, la différence de temps est mesurée entre deux fragments neutres. La troncature observée sur ce pic est associée au temps mort, de 40 ns, lié au déclenchement des pulses de la carte TDCL [8].



**Figure 4.3 : Mesure du nombre de fragments chargés, corrélés avec au moins une molécule d'eau, à partir du spectre de masse obtenu au moyen du dispositif COINTOF. Cas du trimère d'eau protoné, accéléré à 8 keV et dissocié par collision avec une cible gazeuse d'argon [7].**

Pour déterminer le rapport de branchement, nous mesurons le nombre d'événements associés aux pics des fragments chargés  $H^+$ ,  $H^+(H_2O)$  et  $H^+(H_2O)_2$ . Plusieurs tentatives ont été utilisées pour mesurer l'aire sous chaque pic. La première consiste à déterminer le nombre de fragments chargés  $H^+(H_2O)_2$ ,  $N_{1_{mes}}^3$ , en sélectionnant  $\Delta T_{\text{neutre-chargé}}$  entre 150 et 200 ns (en rouge), le nombre de fragments chargés  $H^+(H_2O)$ ,  $N_{2_{mes}}^3$ , en sélectionnant  $\Delta T_{\text{neutre-chargé}}$  entre 280 et 350 ns (en jaune) et le nombre de fragments chargés  $H^+$ ,  $N_{3_{mes}}^3$ , en sélectionnant  $\Delta T_{\text{neutre-chargé}}$  entre 1090 et 1160 ns (en bleu). Pour effectuer nos analyses, la mesure de l'aire est effectuée de manière plus fine, en retranchant le bruit de fond et en ajustant les pics avec une fonction Lorentzienne.

Le nombre de fragments chargés corrélés avec au moins une molécule d'eau s'exprime de la manière suivante [7] :

$$N_{i_{mes}}^n = N_{diss} \cdot R_i^n \cdot \mathcal{E}^+ \cdot \mathcal{E}_0 \cdot \left( \sum_{j=1}^i \frac{i!}{(i-j)! j!} \mathcal{E}_0^{j-1} \cdot (1 - \mathcal{E}_0)^{i-j} \right) \quad (2.1)$$

- $N_{diss}$  est le nombre d'ions précurseurs qui se dissocient.
- $R_i^n$  est le rapport de branchement associé au canal de dissociation d'un agrégat  $H^+(H_2O)_n$  mettant en avant la perte de  $i$  molécules d'eau.
- $\mathcal{E}^+$  et  $\mathcal{E}_0$  sont respectivement les efficacités de détection des fragments chargés et de la molécule d'eau. Pour tous les fragments chargés, l'efficacité de détection est identique car ces fragments sont ré accéléérés par le LTOF et, à leur énergie, l'efficacité de détection atteint un palier.
- Le terme  $\left( \sum_{j=1}^i \frac{i!}{(i-j)! j!} \mathcal{E}_0^{j-1} \cdot (1 - \mathcal{E}_0)^{i-j} \right)$  décrit la probabilité que le fragment chargé soit corrélé avec au moins une molécule d'eau.

L'application de cette formule, dans le cas traité, conduit aux expressions suivantes :

$$\begin{aligned} N_{1_{mes}}^3 &= N_{diss} \cdot R_1^3 \cdot \mathcal{E}^+ \cdot \mathcal{E}_0 \\ N_{2_{mes}}^3 &= N_{diss} \cdot R_2^3 \cdot \mathcal{E}^+ \cdot \mathcal{E}_0 (2 - \mathcal{E}_0) \\ N_{3_{mes}}^3 &= N_{diss} \cdot R_3^3 \cdot \mathcal{E}^+ \cdot \mathcal{E}_0 (\mathcal{E}_0^2 + 3(1 - \mathcal{E}_0)) \end{aligned} \quad (2.2)$$

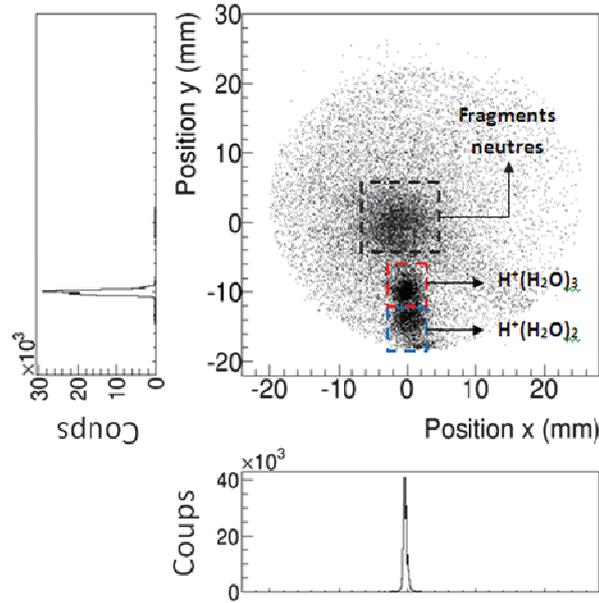
A partir de ces expressions, nous en déduisons l'expression mathématique du rapport de branchement [1] :

$$\frac{1}{R_1^n} = 1 + \sum_{i=2}^n \frac{N_{i_{mes}}^n}{N_{1_{mes}}^n} \frac{1}{\left( \sum_{j=1}^i \frac{i!}{(i-j)! j!} \mathcal{E}_0^{j-1} \cdot (1 - \mathcal{E}_0)^{i-j} \right)} \quad (3)$$

Nous notons que cette expression dépend de l'efficacité de détection de la molécule d'eau et

du rapport  $\frac{N_{i_{mes}}^n}{N_{1_{mes}}^n}$  déterminé à partir des mesures effectuées sur le spectre de masse.

## 2.2. Mesure de l'efficacité de détection



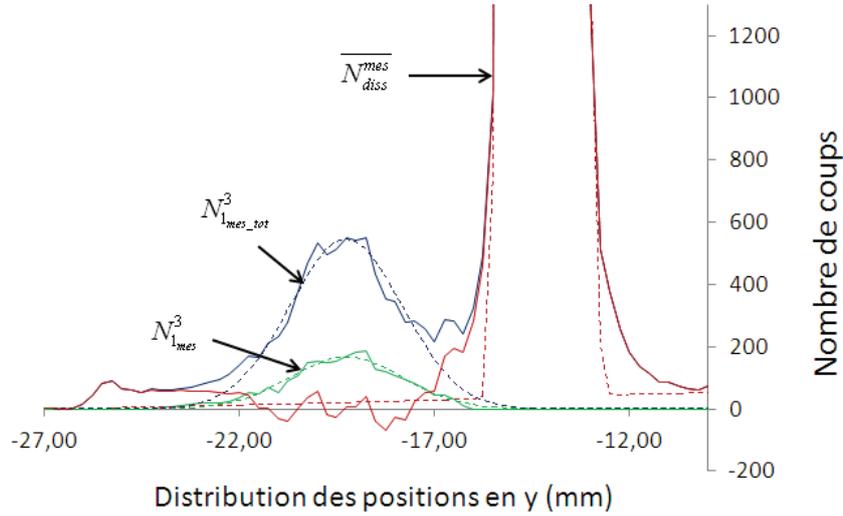
**Figure 4.4 : Zones d'impact des différents produits de dissociation induite par la collision des ions  $H^+(H_2O)_3$ , accélérés à 8 keV, sur une cible gazeuse d'argon, sur la surface de détection et la projection de ces zones suivant x et y [7].**

La Figure 4.4 montre les différentes zones d'impacts, occasionnées par les ions précurseurs  $H^+(H_2O)_3$  accélérés à 8 keV et ses produits de dissociation sur la surface de détection, ainsi que les projections horizontales et verticales associées à chacune d'entre elles. Les zones d'impacts les plus denses sont celles formées par les ions précurseurs non dissociés, les fragments chargés de chaque canal de dissociation et les fragments neutres. L'action du pusher sur les ions permet d'identifier leur masse à partir de la zone d'impact. Dans ce cas, la tension du pusher est mise à - 2050V.

Comme les fragments neutres ne sont pas déviés, leur zone d'impacts se situe vers le centre de la surface de détection (encadré en noir). Pour les fragments chargés, plus l'ion est de masse élevée et moins il est dévié.

- La tâche, encadrée en rouge, correspond aux évènements associés aux ions précurseurs non dissociés :  $H^+(H_2O)_3$ . Le nombre d'évènements, associé à cette situation, est noté  $N_{diss}^{mes}$ .
- La tâche, encadrée en bleu, correspond aux évènements pour lesquels l'ion  $H^+(H_2O)_3$  s'est dissocié en un fragment chargé  $H^+(H_2O)_2$  et une molécule d'eau. Dans cette situation la molécule d'eau n'est pas forcément détectée. Le nombre d'évènements, associés à cette situation, est noté  $N_{1_{mes\_tot}}^n$  (soit  $N_{1_{mes\_tot}}^3$  dans le cas étudié).

La Figure 4.5 montre une partie de la projection verticale de la surface de détection : celle qui fait intervenir les zones d'impacts des ions  $H^+(H_2O)_3$  (en rouge) et  $H^+(H_2O)_2$  (en bleu). Le nombre d'ions  $H^+(H_2O)_3$  et  $H^+(H_2O)_2$  est mesuré en ajustant leurs pics respectifs au moyen d'une fonction gaussienne (en pointillé respectivement en rouge et en bleu), puis en évaluant l'aire sous ces courbes.



**Figure 4.5 : Distribution des positions en y sur la surface de détection pour tous les ions  $H^+(H_2O)_2$  détectés (ligne bleue), pour les ions  $H^+(H_2O)_2$  détectés et corrélés avec une molécule d'eau également détectée (ligne verte) et pour les ions non dissociés  $H^+(H_2O)_3$  (ligne rouge) ainsi que leurs courbes d'ajustement respectives (en ligne pointillée bleue, verte et rouge) [1].**

Pour déterminer l'efficacité de détection, nous mesurons également le nombre de fragments  $H^+(H_2O)_2$  détectés et corrélés, avec une molécule d'eau forcément détectée. Ce nombre se mesure, sur la Figure 4.5, à partir de l'aire sous la distribution représentée en vert, après ajustement par une fonction gaussienne (en pointillé vert), et se note  $N_{1_{mes}}^n$  (soit  $N_{1_{mes}}^3$  dans le cas étudié).

Cette distribution s'obtient à partir des évènements pour lesquels les signaux galette et fils contiennent chacun deux pulses.

Ainsi expérimentalement, la mesure de  $N_{1_{mes}}^n$  et  $N_{1_{mes\_tot}}^n$  permet d'obtenir la valeur de l'efficacité de détection  $\epsilon_0$  [7].

$$\frac{N_{1_{mes}}^n}{N_{1_{mes\_tot}}^n} = \frac{N_{diss} \cdot R_1^n \cdot \mathcal{E}^+ \cdot \mathcal{E}_0}{N_{diss} \cdot R_1^n \cdot \mathcal{E}^+} = \mathcal{E}_0 \quad (4)$$

Cette formule se généralise quelque soit la taille n de l'ion précurseur à dissocier.

Ces mesures ont également été effectuées sur les autres expériences de CID ( $8 \text{ keV-H}^+(\text{H}_2\text{O})_{2 \leq n \leq 7}$ ). De cette manière, nous avons pu évaluer l'efficacité de détection de la molécule d'eau à différentes vitesses. Les résultats obtenus par ces mesures sont présentés dans le Tableau 1.

Vitesse de la molécule d'eau x $10^3$ (m/s)	Efficacité de détection $\epsilon_0$
119	0,039
130	0,078
145	0,133
167	0,231
204	0,325
284	0,39

**Tableau 1 : Efficacité de détection de la molécule d'eau à différentes vitesses [7].**

Les résultats du Tableau 1 montrent que l'efficacité de détection de la molécule d'eau augmente avec sa vitesse. Les valeurs mesurées ont des valeurs assez proches de celles obtenues dans d'autres expériences de collision [9] (cf. Chapitre 5). Les différences sont occasionnées par le fait que les ions précurseurs sont accélérés à des énergies plus faibles et le gaz de collision utilisé est également différent, dans nos expériences.

Les résultats obtenus avec cette méthode seront comparés avec ceux obtenus au moyen d'une autre méthode (cf. Chapitre 5).

La mesure de l'efficacité de détection permet de déterminer les rapports de branchement  $R_i^n$  de chaque canal de dissociation, pour un agrégat de taille n.

### 2.3. Résultats et discussion

A travers la valeur de  $\epsilon_0$ , nous pouvons mesurer la valeur des rapports de branchement  $R_i^n$ . Le Tableau 2 expose le résultat des rapports de branchement des différents canaux de dissociation induite par collision, avec une cible gazeuse d'argon, d'un agrégat d'eau protoné ( $8 \text{ keV-H}^+(\text{H}_2\text{O})_{2 \leq n \leq 7}$ ).

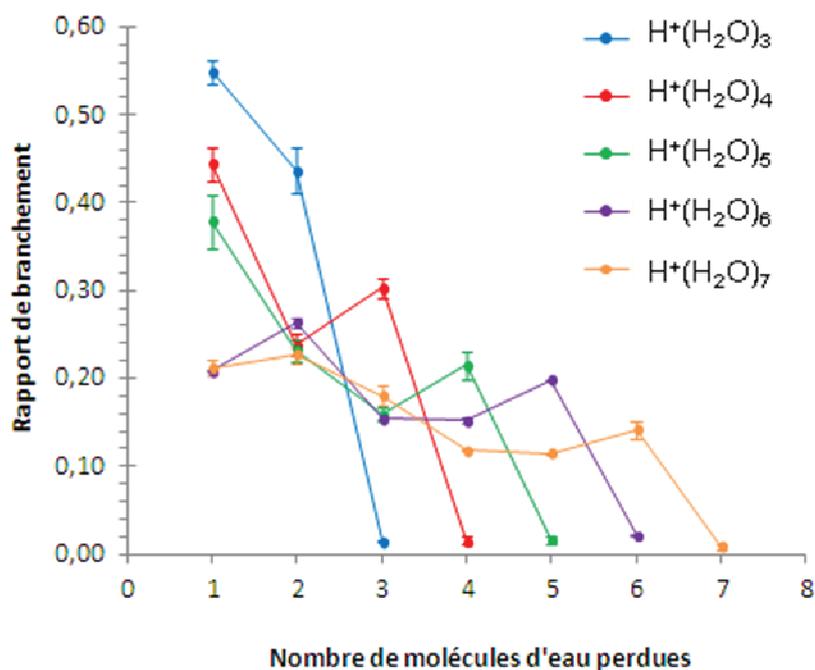
Rapport de branchement $R_i^n$ pour la CID du 8 keV- $H^+(H_2O)_{2-7}$ avec $i$ le nombre de molécules d'eau perdue							
Agrégat d'eau protonée incident $H^+(H_2O)_n$	$R_1^n$	$R_2^n$	$R_3^n$	$R_4^n$	$R_5^n$	$R_6^n$	$R_7^n$
$H^+(H_2O)_2$	0,971 ± 0,002	0,029 ± 0,002					
$H^+(H_2O)_3$	0,55 ± 0,008	0,43 ± 0,005	0,020 ± 0,002				
$H^+(H_2O)_4$	0,444 ± 0,019	0,238 ± 0,012	0,303 ± 0,012	0,015 ± 0,005			
$H^+(H_2O)_5$	0,378 ± 0,030	0,232 ± 0,012	0,158 ± 0,008	0,215 ± 0,015	0,017 ± 0,004		
$H^+(H_2O)_6$	0,209 ± >0,001	0,264 ± 0,006	0,154 ± 0,001	0,153 ± 0,003	0,199 ± >0,001	0,022 ± 0,002	
$H^+(H_2O)_7$	0,212 ± 0,008	0,227 ± 0,009	0,180 ± 0,012	0,118 ± 0,001	0,114 ± 0,001	0,142 ± 0,010	0,008 ± 0,004

**Tableau 2 : Valeurs des rapports de branchement obtenues pour la dissociation induite par collision (CID) des agrégats d'eau protoné 8keV- $H^+(H_2O)_{2-7}$ , sur une cible d'argon. Le rapport de branchement  $R_i^n$  est relié à la perte de  $i$  molécules d'eau [7].**

Les incertitudes présentées sur le Tableau 2 sont calculées en évaluant l'écart-type des valeurs obtenues sur plusieurs expériences. Ces valeurs d'incertitudes montrent que les erreurs mesurées sur les rapports de branchement sont comprises entre 1% et 11%, avec une large majorité en dessous de 5%. Ces erreurs sont liées à la détermination de  $\epsilon_0$ . Les erreurs calculées sur les rapports de branchement associés à la production de l'ion  $H^+$  sont plus importantes de 7% à 50%. Ceci est lié au fait que le pic propre au  $H^+$ , sur le spectre de masse, a une faible statistique et qu'il est plus facilement soumis aux effets du bruit de fond.

Les erreurs mesurées sur les rapports de branchement associés à la perte d'une molécule d'eau sont comprises entre 1% et 8%. De plus, ces rapports de branchement sont utilisés pour déterminer la section efficace de dissociation. Par conséquent, la section efficace de dissociation est mesurée à partir de rapports de branchement assez précis.

L'ensemble des résultats, sur les rapports de branchement affichés sur le Tableau 2, est présenté sur la Figure 4.6 ci-dessous.



**Figure 4.6 : Rapports de branchement mesurés, pour chaque canal de dissociation, capture électronique exclue, issu de la CID des ions (8 keV-  $H^+(H_2O)_{3 \leq n \leq 7}$ ), sur un atome d'argon, mettant en jeu la perte de  $i : [1; n]$  molécules d'eau [7].**

La Figure 4.6 montre les rapports de branchement mesurés, pour chaque canal de dissociation, issu de la CID des ( $8 \text{ keV- } H^+(H_2O)_{3 \leq n \leq 7}$ ), sur un atome d'argon. Ces canaux de dissociation mettent en jeu la perte de  $i : [1 ; n]$  molécules d'eau.

Pour chaque ion précurseur étudié, nous constatons que le rapport de branchement associé au canal de dissociation, mettant en jeu la perte de  $(n-1)$  molécules d'eau est important (représentés par une remontée des valeurs à la fin de chaque courbe). Ceci met en évidence la grande stabilité de l'ion  $H^+(H_2O)$ .

De plus, nous constatons que le canal de dissociation mettant en jeu la perte de toutes les molécules d'eau et, donc, permettant la production de l'ion  $H^+$  est minoritaire et constant, pour tous les ions précurseurs, comme le confèrent les courbes de la Figure 4.6. Cette observation montre que l'énergie déposée sur l'agrégat incident n'est pas suffisamment importante pour que celui-ci se dissocie complètement, en majorité. Par conséquent, si l'évaporation des molécules se fait de manière successive, il devient difficile d'évaporer la dernière molécule d'eau car, à ce stade, le fragment chargé est l'ion  $H^+(H_2O)$ .

Par ailleurs, nous constatons, pour les ions  $H^+(H_2O)_{3 \leq n \leq 5}$  (courbes en bleu, en rouge et en vert) que le processus de dissociation majoritaire est celui qui met en jeu la perte que d'une seule molécule d'eau. Toutefois, nous n'observons pas cette même tendance, lorsque nous regardons les résultats obtenus pour les ions  $H^+(H_2O)_{6 \leq n \leq 7}$  (courbes en violet et en orange) sur lesquels nous pouvons voir que c'est le processus de dissociation, mettant en jeu la perte de deux molécules d'eau, qui est majoritaire. Pour l'ion précurseur  $H^+(H_2O)_6$ , ce processus

permet la production de l'ion  $H^+(H_2O)_4$ . Pour l'ion précurseur  $H^+(H_2O)_7$ , ce processus permet la production de l'ion  $H^+(H_2O)_5$ .

Si nous regardons en détail les résultats obtenus, pour l'ion précurseur  $H^+(H_2O)_7$  (courbe en orange), nous pouvons voir que la valeur du rapport de branchement associé au processus de dissociation mettant en jeu la perte de trois molécules d'eau monte par rapport à celles des rapports de branchement associés aux canaux de dissociation mettant en jeu la perte de plus de molécules d'eau. Cette montée continue et atteint un maximum pour le canal de dissociation mettant en jeu la perte de deux molécules d'eau. Par conséquent, cette observation remet en cause la stabilité du fragment  $H^+(H_2O)_4$ . En revanche, si nous nous référons à la structure des ions  $H^+(H_2O)_{6 \leq n \leq 7}$  présentées sur l'article de J.C. Jiang et al. [6], nous voyons des structures en forme de cycle à 4 molécules d'eau, pour les ions précurseurs  $H^+(H_2O)_6$ , et des structures en forme de cycle à 4 et, majoritairement, à 5 molécules d'eau, pour les ions précurseurs  $H^+(H_2O)_7$ . Par conséquent, le processus mettant en jeu la perte de deux molécules d'eau, pour l'ion  $H^+(H_2O)_6$ , est majoritaire non pas parce que l'ion  $H^+(H_2O)_4$  est stable mais parce que ces ions peuvent avoir une structure en forme de cycle à 4 molécules d'eau. Ce raisonnement s'applique également pour les ions précurseurs  $H^+(H_2O)_7$ . Le canal de dissociation mettant en jeu la perte de trois molécules est important mais moins probable que celui qui met en jeu la perte de deux molécules d'eau car, dans les structures proposées nous voyons qu'il y en a plus avec un cycle de 5 molécules d'eau qu'avec un cycle de 4 molécules d'eau.

Nous avons montré, pour les ions  $H^+(H_2O)_{6 \leq n \leq 7}$  que les canaux de dissociation majoritaires sont ceux pour lesquels le fragment chargé produit est un cycle constitué de 4 ou 5 molécules d'eau, selon les cas. Ces cycles préexistent car, contrairement à une structure en forme de chaînes, ils possèdent une liaison hydrogène supplémentaire : ce qui augmente leur rigidité. Toutefois, lorsque nous regardons l'énergie totale d'interaction pour les ions  $H^+(H_2O)_4$  et  $H^+(H_2O)_5$ , sur les tableaux de la Figure 4.1, nous voyons que ces structures ne sont pas les plus stables. C'est pourquoi, il est possible, après collision, que ces cycles s'ouvrent, lorsque le système se relaxe et que, par conséquent, le fragment chargé détecté ne soit plus dans une configuration structurale en forme de cycle.

### ***3. Section efficace de dissociation mesurée à partir des rapports de branchement, capture électronique exclue***

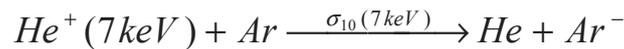
Pour mesurer la valeur de la section efficace absolue de dissociation, il est nécessaire de déterminer le nombre d'ions non dissociés détectés. Cependant, ce nombre dépend de l'épaisseur de cible. En effet, plus cette épaisseur de cible est importante et plus il est probable que l'ion précurseur, qui la traverse, se dissocie. Par ailleurs, celle-ci varie également en fonction de la pression résiduelle mesurée, à l'intérieur de la chambre de collision, d'après la loi de Beer-Lambert. C'est pourquoi, il a été nécessaire de procéder, dans

un premier temps, à la calibration de cette grandeur pour différentes valeurs de pression résiduelle.

De plus, l'épaisseur de cible et la section efficace de dissociation permettent de définir la probabilité de dissocier un ion précurseur, qui traverse la cible gazeuse. A partir de cette grandeur, il a été possible, dans un second temps, de retranscrire mathématiquement la section efficace de dissociation au moyen de paramètres mesurables. Ensuite, au moyen de l'expression trouvée, nous avons pu en déduire sa valeur, pour des agrégats de différentes tailles ( $n=2-7$ ), accélérés à 8 keV et dissociés au moyen d'une cible d'argon. Les résultats trouvés ont été comparés avec ceux obtenus sur des expériences de CID analogues [9].

### 3.1. Détermination de l'épaisseur de cible.

Il est possible de déterminer l'épaisseur de la cible utilisée à partir de la connaissance d'une section efficace. La section efficace utilisée est celle de la capture d'un seul électron d'un ion  $He^+$ , accéléré à 7 keV, par un atome d'argon. Ce processus est retranscrit par la réaction suivante :



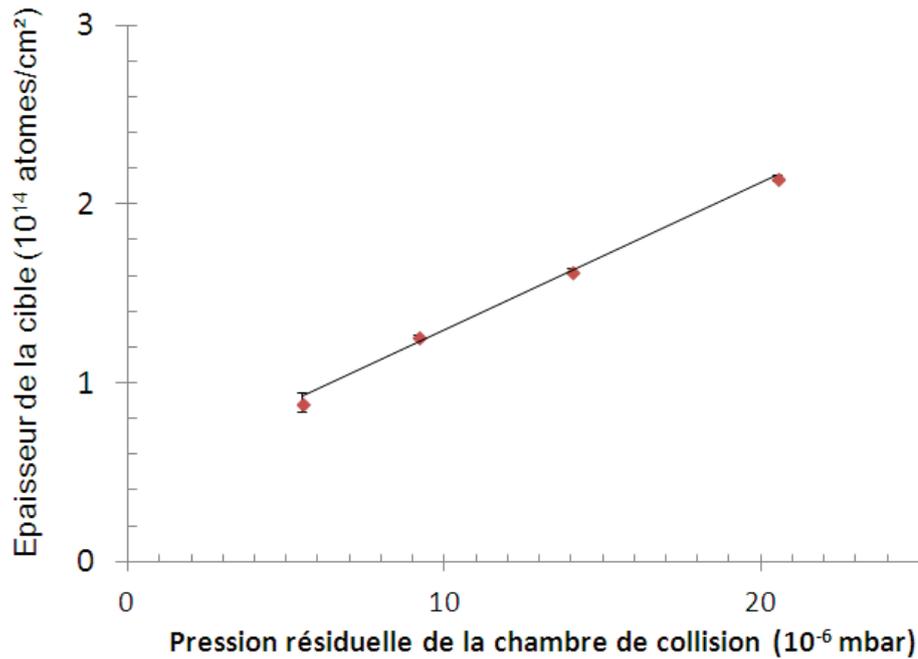
Cette section efficace est notée  $\sigma_{10}$  en  $cm^2$  et est utilisée pour calibrer l'épaisseur de cible comme le montre la formule suivante :

$$X = \frac{1}{\sigma_{10}} \cdot \frac{N^0}{N^0 + N^+} \quad (5)$$

Où X est l'épaisseur de la cible en  $cm^{-2}$ ,  $N^0$  le nombre d'hélium qui ont interagit et  $N^+$  le nombre de ceux qui n'ont pas interagit.

La section efficace  $\sigma_{10}$ , utilisée comme référence, a été mesurée par Rudd et al [10]. De plus, la capture électronique est majoritaire devant la perte d'un électron qui est  $10^5$  fois moins probable.  $N^0$  et  $N^+$  sont déterminés en séparant, à l'aide du pusher, les atomes d'hélium ayant interagi de ceux qui n'ont pas interagi. La production de  $N^0$  est dépendante de l'épaisseur de cible traversée par le faisceau d' $He^+$ .

Pour obtenir la courbe de calibration de la Figure 4.6, des mesures ont été réalisées pour différentes épaisseurs de cible, à travers des expériences pour lesquelles les ions  $He^+$ , accélérés à 7 keV, sont en interaction avec une cible gazeuse d'argon. Le graphe de calibration est obtenu en mesurant, pour chacune d'entre elle, la pression résiduelle à l'intérieur de la chambre de collision et l'épaisseur de la cible déduite par la Formule (5) :



**Figure 4.7 : Courbe d'étalonnage.**

La Figure 4.7 montre que, dans le régime d'écoulement et la gamme d'épaisseur utilisée, la pression résiduelle mesurée à l'intérieur de la chambre de collision est proportionnelle à l'épaisseur de la cible. Ce résultat est en accord avec le modèle développé par Troitskii [11]. Dans les expériences que nous avons effectuées, la pression résiduelle de la chambre de collision est entre 15 et 20 x 10<sup>-6</sup> mbar. Par conséquent, l'épaisseur de cible, dans notre cas, est comprise entre 1,8 et 2,2 x 10<sup>14</sup> atomes/cm<sup>2</sup>.

### ***3.2. Mesure de la section efficace de dissociation induite par collision, capture électronique exclue.***

La probabilité qu'un ion précurseur se dissocie par collision (capture électronique exclue), lorsqu'il traverse une cible gazeuse d'épaisseur X, est donnée par la formule suivante :

$$P = \sigma \cdot X \quad (6)$$

Où  $\sigma$  est la section efficace de dissociation induite par collision (cm<sup>2</sup>) et X l'épaisseur de la cible gazeuse (cm<sup>-2</sup>) mesurée dans le paragraphe 5.1.

En utilisant cette probabilité, il est possible de remonter au nombre de fragments dissociés  $N_{diss}$  et non dissociés  $\overline{N_{diss}}$ , à partir du nombre d'ion précurseurs incidents  $N_{inc}$ , en amont de la cible gazeuse d'argon :

$$\overline{N_{diss}} = N_{inc} \cdot (1 - \sigma \cdot X) \quad (7)$$

Le terme  $(1 - \sigma \cdot X)$  est la probabilité pour qu'un ion précurseur incident ne se dissocie pas sur la cible gazeuse d'argon. Cette probabilité se déduit de la loi de Beer-Lambert, dans la condition où  $\sigma \cdot X$  est petit. Le nombre de fragments dissociés  $N_{diss}$  est obtenu par la probabilité complémentaire.

Pour déterminer le nombre de fragments non dissociés détectés, nous devons prendre en compte l'efficacité de détection du fragment chargé  $\epsilon^+$  et exprimer  $N_{inc}$  en fonction de  $N_{diss}$ . Ainsi nous obtenons l'expression suivante [7] :

$$\overline{N_{diss}^{mes}} = \overline{N_{diss}} \cdot \epsilon^+ = N_{inc} \cdot (1 - \sigma \cdot X) \cdot \epsilon^+ = \frac{N_{diss} \cdot (1 - \sigma \cdot X) \cdot \epsilon^+}{\sigma \cdot X} \quad (8)$$

$\overline{N_{diss}^{mes}}$  est mesuré dans le paragraphe 2.2.

Ainsi, nous pouvons déterminer l'efficacité de détection (capture électronique exclue), à partir du rapport de branchement  $R_1^n$  et du rapport  $\frac{\overline{N_{diss}^{mes}}}{N_{1_{mes\_tot}}^n}$  que nous pouvons mesurer [7] :

$$\frac{\overline{N_{diss}^{mes}}}{N_{1_{mes\_tot}}^n} = \frac{N_{diss} \cdot (1 - \sigma \cdot X) \cdot \epsilon^+}{N_{diss} \cdot R_1^n \cdot \sigma \cdot X \cdot \epsilon^+} = \frac{(1 - \sigma \cdot X)}{R_1^n \cdot \sigma \cdot X} \quad (9)$$

Dans le cas où l'ion précurseur est le trimère d'eau protoné  $H^+(H_2O)_3$ , le rapport donné par la formule (9) se déduit directement par le rapport des aires de la courbe rouge en pointillé sur celle de la courbe bleu en pointillé, représentées sur la Figure 4.5.

### 3.3. Résultats et discussion

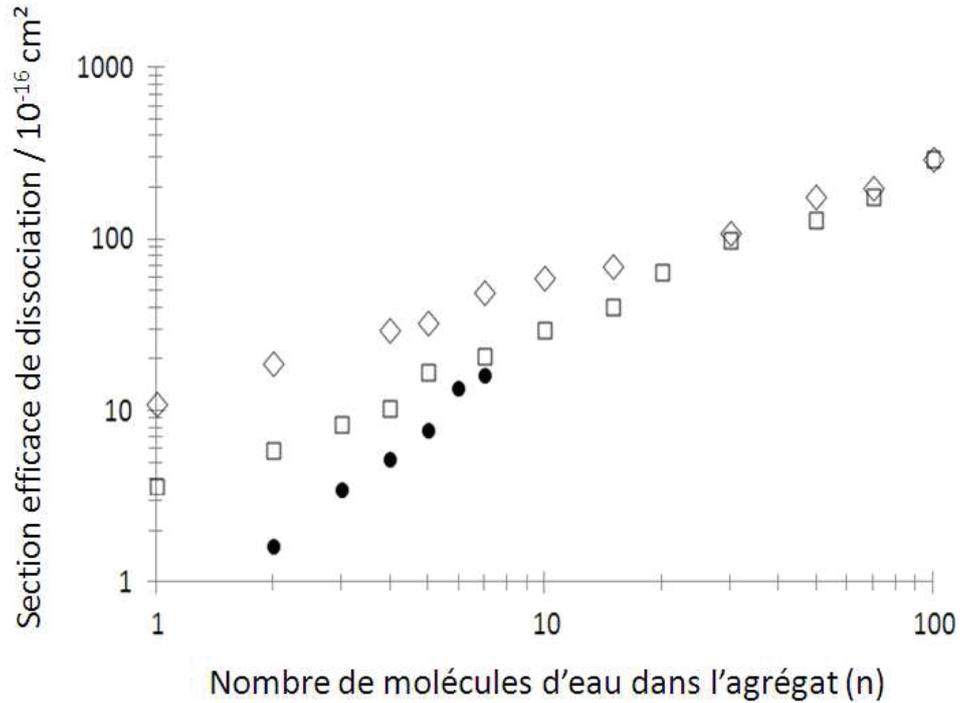
Cette démarche a été appliquée, pour des ions précurseurs ( $8 \text{ keV } H^+(H_2O)_{2 \leq n \leq 7}$ ), sur une cible gazeuse d'argon. Les valeurs de sections efficaces de dissociation induite par collision avec une cible gazeuse d'argon, capture électronique exclue, obtenues sont exposées dans le Tableau 3.

Agrégat d'eau protonée incident $H^+(H_2O)_n$	Section efficace CID (8keV- $H^+(H_2O)_{2-7}$ ) sur un atome d'argon ( $10^{-16} \text{ cm}^2$ )		
$H^+(H_2O)_2$	1,65	±	0,11
$H^+(H_2O)_3$	3,52	±	0,05
$H^+(H_2O)_4$	5,26	±	0,18
$H^+(H_2O)_5$	7,80	±	0,56
$H^+(H_2O)_6$	13,72	±	0,01
$H^+(H_2O)_7$	16,30	±	0,41

**Tableau 3 : Valeurs des sections efficaces de dissociation induite par collision du 8keV-  $H^+(H_2O)_{2-7}$  sur une cible d'argon, capture électronique exclue [7].**

Le Tableau 3 montre que, pour les ions précurseurs  $H^+(H_2O)_{2 \leq n \leq 7}$ , la valeur de la section efficace de dissociation augmente avec la taille de l'agrégat. Les incertitudes mesurées varient de 1% à 7%. Comme pour les rapports de branchements, ces erreurs ont été déterminées avec l'écart-type des valeurs obtenues pour différentes expériences.

Il existe différentes expériences qui étudient la dissociation induite par collision d'agrégats d'eau protonés, sélectionnés en masse. Seulement peu d'entre elles effectuent la mesure de la section efficace associée à ces processus. Des expériences similaires furent faites, par P.H. Dawson [12]. Elles mettent en jeu des agrégats de type  $H^+(H_2O)_{2-6}$  en collision avec des cibles gazeuses d'argon et de méthane. Toutefois, pour ces processus, les énergies de collision sont de l'ordre de 50 eV. D'autres comme Tomita et al. [13] étudie la section efficace de fragmentation et d'atténuation d'agrégats de type  $H^+(H_2O)_{1-100}$ , accéléré à 50 keV, après passage à travers un jet gazeux d'Hélium et de Xénon.



**Figure 4.8 : Valeurs des sections efficaces obtenues pour différentes tailles d'agrégats d'eau protonés  $H^+(H_2O)_n$  [7].**

La Figure 4.8 présente trois séries de mesures. La première, représentée par des carreaux, montre les résultats des sections efficaces d'atténuation obtenus par Tomita [13] et al sur des agrégats  $H^+(H_2O)_{1 \leq n \leq 100}$  accélérés à 50 keV, en interaction avec une cible d'Hélium. La seconde, représentée par des carrés, sont les valeurs de section efficace d'atténuation obtenus par la même expérience, dans les mêmes conditions, excepté la cible qui est, dans ce cas, en Xénon. La dernière série, en point noir, représente les résultats que nous avons obtenus, concernant la section efficace de dissociation induite par collision, avec une cible gazeuse d'argon d'agrégat de type  $H^+(H_2O)_{2 \leq n \leq 7}$ , accélérés à 8 keV.

Les valeurs des sections efficaces de dissociations, obtenues à travers méthode, sont proches de celles mesurées dans les autres expériences, comme le montre la Figure 4.8. Les différences qui résident sont essentiellement liées à l'énergie de collision, au choix du gaz cible et à l'exclusion des processus de capture électronique pour les mesures que nous avons effectuées.

De plus, ces différences sont essentiellement visibles pour les agrégats de petites tailles. En effet, pour nos résultats, la valeur de la section efficace chute brutalement lorsque la taille de l'agrégat diminue. Ceci pourrait s'expliquer par le fait que la capture électronique est prédominante par rapport aux autres processus de dissociation possibles, pour des ions incidents de faibles tailles.

## *Conclusion*

Dans ce chapitre, nous avons démontré que la technique COINTOF peut être utilisée pour mesurer des sections efficaces et des rapports de branchement. Cette étude a été essentiellement ciblée sur la CID d'agrégats d'eau de type  $H^+(H_2O)_{2-7}$ , sélectionné en masse et en énergie, accélérés à 8 keV, sur une cible gazeuse d'argon.

La mesure des sections efficaces présentées ne prennent pas en compte la capture électronique. La mesure des rapports de branchement a été faite pour les différentes tailles d'agrégats d'eau protonés et pour les différents canaux de dissociation.

## Sommaire

Chapitre 4 : Mesure des sections efficaces de dissociation avec la méthode de détection COINTOF .....	115
1. Dissociation induite par collision (CID) des agrégats d'eau protonés .....	115
2. Mesure des rapports de branchement. ....	118
2.1. Spectre de masse des fragments chargés obtenu par la méthode COINTOF ____	118
2.2. Mesure de l'efficacité de détection _____	121
2.3. Résultats et discussion _____	123
3. Section efficace de dissociation mesurée à partir des rapports de branchement, capture électronique exclue .....	126
3.1. Détermination de l'épaisseur de cible. _____	127
3.2. Mesure de la section efficace de dissociation induite par collision, capture électronique exclue. _____	128
3.3. Résultats et discussion _____	129

## Table des figures

Figure 4.1 : Structures des ions $H^+(H_2O)_{4 \leq n \leq 7}$ produites par une source à 170 K et tableaux de l'énergie totale d'interaction associée à chacune d'entre elles. La partie grisée sur chaque structure montre la localisation du proton. Les structures encadrées en rouge sont celles observées par J.C Jiang et al. [6].	117
Figure 4.2 : Différents canaux accessibles pour un agrégat d'eau protoné du type $H^+(H_2O)_n$ , capture électronique exclue.	118
Figure 4.3 : Mesure du nombre de fragments chargés, corrélés avec au moins une molécule d'eau, à partir du spectre de masse obtenu au moyen du dispositif COINTOF. Cas du trimère d'eau protoné, accéléré à 8 keV et dissocié par collision avec une cible gazeuse d'argon [7].	119
Figure 4.4 : Zones d'impact des différents produits de dissociation induite par la collision des ions $H^+(H_2O)_3$ , accélérés à 8 keV, sur une cible gazeuse d'argon, sur la surface de détection et la projection de ces zones suivant x et y [7].	121
Figure 4.5 : Distribution des positions en y sur la surface de détection pour tous les ions $H^+(H_2O)_2$ détectés (ligne bleue), pour les ions $H^+(H_2O)_2$ détectés et corrélés avec une molécule d'eau également détectée (ligne verte) et pour les ions non dissociés $H^+(H_2O)_3$ (ligne rouge) ainsi que leurs courbes d'ajustement respectives (en ligne pointillée bleue, verte et rouge) [1].	122
Figure 4.6 : Rapports de branchement mesurés, pour chaque canal de dissociation, capture électronique exclue, issu de la CID des ions (8 keV- $H^+(H_2O)_{3 \leq n \leq 7}$ ), sur un atome d'argon, mettant en jeu la perte de i : [1;n] molécules d'eau [7].	125
Figure 4.7 : Courbe d'étalonnage.	128
Figure 4.8 : Valeurs des sections efficaces obtenues pour différentes tailles d'agrégats d'eau protonés $H^+(H_2O)_n$ [7].	131

## Table des tableaux

Tableau 1 : Efficacité de détection de la molécule d'eau à différentes vitesses [7].	123
Tableau 2 : Valeurs des rapports de branchement obtenues pour la dissociation induite par collision (CID) des agrégats d'eau protoné 8keV- $H^+(H_2O)_{2-7}$ , sur une cible d'argon. Le rapport de branchement $R_i^n$ est relié à la perte de i molécules d'eau [7].	124
Tableau 3 : Valeurs des sections efficaces de dissociation induite par collision du 8keV- $H^+(H_2O)_{2-7}$ sur une cible d'argon, capture électronique exclue [7].	130

## Bibliographie du chapitre 4

- [1] F. Berthias, *Collision-induced dissociation cross sections of protonated water clusters*, Rapport de stage M2 Pro Physique Médicale (2013)
- [2] Z. P. Wang, P. M. Dinh, P.-G. Reinhard, E. Suraud, G. Bruny, C. Montano, S. Feil, S. Eden, H. Abdoul-Carime, B. Farizon, M. Farizon, S. Ouaskit, and T. D. Maerk, *Microscopic studies of atom-water collisions*, *Int. J. Mass Spectrom.*, vol. 285, no. 3, Pages 143–148 ( Aug. 2009)
- [3] G. Bruny, S. Eden, S. Feil, R. Fillol, K. El Farkh, M. M. Harb, C. Teyssier, S. Ouaskit, H. Abdoul-Carime, B. Farizon, M. Farizon, and T. D. Märk, *A new experimental setup designed for the investigation of irradiation of nanosystems in the gas phase: A high intensity mass-and-energy selected cluster beam*, *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 83, no. 1, 13305 (Jan. 2012)
- [4] C. Teyssier, *Spectrométrie de masse COINTOF : Conception d'un analyseur à temps de vol et développement de la méthode d'analyse*, Thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon 1 (2012)
- [5] G. Bruny, *Production et caractérisation d'agrégats moléculaires protonés contenant un nombre donné de molécules d'eau auprès du dispositif DIAM*, Thèse UCBL (2010)
- [6] J.C. Jiang et al., *Infrared Spectra of  $H^+(H_2O)_{5-8}$  Clusters : Evidence for Symmetric Proton Hydration*, *J. Am. Chem. Soc.*, 122, Pages 1398-1410 (2000)
- [7] F. Berthias, V. Buridon, H. Abdoul-Carime, B. Farizon, M. Farizon, *Cross section measurements : collision induced dissociation of protonated water clusters*, Poster pour soutenance à mi-parcours M2 Pro Physique Médicale (2013).
- [8] G. Coston, *Développement du système d'acquisition et d'analyse de données du dispositif expérimental DIAM*, Rapport de stage M1 Pro GSI (2013).
- [9] B. L. Peko and T. M. Stephen, *Absolute detection efficiencies of low energy  $H$ ,  $H$ ,  $H^+$ ,  $H_2^+$  and  $H_3^+$  incident on a multichannel plate detector*, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. Sect. B-Beam Interactions Mater. Atoms*, vol. 171, no. 4, Pages 597–604 (Dec. 2000)
- [10] M. Rudd, T. Goffe, A. Itoh, and R. Dubois, *Cross Sections for ionization gases by 10-2000 keV  $He^+$  Ions and for Electron Capture and Loss by 5-350 keV  $He^+$  Ions*, *Phys. Rev.*, vol. 32, no. 2 (1985)
- [11] V. Troitskii, *Directivity of a Molecular Beam Formed by Gas Flow in a Channel*, *Sov. Phys.-Tech. Phys.*, vol. 7, no. 4, Pages 353-587 (1962)
- [12] P. H. Dawson, *Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys.* 43, 195 (1982)

- [13] S. Tomita, J. S. Forster, P. Hvelplund, A. S. Jensen, and S. B. Nielsen, *High energy collisions of protonated water clusters*, Eur. Phys. J., vol. 16, no. 1–3, Pages 119–122 (Sep. 2001)
- [14] K.L. Shey and al., *Low Energy Collisional Activation of Polyatomic Ions with Different Target Gases*, Int. J. Mass Spectrom., vol. 90, no. 3, Pages 71–83 (1989)
- [15] S. Zamith, P. Labastie and J.M. L’Hermite, *Fragmentation Cross Sections of Protonated Water Clusters*, J. of Chem. Phys., vol. 136 (2012)





# Chapitre 5 : Etude des distributions en amplitudes des signaux de détection

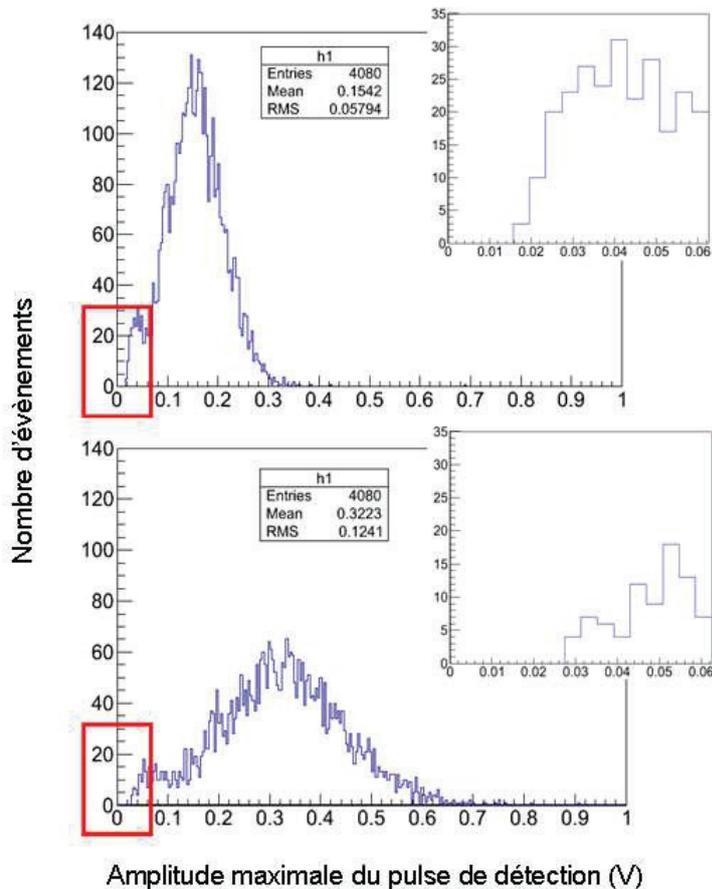
## *Introduction*

Dans ce chapitre, nous allons étudier les distributions d'amplitudes des signaux de détection. Ces distributions sont obtenues, à partir de l'amplitude maximale des pulses qui composent les signaux enregistrés par les cartes ADC, pour une partie ou l'ensemble des événements d'une expérience. Dans notre cas, nous nous limiterons uniquement aux distributions d'amplitudes associées aux pulses des deux galettes MCP.

L'objectif est de voir s'il existe plusieurs allures pour ces distributions en fonction de la vitesse et de la masse des ions atomiques, des ions moléculaires, des atomes neutres et des molécules neutres, étudiés.

## **1. Distribution d'amplitudes des signaux de détection enregistrés par la carte ADC 1**

L'intégration des données, issues de la pré-analyse des signaux provenant des deux cartes ADC, dans ROOT<sup>®</sup> (cf. chapitre 3) permet d'obtenir, pour une partie ou l'ensemble des événements d'une expérience, les distributions d'amplitudes maximale de chaque pulse. Ces distributions sont caractérisées, par le seuil fixé par le système d'acquisition et par leur allure associée à l'efficacité de détection.



**Figure 5.1 : Exemple d'une distribution d'amplitudes des signaux de détection. Distributions d'amplitudes des pulses bruts (en haut) et des pulses après « déconvolution » et filtrage (en bas) associés à l'impact de l'ion  $H^+(H_2O)_2$ , produit par la CID de l'ion  $(H^+(H_2O)_3-8keV)$  sur un atome d'argon, sur les deux galettes MCP, et zoom sur le seuil**

La Figure 5.1 présente deux distributions d'amplitudes, obtenues à partir de 4080 évènements, issus d'une expérience de CID de l'ion  $(H^+(H_2O)_3-8keV)$ , sur une cible gazeuse d'argon. La première (en haut) est une distribution d'amplitude maximale des pulses bruts, qui composent le signal en sortie des deux galettes MCP et associés à l'impact du fragment chargé  $H^+(H_2O)_2$ , sur le système de détection. La seconde (en bas) est une distribution d'amplitude maximale des mêmes pulses, après « déconvolution » et filtrage (cf. Chapitre 3).

Si nous nous référons à l'encart présenté sur le graphe du haut, nous pouvons voir que le seuil de la distribution d'amplitude maximale des pulses bruts est à 15,5 mV. Si nous nous référons à l'encart présenté sur le graphe du bas, nous pouvons voir que le seuil de la distribution d'amplitude maximale des pulses « déconvolués » et filtrés est à 28 mV.

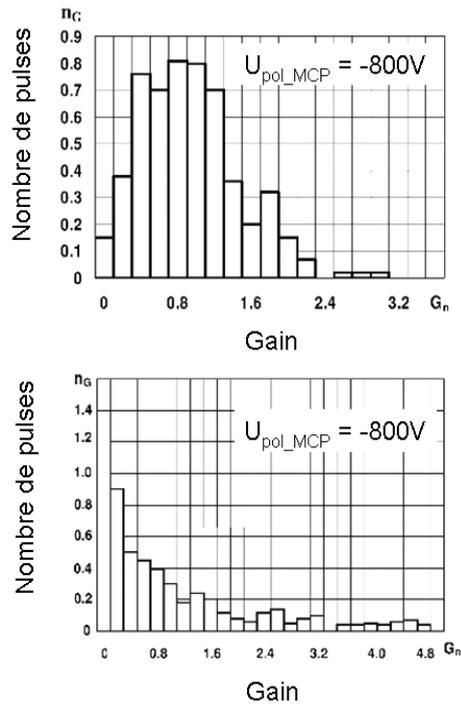
En comparant les deux graphes de la Figure 5.1, nous constatons que la distribution d'amplitude maximale des pulses « déconvolués » et filtrés s'étend plus vers les grandes amplitudes que celle des pulses bruts. En effet, comme nous l'avons montré dans le chapitre 3, l'amplitude maximale d'un pulse brut est proportionnelle à celle de ce même pulse, une fois

« déconvolué » et filtré, et vaut 1,8 car dans notre étude, la valeur du TINY est mise à  $10^{-3}$  et celle de la fréquence de coupure à 100 points. De plus, nous retrouvons ce facteur de proportionnalité, si nous calculons le rapport des seuils mesurés, précédemment sur la distribution d'amplitude maximale des pulses « déconvolués et filtrés » et la distribution d'amplitude maximale des pulses bruts.

De plus, nous observons une zone en forme de palier sur la partie gauche de ces distributions, entre 15,5 et 60 mV, pour la distribution d'amplitudes maximales des pulses bruts et, entre 28 et 110 mV, pour la distribution d'amplitudes maximales des pulses « déconvolués » et filtrés. Nous observons une zone en forme de palier, sur cette partie de la distribution, car l'enveloppe d'un pulse est plus affectée par le bruit, si son amplitude maximale est proche de celle du bruit. Par conséquent, l'amplitude maximale mesurée peut être celle d'un bruit présent sur l'enveloppe du pulse. Comme à basse amplitude, il est difficile de séparer les différents cas, toutes les valeurs d'amplitudes maximales apparaissent comme équiprobables, d'où la présence d'une zone en forme de palier.

Par ailleurs, nous pouvons caractériser l'allure d'une distribution à travers deux paramètres : la moyenne et l'écart-type. Ces paramètres sont indépendants du binage et du nombre d'évènements utilisés pour tracer la distribution, sauf s'ils sont faibles.

Les deux galettes MCP, que nous utilisons, sont recouvertes en surface par des canaux de rapport  $z/d=40$  [1] (avec  $z$  la longueur et  $d$  le diamètre) et polarisées à -1300V. Nous comparons les distributions d'amplitudes, que nous avons obtenues, expérimentalement, avec celle obtenue, par une simulation Monte Carlo [2], d'une galette MCP, polarisée à -800V et recouverte en surface par des canaux de rapport  $z/d$  donnée.

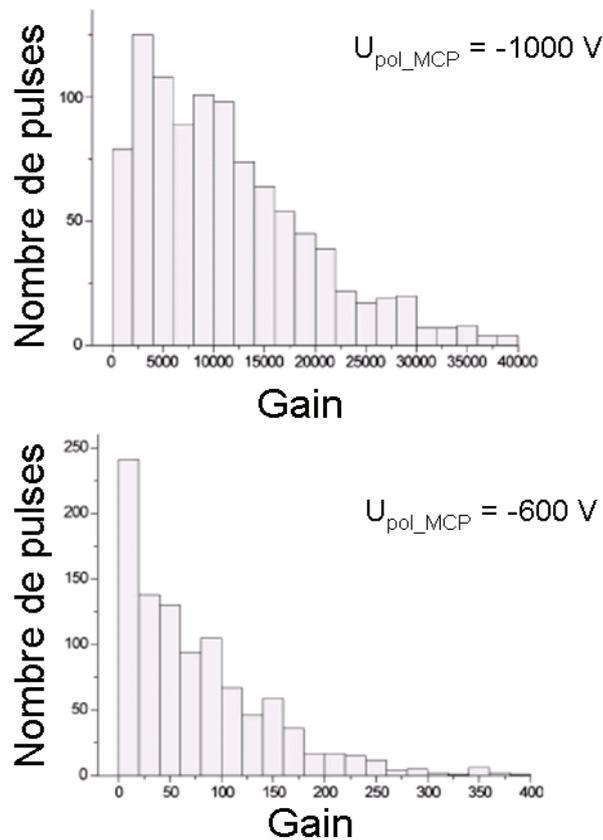


**Figure 5.2 : Distribution obtenue par une simulation Monte Carlo [2] et qui montre le nombre de pulses émis en fonction du gain pour un rapport  $z/d = 1$  (en haut) pour un rapport  $z/d=22$  (en bas), avec  $z$  la longueur du canal et  $d$  son diamètre. Dans cette simulation, un seul électron est émis à l'entrée du canal et les deux galettes MCP est polarisé à  $-800V$ .**

La Figure 5.2 présente les résultats obtenus par cette simulation [2] dans le cas où la galette MCP, polarisée à  $-800V$ , est recouverte en surface par des canaux de rapport  $z/d=1$  (graphe du haut) et par des canaux de rapport  $z/d=22$  (graphe du bas).

Nous constatons que l'allure des distributions d'amplitudes que nous avons obtenues expérimentalement est plus proche de celle obtenue, par la simulation Monte Carlo, d'une galette MCP, polarisée  $-800V$  et recouverte en surface par des canaux de rapport  $z/d=1$  (graphe du haut). L'allure obtenue est différente à celle attendue car la tension de polarisation du MCP que nous utilisons est à  $-1300V$  alors que celle imposée dans la simulation est de  $-800V$ . Ce qui montre que la tension de polarisation est un paramètre qui modifie également l'allure des distributions en amplitudes.

De plus, la tension de polarisation d'une galette MCP, noté  $U_{\text{pol\_MCP}}$ , change également l'allure des distributions comme le montre la Figure 5.3 [3].



**Figure 5.3 : Distribution obtenue par une simulation Monte Carlo [3] et qui montre le nombre de pulses émis en fonction du gain pour un rapport  $z/d = 46$ , avec  $z$  la longueur du canal et  $d$  son diamètre. Dans cette simulation, la tension de polarisation  $U_{\text{pol\_MCP}}$  est mise à  $-1000 \text{ V}$  (en haut) et  $-600 \text{ V}$  (en bas).**

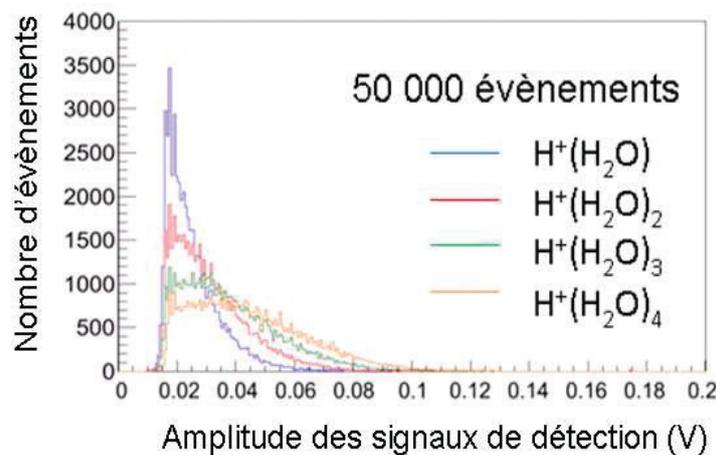
Dans cette simulation [3], le rapport  $z/d$  des canaux, qui recouvrent la surface de la galette MCP, est fixé à 46 alors que le rapport  $z/d$  des canaux, qui recouvrent la surface des deux galettes MCP, que nous utilisons, vaut 40. De plus, dans cette simulation, seule la tension de polarisation du MCP varie. Deux simulations ont été effectuées, une, pour laquelle la tension de polarisation appliquée à la galette MCP, vaut  $-1000\text{V}$  (graphe du haut) et une autre, pour laquelle la tension de polarisation appliquée à la galette MCP, vaut  $-600\text{V}$  (graphe du bas). Nous constatons que plus la tension de polarisation est élevée et se rapproche de celle, que nous appliquons à nos deux galettes MCP, et plus l'allure de la distribution obtenue, à partir de la simulation Monte Carlo [3], tend à ressembler à celle des distributions, que nous avons obtenues expérimentalement. Toutefois, même si l'action de la tension de polarisation sur l'allure des distributions d'amplitudes semble en accord avec ce que nous observons pour les distributions d'amplitudes que nous avons obtenues expérimentalement, le rapport  $z/d$ , associé aux canaux des galettes MCP simulées, est légèrement différent de celui associé aux canaux des deux galettes MCP, que nous utilisons.

L'allure des distributions d'amplitudes peut être affectée par plusieurs paramètres : le rapport  $z/d$  des canaux, qui recouvrent la surface de la galette MCP utilisé, et la tension de polarisation. La moyenne et l'écart-type sont deux paramètres, qui au premier abord, permettent de comparer deux distributions. Cependant, ces paramètres sont modifiés si l'allure de la distribution d'amplitudes change.

## 2. Caractérisation d'une distribution d'amplitude par la méthode des moments

### 2.1. Situer le problème

A travers les différentes études, que nous avons menées, nous avons pu obtenir les distributions d'amplitudes associées à des ions moléculaires de différentes masses, qui se déplacent à même vitesse. Dans le cas traité et présenté sur la Figure 5.4, les distributions d'amplitudes sont associées aux ions  $H^+(H_2O)_{1 \leq n \leq 4}$ , qui se déplacent à une vitesse de 147 000 m/s. De plus, chaque distribution est associée à une expérience, dans laquelle nous avons utilisé les mêmes galettes MCP, recouvertes en surface par des canaux de rapport  $z/d=40$  et polarisées à -1700V. Les distributions présentées sur la Figure 5.4 sont obtenues, à partir de 50 000 évènements.

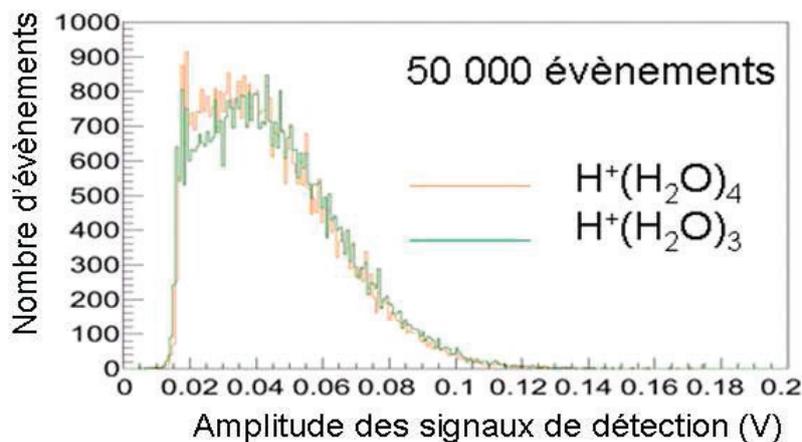


**Figure 5.4 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection associés aux ions  $H^+(H_2O)_{1 \leq n \leq 4}$  ( $H^+(H_2O)$  en bleu,  $H^+(H_2O)_2$  en rouge,  $H^+(H_2O)_3$  en vert et  $H^+(H_2O)_4$  en orange) se déplaçant à la même vitesse (147 000 m/s).**

Sur la Figure 5.4, la distribution d'amplitudes maximales, associée à l'ion  $H^+(H_2O)$  est représentée en bleu, celle associée à l'ion  $H^+(H_2O)_2$  est représentée en rouge, celle associée à l'ion  $H^+(H_2O)_3$  est représentée en vert et celle associée à l'ion  $H^+(H_2O)_4$  est représentée en orange. Nous voyons que ces distributions d'amplitudes ont toutes le même seuil, fixé par le système d'acquisition à 15,5 mV. De plus, nous constatons qu'à même vitesse, un agrégat de

masse plus grande a une distribution d'amplitudes plus étalée vers les hautes amplitudes. En effet, la distribution associée à l'ion  $H^+(H_2O)_4$ , en orange, est la plus étalée et la distribution associée à l'ion  $H^+(H_2O)$ , en bleu, est la moins étalée. Si ces ions sont tous à la même vitesse alors ils ont une énergie cinétique différente, du fait, que leur masse est différente. Par conséquent, nous pouvons en déduire que l'allure d'une distribution d'amplitudes change en fonction de l'énergie cinétique et, donc, en fonction de la masse de l'ion considéré puisque ces ions sont à la même vitesse.

De plus, nous avons pu également obtenir les distributions d'amplitudes associées à des ions moléculaires de différentes masses, ayant la même énergie cinétique. Dans le cas traité et présenté sur la Figure 5.5, les distributions d'amplitudes sont associées aux ions  $H^+(H_2O)_{3 \leq n \leq 4}$ , ayant une énergie cinétique de 8 keV. De plus, chaque distribution est associée à une expérience, dans laquelle nous avons utilisé les mêmes galettes MCP, recouvertes en surface par des canaux de rapport  $z/d=40$  et polarisées à -1700V. Les distributions présentées sur la Figure 5.5 sont obtenues, à partir de 50 000 évènements.

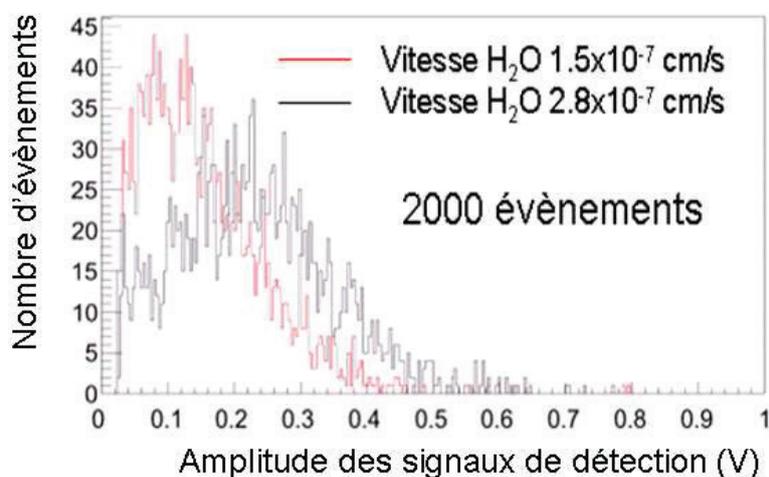


**Figure 5.5 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection associés à deux ions moléculaires  $H^+(H_2O)_3$  en vert et  $H^+(H_2O)_4$  en orange à 8keV.**

Sur la Figure 5.5, la distribution d'amplitudes maximales, associée à l'ion  $H^+(H_2O)_3$  est représentée en vert et celle associée à l'ion  $H^+(H_2O)_4$  est représentée en orange. Nous voyons que ces distributions d'amplitudes ont toutes le même seuil, fixé par le système d'acquisition à 15,5 mV. De plus, nous constatons qu'à même énergie cinétique, un agrégat de masse plus faible et, donc, se déplaçant à plus grande vitesse, a une distribution d'amplitudes plus étalée vers les hautes amplitudes. En effet, la distribution associée à l'ion  $H^+(H_2O)_3$ , en vert, est plus étalée que celle associée à l'ion  $H^+(H_2O)_4$ , en orange. Si ces ions ont tous la même énergie cinétique alors ils ont une vitesse différente, du fait, que leur masse est différente. Par conséquent, nous pouvons en déduire que l'allure d'une distribution d'amplitudes change en fonction de la vitesse de l'ion considéré.

Par ailleurs, nous avons pu également obtenir les distributions d'amplitudes associées à des molécules d'eau se déplaçant à différentes vitesses. Dans le cas traité et présenté sur la Figure

5.6, les distributions d'amplitudes sont associées à des molécules d'eau, se déplaçant à une vitesse de  $1,5 \times 10^{-7}$  cm/s et à une vitesse de  $2,8 \times 10^{-7}$  cm/s. De plus, chaque distribution est associée à une expérience, dans laquelle nous avons utilisé les mêmes galettes MCP, recouvertes en surface par des canaux de rapport  $z/d=40$  et polarisées à -1300V. Les distributions présentées sur la Figure 5.6 sont obtenues, à partir de 2 000 évènements.

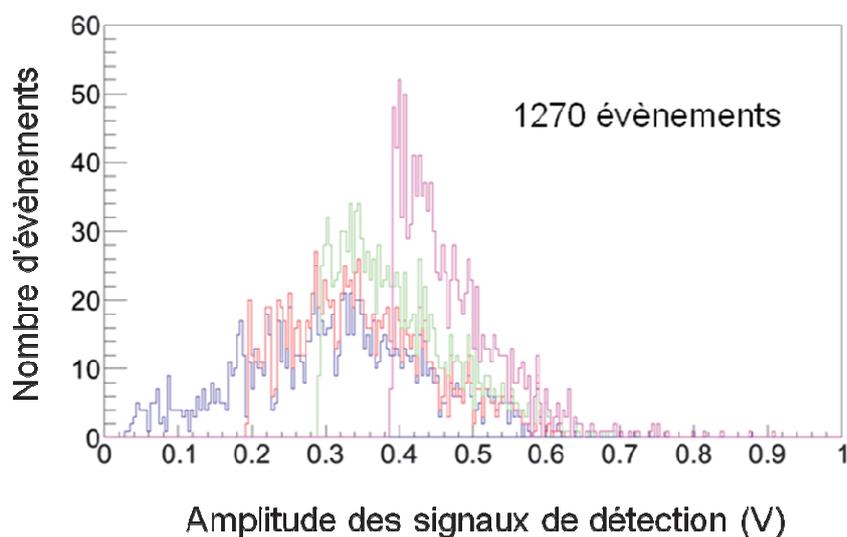


**Figure 5.6 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection associés à la molécule d'eau, qui se déplace à une vitesse de  $1,5 \times 10^{-7}$  cm/s (en rouge), qui se déplace à une vitesse de  $2,8 \times 10^{-7}$  cm/s (en noir).**

Sur la Figure 5.6, la distribution d'amplitudes maximales, associée aux molécules d'eau, qui se déplacent à  $1,5 \times 10^{-7}$  cm/s, est représentée en rouge et celle associée aux molécules d'eau, qui se déplacent à  $2,8 \times 10^{-7}$  cm/s, est représentée en noir. Nous voyons que ces distributions d'amplitudes ont toutes le même seuil, fixé par le système d'acquisition à 15,5 mV. De plus, nous constatons qu'à même masse, une molécule, qui se déplace à une vitesse plus grande, a une distribution d'amplitudes plus étalée vers les hautes amplitudes. En effet, la distribution associée aux molécules d'eau, qui se déplacent à  $2,8 \times 10^{-7}$  cm/s (en noir) est plus étalée que celle associée aux molécules d'eau, qui se déplacent à  $1,5 \times 10^{-7}$  cm/s (en rouge). Par conséquent, nous pouvons en déduire que l'allure d'une distribution d'amplitudes associée à une molécule d'eau change en fonction de la vitesse de cette molécule.

Par ailleurs, l'allure des distributions d'amplitudes est associée à l'efficacité de détection des ions considérés sur la surface de détection. En effet, tout comme l'efficacité de détection, cette allure varie en fonction de la masse, de la vitesse et de l'énergie cinétique de l'ion considéré.

De plus, l'efficacité de détection varie également en fonction d'un autre paramètre expérimentale : le seuil fixé par le système d'acquisition. En effet, tout comme la vitesse, l'énergie cinétique et la masse de l'ion considéré, le choix du seuil modifie également l'allure de la distribution d'amplitudes puisque, seules les pulses dont l'amplitude maximale est supérieure au seuil imposé sont pris en compte.

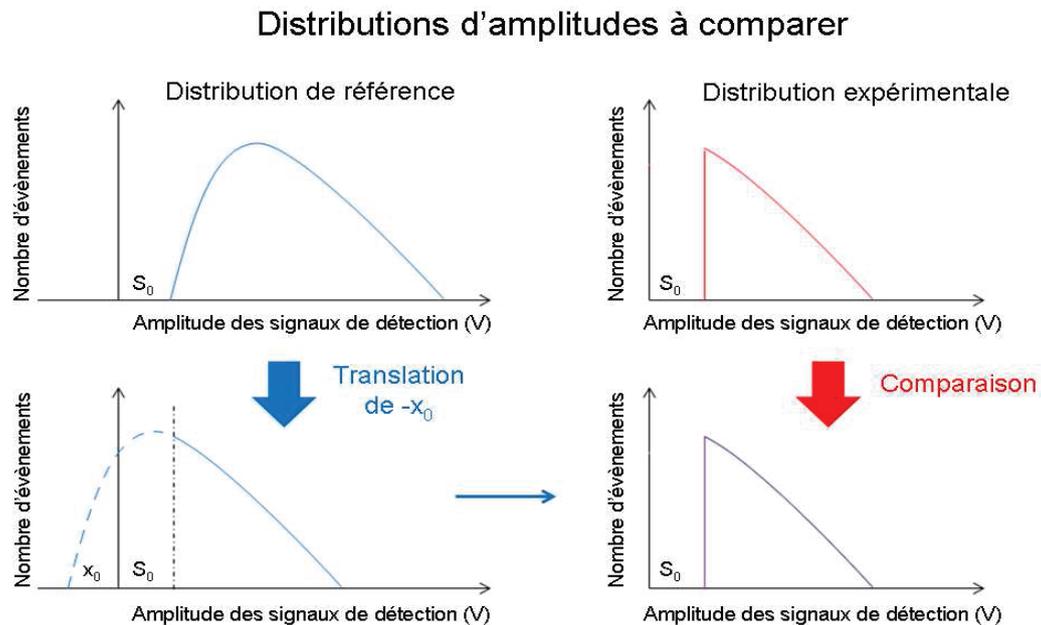


**Figure 5.7 : Distributions d'amplitudes, associées à l'ion  $H^+(H_2O)_2$ , obtenues pour différentes valeurs de seuil (En bleu : seuil à 25 mV, en rouge : seuil à 195 mV, en vert : seuil à 293 mV et en rose : seuil à 391 mV).**

La Figure 5.7 présente la distribution d'amplitude, associée à l'ion  $H^+(H_2O)_2$ , obtenue pour différentes valeurs de seuil (25mV en bleu, 195 mV en rouge, 293 mV en vert et 391 mV en rose), à partir de 1270 évènements. Nous constatons que le choix du seuil change radicalement l'allure de la distribution et donne l'impression que les distributions d'amplitudes tracées sont, au final, différentes. En effet, l'allure de la distribution d'amplitudes associée à l'ion  $H^+(H_2O)_2$ , avec un seuil à 25 mV (en bleu) semble bien différente de celle associée à l'ion  $H^+(H_2O)_2$ , avec un seuil à 391 mV (en rose).

Si nous nous référons aux Figures 5.4, 5.5 et 5.6, nous constatons, de manière générale, que les distributions plus étalées vers les hautes amplitudes, ont des allures proches de celles obtenues à plus bas seuil (en bleu) sur la Figure 5.7, alors que les distributions moins étalées ont des allures proches de celles obtenues à plus haut seuil (en rose), sur la Figure 5.7. De plus, si nous nous référons à la Figure 5.6, nous voyons que plus la vitesse de la molécule d'eau diminue et plus la distribution, qui lui est associée, semble se traduire vers les basses amplitudes. Nous observons la même tendance sur le Figure 5.4. Dans ce cas, nous voyons que plus la masse de l'ion considérée diminue et plus la distribution, qui lui est associée, semble se traduire vers les basses amplitudes. Par conséquent, traduire une distribution semble modifier son allure de manière analogue à l'augmentation du seuil expérimentale.

Deux distributions associées à une même distribution de référence peuvent apparaître différentes. Du coup, pour vérifier si ces deux distributions peuvent avoir une allure semblable, il est nécessaire d'en traduire une par rapport à l'autre. Dans la stratégie adoptée, nous avons choisi de traduire la distribution d'amplitude la plus étalée : ce sera notre distribution de référence. L'étape de translation s'effectue de la manière suivante :



**Figure 5.8 : Comparaison de deux distributions d'amplitudes maximale avant et après la translation de la distribution de référence.**

La Figure 5.8 illustre la comparaison de deux distributions d'amplitudes maximale avant et après la translation de la distribution de référence. A la base nous avons deux distributions d'amplitudes, une en bleue et une en rouge, que nous souhaitons comparer. Ces deux distributions d'amplitudes ont le même seuil  $S_0$  et semblent, au premier abord, différentes l'une de l'autre. L'idée de la translation est de voir si, finalement, ces deux distributions ont des allures différentes ou s'il est possible avec la distribution de référence (en bleu), traduite vers les basses amplitudes d'obtenir une distribution de la même allure que celle représentée en rouge. Dans notre schéma, nous traduisons la distribution de référence de  $-x_0$  et nous prenons sur cette distribution traduite que les amplitudes maximales supérieures au seuil  $S_0$ , fixé par le système d'acquisition. Nous comparons, ensuite, la distribution de référence traduite de  $-x_0$  et tronquée en  $S_0$  avec la distribution expérimentale et nous regardons si celles-ci se superposent. Ainsi, traduire une distribution revient à lui imposer un seuil égal à  $S_0+x_0$ . La valeur de  $x_0$  dépend de l'allure des deux distributions à comparer.

## 2.2. Présentation de la méthode des moments sur une distribution modèle.

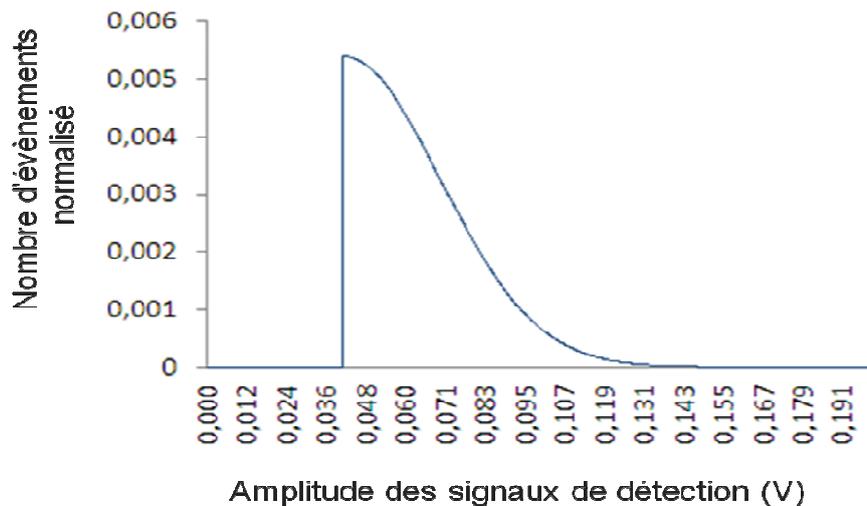
Nous souhaitons pouvoir comparer les distributions d'amplitudes entre elles en nous affranchissant des conditions de tracé (nombre d'évènements et binage). Pour se faire, nous devons utiliser les paramètres qui caractérisent l'allure de la distribution (moyenne, écart-type...), pour chaque valeur de seuil. C'est pourquoi, notre choix s'est porté sur les fonctions génératrices de moments, très utilisées dans les études statistiques [4, 5, 6, 7].

L'intérêt de ces fonctions génératrices de moments est présenté sur l'exemple d'une distribution générée à partir de la fonction demi-gaussienne.

$$f(x) = 0 \text{ sur } [0; x_0]$$

$$f(x) = C \cdot \exp\left(\frac{-(x - x_0)^2}{2\sigma^2}\right) \text{ sur } [x_0; V_{\max}] \quad (1)$$

Cette fonction a été choisie car son allure est proche de celle des distributions d'amplitudes observées.



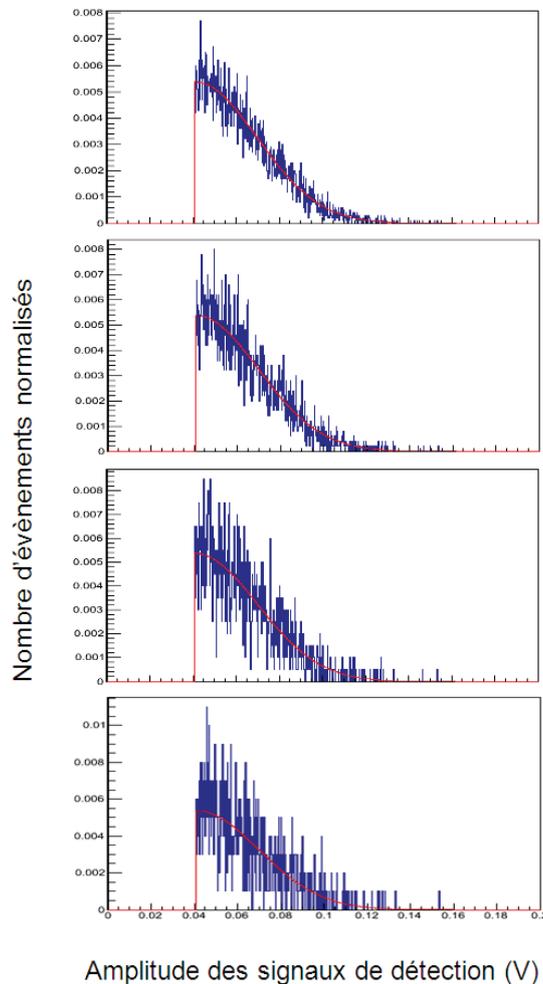
**Figure 5.9 : Allure de la distribution demi-gaussienne décrite à travers la formule précédente pour les paramètres suivants :  $x_0 = 41 \text{ mV}$ ,  $C = 5,4 \times 10^{-3}$ ,  $\sigma = 29 \text{ mV}$ .**

Dans nos tests, nous avons caractérisé la demi-gaussienne avec les paramètres suivants :  $x_0 = 41 \text{ mV}$ ,  $C = 5,4 \times 10^{-3}$  et  $\sigma = 29 \text{ mV}$ . Le graphe associé à cette fonction est présenté sur la Figure 5.9. Dans cet exemple,  $x_0$  fait office de seuil. Nous avons choisi cette fonction avec les valeurs de paramètres énoncés ci-dessus, de manière à nous rapprocher le plus possible de l'allure des distributions d'amplitudes, que nous avons obtenues expérimentalement.

Un premier test permet de montrer l'influence du nombre d'évènements sur l'allure de la distribution modèle. Pour se faire, nous construisons par tirage aléatoire une distribution à

10 000 évènements qui suit l'allure de la fonction test. A partir de cette distribution, nous pouvons générer N autres distributions de k évènements, avec  $N \times k = 10\,000$  évènements.

Les résultats obtenus, pour  $N = 1, 2, 5, 10$ , sont présentés sur la Figure 5.10.



**Figure 5.10 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection en forme de demi gaussienne construite à partir de la fonction analytique représenté en rouge. Pour la même fonction analytique est construite, de haut en bas, une distribution en amplitudes à 10 000, à 5 000, à 2 000 et à 1 000 évènements.**

La Figure 5.10 présente les distributions obtenues par tirage aléatoires. La distribution de base possède 10 000 évènements. A partir de celle-ci, nous en construisons deux à 5 000 évènements, cinq à 2 000 évènements et dix à 1 000. Dans chaque cas, nous en conservons qu'une. Le premier est un cas à 10 000 évènements, le second un cas à 5 000 évènements, le troisième un cas à 2 000 évènements et la dernière un cas à 1 000 évènements. Pour pouvoir les comparer, chacune de ces distributions sont normalisées à leur nombre d'évènements. Les distributions issus du tirage aléatoires sont représentées en bleu et sont superposées à la fonction analytique test représentée en rouge.

Comme attendue, nous constatons que la fluctuation statistique est plus importante lorsque le nombre d'évènements utilisé pour tracer la distribution est faible. Malgré la fluctuation, l'allure de la distribution épouse celle de la fonction analytique. Toutefois, lorsque la fluctuation devient trop importante, il reste assez difficile de voir si cette allure est bien conservée.

Pour comparer les distributions, trois fonctions génératrices de moments ont été choisies le moment d'ordre 0, le moment d'ordre 1 et la variance. Ces moments sont, respectivement, calculés à partir des formules suivantes :

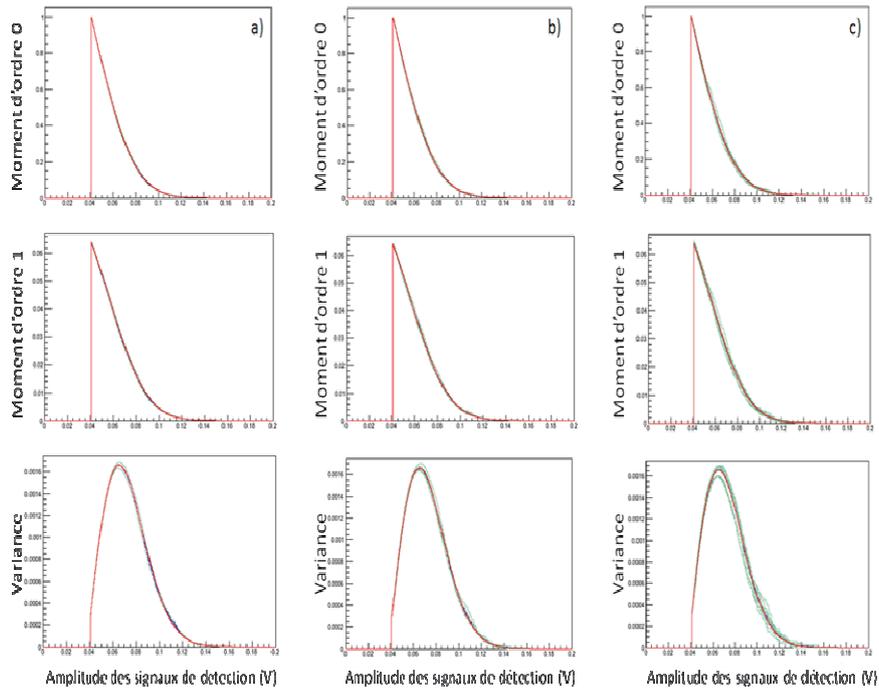
$$\begin{aligned}
 M_0(s) &= \frac{\int_0^{V_{\max}} f(x).dx}{\int_0^{V_{\max}} f(x).dx} \\
 M_1(s) &= \frac{\int_0^{V_{\max}} x.f(x).dx}{\int_0^{V_{\max}} f(x).dx} \\
 ET(s) &= \frac{\int_0^{V_{\max}} x^2.f(x).dx}{\int_0^{V_{\max}} f(x).dx} - \left( \frac{\int_0^{V_{\max}} x.f(x).dx}{\int_0^{V_{\max}} f(x).dx} \right)^2
 \end{aligned} \tag{2}$$

$\int_0^{V_{\max}} f(x).dx$  désigne le nombre d'évènements de la distribution, lorsque le seuil mobile  $s$  est égale au seuil imposé par le discriminateur, lors d'une expérience.

Les fonctions génératrices de moments dépendent uniquement de la valeur du seuil mobile  $s$  compris entre 0 et  $V_{\max}$ .

Le moment d'ordre 0 évalue la proportion d'évènements pour les amplitudes supérieures à celle du seuil mobile  $s$  sur la distribution. Le moment d'ordre 1 est associé à la moyenne pondérée de la distribution pour les amplitudes supérieures à celle du seuil mobile  $s$ . La variance évalue l'écart entre le moment d'ordre 2 et le moment d'ordre 1 mis au carré. Il permet d'observer les distributions avec une résolution encore plus fine que les deux moments précédents. Nous n'avons pas utilisé des moments d'ordres plus élevés car nous souhaitons étudier l'allure des distributions en s'affranchissant des fluctuations.

Nous avons appliqué ces fonctions génératrices de moments sur la fonction analytique utilisée et sur les distributions obtenus par tirage aléatoires. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 5.11.



**Figure 5.11 : Moment d'ordre 0 (en haut), moment d'ordre 1 (au milieu) et variance (en bas) calculés à partir de la courbe analytique (en rouge) et des distributions d'amplitudes des signaux de détection obtenues par tirage aléatoire. a) Deux cas à 5 000 évènements (en vert). b) Cinq cas à 2 000 évènements (en vert) c) Dix cas à 1 000 évènements (en vert) issus d'une distribution à 10 000 évènements (en bleu).**

La Figure 5.11 présente les fonctions génératrices de moments obtenues pour la fonction analytique (en rouge), pour la distribution à 10 000 évènements (en bleu), a) pour les deux distributions à 5 000 évènements, b) pour les cinq distributions à 2 000 évènements et c) pour les dix distributions à 1 000 évènements (représentés, dans chaque cas en vert).

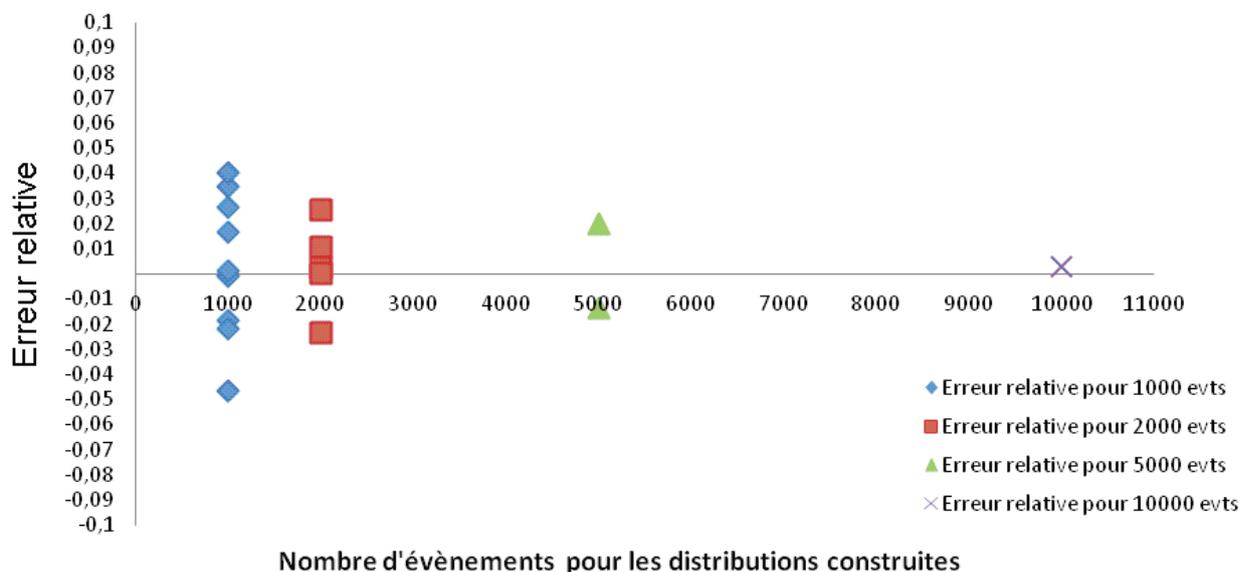
Nous constatons que les courbes se recouvrent globalement : ce qui montre que les fonctions génératrices de moments utilisés s'affranchissent assez bien du nombre d'évènements utilisés pour tracer la distribution étudiée. Les écarts entre les distributions et la fonction analytique apparaissent lorsque le nombre d'évènements devient faible et lorsque nous comparons les distributions avec un moment d'ordre élevé : ceci est dû aux fluctuations.

Pour déterminer l'écart entre les distributions obtenues par tirage aléatoire et la fonction analytique, nous mesurons l'écart relatif à partir du moment d'ordre 0 à travers la formule suivante :

$$\text{Erreur Relative} = \frac{\int_{x_0}^{V_{\max}} M_0^{\text{analytique}}(x).dx - \int_{x_0}^{V_{\max}} M_0^{\text{distribution}}(x).dx}{\int_{x_0}^{V_{\max}} M_0^{\text{analytique}}(x).dx} \quad (3)$$

Le choix, pour le calcul de l'erreur relative, s'est porté sur l'intégrale du moment d'ordre 0. En effet, ce moment s'affranchit plus de la fluctuation que les autres moments. De plus, son

intégrale permet de mesurer l'erreur relative en prenant en compte toutes les valeurs du seuil mobile  $s$ . Les résultats de ces différentes mesures sont présentés sur la Figure 5.11.

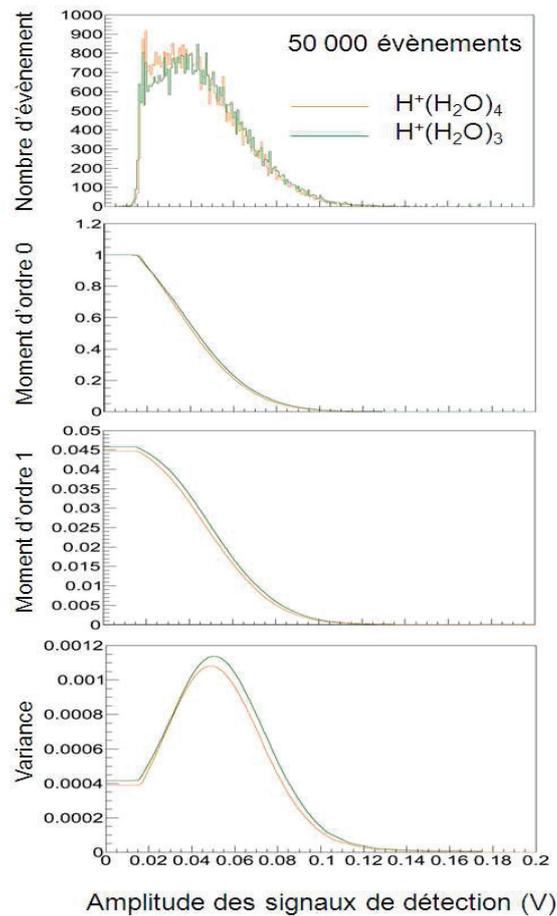


**Figure 5.12 : Erreur relative mesurée à partir du moment d'ordre 0 entre la fonction analytique et la distribution obtenue à partir d'un certain nombre d'évènements (1 000, 2 000, 5 000 et 10 000).**

La Figure 5.12 présente la mesure de l'erreur relative entre la fonction analytique et les distributions obtenues, à partir d'un certain nombre d'évènements (une à 10 000, 2 à 5 000, 5 à 2 000 et 10 à 1 000). Nous voyons que plus le nombre d'évènements est faible et plus l'éventail des erreurs relatives s'élargit. Toutefois, nous remarquons que ces erreurs restent toujours en dessous de 5% même pour les distributions obtenues avec seulement 1 000 évènements. Ainsi, nous montrons que la méthode offre une observation fine et peut être utilisée pour comparer deux distributions entre elles.

### 2.3. Variation de la distribution d'amplitudes avec la masse de l'agrégat d'eau protoné à même énergie

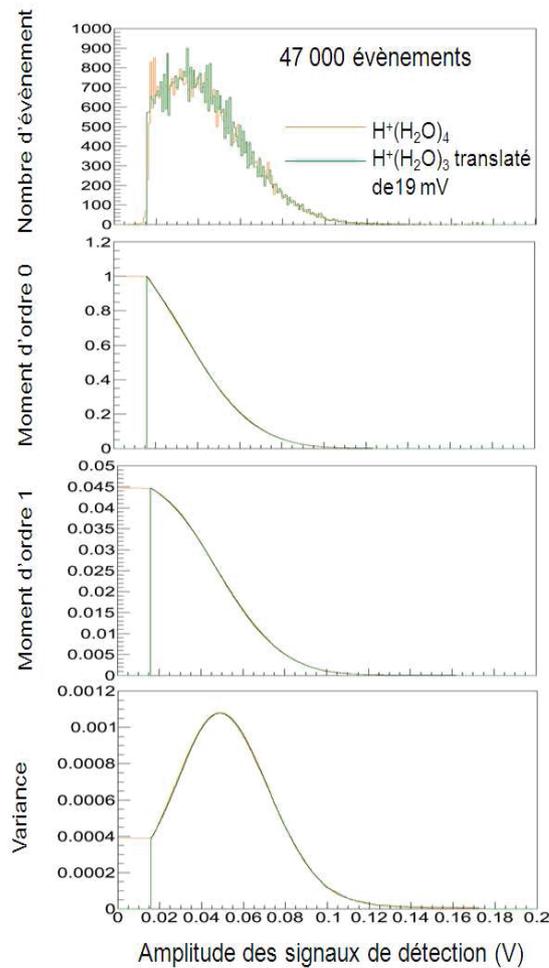
La première étude consiste à comparer les distributions d'amplitudes obtenues pour deux ions moléculaires :  $H^+(H_2O)_3$  et  $H^+(H_2O)_4$ , accélérés à la même énergie cinétique. La Figure 5.13 montre la comparaison entre la distribution d'amplitudes de deux ions  $H^+(H_2O)_3$  (en vert) et  $H^+(H_2O)_4$  (en orange) accélérés tout deux à 8 keV. Ces distributions sont obtenues à partir de 50 000 évènements et sont issues d'expériences, pour lesquelles nous avons utilisé les mêmes galettes MCP, recouvertes en surface de canaux de rapport  $z/d=40$  et polarisée à -1300V.



**Figure 5.13 : Distributions d’amplitudes des signaux de détection associés à deux ions moléculaires  $H^+(H_2O)_3$  en vert et  $H^+(H_2O)_4$  en orange, accélérés à 8 keV et fonctions génératrices de moments respectives.**

Au premier abord, les deux distributions d’amplitudes semblent avoir des allures assez proches, comme le montre le graphe du haut. Néanmoins, il existe une légère différence visible à travers les fonctions génératrices de moments associées à chacune d’entre elles.

Comme nous l’avons montré dans le paragraphe 2.1, nous pouvons voir si cette différence d’allure peut être interprétée par une translation de la distribution d’amplitudes de l’ion  $H^+(H_2O)_3$ , prise comme référence, parce qu’elle est plus étalée vers les grandes amplitudes, par rapport à la distribution d’amplitudes de l’ion  $H^+(H_2O)_4$ .

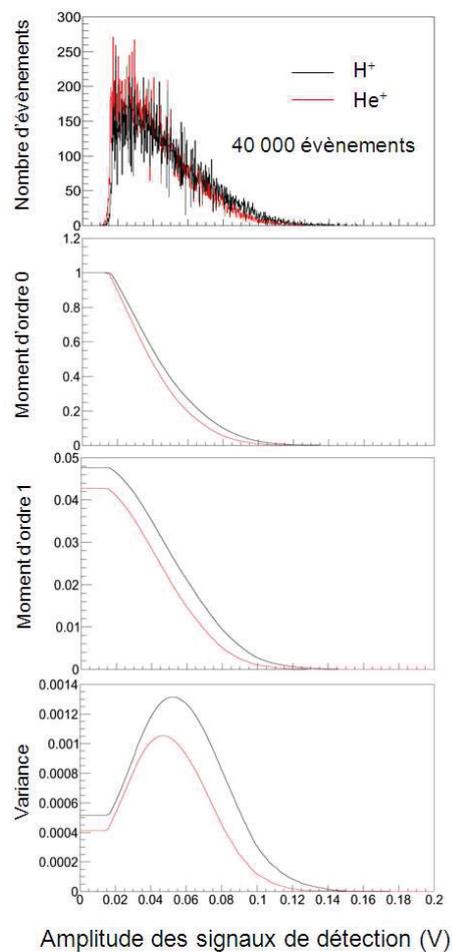


**Figure 5.14 : Distributions d'amplitudes des signaux de détection associés aux ions  $H^+(H_2O)_3$  et  $H^+(H_2O)_4$  accélérés à 8 kV, une fois qu'un décalage de -19 mV est appliqué sur la distribution en amplitude du  $H^+(H_2O)_3$  (en vert) et fonctions génératrices de moments respectives.**

La Figure 5.14 montre la comparaison de la distribution d'amplitudes de l'ion  $H^+(H_2O)_4$  avec celle de l'ion  $H^+(H_2O)_3$  une fois que celle-ci est translatée de -19 mV et tronquée à 15,5 mV (seuil fixé par la système d'acquisition) ainsi que la comparaison de leurs fonctions génératrices de moments respectives. Le constat est que les deux distributions ont une allure identique. Ce résultat se confirme, également, si nous regardons les fonctions génératrices de moments, associées à chacune des distributions. Ces ions sont à la même énergie cinétique mais pas à la même masse. Par conséquent, plus la vitesse de l'ion considéré est faible et plus l'allure de sa distribution d'amplitude va correspondre à celle d'une distribution de référence de plus en plus translatée vers les faibles amplitudes. De plus, ceci montre également que l'allure de la distribution d'amplitudes associée à l'ion  $H^+(H_2O)_4$ , accéléré à 8keV (en orange) peut être semblable à celle de l'ion  $H^+(H_2O)_3$ , accéléré à une énergie cinétique plus faible.

## 2.4. Variation de la distribution d'amplitudes avec la masse de l'ion à même énergie

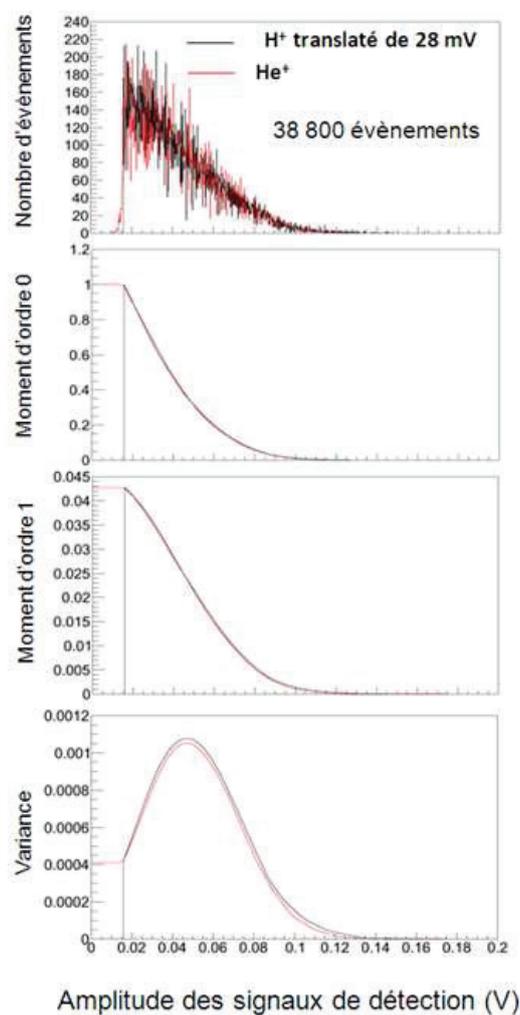
La seconde étude consiste à comparer les distributions d'amplitudes obtenues pour deux ions atomiques :  $H^+$  et  $He^+$ , accélérés à la même énergie cinétique. La Figure 5.15 montre la comparaison entre la distribution d'amplitudes de deux ions  $H^+$  (en noir) et  $He^+$  (en rouge) accélérés à la même énergie 8,77 keV. Ces distributions sont obtenues à partir de 40 000 évènements et sont extraites d'expériences pour lesquelles nous avons utilisé les mêmes galettes MCP, recouvertes en surface de canaux de rapport  $z/d=40$  et polarisée à -1700V.



**Figure 5.15 :** Distributions d'amplitudes des signaux de détection associés à deux ions atomique  $H^+$  en noir et  $He^+$  en rouge à 8.77 keV et fonctions génératrices de moments respectives.

L'allure des deux distributions d'amplitudes comparées (graphe du haut) est assez proche. Cette différence d'allure liée à la masse du composé est beaucoup plus marquée dans cette étude que dans l'étude faite précédemment. Ceci peut être lié à deux facteurs : l'énergie d'accélération 8,77 keV, dans ce cas, au lieu de 8 keV, dans le cas précédent. Les fonctions génératrices de moments associées à chacune de ces distributions montrent que leur allure est bien différente.

Comme nous l'avons montré dans le paragraphe 2.1, nous pouvons voir si cette différence d'allure peut être interprétée par une translation de la distribution d'amplitudes de l'ion  $H^+$ , prise comme référence, parce qu'elle est plus étalée vers les grandes amplitudes, par rapport à la distribution d'amplitudes de l'ion  $He^+$ .



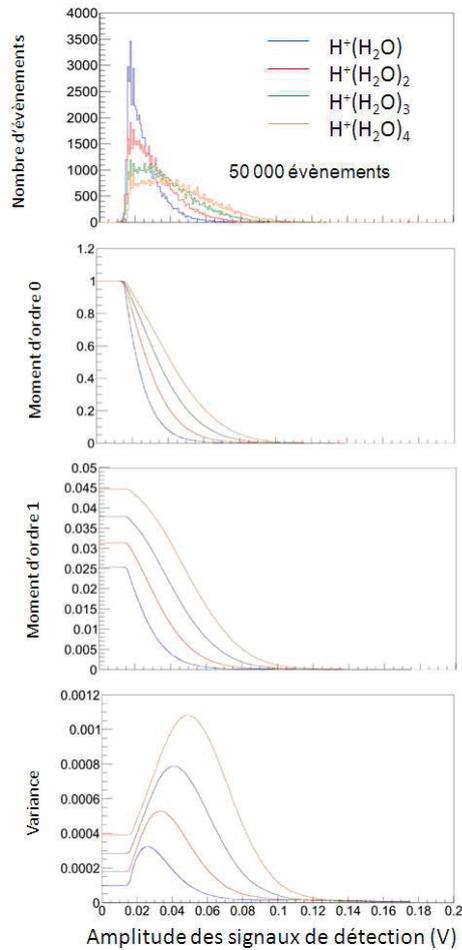
**Figure 5.16 : Distributions d'amplitudes des signaux de détection associées à deux ions à 8.77 kV, une fois qu'un décalage de -28 mV et une troncature de 15,5 mV sont appliqués sur la distribution en amplitude du  $H^+$  (en noir) et fonctions génératrices de moments respectives.**

La Figure 5.16 montre la comparaison de la distribution d'amplitudes de l'ion  $\text{He}^+$  avec celle de l'ion  $\text{H}^+$  une fois que celle est translatée de -28 mV et tronquée à 15,5 mV (seuil fixé par le système d'acquisition) ainsi que la comparaison de leur fonction génératrice de moment respective. Nous constatons, globalement, que les deux distributions se recouvrent et ont des allures similaires si nous nous référons aux fonctions génératrices de moments. Par conséquent, plus la vitesse de l'ion considéré est faible et plus l'allure de sa distribution d'amplitude va correspondre à celle d'une distribution de référence de plus en plus translatée vers les faibles amplitudes. De plus, ceci montre également que l'allure de la distribution d'amplitudes associée à l'ion  $\text{He}^+$ , accéléré à 8,77 keV (en orange) peut être semblable à celle de l'ion  $\text{H}^+$ , accéléré à une énergie cinétique plus faible.

De plus, ces distributions montrent que plus la masse de l'ion est petite et plus il aura tendance à produire sur les deux galettes MCP des pulses de grandes amplitudes. Cette tendance est similaire à celle que nous pouvons observer sur les ions moléculaires étudiés précédemment. Cette observation est liée à la vitesse de l'ion qu'il soit atomique ou moléculaire. En effet, s'ils ont la même énergie cinétique, ils auront une vitesse plus grande si leur masse est plus faible.

## *2.5. Variation de la distribution d'amplitudes avec la masse de l'agrégat d'eau protoné à même vitesse.*

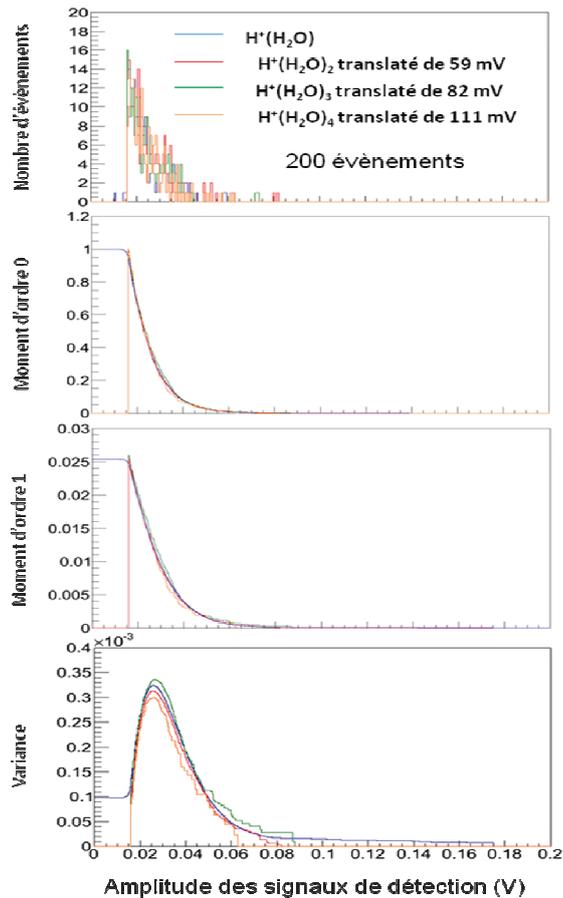
La troisième étude consiste à comparer les distributions d'amplitudes obtenues pour plusieurs ions moléculaires de différentes masses, du type  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_{1 \leq n \leq 4}$ , qui se déplacent à la même vitesse (147 000 m/s). Les distributions sont obtenues à partir de 50 000 événements et sont extraites d'expérience pour lesquelles nous utilisons les même galettes MCP, recouvertes en surface par des canaux de rapport  $z/d=40$  et polarisées à -1700 V. Elles sont représentées sur la Figure 5.17.



**Figure 5.17 : Distribution d’amplitudes des signaux de détection associés aux ions de  $H^+(H_2O)_{1 \leq n \leq 4}$  ( $H^+(H_2O)$  en bleu,  $H^+(H_2O)_2$  en rouge,  $H^+(H_2O)_3$  en vert et  $H^+(H_2O)_4$  en orange) se déplaçant à même vitesse (147000 m/s) et fonctions génératrices de moments respectives.**

Nous constatons que l’allure des distributions change avec la masse : elles sont plus étalées aux hautes amplitudes, pour des agrégats de grandes masses. Ce comportement est différent de celui observé, dans les études précédentes, où les ions étaient mis à la même énergie. En effet, les ions moléculaires sont à la même vitesse. Par conséquent, ils ont une énergie cinétique plus importante si leur masse l’est également. Donc, la tendance observée est uniquement associée à la masse.

Comme dans les cas précédents, nous regardons si ces distributions peuvent se recouvrir. Pour se faire nous appliquons une translation à celles des ions moléculaires  $H^+(H_2O)_2$ ,  $H^+(H_2O)_3$  et  $H^+(H_2O)_4$ . La valeur du décalage est plus importante pour les distributions d’amplitudes associées aux ions de masses plus élevées. La translation des distributions concernées nous conduit aux résultats présentés sur la Figure 5.18.



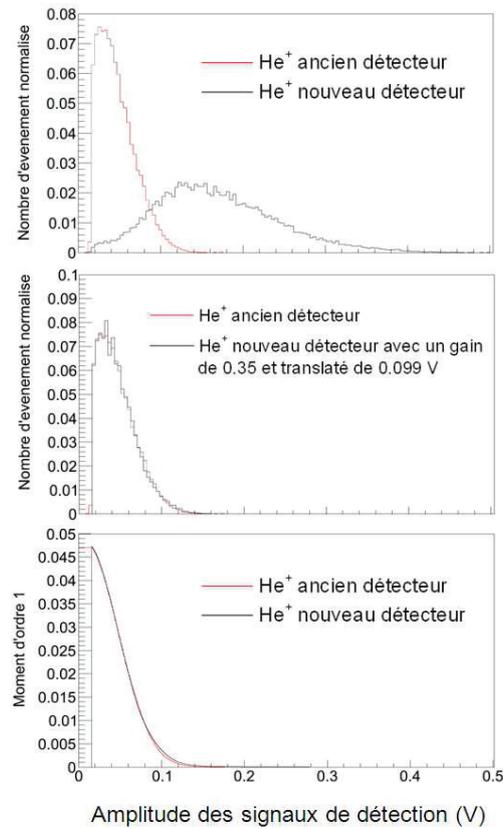
**Figure 5.18 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection pour différents ions de type  $H^+(H_2O)_{1 \leq n \leq 4}$  de même vitesse (147000 m/s) et fonctions génératrices de moments associées à chacune d'entre elles. Les distributions d'amplitudes associées aux ions  $H^+(H_2O)_{2 \leq n \leq 4}$  ont été décalées, respectivement, à -59 mV, -82 mV et -111 mV et tronquées à 15,5 mV.**

Nous constatons que les distributions d'amplitudes de ces ions se recouvrent, après translation et troncature à 15,5 mV (seuil imposé par le système d'acquisition). Les légers écarts observés sont associés à la faible statistique. En effet, ces distributions sont obtenues à partir de 200 événements. Par conséquent, plus la masse de l'ion considéré est faible et plus l'allure de sa distribution d'amplitude va correspondre à celle d'une distribution de référence de plus en plus tradatée vers les faibles amplitudes.

## 2.6. Comparaison des distributions d'amplitudes obtenues avec deux détecteurs MCP différents

Cette étude montre la comparaison de deux distributions d'amplitudes obtenues pour un même ion atomique :  $He^+$  mais sur deux détecteurs MCP différents. Les deux sont recouverts en surface de canaux de rapport  $z/d=40$ . En revanche, la tension de polarisation appliquée pour l'un est à -1700V et celle appliquée pour l'autre est à -1300V. L'ion  $He^+$  est, dans les

deux cas, accéléré à la même énergie : 8 keV. L'objectif est de voir l'influence du détecteur et, par conséquent, de son facteur de gain sur l'allure des distributions d'amplitudes.



**Figure 5.19 : Comparaison des distributions d'amplitudes des signaux de détection de l'ion  $\text{He}^+$  à 8keV, obtenues sur deux détecteurs MCP différents, munis de canaux ayant le même rapport  $z/d=40$  et soumis à une tension de polarisation de  $-1700\text{ V}$  (en rouge) et à une tension de polarisation de  $-1300\text{V}$  (en noir). Ces distributions sont comparées avant (en haut) et après (au milieu) l'application d'un gain et d'une translation sur la distribution en amplitude de l'ion  $\text{He}^+$  obtenue avec le nouveau détecteur (en noir) et fonction génératrice de moment d'ordre 1 associées à ces distributions une fois le traitement terminé (en bas).**

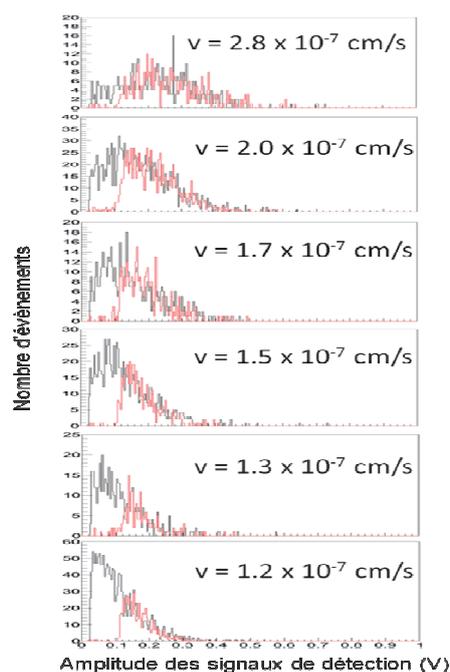
Le graphe du haut de la Figure 5.19, montre que les distributions d'amplitudes sont bien différentes entre les deux détecteurs MCP. Ces détecteurs munis de canaux ayant le même rapport  $z/d$ . Toutefois, ils sont polarisés à des tensions différentes  $-1700\text{ V}$  pour l'ancien détecteur [8] et  $-1300\text{V}$  pour le nouveau détecteur. Nous voyons que le seuil des deux distributions d'amplitudes (en rouge et en noir) est identique et vaut  $15,5\text{ mV}$ . Pour le nouveau MCP, la distribution obtenue s'étale sur une gamme d'amplitudes plus vaste. La différence observée provient d'un facteur de gain associé à la tension de polarisation des deux détecteurs et aux gains des préamplificateurs.

Par conséquent, la translation seule ne permet pas de prendre en compte le changement de gain. En effet, le facteur de gain contracte les distributions s'il est compris entre 0 et 1 ou les dilate s'il est supérieur à 1.

C'est pourquoi, nous appliquons, dans un premier temps, un facteur de gain à la distribution de l'ion  $\text{He}^+$  obtenues sur le nouveau détecteur (en noir) car c'est la plus étalée, puis, dans un second temps, nous la translatons et la tronquons à 15,5 mV (seuil imposé par le système de détection). Les distributions se recouvrent pour un facteur de gain  $\alpha = 0,35$  et une translation de -99 mV, comme le montre les graphes du milieu et du bas de la Figure 5.19. Cet exemple permet de donner de la généralité à la méthode en montrant qu'elle peut s'appliquer sur des distributions d'amplitudes obtenues, à partir de deux détecteurs MCP, placés dans des conditions expérimentales différentes.

## 2.7. Variation de la distribution d'amplitudes associée à la molécule d'eau à différentes vitesses

Les distributions d'amplitudes, associées à la molécule d'eau, à différentes vitesses, sont obtenues à partir d'expériences de CID ( $8 \text{ keV} - \text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_{2 \leq n \leq 7}$ ), sur un atome d'argon. Les événements sélectionnés appartiennent au canal de dissociation mettant en jeu la perte d'une seule molécule d'eau.



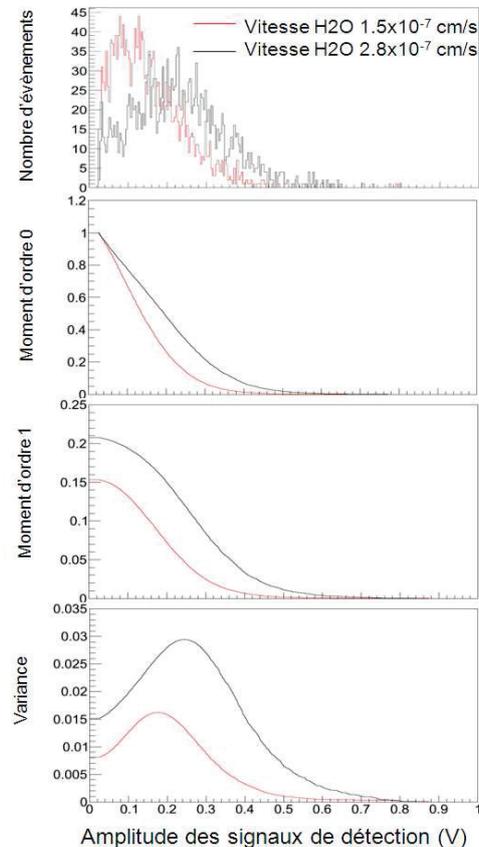
**Figure 5.20 : Distributions d'amplitude des signaux de détection obtenues pour la molécule d'eau à différentes vitesses (en noir cas où les événements traités sont enregistrés par la carte ADC1, en rouge cas où les événements traités sont communs aux cartes ADC 1 et TDCE).**

La Figure 5.20 montre les distributions d'amplitudes obtenues pour la molécule d'eau à différentes vitesses. Les graphes sont rangés de haut en bas par ordre décroissant de vitesse. Chacun d'entre eux possède deux distributions, une en noir, qui est obtenue uniquement à partir des événements enregistrés par la carte ADC 1 et une en rouge, qui prend en compte les

évènements communs aux cartes ADC 1 et TDCE. En effet, l'allure des distributions d'amplitudes est associée à l'efficacité de détection. Par conséquent l'allure des distributions en rouge permet de mesurer l'efficacité de détection de la molécule d'eau à différentes vitesses pour les évènements enregistrés par la carte TDCE. Ces résultats pourront alors être comparés à ceux obtenus, dans la chapitre précédent, à partir des évènements enregistrés par la carte TDCL puisque, sur les signaux des deux cartes TDC, nous imposons le même seuil fixé par le discriminateur DB0.

Les distributions d'amplitudes en rouge recouvrent une partie de celle en noir. Toutefois leur seuil est plus haut : 100 mV et ceci quelque soit la vitesse de la molécule d'eau. Ce seuil est mesuré sur les distributions d'amplitudes maximales des pulses « déconvolués » et filtrés ; ce qui correspond à un seuil d'environ 50 mV sur les distributions d'amplitudes maximales des pulses bruts associés. C'est le seuil du discriminateur DB0 (cf. Chapitre 2).

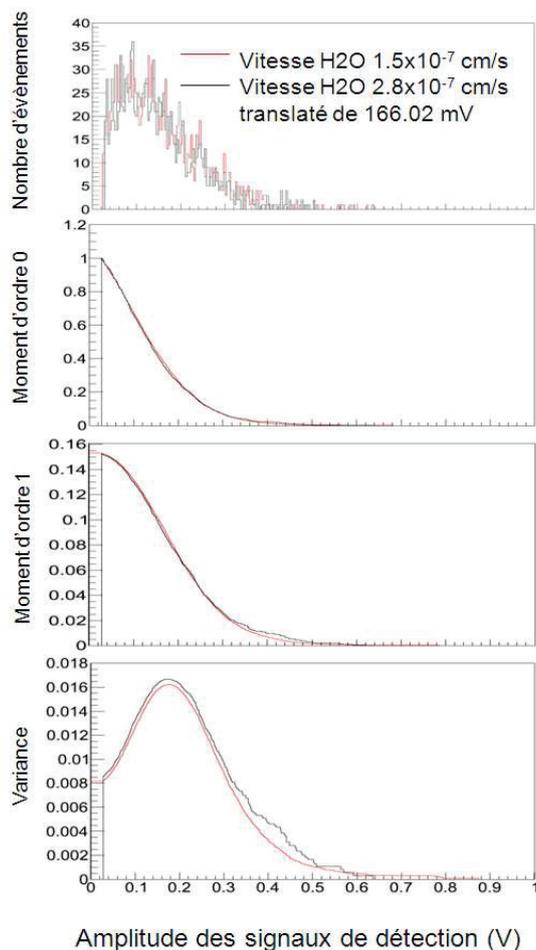
L'autre tendance observée est que plus la vitesse de la molécule d'eau est faible et l'allure de la distribution d'amplitudes semble se translater de plus en plus vers les faibles amplitudes. Par conséquent, diminuer la vitesse de la molécule d'eau à translater une distribution de référence de plus en plus vers les faibles amplitudes. Par ailleurs, cette tendance s'observe aussi bien sur la distribution d'amplitudes obtenue à partir des évènements de la carte ADC 1 (en noir) que sur celle obtenues à partir des évènements communs aux cartes ADC 1 et TDCE (en rouge).



**Figure 5.21 : Comparaison entre les deux distributions d'amplitudes des signaux de détection associées à la molécule H<sub>2</sub>O à deux vitesses différentes.**

La Figure 5.21 montre la comparaison de deux distributions d'amplitudes associées à la molécule d'eau, à deux vitesses différentes. Celle en noir correspond au cas où la vitesse de la molécule d'eau est à  $2,8 \times 10^{-7}$  cm/s (dissociation de l'ion  $H^+(H_2O)_2$ ) et celle en rouge au cas où celle-ci est à  $1,5 \times 10^{-7}$  cm/s (dissociation de l'ion  $H^+(H_2O)_5$ ). Le seuil de ces distributions est à 25 mV. Les distributions comparées sont celles qui tiennent compte uniquement des événements enregistrés par la carte ADC 1, représentée en noir sur la Figure 5.20.

Les deux distributions ont des allures différentes. Cette observation se confirme par les graphes de leurs fonctions génératrices de moments respectives. La distribution d'amplitudes la plus étalée est celle pour laquelle la vitesse de la molécule d'eau est la plus élevée (en noir). Nous translatons cette distribution et la tronquons à la valeur du seuil des signaux « déconvolués » et filtrés. Les résultats, obtenus une fois la translation terminée, sont présentés sur la Figure 5.19.



**Figure 5.22 : Comparaison entre les deux distributions d'amplitudes des signaux de détection obtenues pour la molécule H<sub>2</sub>O à deux vitesses différentes, lorsqu'un décalage de -166 mV et une troncature à 25 mV sont appliqués sur la distribution en amplitudes de la molécule H<sub>2</sub>O de plus grande vitesse.**

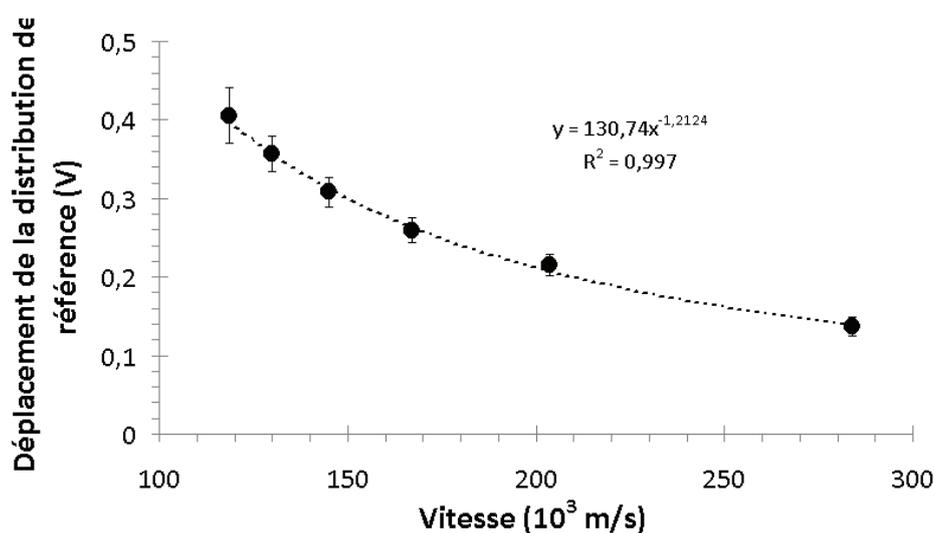
La Figure 5.22 montre que les distributions d'amplitudes obtenues pour l'eau à deux vitesses différentes se recouvrent. Ce recouvrement est possible en translatant de -166 mV et en tronquant à 25 mV (seuil des signaux « déconvolués » et filtrés) la distribution d'amplitudes associées à la molécule d'eau se déplaçant à une vitesse égale à  $2,8 \times 10^{-7}$  cm/s (en noir). Comme attendue, plus la vitesse de la molécule d'eau est faible et plus l'allure de sa distribution d'amplitudes est semblable à celle d'une distribution de référence de plus en plus translatée vers les basses amplitudes.

La distribution d'amplitudes, obtenue pour la molécule d'eau, à la plus grande vitesse (dissociation de l'ion  $H^+(H_2O)_2$ ), n'est pas suffisamment étalée pour correspondre à la distribution de référence. Du coup, nous avons observé les distributions d'amplitudes obtenues pour les ions produits dans ces mêmes canaux de dissociation.

En les comparant, il s'est avéré que la distribution d'amplitudes la plus étalée et, donc, celle qui correspond à notre distribution de référence est la distribution de l'ion moléculaire  $H^+(H_2O)_2$  issu du processus de dissociation suivant :



En translatant vers les basses amplitudes et en tronquant à 25 mV cette distribution de référence, il est possible de retrouver l'allure des distributions d'amplitudes de la molécule d'eau à différentes vitesses. Les résultats de cette étude sont exposés sur le graphe de la Figure 5.23.



**Figure 5.23 : Déplacement de la distribution d'amplitudes de l'ion  $H^+(H_2O)_2$  (distribution de référence), pour que son allure soit similaire à celles obtenues pour la molécule d'eau, à différentes vitesses et barres d'erreur associées à chaque mesure.**

La Figure 5.23 montre comment se déplace la distribution d'amplitudes de l'ion  $H^+(H_2O)_2$  (distribution de référence), vers les faibles amplitudes, pour que son allure soit semblable à

celles des distributions d'amplitudes de la molécule d'eau obtenues à différentes vitesses. La courbe obtenue suit une loi empirique en puissance d'équation :

$$y = 130,74x^{-1,2124} \quad (4)$$

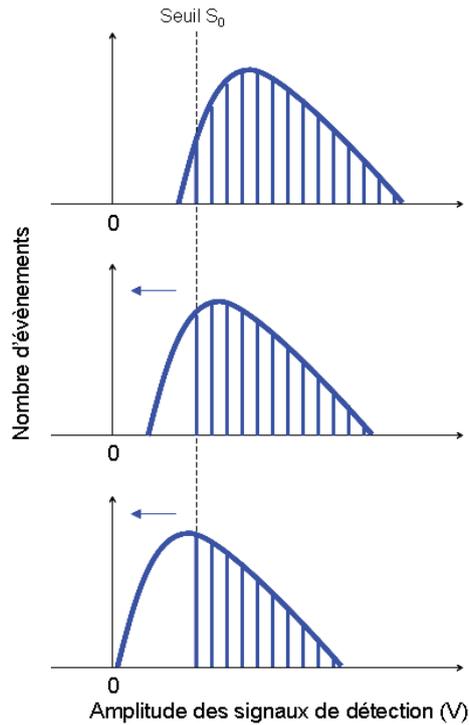
avec  $y$  le déplacement de la distribution de référence en Volt, correspondant à la valeur de  $S_0+x_0$ , sur la Figure 5.8 et  $x$  la vitesse de la molécule d'eau en  $10^{-3}$  m/s.

A partir de cette loi empirique, nous pouvons déterminer le déplacement de la distribution de référence, vers les basses amplitudes, à partir de la vitesse de la molécule d'eau. Ce déplacement nous permettra de mesurer l'efficacité de détection de la molécule d'eau à ces différentes vitesses (cf. paragraphe 3) puisque celle-ci est associée à l'allure des distributions.

De plus, nous avons déterminé les erreurs associées à chacune de ces mesures en utilisant la formule (5). Elles sont de l'ordre de 5% pour les faibles vitesses et de 2,5% pour les plus grandes vitesses. En effet, plus la vitesse de la molécule d'eau est faible et plus sa distribution aura une allure similaire à celle de l'ion  $H^+(H_2O)_2$ , lorsque celle-ci sera davantage translatée. Toutefois plus la distribution est translatée et plus le nombre d'évènements utilisés pour faire la comparaison diminue. C'est pourquoi, l'erreur mesurée décroît lorsque la vitesse de la molécule d'eau augmente.

### ***3. Méthode de calcul d'efficacité de détection à partir de la distribution d'amplitudes***

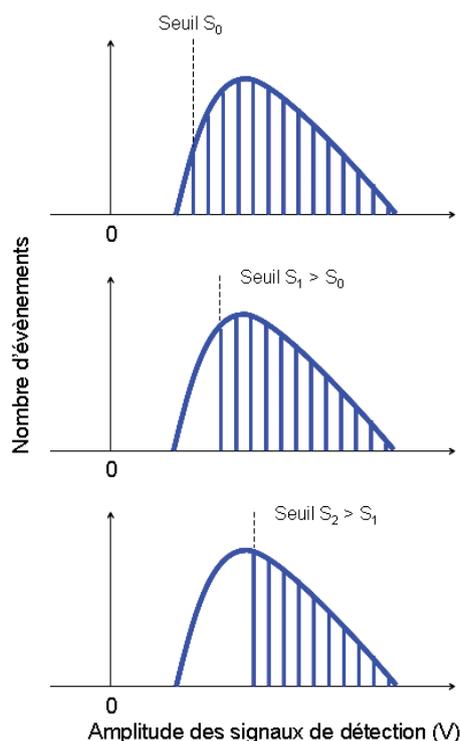
Nous mesurons l'efficacité de détection, à partir du déplacement de la distribution de référence vers les basses amplitudes. Ce principe est illustré sur le schéma de la Figure 5.24.



**Figure 5.24 : Mesure de l'efficacité de détection à partir de la translation de la distribution de référence.**

La Figure 5.24 montre comment nous mesurons l'efficacité de détection, à partir de la distribution de référence. Cette figure met en avant le cas d'une expérience pour laquelle le seuil est à  $S_0$ . Dans ce cas, seuls les événements au-dessus de ce seuil, représentés par la partie rayée de la distribution sur le schéma, sont pris en compte.

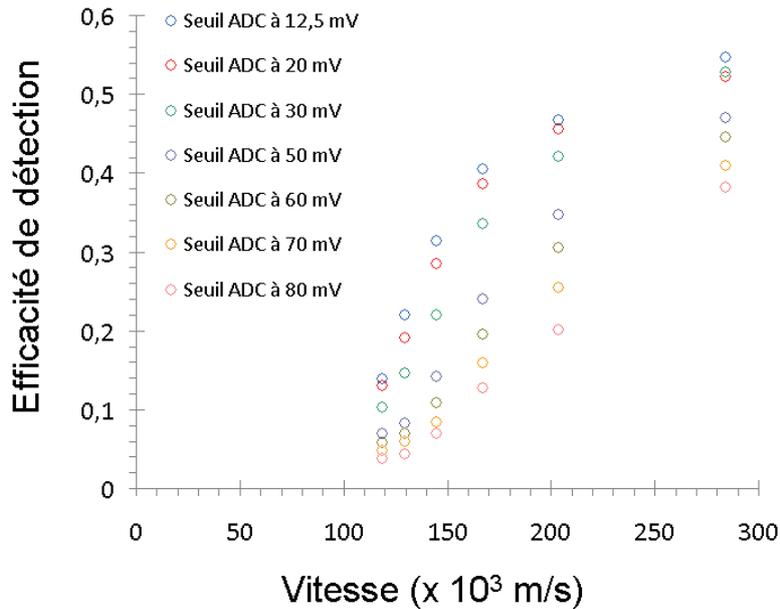
L'efficacité de détection se déduit alors du rapport entre le nombre d'événements situés au-dessus du seuil  $S_0$  (partie rayée) et le nombre d'événements total contenu dans la distribution de référence. Ce schéma montre également que plus la distribution de référence se déplace vers les faibles amplitudes et plus le nombre d'événements situés au-dessus du seuil  $S_0$  diminue. Par conséquent, plus nous déplaçons la distribution d'amplitudes vers les faibles amplitudes et plus l'efficacité de détection mesurée sera faible.



**Figure 5.25 : Analogie entre la translation de la distribution de référence et l'augmentation du seuil appliqué à cette même distribution.**

Par ailleurs, nous savons, d'après la Figure 5.8, que traduire la distribution de référence vers les faibles amplitudes revient à augmenter le seuil expérimental. Cette analogie est illustrée sur la Figure 5.25. Sur cette figure, nous voyons que si le seuil expérimental appliqué sur la distribution de référence est de plus en plus grand alors le nombre d'événements situés au-dessus du seuil (partie rayée) est de plus en plus faible. Par conséquent, l'efficacité de détection diminue, si le seuil appliqué à la distribution est de plus en plus haut. Dans l'exemple illustré sur la Figure 5.25, l'efficacité de détection mesurée à partir de la distribution de référence tronquée au seuil  $S_2$  est plus faible que l'efficacité de détection mesurée à partir de la distribution de référence tronquée au seuil  $S_0$  car  $S_0 < S_2$ .

Pour mesurer l'efficacité de détection de la molécule d'eau, à une certaine vitesse, nous déterminons le déplacement de la distribution de référence, vers les faibles amplitudes, à partir duquel son allure devient semblable à celle de la distribution d'amplitudes de la molécule d'eau. Ensuite, nous tronquons cette distribution à la valeur du seuil appliquée. Une fois que nous avons effectué cette étape, nous connaissons le rapport entre le nombre d'événements situés au-dessus du seuil appliqué et le nombre d'événements total contenu dans la distribution de référence. Cette proportion est alors multipliée par le facteur géométrique des deux galettes MCP, que nous utilisons. Ce facteur géométrique correspond au rapport entre la surface de détection et la surface totale du détecteur et vaut 60%. En appliquant cette démarche, nous avons pu mesurer l'efficacité de détection de la molécule d'eau à différentes vitesses et pour différentes valeurs de seuil appliqué à la carte ADC 1. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 5.26.



**Figure 5.26 : Efficacité de détection de la molécule d'eau, à différentes vitesses et pour différentes valeurs de seuil appliqué à la carte ADC 1.**

La Figure 5.26 montre comment évolue l'efficacité de détection en fonction de la vitesse de la molécule d'eau et pour différentes valeurs de seuil (de 12,5 à 80 mV) imposé, sur la carte ADC 1. Les distributions d'amplitudes, que nous avons utilisées pour faire cette étude, sont celles obtenues à partir des événements enregistrés sur la carte ADC 1 seule, représentée en noir sur la Figure 5.20.

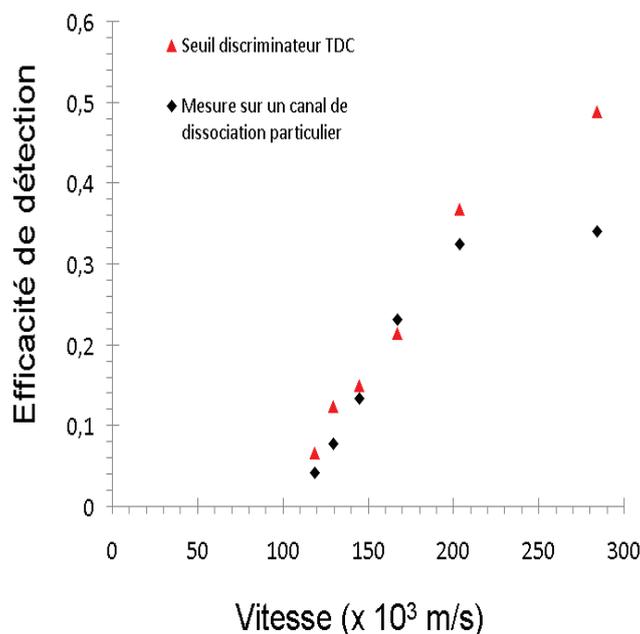
L'efficacité de détection augmente avec la vitesse de la molécule d'eau. Ceci conforte les résultats de la Figure 5.23 et le principe exposé sur la Figure 5.24 qui montre que diminuer la vitesse de la molécule d'eau revient à déplacer la distribution de références de plus en plus vers les faibles amplitudes. Par ailleurs, cette tendance est visible quel que soit le seuil appliqué à la carte ADC 1.

De plus, l'efficacité de détection diminue si le seuil appliqué à la carte ADC 1 augmente. Ceci conforte le principe exposé sur le schéma de la Figure 5.25. Par ailleurs, cette tendance est visible quel que soit la vitesse de la molécule d'eau.

Par ailleurs, nous constatons que lorsque le seuil augmente, l'allure de la courbe d'efficacité change car les événements pris en compte pour la mesure de l'efficacité de détection sont localisés de plus en plus sur la partie droite (aux hautes amplitudes) de la distribution d'amplitudes. Par conséquent, seule une faible partie de l'allure de la distribution d'amplitudes est alors pris en compte.

Pour comparer les résultats obtenus par cette méthode, avec ceux obtenus dans le chapitre précédent, nous mesurons l'efficacité de détection avec les distributions d'amplitudes

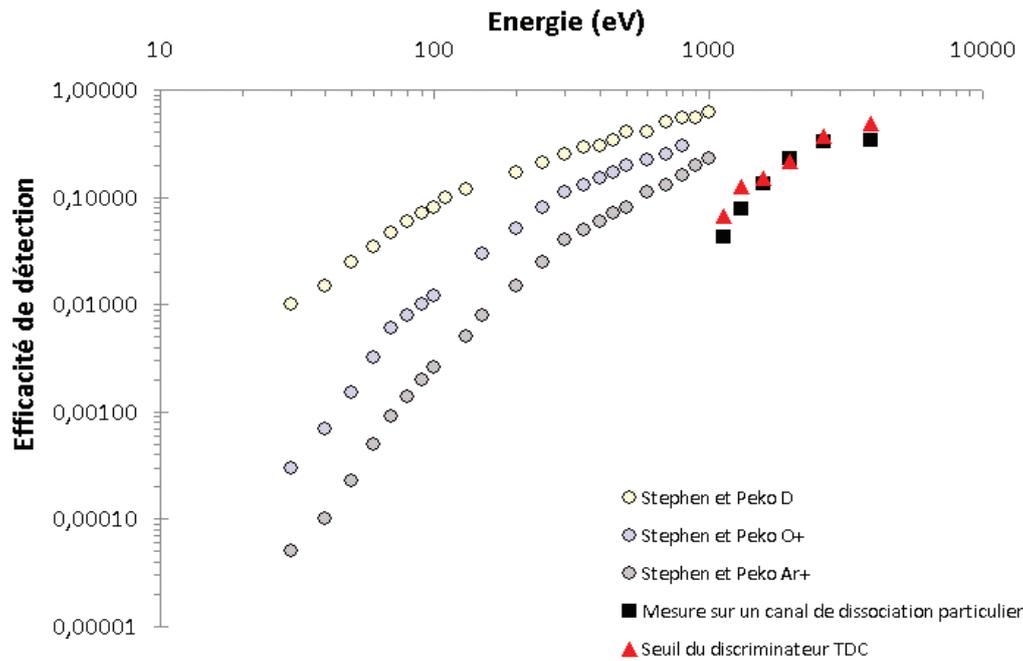
obtenues à partir des évènements à la fois commun aux cartes ADC 1 et TDCE, représentées en rouge sur la Figure 5.20. Ceci permet de comparer les efficacités de détection de la molécule d'eau, à différentes vitesses, à la même valeur de seuil : 50 mV et dans les mêmes conditions d'analyse, c'est-à-dire que nous imposons la présence de deux pulses sur les cinq signaux en sortie du détecteur MCP-DLA. Les résultats obtenus par les deux méthodes sont présentés sur la Figure 5.27.



**Figure 5.27 : Efficacité de détection de la molécule d'eau, pour différentes vitesses, au seuil du discriminateur TDC. Mesures effectuées à partir des distributions d'amplitudes (en rouge) et mesures effectuées sur le canal de dissociation des ions  $H^+(H_2O)_{2 \leq n \leq 7}$ , mettant en jeu la perte d'une seule molécule d'eau [9] (en noir).**

La Figure 5.27 montre la comparaison des résultats obtenus à partir des distributions d'amplitudes (série en triangle rouge) avec ceux obtenus à partir du canal de dissociation des ions  $H^+(H_2O)_{2 \leq n \leq 7}$  mettant en jeu la perte d'une seule molécule d'eau, en noir [9] (cf. Chapitre 4). Nous constatons que les résultats des deux séries de données sont assez proches excepté à la plus haute vitesse. Cet écart peut être lié à une limite dans la description des distributions d'amplitudes. Par ailleurs, dans notre raisonnement, nous avons pris en compte uniquement le fait que deux distributions pouvaient se recouvrir en en translatant une, la distribution de référence, vers les basses amplitudes, par rapport à l'autre. Toutefois, nous pouvons envisager qu'à partir d'une certaine limite, d'autres méthodes de calculs, d'ordre plus élevées, comme l'application d'un facteur de dilatation ou de compression, sont nécessaires.

Nous avons comparé nos résultats d'efficacité de détection obtenus, pour la molécule d'eau, à différentes énergies avec ceux obtenus par Stephen et Peko [10] pour quelques atomes et ions atomiques (le deutérium D, l'ion  $O^+$  et l'ion  $Ar^+$ ). Ces résultats sont présentés sur la Figure 5.28.



**Figure 5.28 : Efficacité de détection mesurée pour quelques ions et atomes, à différentes énergies, par Stephen et Peko [10] et comparaison avec celles que nous avons mesurées pour la molécule d'eau.**

La Figure 5.28 montre l'évolution de l'efficacité de détection en fonction de l'énergie (en eV) pour le deutérium (rond jaune), l'ion  $O^+$  (rond bleu), l'ion  $Ar^+$  (rond gris). Ces mesures ont été effectuées par Stephen et Peko [10] et sont comparées avec les résultats, que nous avons obtenus, pour la molécule d'eau, à partir des distributions d'amplitudes (triangle rouge) et à partir des mesures effectuées, sur le canal de dissociation des ions  $H^+(H_2O)_{2 \leq n \leq 7}$ , mettant en jeu la perte d'une seule molécule d'eau [9] (en carré noir).

Nous constatons que les résultats que nous avons obtenus, à partir de notre dispositif expérimental, sont en bon accord avec ceux obtenus par Stephen et Peko [10]. L'allure de nos séries de mesures suit la même tendance que les leurs. Toutefois, l'allure de nos courbes d'efficacité est légèrement différente. Notre courbe d'efficacité apparaît avec une allure plus courbée. En effet, nos mesures ont été effectuées sur un dispositif expérimental différent du leurs. Par conséquent, ces différences peuvent, notamment, s'expliquer par le choix des galettes MCP utilisées et le choix du seuil appliqué aux signaux de détection. En effet, comme nous l'avons vu, précédemment, l'allure des distributions d'amplitudes change en fonction du rapport  $z/d$  des canaux [2], qui recouvrent la surface des galettes MCP, et de la tension de polarisation [3], que nous leur appliquons. Ce changement d'allure est associé à un changement de l'efficacité de détection. De plus, nous avons vu, sur la Figure 5.26, qu'un changement de seuil pouvait également changer l'allure de la courbe d'efficacité de détection. C'est pourquoi, nos courbes d'efficacité suivent la même tendance que celles de Stephen et Peko [10] mais pas exactement avec la même allure.

## *Conclusion*

Nous arrivons à comprendre l'allure des différentes distributions d'amplitudes en les associant à une distribution de référence sur laquelle nous appliquons une translation vers les basses amplitudes.

L'allure de ces distributions est liée à la masse, à la vitesse, à l'énergie et à la nature du projectile, qui percute notre système de détection.

De plus, l'allure observée sur les distributions d'amplitudes est associée à l'efficacité de détection. Par conséquent, l'allure des distributions d'amplitudes montre que l'efficacité de détection change également en fonction de la masse, de la vitesse, de l'énergie cinétique et de la nature du projectile étudié.

Une première méthode a été proposée pour déterminer l'efficacité de détection des molécules neutres (molécules d'eau dans notre cas), à différentes vitesses. Cette méthode est basée sur la translation d'une distribution de référence vers les basses amplitudes et reproduit bien les résultats que nous avons obtenus, dans le chapitre précédent, pour la molécule d'eau à faible vitesse. Toutefois, pour les hautes vitesses, cette méthode est à améliorer.

## Sommaire

Chapitre 5 : Etude des distributions en amplitudes des signaux de détection..	139
1. Distribution d'amplitudes des signaux de détection enregistrés par la carte ADC 1 ..	139
2. Caractérisation d'une distribution d'amplitude par la méthode des moments .....	144
2.1. Situer le problème .....	144
2.2. Présentation de la méthode des moments sur une distribution modèle. ....	149
2.3. Variation de la distribution d'amplitudes avec la masse de l'agrégat d'eau protoné à même énergie .....	153
2.4. Variation de la distribution d'amplitudes avec la masse de l'ion à même énergie	156
2.5. Variation de la distribution d'amplitudes avec la masse de l'agrégat d'eau protoné à même vitesse. ....	158
2.6. Comparaison des distributions d'amplitudes obtenues avec deux détecteurs MCP différents .....	160
2.7. Variation de la distribution d'amplitudes associée à la molécule d'eau à différentes vitesses .....	162
3. Méthode de calcul d'efficacité de détection à partir de la distribution d'amplitudes .	166

## Table des figures

Figure 5.1 : Exemple d'une distribution d'amplitudes des signaux de détection. Distributions d'amplitudes des pulses bruts (en haut) et des pulses après « déconvolution » et filtrage (en bas) associés à l'impact de l'ion $H^+(H_2O)_2$ , produit par la CID de l'ion $(H^+(H_2O)_3-8keV)$ sur un atome d'argon, sur les deux galettes MCP, et zoom sur le seuil.....	140
Figure 5.2 : Distribution obtenue par une simulation Monte Carlo [2] et qui montre le nombre de pulses émis en fonction du gain pour un rapport $z/d = 1$ (en haut) pour un rapport $z/d=22$ (en bas), avec $z$ la longueur du canal et $d$ son diamètre. Dans cette simulation, un seul électron est émis à l'entrée du canal et les deux galettes MCP est polarisé à $-800V$ .....	142
Figure 5.3 : Distribution obtenue par une simulation Monte Carlo [3] et qui montre le nombre de pulses émis en fonction du gain pour un rapport $z/d = 46$ , avec $z$ la longueur du canal et $d$ son diamètre. Dans cette simulation, la tension de polarisation $U_{pol\_MCP}$ est mise à $-1000 V$ (en haut) et $-600 V$ (en bas). .....	143
Figure 5.4 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection associés aux ions $H^+(H_2O)_{1 \leq n \leq 4}$ ( $H^+(H_2O)$ en bleu, $H^+(H_2O)_2$ en rouge, $H^+(H_2O)_3$ en vert et $H^+(H_2O)_4$ en orange) se déplaçant à la même vitesse ( $147\ 000\ m/s$ ).....	144
Figure 5.5 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection associés à deux ions moléculaires $H^+(H_2O)_3$ en vert et $H^+(H_2O)_4$ en orange à $8keV$ .....	145
Figure 5.6 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection associés à la molécule d'eau, qui se déplace à une vitesse de $1,5 \times 10^{-7}\ cm/s$ (en rouge), qui se déplace à une vitesse de $2,8 \times 10^{-7}\ cm/s$ (en noir). .....	146
Figure 5.7 : Distributions d'amplitudes, associées à l'ion $H^+(H_2O)_2$ , obtenues pour différentes valeurs de seuil (En bleu : seuil à $25\ mV$ , en rouge : seuil à $195\ mV$ , en vert : seuil à $293\ mV$ et en rose : seuil à $391\ mV$ ).....	147
Figure 5.8 : Comparaison de deux distributions d'amplitudes maximales avant et après la translation de la distribution de référence. ....	148
Figure 5.9 : Allure de la distribution demi-gaussienne décrite à travers la formule précédente pour les paramètres suivants : $x_0 = 41\ mV$ , $C = 5,4 \times 10^{-3}$ , $\sigma = 29\ mV$ . ....	149
Figure 5.10 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection en forme de demi gaussienne construite à partir de la fonction analytique représenté en rouge. Pour la même fonction analytique est construite, de haut en bas, une distribution en amplitudes à $10\ 000$ , à $5\ 000$ , à $2\ 000$ et à $1\ 000$ évènements. ....	150
Figure 5.11 : Moment d'ordre 0 (en haut), moment d'ordre 1 (au milieu) et variance (en bas) calculés à partir de la courbe analytique (en rouge) et des distributions d'amplitudes des signaux de détection obtenues par tirage aléatoire. a) Deux cas à $5\ 000$ évènements (en vert). b) Cinq cas à $2\ 000$ évènements (en vert) c) Dix cas à $1\ 000$ évènements (en vert) issus d'une distribution à $10\ 000$ évènements (en bleu).....	152
Figure 5.12 : Erreur relative mesurée à partir du moment d'ordre 0 entre la fonction analytique et la distribution obtenue à partir d'un certain nombre d'évènements ( $1\ 000$ , $2\ 000$ , $5\ 000$ et $10\ 000$ ).....	153
Figure 5.13 : Distributions d'amplitudes des signaux de détection associés à deux ions moléculaires $H^+(H_2O)_3$ en vert et $H^+(H_2O)_4$ en orange, accélérés à $8\ keV$ et fonctions génératrices de moments respectives. ....	154
Figure 5.14 : Distributions d'amplitudes des signaux de détection associés aux ions $H^+(H_2O)_3$ et $H^+(H_2O)_4$ accélérés à $8\ keV$ , une fois qu'un décalage de $-19\ mV$ est appliqué sur la distribution en amplitude du $H^+(H_2O)_3$ (en vert) et fonctions génératrices de moments respectives. ....	155

Figure 5.15 : Distributions d'amplitudes des signaux de détection associés à deux ions atomique H <sup>+</sup> en noir et He <sup>+</sup> en rouge à 8.77 kV et fonctions génératrices de moments respectives. ....	156
Figure 5.16 : Distributions d'amplitudes des signaux de détection associées à deux ions à 8.77 kV, une fois qu'un décalage de -28 mV et une troncature de 15,5 mV sont appliqués sur la distribution en amplitude du H <sup>+</sup> (en noir) et fonctions génératrices de moments respectives. ....	157
Figure 5.17 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection associés aux ions de H <sup>+</sup> (H <sub>2</sub> O) <sub>1≤n≤4</sub> (H <sup>+</sup> (H <sub>2</sub> O) en bleu, H <sup>+</sup> (H <sub>2</sub> O) <sub>2</sub> en rouge, H <sup>+</sup> (H <sub>2</sub> O) <sub>3</sub> en vert et H <sup>+</sup> (H <sub>2</sub> O) <sub>4</sub> en orange) se déplaçant à même vitesse (147000 m/s) et fonctions génératrices de moments respectives. ....	159
Figure 5.18 : Distribution d'amplitudes des signaux de détection pour différents ions de type H <sup>+</sup> (H <sub>2</sub> O) <sub>1≤n≤4</sub> de même vitesse (147000 m/s) et fonctions génératrices de moments associées à chacune d'entre elles. Les distributions d'amplitudes associées aux ions H <sup>+</sup> (H <sub>2</sub> O) <sub>2≤n≤4</sub> ont été décalées, respectivement, à -59 mV, -82 mV et -111 mV et tronquées à 15,5 mV. ....	160
Figure 5.19 : Comparaison des distributions d'amplitudes des signaux de détection de l'ion He <sup>+</sup> à 8keV, obtenues sur deux détecteurs MCP différents, munis de canaux ayant le même rapport z/d=40 et soumis à une tension de polarisation de -1700 V (en rouge) et à une tension de polarisation de -1300V (en noir). Ces distributions sont comparées avant (en haut) et après (au milieu) l'application d'un gain et d'une translation sur la distribution en amplitude de l'ion He <sup>+</sup> obtenue avec le nouveau détecteur (en noir) et fonction génératrice de moment d'ordre 1 associées à ces distributions une fois le traitement terminé (en bas).....	161
Figure 5.20 : Distributions d'amplitude des signaux de détection obtenues pour la molécule d'eau à différentes vitesses (en noir cas où les évènements traités sont enregistrés par la carte ADC1, en rouge cas où les évènements traités sont communs aux cartes ADC 1 et TDCE).162	162
Figure 5.21 : Comparaison entre les deux distributions d'amplitudes des signaux de détection associées à la molécule H <sub>2</sub> O à deux vitesses différentes.....	164
Figure 5.22 : Comparaison entre les deux distributions d'amplitudes des signaux de détection obtenues pour la molécule H <sub>2</sub> O à deux vitesses différentes, lorsqu'un décalage de -166 mV et une troncature à 25 mV sont appliqués sur la distribution en amplitudes de la molécule H <sub>2</sub> O de plus grande vitesse.....	164
Figure 5.23 : Déplacement de la distribution d'amplitudes de l'ion H <sup>+</sup> (H <sub>2</sub> O) <sub>2</sub> (distribution de référence), pour que son allure soit similaire à celles obtenues pour la molécule d'eau, à différentes vitesses et barres d'erreur associées à chaque mesure. ....	165
Figure 5.24 : Mesure de l'efficacité de détection à partir de la translation de la distribution de référence. ....	167
Figure 5.25 : Analogie entre la translation de la distribution de référence et l'augmentation du seuil appliqué à cette même distribution. ....	168
Figure 5.26 : Efficacité de détection de la molécule d'eau, à différentes vitesses et pour différentes valeurs de seuil appliqué à la carte ADC 1. ....	169
Figure 5.27 : Efficacité de détection de la molécule d'eau, pour différentes vitesses, au seuil du discriminateur TDC. Mesures effectuées à partir des distributions d'amplitudes (en rouge) et mesures effectuées sur le canal de dissociation des ions H <sup>+</sup> (H <sub>2</sub> O) <sub>2≤n≤7</sub> , mettant en jeu la perte d'une seule molécule d'eau [9] (en noir).....	170
Figure 5.28 : Efficacité de détection mesurée pour quelques ions et atomes, à différentes énergies, par Stephen et Peko [10] et comparaison avec celles que nous avons mesurées pour la molécule d'eau. ....	171

## Bibliographie du chapitre 5

- [1] *MCP & MCP Assembly*, Selection Guide, Hamamatsu
- [2] A. Shymanska, *Computational modeling of stochastic processes in electron amplifiers*, J Comput Electron, Pages 93-102 (2010)
- [3] M. Wu, C.A. Krushwitz, D.V. Morgan, J. Morgan, *Monte Carlo simulations of microchannel plate detectors. I. Steady-state voltage bias results*, Rev. Sci. Instr. 79, 073104, (2008)
- [4] Edward E Gbur, Robert A Collins, *Estimation of the Moment Generating Function*, Communications in Statistics, Simulation and Computation, 18, n°3 Pages 1113-1134 (1989)
- [5] James R. Rieck, *A moment-generating function with application to the birnbaum-saunders distribution*, Communications in Statistics, Theory and Methods, Volume 28, Issue 9, Pages 2213-2222 (1999)
- [6] S Csörgo, *The empirical moment generating function*, Nonparametric statistical inference.
- [7] A. Cabaña, J.A. Quiroz, *Using the Empirical Moment Generating Function in Testing for the Weibull and the Type I Extreme Value Distributions*, Test, ISSN 1133-0686, Pages 417-432 (2005)
- [8] G. Bruny, "Production et caractérisation d'agrégats moléculaires protonés contenant un nombre donné de molécules d'eau auprès du dispositif DIAM," Thèse UCBL, (2010)
- [9] F. Berthias, V. Buridon, H. Abdoul-Carime, B. Farizon, M. Farizon, *Cross section measurements : collision induced dissociation of protonated water clusters*, Poster pour soutenance à mi-parcours M2 Pro Physique Médicale (2013)
- [10] B. L. Peko and T. M. Stephen, *Absolute detection efficiencies of low energy H, H, H<sup>+</sup>, H<sub>2</sub><sup>+</sup> and H<sub>3</sub><sup>+</sup> incident on a multichannel plate detector*, Nucl. Instr. and Meth., Phys. Res. Sect. B-Beam Interactions Mater. Atoms, vol. 171, no. 4, Pages 597–604, (Dec. 2000)
- [11] J.L. Wiza, *Microchannel Plate Detectors*, Nucl. Instr. and Meth., vol. 162, Pages 587-601, (1979)
- [12] P.M. Shikaliev, *Saturation model for secondary electron multipliers detectors*, Nucl. Instr. and Meth., Phys. Res. Sect. A, vol. 420, Pages 202-212, (1999)
- [13] Y.S. Choi and J.M. Kim, *Monte Carlo Simulation for Tilted-Channel Electron Multipliers*, IEEE Transactions on electron devices, vol. 47, n°6, (Juin 2000)





# Chapitre 6 : Construction d'une source de nanogouttes de gaz rares

## *Introduction*

L'étude des propriétés physico-chimiques des atomes et des molécules, placés dans un environnement contrôlé à basse température, a commencé dans les années 60 [1]. Depuis, les techniques, utilisées pour refroidir ces systèmes, se sont, considérablement, améliorées. En effet, aujourd'hui, des gouttelettes de gaz rares et plus particulièrement des gouttelettes d'hélium fluides et superfluides, produites par détente isentropique, sont utilisées, pour caractériser ces environnements contrôlés à basse température. Elles peuvent capturer des atomes, des molécules, des agrégats..., les isoler et les refroidir à une température de 0,37 K [2] : ce qui offre l'opportunité d'étudier ces systèmes, lorsqu'ils sont à des énergies proches de leur énergie fondamentale. Par conséquent, leurs propriétés physico-chimiques diffèrent de celles observées lorsqu'ils sont placés à température ambiante.

Plusieurs expériences sont effectuées en vue de mesurer la taille des gouttelettes de gaz rares et d'étudier l'énergie de liaison entre les atomes qui les constituent [3, 4, 5, 6]. D'autres expériences sont menées en vue d'observer les propriétés physico-chimiques des systèmes emprisonnés à l'intérieur de ces gouttes : spectroscopie [7, 8, 9], collision par impact avec des électrons [10], réactions intermoléculaires... [11].

DIAM est un dispositif expérimental conçu pour étudier l'irradiation de nanosystèmes biomoléculaires, produits en phase gazeuse, par impact avec un faisceau de protons dont l'énergie varie entre 20 et 150 keV, domaine d'énergie du pic de Bragg. Toutefois, les nanosystèmes biomoléculaires, produits par le spectromètre à double focalisation et sélectionnés en masse et en vitesse, ne sont pas dans leur état d'énergie fondamentale. C'est pourquoi, nous souhaitons intégrer au dispositif une source capable de produire des gouttelettes de gaz rares froides. Nous utiliserons ces gouttelettes en tant qu'environnement contrôlé pour placer les agrégats sélectionnés en masse et en vitesse. De cette manière, les agrégats, que nous irradierons, seront plus proches de leur état d'énergie fondamentale. Ainsi, les résultats obtenus pourront être confrontés avec ceux de la théorie, à température nulle.

Dans ce chapitre, nous présenterons la technique mise en œuvre pour produire des gouttelettes de gaz rares. Nous montrerons également comment nous souhaitons caractériser la taille des gouttes formées par des méthodes optiques.

## 1. Intégration d'une source d'agrégats de gaz rares au sein du dispositif expérimental

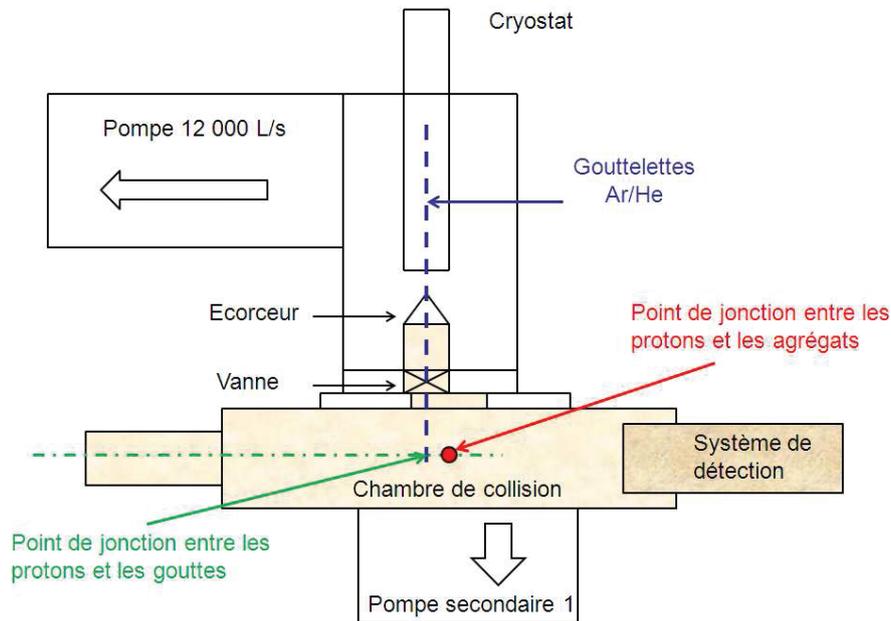


Figure 6.1 : Schéma des points de jonction entre les différentes voies du dispositif.

La Figure 6.1 montre un schéma du dispositif annexe, une fois intégré dans la chambre de collision du DIAM. En effet, les trois voies sont illustrées : la voie des gouttes de gaz rares (en bleu), la voie des agrégats accélérés puis sélectionnés en masse et en vitesse (en vert) et la voie protons (en rouge).

La voie, qui produit les nanogouttes de gaz rares est conçu pour occuper deux positions : celle illustrée sur le schéma de la Figure 6.1 et celle où se situe le point d'intersection entre les faisceaux d'agrégats et de protons, représenté par le point en rouge. La position est choisie en fonction de l'expérience que nous voulons effectuer.

Lorsque le cryostat occupe la position schématisée sur la Figure 6.1, l'intersection entre les différentes voies s'effectue en deux points. En effet, l'intersection entre la voie agrégats et la voie qui produit les gouttes de gaz rares est différente de celle entre la voie agrégats et le faisceau de proton, positionnée, après, au centre de la chambre de collision. Ceci est due au fait que les agrégats doivent être d'abord déposés à l'intérieur des gouttelettes de gaz rares. Ensuite, le complexe agrégat-gouttelette se déplace au centre de la chambre pour entrer en collision avec le faisceau de protons.

Pour étudier l'interaction entre les gouttelettes et le faisceau de protons, nous pouvons également positionner le cryostat et la source, qui produit les nanogouttes de gaz rare, sur l'axe où se situe le centre de la chambre de collision.

Cette nouvelle version du dispositif permet d'effectuer quatre axes d'études :

- Une étude de l'interaction entre les agrégats et le faisceau de protons.
- Une étude des agrégats déposés sur les gouttelettes.
- Une étude l'interaction entre les gouttelettes et le faisceau de protons [3].
- Une étude de l'interaction entre le complexe agrégat-gouttelette et le faisceau de protons [10].

## 2. Principe de fonctionnement d'une source de gaz rares

Les gouttelettes de gaz rares sont produites à la sortie de la source au moyen d'une détente isentropique [2, 12]. L'enjeu de la source, que nous avons conçue, sera de produire des gouttelettes de gaz rares d'argon et d'hélium fluides et superfluides. Ces systèmes froids sont produits que si la source est placée dans des conditions de pression et de température particulières.

Nous pouvons placer la source dans plusieurs conditions de température et de pression. Ces conditions caractérisent les différents régimes de la source et la taille des gouttelettes formées [2, 3].

### 2.1. Détente isentropique

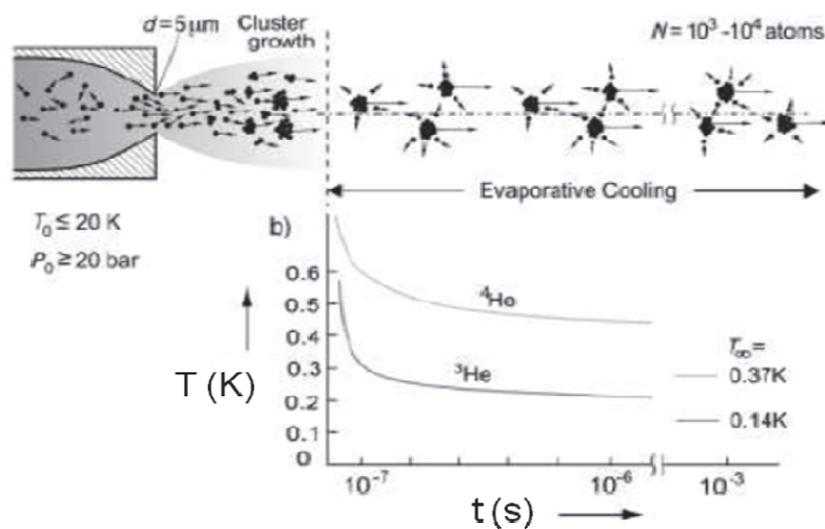


Figure 6.2: Production des gouttelettes d'Hélium 3 et des gouttes d'Hélium 4, par détente isentropique [2].

La Figure 6.2, extrait de l'article de J.P. Toennies et A. F. Vilesov [1], décrit les différentes étapes liées à la production des gouttelettes d'hélium. La première étape débute à l'intérieur de la source (buse de Laval représentée sur la Figure 6.2). En effet, celle-ci contient un gaz parfait ou un fluide supercritique, en fonction des conditions de pression et de température, à l'intérieur de la source.

Dans les deux situations, l'Hélium gazeux ou en phase supercritique traverse un trou de diamètre  $5\ \mu\text{m}$  et arrive en aval dans une région où le vide est secondaire de l'ordre de  $10^{-6}$  mbar, par détente isentropique. En effet, les atomes suivent une ligne de courant. Leur vitesse est orientée dans la direction de la détente. Leur libre parcours moyen est plus grand que la distance qui les sépare. Par conséquent, des collisions se produisent : ce qui a pour effet de refroidir les atomes et de provoquer la croissance des gouttelettes. Cette étape s'effectue sur une distance égale à 1000 fois le diamètre du trou soit 5 mm. A partir de cette distance du trou, les gouttelettes ont atteint leurs tailles définitives [2].

Les gouttelettes formées ne sont pas tout à fait stables et sont situées dans une zone où le vide est secondaire. C'est pourquoi, elles ont tendance à s'évaporer en partie. Cette évaporation, en surface, entraîne également leur refroidissement comme le montre l'encart b) de la Figure 6.2 [2] où nous observons une baisse de leur température, jusqu'à une certaine limite : 0,37 K pour l'hélium 4 et 0,14 K pour l'hélium 3.

De plus, la Figure 6.2 indique les conditions expérimentales, que J.P. Toennies et A. F. Vilesov ont appliqué à leur source, pour produire des gouttelettes d'hélium comme le diamètre du trou choisi pour faire la détente :  $5\ \mu\text{m}$ , la pression et la température du gaz d'hélium à l'intérieur de la source :  $P_0 > 20$  bars et  $T_0 < 20$  K. La pression, en sortie de trou, est celle d'un vide secondaire soit  $10^{-6}$  mbar. Cette figure montre également, dans les conditions mentionnées précédemment, que la taille des gouttelettes, une fois leur croissance achevée, peut varier entre  $10^3$ - $10^4$  atomes.

Dans les expériences que nous effectuerons, nous produirons des gouttelettes d'hélium 4, par détente isentropique à travers un trou de  $5\ \mu\text{m}$ . Dans ce cas, nous espérons que la température des gouttelettes produites sera de 0,37 K. De plus, avec les conditions imposées sur la source, dans la Figure 6.2, les gouttelettes produites ont une taille de  $10^3$ - $10^4$  atomes. Pour ces gouttelettes, cette température limite est atteinte à une distance comprise entre 10 et 20 mm par rapport à la position du trou. La taille des gouttelettes en sortie va être liée au régime avec lequel a fonctionné la source et, donc, à la phase de l'hélium à l'intérieur de celle-ci.

## 2.2. Les différentes phases de l'hélium (Hélium liquide et superfluide)

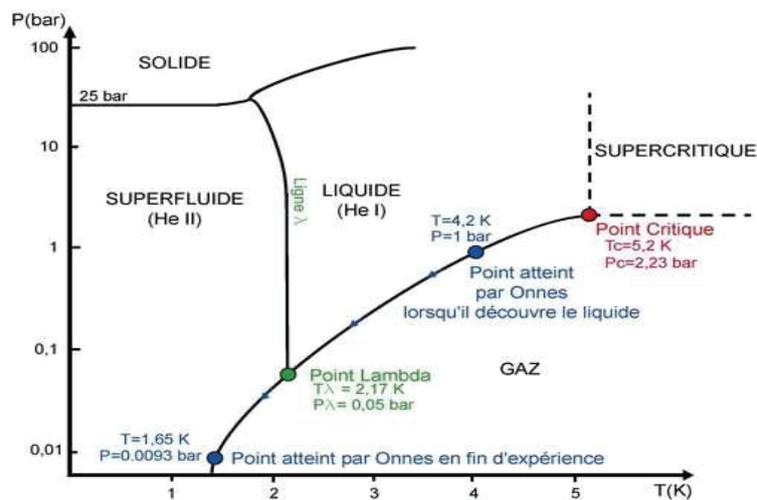


Figure 6.3: Diagramme de phase de l'Hélium.

La Figure 6.3 représente le diagramme de phase Pression-Température (P-T) de l'hélium. Nous nous intéressons à quatre phases spécifiques du diagramme : la phase supercritique, la phase gazeuse, la phase liquide et la phase superfluide. Il nous permet de voir pour quelles valeurs de pression et de température l'hélium est dans chacune de ces phases. Ceci va nous permettre, dans un premier, de contrôler la phase de l'hélium contenu à l'intérieur de la source et, dans un second temps, de savoir dans quelle phase sera l'hélium une fois la détente effectuée.

D'après l'article de J.P. Toennies et A. F. Vilesov :

- L'hélium est à l'état gazeux, lorsque il est à une pression inférieure ou égale à 20 bars et une température inférieure ou égale à 20 K [2, 3], à l'intérieur de la source. Dans ces conditions, la source fonctionne en régime subcritique. La taille moyenne de gouttelettes produites est  $10^3$ - $10^4$  atomes.
- L'hélium est dans une phase supercritique, lorsqu'il est à une pression inférieure ou égale à 100 Bars et à une température inférieure ou égale à 20 K [2, 3], à l'intérieur de la source. Dans ces conditions, la source fonctionne en régime supercritique. La taille moyenne des gouttelettes produites est  $10^6$ - $10^7$  atomes.

Pour les expériences que nous voulons mener, nous souhaitons que les gouttelettes produites soient de grandes tailles de manière à pouvoir déposer plus facilement les agrégats étudiés. C'est pourquoi, nous allons appliquer les conditions de pression et de température pour que l'hélium à l'intérieur de la source soit en phase supercritique.

Le diagramme de phase P-T de l'hélium met en avant le point critique à la limite de la phase supercritique. Ce point est atteint à une température de 5,2 K et une pression de 2,23 Bars. A la même température mais, en dessous de cette pression, l'hélium est en phase gazeuse. Il en est de même si l'hélium est à une pression de 2,23 Bars et à une température plus élevée. Avec le dispositif en construction, l'hélium, à l'intérieur de la source, aura une pression voisine de 35 Bars au maximum et une température voisine à 4 K au minimum. Par conséquent, en nous référant au diagramme de phase P-T, présenté sur la Figure 6.4, nous constatons que, dans ces conditions de température et de pression, il est plus probable que l'hélium soit en phase supercritique ou liquide qu'en phase gazeuse, à l'intérieur de la source.

Après la détente, nous souhaitons produire des gouttelettes d'hélium liquide ou superfluide. Pendant la formation et la croissance des gouttelettes, la pression et la température des atomes d'hélium diminue en suivant la ligne, marquée par des flèches bleues sur la Figure 6.4, qui délimite, dans un premier temps, la phase liquide et gazeuse et, dans un second temps, la phase superfluide et gazeuse.

### ***3. Le dispositif expérimental en construction***

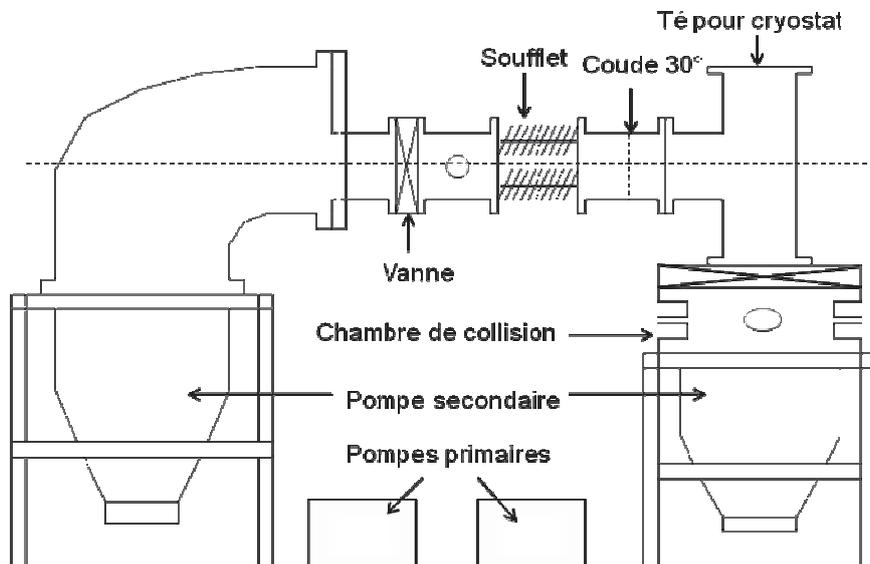
Le dispositif annexe a été construit séparément du DIAM, en vue d'être testé comme le montre la photo de la Figure 6.4. Ce montage permet de placer le dispositif dans les conditions auxquelles il sera soumis, une fois intégré au DIAM. Parmi ces contraintes se trouvent l'encombrement du châssis qui supporte la pompe à diffusion ZIP 12000 (Oerlikon, Leybold) à gauche, la distance entre les châssis, l'horizontalité de la zone qui connecte les deux parties du dispositif...

Dans l'état actuel, les pompes primaires et secondaires sont alimentées et fonctionnent. Il en est de même pour les deux vannes (celle en verte et celle proche du coude). De plus, deux jauges primaires et secondaires ont été placées en amont de ces vannes, afin de vérifier le vide au niveau de la jonction et donc la capacité de pompage des deux pompes à diffusion utilisées.



**Figure 6.4: Photo du dispositif dans l'état actuel**

### *3.1. Mise en place du dispositif*



**Figure 6.5: Schéma du dispositif**

Le schéma de la Figure 6.5 illustre le dispositif pris en photo sur la Figure 6.4. Le dispositif est composé de trois parties.

La partie de gauche est constituée d'un bâti qui supporte une pompe ZIP 12000 (Leybold, Oerlikon). Cette pompe à diffusion a une capacité de pompage de 12 000 l/s en dessous de  $10^{-4}$  mBars. Son diamètre nominal à 500 mm. Elle est surmontée d'un coude également de diamètre nominal 500 mm. A la sortie de ce coude est positionnée une bride avec un tube de sortie. Ce tube à un diamètre nominal 160 mm.

La partie de droite est composée d'un châssis qui supporte une pompe à diffusion. La capacité de pompage de la pompe est de 2200 L/s. Ce bâti est surmonté d'une enceinte dont l'objectif est de se confronter aux mêmes conditions mécaniques que celles de la chambre de collision incluse dans le DIAM. Cette pièce est surmontée d'une vanne de diamètre nominale 160 mm et d'un Té de même diamètre. Ce té est utilisé pour contenir le cryostat. Le bâti et l'enceinte faisant office de chambre de collision sont positionnés de telle sorte que leur hauteur combinée soit identique à celle du bâti et de la chambre de collision du DIAM.

Ces deux parties sont en contact au moyen d'un pont composé, en partant de la gauche vers la droite, d'une vanne, d'un té réducteur où est placé une jauge, d'un soufflet et d'un coude à  $30^\circ$ . Tous ont un diamètre nominale 160 mm.

La première étape consiste à ajuster la hauteur de la jonction entre la partie gauche et droite du complexe. Cette hauteur est représentée par la ligne horizontale en pointillé, représentée sur la Figure 6.5. Elle est évaluée à 1361 mm par rapport au sol. Ce paramètre doit rester inchangé et ceci que ce soit dans la phase de montage annexe ou une fois que ce dispositif est imbriqué dans le DIAM.

Pour la partie de gauche cette hauteur peut être ajustée sur plusieurs points (les pieds du bâti qui supporte la pompe à diffusion et la position du trou (DN 160) à la sortie du coude (DN 500 à  $90^\circ$ ). Dans la configuration choisie, le trou (DN 160), excentré du coude (DN 500) est mis en position basse. Par conséquent, la hauteur est ajustée uniquement avec les pieds du bâti. Pour atteindre la hauteur souhaitée, ces pieds sont montés à 35 mm. Pour la partie de droite aucun ajustement n'est fait, la hauteur souhaitée est obtenue grâce au té. Pour qu'il y ait un peu de liberté sur la hauteur, un soufflet est utilisé pour joindre les deux blocs du dispositif

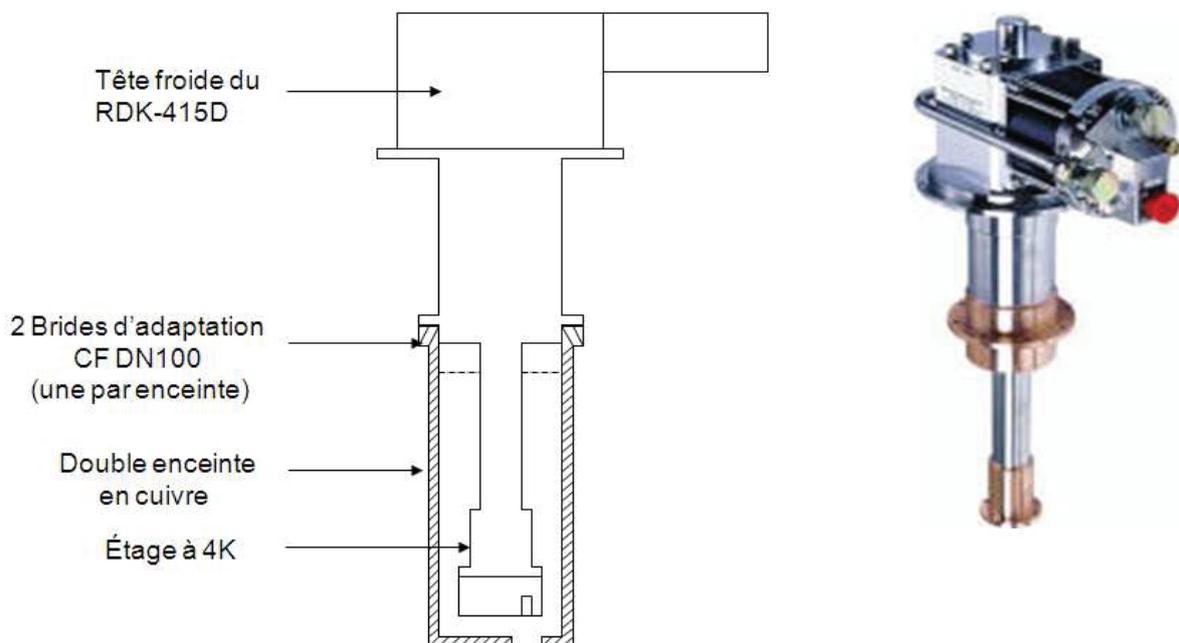
L'autre contrainte est de minimiser la distance entre les deux parties du dispositif afin de limiter l'encombrement une fois que celui-ci sera imbriqué dans le DIAM. Actuellement, cette distance vaut 947,29 mm. Elle est minimisée avec l'utilisation d'un coude à  $30^\circ$  qui a pour objectif de décaler la partie gauche de  $60^\circ$  de l'axe horizontal. Ce décalage permettra également de rendre plus accessible la zone dans laquelle se trouve la chambre de collision, dans le DIAM.

Les pompes primaires pompent toute l'enceinte, décrite sur le schéma de la Figure 6.5, jusqu'à ce que sa pression atteigne  $10^{-3}$  mbars, pression d'un vide primaire. Lorsque ce vide primaire est atteint, les pompes secondaires sont enclenchées pour faire descendre le vide à  $10^{-6}$  mBars. Dans l'état actuel du dispositif deux manières de pomper sont envisageables. La première manière consiste à faire le vide sur le coude (DN 500  $90^\circ$ ), la jonction et le té à

travers la pompe à diffusion ZIP 12 000 (Leybold, Oerlikon). La vanne de gauche est ouverte mais pas celle de droite. L'autre pompe à diffusion effectue le pompage juste de la chambre de collision. L'autre manière consiste à faire le pompage de la chambre de collision du té et de la jonction par la pompe à diffusion de droite et laisser la pompe ZIP 12 000 pomper uniquement le coude (DN 500 90°). La vanne de droite est ouverte mais pas celle de gauche. Dans les deux cas, la situation reste la même car une fois que le vide secondaire est atteint, la vanne qui sépare les deux enceintes dans chaque situation est ouverte. Les deux situations ont été faites en vue de vérifier la capacité de pompage des deux pompes à diffusion. En effet, il est plus facile d'évaluer le fonctionnement d'une pompe si celle-ci est utilisée pour faire le vide sur un plus grand volume. Par la suite, la première façon de pomper sera adopté car la pompe à diffusion ZIP 12 000 à une capacité de pompage plus importante et permet donc sur un même volume d'atteindre le vide secondaire plus rapidement.

La mesure de la pression en vide primaire et en vide secondaire est assurée par des jauges positionnée en amont de chaque vanne. L'une est posée sur le Té réducteur, l'autre sur la chambre de collision. Les mesures actuelles indiquent que le vide primaire atteint une pression de  $4,2 \times 10^{-2}$  mBars et que le vide secondaire atteint une pression de  $5 \times 10^{-5}$  mBars.

### 3.2. Le cryostat RDK-415D



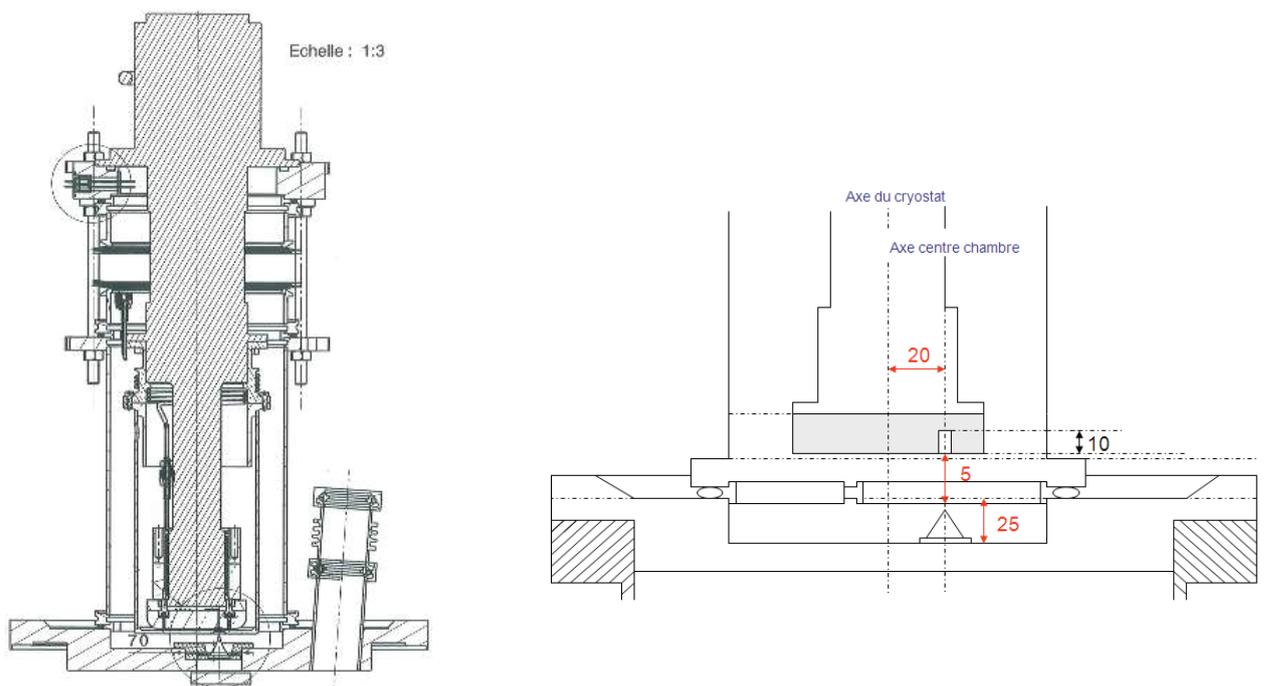
**Figure 6.6: Schéma et photo du cryostat RDK-415D utilisé.**

Le cryostat utilisé, pour faire descendre la température de la source, est un modèle de type RDK-415D de Sumitomo, présenté sur la Figure 6.6. Il a la capacité de descendre jusqu'à une température de 4 K. Il est constitué de deux étages : un étage à 50 K et un étage à 4 K tout

deux délimité par une bride en cuivre. Le refroidissement se fait au moyen d'une tête froide (partie haute en forme de cube). Le premier étage est situé juste en dessous, il est constitué d'un cylindre et d'une bride en cuivre positionnée au milieu du cryostat. Le cylindre est un réfrigérateur. Il permet de passer de la température ambiante jusqu'à 50 K, température au niveau de la bride centrale en cuivre. Ensuite, en dessous, vient l'étage à 4 K, construit de la même manière, un réfrigérateur de plus faible diamètre et une bride en cuivre au bout. La fonction est la même, le réfrigérateur permet de passer d'une température de 50 K à une température de 4 K, température obtenue au niveau de la bride en cuivre au bout du thermostat.

Par ailleurs, l'étage à 50 K est délimité par un écran dont la fonction est de minimiser l'impact des radiations de type corps noir dans la chambre à vide et, donc de ne pas allonger en temps l'étape de refroidissement. De plus, pour ne pas défavoriser le pompage, ces enceintes sont percées.

### 3.3. Positionnement du cryostat



**Figure 6.7: Les contraintes mécaniques et expérimentales.**

Le dispositif annexe doit prendre en compte la distance entre le trou qui sert à la détente et la position pour laquelle les gouttelettes de gaz rares atteignent leur taille définitive, évaluée à 5 mm [2]. Dans le dispositif annexe construit, nous respectons cette longueur en positionnant le cryostat de telle sorte que le trou à une hauteur de 5 mm minimum, par rapport au écorceur, pièce conique qui sert à collecter les gouttelettes, dans l'axe du jet, pour les introduire à

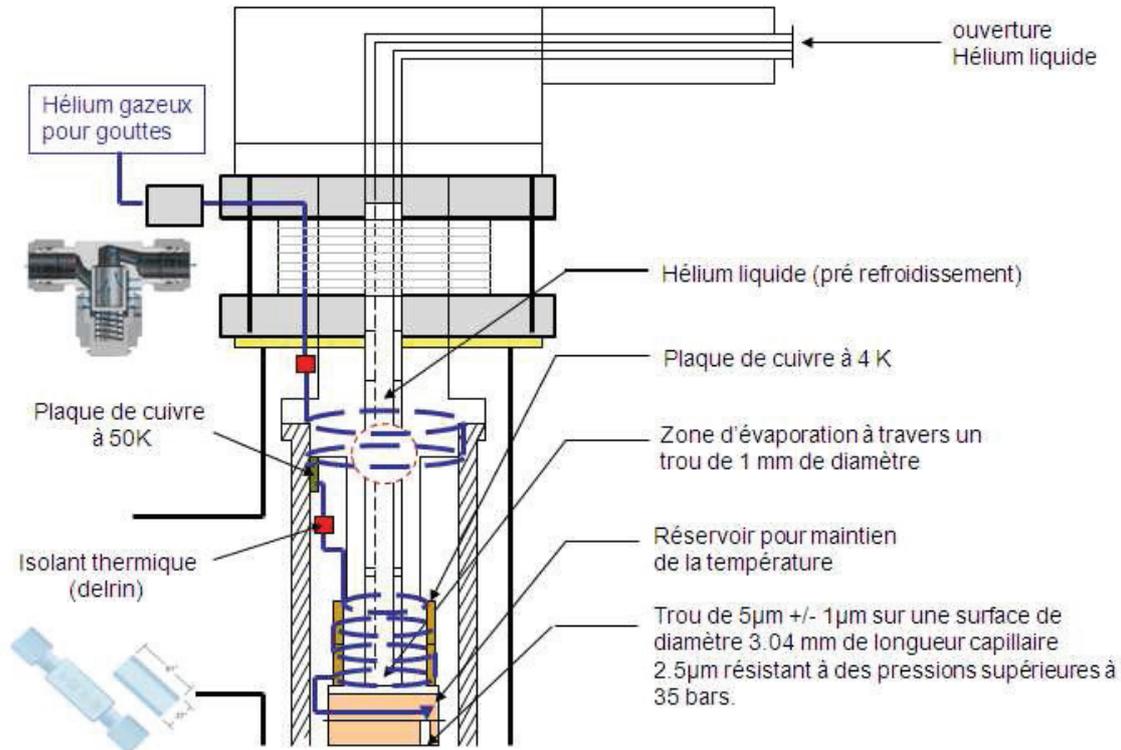
l'intérieur de la chambre de collision. Cette valeur est ajustable car le cryostat est maintenu, au dessus du té, par un soufflet, comme le montre la Figure 6.7 (à gauche). Ce soufflet permet d'augmenter la distance entre le trou et écorceur. De cette manière, celui-ci pourra collecter des gouttelettes, qui auront évaporé et, donc, de température plus basse.

De plus, le DIAM disposera également d'un temps de vol orthogonal OTOF qui sera positionné juste à côté du cryostat. Ceci occasionne un encombrement mécanique que nous avons pris en compte en déplaçant l'axe du cryostat de l'axe central de la chambre de collision. Néanmoins, il est souhaité que, pour l'une des positions occupées par le cryostat, les gouttelettes formées passent par le centre de cette enceinte. C'est pourquoi, pour éviter cet encombrement mécanique tout en respectant les positions que nous imposons au cryostat, l'axe de celui-ci est décalé de 20 mm par rapport à l'axe central de la chambre comme le montre la Figure 6.7 (à droite) et le trou utilisé pour effectuer la détente, est excentré par rapport à l'axe principal du cryostat.

Cette distance horizontale est également ajustable au moyen du soufflet utilisé pour maintenir le cryostat. En effet, celui-ci permet d'accentuer la distance qui sépare l'axe du cryostat de l'axe centrale de la chambre de manière à produire les gouttelettes avant le point de collision traversé par le faisceau de protons.

Les autres contraintes techniques interviennent lors de la phase de refroidissement du gaz, qui sert à la production des gouttes, et lors de l'installation des câbles électriques utilisés pour le chauffage et la mesure de la température, au niveau de la source.

### 3.4. Le refroidissement de l'hélium par étage



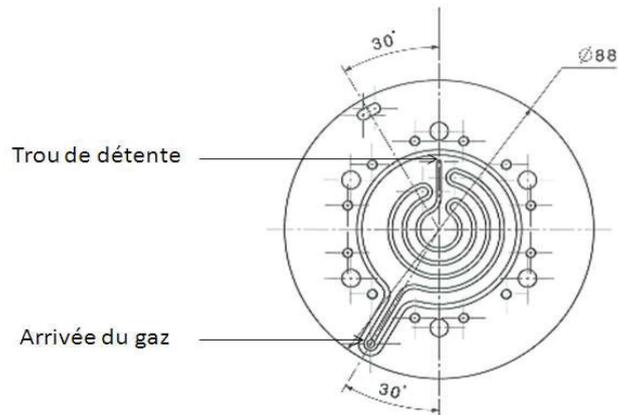
**Figure 6.8: Refroidissement de l'Hélium par le cryostat.**

La Figure 6.8 schématise le refroidissement de l'hélium par le cryostat. L'hélium, fourni par une bouteille, est injecté à 35 Bars, à travers un tube en inox de 1/8". Ce gaz passe par un filtre, haute pureté, représenté par un cadre gris (Swagelok Série TF), avant de traverser la bride du haut du soufflet.

Une fois qu'il a traversé la bride du soufflet, ce tube est sectionné puis raccordé avec un raccord en Delrin (Postnova Analytic), représenté par un carré rouge, de manière à isoler la partie du tube enroulé en bas de l'étage à 50 K sur le cryostat de celle en contact avec la température ambiante.

Ensuite, ce tube est de nouveau sectionné puis raccordé avec un autre raccord en Delrin (Postnova Analytic), représenté par un carré rouge, de manière à isoler la partie du tube enroulé en bas de l'étage à 4 K sur le cryostat de celle en contact avec l'étage à 50 K.

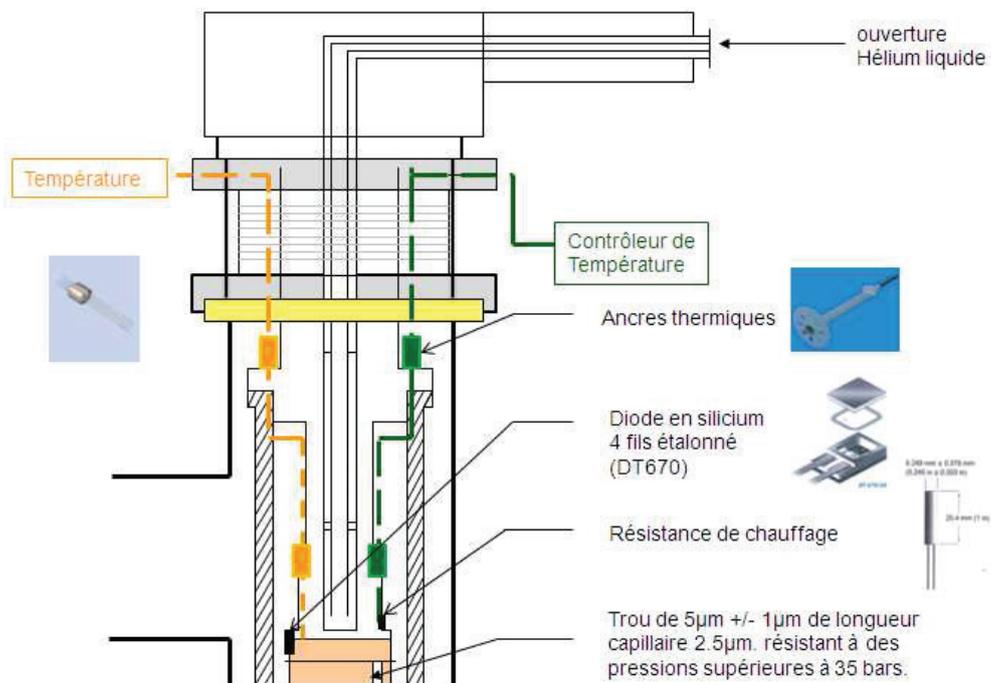
L'étage à 4 K est en contact avec une pièce en cuivre où se trouve le trou Figure 6.9. Le gaz passe par les conduits avant d'atteindre le trou, lieu de la détente.



**Figure 6.9: Arrivée d'hélium et position du trou pour la détente sur la partie basse du cryostat.**

Afin d'améliorer le refroidissement du tube de gaz aux différents étages du cryostat, du Stycast (Stycast<sup>®</sup> Epoxy 2850-FT, Catalyst 9) [13], colle thermique, est utilisé. Il permet de faire la jonction entre le tube de gaz et la paroi du cryostat, notamment sur les parties cuivrées, qui délimitent les étages à 50 K et 4 K.

### 3.5. Le chauffage et la mesure de la température



**Figure 6.10: Chauffage et contrôle de la température.**

La mesure de la température à l'intérieur de la source permet de vérifier si le cryostat refroidit le gaz. De plus, le cryostat peut refroidir la source à une température plus basse que celle souhaitée. C'est pourquoi, il faut également avoir un certain contrôle sur la température. Ce contrôle est assuré au moyen d'une résistance chauffante dont le but est d'augmenter légèrement la température de la source si celle-ci s'avère trop basse.

Pour effectuer ce montage, plusieurs difficultés sont à prendre en compte. La première difficulté réside dans le fait que le refroidissement se fait par étage et que les câbles utilisés doivent passer par ces différents étages en température. Si celle-ci n'est pas prise en compte, la mesure de la température et la puissance thermique de la résistance chauffante ne sont pas correctes. La seconde concerne le chauffage. Celui-ci est assuré par une résistance, qui va se trouver localiser à proximité du trou. Lorsque celle-ci va chauffer, l'augmentation de la température se fera en priorité sur ce point. Il faut attendre un certain temps, plus ou moins long, selon si la résistance chauffante est plus ou moins loin du point de mesure de la température, pour voir le changement occasionné. C'est pourquoi, nous devons choisir la position de la résistance chauffante.

La mesure de la température (circuit en orange) se fait au moyen d'une diode en silicium (DT-670, Lakeshore, Cryotronics). Cette diode mesure des températures allant de 1,4 à 500 K. Elle est connectée à quatre fils. Deux sont réservés à la tension et à l'intensité de l'anode, respectivement  $V^+$  et  $I^+$ , les deux autres à celles de la cathode  $V^-$  et  $I^-$ . En se référant à l'image de cette diode sur le Figure 6.10, la cathode est définie par le pad de gauche et l'anode par celle de droite. Les diodes sont utilisées pour mesurer des températures car il est montré que, pour ces composants électroniques, la relation résistance-température est linéaire sur une grande plage de température [13]. C'est pourquoi, la mesure de la résistance de cette diode doit être précise pour avoir une bonne connaissance de la température. Pour gagner en précision, la mesure est effectuée à partir de 4 fils pour mieux éliminer les effets liés à la résistance des fils utilisés.

En effet, plus le raccord entre les câbles de tension et d'intensité sur chaque électrode se fait loin de la diode en silicium (en dehors des pads) et plus la résistance du fil est importante et plus la mesure de température est imprécise.

Les fils soudés aux pads de la diode en silicium sont des fils Phosphore-Bronze (WQL-36-25, Lakeshore, Cryotronics) [13]. Ils peuvent supporter un courant de 1,2 A. Ils entrent dans l'enceinte où est présent le cryostat via un connecteur quatre pins soudé sur la bride supérieure du soufflet. Ces fils passent par les différents étages du cryostat. Leur isolation peut être assurée de plusieurs manières. Un des moyens, schématisé sur la Figure 6.10 est l'utilisation d'ancres thermiques sur lesquelles les câbles sont enroulés. Une autre idée consiste à les enrouler autour du cryostat, en évitant tout contact entre eux, et de les fixer, le long des deux étages, avec du Stycast. De cette manière, ils suivent tout au long de leur trajet le gradient de température ; le Stycast se comporte comme une ancre thermique continue.

Le chauffage (circuit en vert) est assuré au moyen d'une résistance chauffante Nickel-Chrome (HTR-25-100, Cartridge) de  $25 \Omega$  et d'intensité 1A au maximum [13]. Cette résistance chauffante sera positionnée sur la pièce du bas en cuivre dans laquelle est contenu le trou de  $5 \mu\text{m}$ . Elle est soudée à deux câbles en cuivre. Ces fils traversent la zone avec les différents étages de refroidissement de la même manière que les câbles utilisés pour la mesure de la température.

Pour la mesure de la température de la source, l'optimum est de positionner la diode en silicium le plus près possible du trou et la résistance chauffante le plus loin. De cette manière, le chauffage est relancé ou non, une fois que la température est modifiée car, à ce stade, la diffusion aura été faite sur toute la pièce.

Les deux ensembles résistance chauffante et diode en silicium sont connectés sur un contrôleur de température (Model 332, Lakeshore) [13]. Son objectif est de contrôler à distance la température mise à l'intérieur de la source et d'en afficher la valeur.

Il faut également, en cas de panne, que la partie comprenant le cryostat soit facile à démonter. En effet, l'objectif est d'éviter d'enlever du cryostat l'ensemble des connexions qui servent au refroidissement, au chauffage et à la température. C'est pourquoi, l'ensemble des connexions passe par cette bride via des connecteurs ou via une soudure. Le cryostat et ses différentes connexions constitue alors un seul bloque, qu'il est possible d'extraire du dispositif, en démontant le soufflet, en cas de panne.

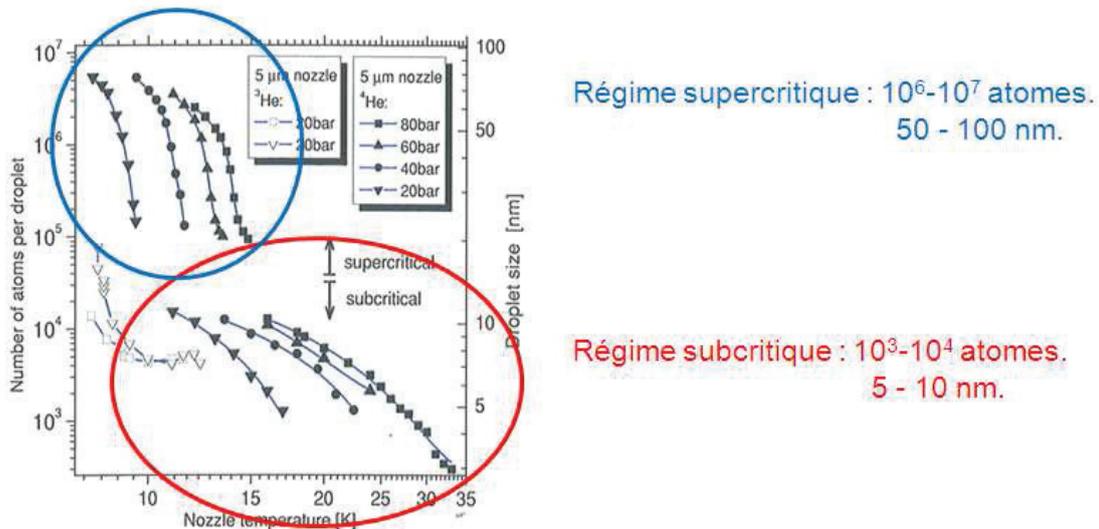
## **4. Caractérisation des gouttelettes**

La caractérisation des gouttes s'effectue par le contrôle de deux paramètres physiques : la température et la pression à l'intérieur de la source. En effet, ces deux paramètres définissent le régime (subcritique ou supercritique) sous lequel fonctionne la source et, de ce fait, permettent de remonter directement à la taille moyenne des gouttes produites après l'étape de détente. De nombreuses expériences [2, 3, 4, 5] ont été menées en vue de caractériser l'évolution de ces tailles en fonction des conditions à l'intérieur de la source : ce qui donne accès à des gammes de température et de pression. Néanmoins, cette caractérisation est établie par la spectrométrie de masse, après ionisation des gouttes formées, par impact avec des électrons. Le dispositif annexe a pour objectif d'évaluer la taille moyenne des gouttes. Cependant, il ne dispose pas de spectromètre de masse à cet effet. De plus, les gouttes produites ne sont ionisées qu'après impact les protons. C'est pourquoi, il faut avoir recours à d'autres procédés comme les méthodes optiques.

Les gouttes produites jouent le rôle de thermostat à l'intérieur desquels des nano systèmes sortis de la voie agrégats vont être déposés. C'est pourquoi, elles doivent avoir une certaine taille. Plus celle-ci est grande et plus le système est isolé. De plus, l'étude sur la caractérisation de la taille de ces gouttes va permettre de cibler la gamme de pression et de température à mettre à l'intérieur de la source pour atteindre la taille souhaitée. En prenant en

compte ces conditions, les mesures expérimentales, faites sur le dispositif annexe, permettront de voir si les tailles de gouttes obtenues sont en accord avec les résultats d'autres expériences.

#### 4.1. Problématique sur la taille des gouttes



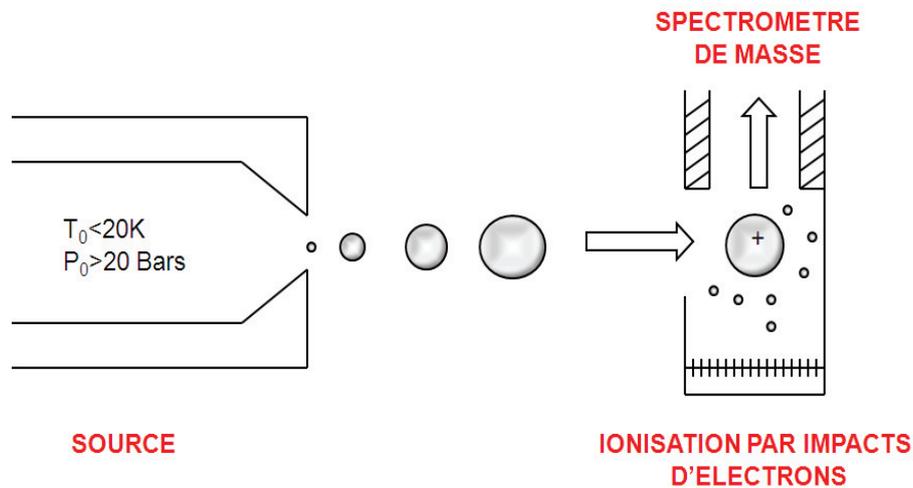
**Figure 6.11: Taille moyenne des gouttes d'Hélium 3 et d'Hélium 4, produites par détente isentropique, à travers un trou de  $5 \mu\text{m}$ , pour les conditions de source en régime subcritique et supercritique [7].**

La Figure 6.11 montre la taille moyenne des gouttes d'hélium 4 et d'hélium 3, formées par détente isentropiques, à travers un trou de  $5 \mu\text{m}$ , pour différentes valeurs de température (axe des abscisses) et de pression à l'intérieur de la source. L'axe des ordonnées à gauche permet d'associer, à chaque taille de goutte (axe des ordonnées à droite), son équivalence en nombre d'atomes. L'intérêt se porte sur les graphes obtenus pour l'Hélium 4 car c'est le constituant utilisé pour fabriquer les gouttelettes.

Pour ce constituant, deux gammes de tailles de gouttes bien distinctes sont mises en avant : une pour laquelle les gouttes sont de grandes tailles (50-100 nm), une autre pour laquelle les gouttes sont de petites tailles (5-10 nm). Ces différentes gammes sont associées aux deux régimes sous lesquels peut fonctionner la source : subcritique pour les petites gouttes et supercritique pour les grandes. Par ailleurs, en se référant à la Figure 6.11, nous constatons que ce changement de régime est marqué, de manière brutale par un saut, lié au changement de phase de l'hélium injecté à l'intérieur de la source. [2, 3, 7].

Les tailles de gouttes, qui nous intéressent, sont celles obtenues lorsque la source fonctionne en régime supercritique. C'est pourquoi, il faut veiller à ce que les méthodes optiques puissent être adaptées pour caractériser des systèmes de cette taille.

## 4.2. Caractérisation des gouttes de petites tailles par spectrométrie de masse

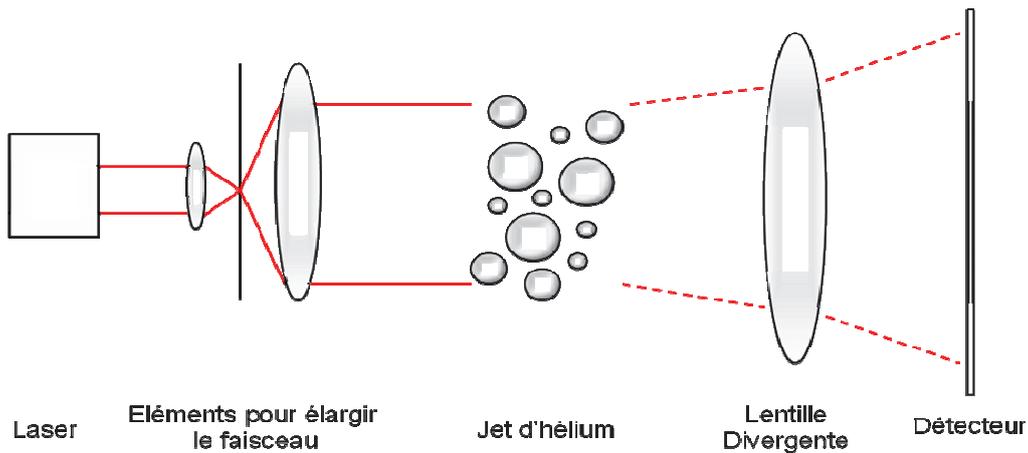


**Figure 6.12: Mesure de la taille des gouttes d'Hélium formées, à partir d'un quadripôle, après ionisation [2].**

Pour caractériser la taille des gouttes les plus petites, la technique, la plus utilisée, est la spectrométrie de masse. Elle est illustrée sur la Figure 6.12. Au départ, la source est placée dans les conditions de température et de pression propres au régime subcritique. La détente se fait et des gouttes se forment. Une fois que celles-ci ont atteint leur taille définitive, elles sont envoyées dans un ioniseur qui les bombarde d'électron. De ce fait, la goutte s'évapore et s'ionise. Par conséquent, elle peut être guidée vers un spectromètre de masse (quadripôle, temps de vol...) qui va déterminer sa masse et donc son nombre d'atomes et son diamètre moyen puisqu'elles sont considérées sphériques. Cette technique est également adaptée pour déterminer la taille des gouttes, produites en régime supercritique [2, 3, 7]. Toutefois, cette technique ne mesure pas directement la taille des gouttes produites par la source puisque celles-ci s'évaporent lors de l'étape d'ionisation par impact avec les électrons.

Les méthodes optiques ne permettent pas de déterminer la taille des gouttes en dessous de 50 nm. Nous avons envisagé d'utiliser certains principes comme la diffusion de Rayleigh. En effet, ce phénomène physique se produit lorsqu'une onde électromagnétique, de longueur d'onde  $\lambda$ , traverse un milieu transparent constitué de molécules de diamètre  $d$ , de très petites tailles ( $d \ll \lambda$ ). Lorsqu'un rayonnement arrive sur une des molécules du milieu, une partie de celui-ci va être absorbée et l'autre partie va être réémis dans toutes les directions spatiales, de manière isotrope. Ce principe dépend de l'indice et de la taille de la goutte considérée (0,1 nm à 50 nm) ainsi que de l'indice du milieu qui l'entourne. Cette méthode ne permet pas de caractériser les gouttelettes de petites tailles car l'intensité diffusée n'a pas maximum marquée. Par contre, cette méthode peut s'appliquer pour les gouttelettes de plus grandes tailles car, pour celles-ci, ce n'est plus la diffusion de Rayleigh qui décrit l'intensité diffusée mais la diffusion de Mie.

### 4.3. Caractérisation des gouttes de grandes tailles



**Figure 6.13: Détermination de la taille des grandes gouttes par méthode optique (Diffusion de Mie) [14].**

La diffusion de Mie est un cas limite de la diffusion de Rayleigh. Elle est utilisée pour faire de la granulométrie et de la métrologie des particules. Le principe reste le même sauf que, dans le cas de la diffusion de Mie, les molécules étudiées sont de plus grandes tailles (de 0,1 à 10 fois la longueur d'onde de l'onde électromagnétique qui les traverse) [14, 15] : ce qui a pour effet d'accroître la diffusion dans le sens de propagation de l'onde électromagnétique incidente. Ainsi, l'intensité diffusée possède un maximum marqué. Cette méthode optique peut servir à caractériser les gouttes de plus grandes tailles entre 50 nm et 100  $\mu\text{m}$ , en utilisant un laser de longueur d'onde égale de 500 nm environ.

L'expérience consiste à utiliser un laser, lui faire élargir son faisceau au moyen de deux lentilles convergentes et d'un filtre spatial. Ce faisceau élargi passe à travers les gouttes produites par la source Hélium. Une partie de l'onde incidente est diffusée par ces gouttes, c'est la partie transmise. Cette partie est envoyée sur le détecteur au moyen d'une lentille divergente.

La taille moyenne des gouttes est évaluée à travers le rapport de l'intensité de l'onde qui arrive sur détecteur ( $I$ ) sur celle de l'onde incidente provenant du laser ( $I_0$ ). Pour évaluer l'intensité  $I$ , par la théorie de Mie, la forme des gouttes est approximée par des sphères, leur indice de réfraction est réel et vaut 1,026, pour l'hélium 4 [15].

Par conséquent, les gouttes n'ont pas de propriétés absorbantes et, donc, la section efficace d'extinction est identique à la section efficace de diffusion :

$$Q_{ext} = Q_{sca} \quad (1.1)$$

Dans l'approximation sphérique,

$$Q_{ext} = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{+\infty} (2n+1)(|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (1.2)$$

Avec le paramètre de taille  $x$ , défini, en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$  (nm), le rayon de la sphère  $a$  (nm) et l'indice du milieu  $p$ , dans lequel se trouvent les gouttes, de la manière suivante :

$$x = \frac{2\pi p a}{\lambda} \quad (1.3)$$

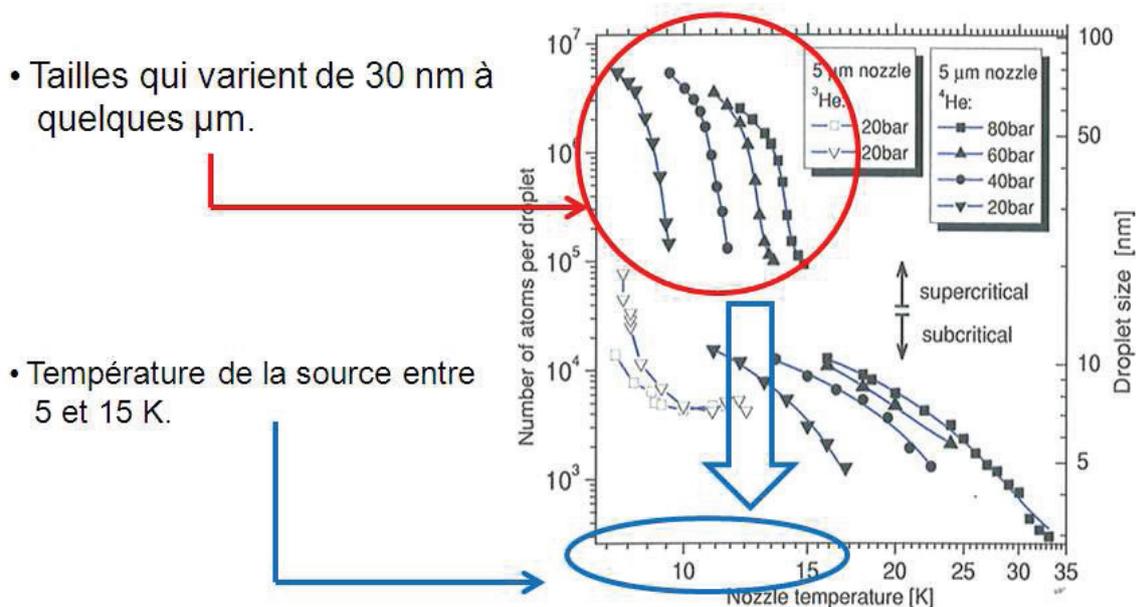
$a_n$  et  $b_n$  sont les coefficients de Mie associés à l'amplitude des ondes diffusées par une goutte de forme sphérique.

Le coefficient de transmission se calcule au moyen de la section efficace d'extinction et du paramètre de taille de la manière suivante :

$$T = \frac{I}{I_0} = \exp(-2\pi r_0^2 Q_{ext} (m-1)x^2) \quad (2)$$

Avec  $m$  l'indice de la goutte et  $r_0$  le rayon de la sphère considérée.

A partir du coefficient de transmission mesuré, nous pouvons mesurer le rayon moyen des gouttes produites.



**Figure 6.14: Taille des gouttelettes accessibles par granulométrie à diffraction et température de la source associée à ces tailles [7].**

A travers la granulométrie à diffraction basée sur la diffusion de Mie, il est possible de mesurer les gouttes de plus grosses tailles, entourées en rouge sur la Figure 6.14. Ces tailles sont obtenues pour des températures de source qui varient entre 5 et 15 K en fonction de la pression (20-80 Bars). En effet, plus la température est élevée et plus il faut une pression importante pour atteindre les conditions du régime supercritique. Le dispositif est prévu pour amener de l'hélium à 35 Bars à l'intérieur de la source. C'est pourquoi, le refroidissement doit être tel que la température du gaz à ce niveau est entre 7 et 12 K. Dans le cas contraire, les gouttes formées seront dans l'autre gamme et la méthode optique ne permettra pas de caractériser leur taille.

## Conclusion

Nous fabriquons un dispositif annexe capable de produire, par détente isentropique, des gouttelettes de gaz rares. Ce dispositif, pour l'instant en phase de test, est placé dans des conditions similaires à celles qu'il rencontrera une fois intégré dans le DIAM. Chaque gouttelette de gaz rares constitue un environnement contrôlé, dans lequel seront placés les agrégats sélectionnés en masse et en vitesse en sortie de la voie agrégat. Les gouttelettes ne seront alors pas ionisées, après cette étape de collage. Dans ces conditions, les agrégats, sélectionnés en masse et en vitesse seront plus proches de leur état fondamental, avant d'être d'irradié par le faisceau de protons.

La taille du thermostat est caractérisée par les conditions de la source (pression et température) et, donc, par son régime. En effet, en régime subcritique, le constituant en amont du trou est en phase gazeuse alors qu'en régime supercritique ce même constituant est dans la phase supercritique. Ceci permet de produire des gouttelettes de différentes tailles, une fois la

détente effectuée. Leurs tailles varient entre 30 nm et 100 nm en régime supercritique et entre 5 et 10 nm en régime subcritique. La mesure de ces tailles, généralement faite par la spectrométrie de masse, sera effectuée, dans notre cas, au moyen d'une méthode optique.

Dans les études menées, nous privilégierons la production de gouttelettes de grandes tailles de manière à y piéger plus facilement les ions produits par la voie agrégat. Par ailleurs, nous pouvons mesurer leur taille, par des méthodes optiques.

Le dispositif annexe a été construit et les premiers tests de vide primaire et secondaire ont été effectués. Par la suite, le cryostat sera intégré dans le dispositif annexe et testé sous vide.

## Sommaire

Chapitre 6 : Construction d'une source de nanogouttes de gaz rares.....	179
1. Intégration d'une source d'agrégats de gaz rares au sein du dispositif expérimental .	180
2. Principe de fonctionnement d'une source de gaz rares .....	181
2.1. Détente isentropique _____	181
2.2. Les différentes phases de l'hélium (Hélium liquide et superfluide) _____	183
3. Le dispositif expérimental en construction .....	184
3.1. Mise en place du dispositif _____	185
3.2. Le cryostat RDK-415D _____	187
3.3. Positionnement du cryostat _____	188
3.4. Le refroidissement de l'hélium par étage _____	190
3.5. Le chauffage et la mesure de la température _____	191
4. Caractérisation des gouttelettes .....	193
4.1. Problématique sur la taille des gouttes _____	194
4.2. Caractérisation des gouttes de petites tailles par spectrométrie de masse _____	195
4.3. Caractérisation des gouttes de grandes tailles _____	196

## Table des figures

Figure 6.1 : Schéma des points de jonction entre les différentes voies du dispositif.....	180
Figure 6.2: Production des gouttelettes d'Hélium 3 et des gouttes d'Hélium 4, par détente isentropique [2]. .....	181
Figure 6.3: Diagramme de phase de l'Hélium. ....	183
Figure 6.4: Photo du dispositif dans l'état actuel .....	185
Figure 6.5: Schéma du dispositif.....	185
Figure 6.6: Schéma et photo du cryostat RDK-415D utilisé.....	187
Figure 6.7: Les contraintes mécaniques et expérimentales. ....	188
Figure 6.8: Refroidissement de l'Hélium par le cryostat. ....	190
Figure 6.9: Arrivée d'hélium et position du trou pour la détente sur la partie basse du cryostat. ....	191
Figure 6.10: Chauffage et contrôle de la température. ....	191
Figure 6.11: Taille moyenne des gouttes d'Hélium 3 et d'Hélium 4, produites par détente isentropique, à travers un trou de 5 $\mu\text{m}$ , pour les conditions de source en régime subcritique et supercritique [7]. ....	194
Figure 6.12: Mesure de la taille des gouttes d'Hélium formées, à partir d'un quadropôle, après ionisation [2]. ....	195
Figure 6.13: Détermination de la taille des grandes gouttes par méthode optique (Diffusion de Mie) [14]. ....	196
Figure 6.14: Taille des gouttelettes accessibles par granulométrie à diffraction et température de la source associée à ces tailles [7]. ....	198

## Bibliographie du chapitre 6

- [1] E. Whittle D.A Daws, G.C. Pimentel, *Matrix Isolation Method for the experimental study of Unstable Species*, J. Chem. Phys. 22, 1943 (1954)
- [2] J.P. Toennies, A. F. Vilesov, *Superfluid Helium Droplets : A Uniquely Cold Nanomatrix for Molecules and Molecular Complexes*, Angew. Chem. Int., 43, Pages 2622-2648 (2004)
- [3] O. Kornilov, J.P. Toennies, *The determination of the mean sizes of large He droplets by electron impact induced attenuation/ Int. J. of Mass Spectrom.*, 280, Pages 209–212 (2009)
- [4] J. Harms, J.P. Toennies, F. Dalfovo, *Density of superfluid Helium Droplets*, Phys. Rev. B, 58 3341, 27 pages (1998)
- [5] Luis F. Gomez, Evgeny Loginov, Russel Sliter and Andrey F. Vilesov, *Sizes of large He droplets*, The journal of chemical physics 135, 154201 (2011)
- [6] J. Fernández de la Mora, L. de Juan, K. Liedtke, A. Schmidt-Ott, *Mass and size determination of nanometer particles by mean of mobility analysis and focused impaction*, Journal of Aerosol Science, Volume 34, Issue 1, pages 79-98, (January 2003).
- [7] F. Stienkemeier, K.K Lehmann, *Spectroscopy and dynamics in helium nanodroplets*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. 39, Pages 127-166 (2006)
- [8] F. Stienkemeier, F. Meier, A. Hägele, H. O. Lutz, E. Schreiber, C. P. Schulz, and I. V. Hertel, *Coherence and relaxation in potassium-doped Helium Droplets Studied by Femtosecond Pump-Probe Spectroscopy*, Phys. Rev. Lett. 83, Pages 2320-2323 (1999)
- [9] Matthias Hartmann, Nikolas Pörtner, Boris Sartakov, J. Peter Toennies, and Andrei F. Vilesov, *High resolution infrared spectroscopy of single SF<sub>6</sub> molecules in helium droplets. I. Size effects in <sup>4</sup>He droplets*, J.Chem.Phys. 110, 5109 (1999)
- [10] Harald Schöbel, Marcin Dampc, Filipe Ferreira da Silva, Andreas Mauracher, Fabio Zappa, Stephan Denifl, Tilmann D. Märk, Paul Scheier, *Electron impact ionization of CCl<sub>4</sub> and SF<sub>6</sub> embedded in superfluid helium droplets*, International Journal of Mass Spectrometry, Volume 280, Issue 1-3, Pages 26-31 (February 2009).
- [11] Stephan Denifl, Fabio Zappa, Ingo Mähr, Filipe Ferreira da Silva, Abid Aleem, Andreas Mauracher, Michael Probst, Jan Urba, Pavel Mach, Arntraud Bacher, Olof Echt, Tilmann D. Märk, Paul Scheier, *Ion-Molecule Reactions in Helium Nanodroplets Doped with C<sub>60</sub> and Water Clusters*, Angewandte Chemie, Volume 121, Issus 47, Pages 9102-9105, (November 9, 2009).

[12] J.P. Treguier, M. Hagene et D. Pasquerault, *Production et étude d'un faisceau moléculaire supersonique à symétrie plane / Revue de physique appliquée*, page 343, (1970)

[13] User's Manual Model 332 Temperature Controller, Lakeshore, Cryotronics.

[14] I. Wayan Sudiarta, Petr Chylek, *Mie scattering efficiency of a large spherical particle embedded in an absorbing medium*, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer* 70, Pages 709-714 (2001).

[15] S. Wolf, N.V. Voshchinnikov, *Mie scattering by ensembles of particles with very large size parameters*, *Computer Physics Communications* 162, Pages 113-123 (2004)







## Conclusion Générale

Le dispositif DIAM est un spectromètre de masse de type MS-MS. Le premier spectromètre, à double focalisation E x B est à secteurs électrique et magnétique, permet de produire un faisceau intense d'agrégats sélectionnés en masse et en vitesse. Dans la version actuelle du DIAM, les systèmes biomoléculaires, produits par la source, peuvent être des agrégats d'eau protonés ou des agrégats mixtes comme, par exemple, des agrégats eau-pyridine ou eau-eau deutérée. Les agrégats produits par la source peuvent interagir soit avec une cible gazeuse (Ar, Ne, He, ...), soit avec un faisceau de protons. L'interaction, qui en résulte, peut provoquer leur dissociation ou leur multi-fragmentation. Les produits de dissociation sont analysés dans le second spectromètre de masse. Le second spectromètre de masse est un analyseur à temps de vol linéaire LTOF. C'est autour de celui-ci que s'est développée la méthode de détection COINTOF. Cette méthode permet la mesure corrélée du temps de vol des fragments chargés et neutres issus de la dissociation ou de la multi-fragmentation d'un même ion précurseur. Ces données expérimentales sont également confrontées aux mesures faites par le logiciel SIMION<sup>®</sup>, qui prend en compte la géométrie du détecteur. De plus, pour chaque dissociation ou multi-fragmentation, les fragments chargés et neutres produits sont détectés par le même détecteur MCP-DLA et l'information temps-position de chaque fragment est obtenu par la mesure de cinq signaux produits en sortie de ce détecteur, qui sont enregistrées, et étiquetées, de manière coordonnée, agrégat par agrégat, au moyen d'un système d'acquisition adapté.

Ce système d'acquisition comprend deux ADC rapides : ADC1 et ADC 2, de deux TDC : TDCL et TDCE et d'une échelle de comptage : le scaler. Les cartes ADC 1 et ADC 2 et la carte TDCE sont utilisées pour extraire les différentes caractéristiques des événements issus d'un canal de dissociation particulier. La carte TDCL prend en compte les événements de tous les canaux de dissociation. L'échelle de comptage mesure l'intensité du faisceau et les coups associés aux pulses des différents signaux de déclenchement, permettant la mise en place des fenêtres d'enregistrement de chaque carte ADC et TDC. L'autre point à souligner, pour le système d'acquisition, est la gestion des temps morts du discriminateur des deux cartes TDC. En effet, ces cartes ne peuvent pas distinguer deux pulses à moins de 40 ns. Ceci n'empêche pas de mesurer les différences d'instant d'arrivée entre les fragments chargés et neutres. Toutefois, ce n'est pas le cas, si nous souhaitons mesurer la différence d'instant d'arrivée entre deux fragments neutres. C'est pourquoi, pour les événements issus d'un canal de dissociation particulier, les cartes ADC enregistrent le signal sans temps mort sur une fenêtre de durée réglée.

Les données enregistrées sont ensuite traitées et réorganisées, par le programme d'analyse « off-line », en vue d'être intégrées, dans le format ROOT<sup>®</sup>. Ce traitement est fait événement par événement. Les événements enregistrés par le couple d'instruments ADC/TDCE sont traités séparément de ceux enregistrés par la carte TDCL. De plus, chaque événement conserve une trace du contexte expérimental, dans lequel il a été enregistré. C'est pourquoi, pour le couple d'instrument ADC/TDCE, les données associées à chaque événement sont

rangées dans un tableau, dans lequel figurent les paramètres globaux à l'expérience, les paramètres spécifiques à l'itération en cours et les paramètres propres à l'évènement. Il en est de même également pour les données associées à chaque évènement enregistré par la carte TDCL. A la fin d'une expérience, les données de chaque tableau sont intégrées, sous forme de deux fichiers, dans le format ROOT®.

Le traitement des cartes TDC consiste à réorganiser les données enregistrées. En revanche, en ce qui concerne les cartes ADC, le traitement commence par une caractérisation du pulse à l'origine du déclenchement (SOD), pulse dont les caractéristiques temporelles sont connues et fixées par la valeur du prétrigger de la carte ADC 1. Une autre étape consiste à identifier et numéroter les pulses sur chaque signal enregistré. Cette étape de repérage est effectuée après « déconvolution » et filtrage de ces signaux, dans l'espace de Fourier de façon à atténuer le bruit et rebonds afin qu'ils ne soient pas considérés en tant que pulse.

L'analyse « offline » associée à la méthode de détection COINTOF permet de mesurer l'efficacité de détection. Cette mesure a été effectuée dans les chapitres 4 et 5 de cette thèse, à travers l'étude des expériences de CID d'ions ( $8 \text{ keV- H}^+(\text{H}_2\text{O})_{2 \leq n \leq 7}$ ) sur une cible gazeuse d'Argon, capture électronique exclue. Dans le chapitre 4, nous avons déterminé cette efficacité de détection à partir du canal de dissociation des ions ( $8 \text{ keV- H}^+(\text{H}_2\text{O})_{2 \leq n \leq 7}$ ) mettant en jeu la perte d'une seule molécule d'eau. De cette manière, nous avons montré que l'efficacité de détection de la molécule d'eau augmente avec sa vitesse. Les résultats, que nous avons obtenus, suivent la même tendance que ceux de Stephen et Peko obtenus pour différents ions atomiques et atomes. L'allure de notre série de mesure diffère de la leur. Ces différences peuvent provenir du dispositif utilisé pour faire les mesures, du détecteur MCP et du seuil imposé aux signaux de détection.

Dans le chapitre 5, nous avons montré que l'efficacité de détection est associée à l'allure de la distribution d'amplitudes maximales des signaux de détection. De ce fait, elle varie en fonction de l'énergie cinétique, de la masse, de la vitesse et de la nature du projectile étudié et des caractéristiques du détecteur MCP utilisé (rapport  $z/d$  et tension de polarisation). Elle est également plus importante, si le seuil expérimental est faible. Par ailleurs, nous avons vu que l'allure des différentes distributions d'amplitudes, que nous avons obtenues expérimentalement, peuvent être associées à celle d'une distribution de référence, que nous translaterions vers les basses amplitudes et que, par conséquent, translater cette distribution de référence reviendrait à lui imposer un seuil de plus en plus haut. De cette manière, nous avons également mesuré l'efficacité de détection de la molécule d'eau, à différentes vitesses, à travers l'allure des distributions d'amplitudes qui leur est associée. Les résultats, obtenus à travers les deux méthodes, ont été comparés. Nous avons pu constater qu'à faibles vitesses, les efficacités de détection évaluées sont similaires. Toutefois, à hautes vitesses, les résultats obtenus, par les deux méthodes diffèrent. Nous attribuons cette différence au fait qu'une simple translation de la distribution de référence ne suffit plus pour caractériser l'allure de la distribution d'amplitudes associée la molécule d'eau à haute vitesse. Nous pouvons améliorer cette méthode en appliquant, en plus d'une translation, un facteur de compression à la distribution de référence.

De plus, l'analyse « offline » associée à la méthode de détection COINTOF permet également de mesurer les rapports de branchement et la section efficace de dissociation. Cette mesure a été effectuée, sur des expériences de CID d'ions ( $8 \text{ keV} - \text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_{2 \leq n \leq 7}$ ) sur une cible gazeuse d'Argon, capture électronique exclue.

A travers la mesure des rapports de branchement, nous avons vu que les canaux de dissociation, mettant en jeu la perte de toutes les molécules d'eau, sont minoritaires et ceci quel que soit la taille de l'ion précurseur. En effet, l'énergie déposée sur l'agrégat incident n'est pas suffisante pour le dissocier complètement, en majorité. Nous avons également montré que le fragment chargé  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})$  est stable. Par ailleurs, pour les agrégats de plus grandes tailles  $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_{6 \leq n \leq 7}$ , la mesure des rapports de branchement, nous a permis de voir que les processus majoritaires sont ceux qui possèdent des structures en forme de cycle. En effet, les cycles ont une liaison hydrogène supplémentaire, ils sont donc plus rigides et plus difficiles à dissocier.

Nous avons montré que la section efficace de dissociation augmente avec la taille de l'agrégat incident. De plus, les résultats, que nous avons obtenus, ont été comparés avec la mesure des sections efficaces d'atténuation obtenues par Tomita et al, sur des agrégats ( $50 \text{ keV} - \text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_{1 \leq n \leq 100}$ ) sur une cible d'Hélium et sur une cible de Xénon. Nous en avons déduit que, pour des agrégats de petites tailles, la capture électronique était un processus prédominant. C'est pourquoi, pour des agrégats de petites tailles, les valeurs de sections efficaces que nous mesurons sont plus faibles que celles de Tomita et al.

Parallèlement au travail d'analyse, un dispositif complémentaire, visant à produire des gouttelettes de gaz rare froides, par détente isentropique, a été étudiée et progressivement mise en place. Il permettra de produire des gouttelettes d'hélium et d'argon de grandes tailles (30-100 nm) de manière à pouvoir déposer les agrégats présélectionnés en masse. Pour se faire, le gaz rare, à l'intérieur la source, doit être en phase supercritique, soit à une pression supérieure à 20 bars et à une température inférieure à 10 K. Les premiers tests de vide primaire et secondaire ont été effectués. Prochainement le cryostat va être intégré dans le dispositif, pour être également testé sous vide.

Par la suite, nous pourrions étendre et généraliser l'analyse des distributions d'amplitudes des signaux de détection en mesurant l'efficacité de détection de fragments chargés et neutres, à partir de distributions d'amplitudes obtenues avec un autre détecteur.

De plus, la méthode COINTOF permet aussi d'enregistrer des événements de dissociation induite par échange de charge ou capture électronique. Par conséquent, nous sommes alors capables de proposer des valeurs de section efficace de dissociation par le mécanisme de transfert par capture électronique. Par ailleurs, la démarche, que nous avons utilisée, pour mesurer les rapports de branchement et la section efficace de dissociation pourra également être appliquée sur des expériences de CID d'agrégats mixtes eau-pyridine, accélérés à 2, 4, 6

et 8 keV, sur une cible d'argon, hélium, néon... et sur des expériences de CID d'agrégats eau-eau deutérée, accélérés à 2, 4, 6 et 8 keV, sur une cible d'argon, hélium, néon...

Nous pourrons également étudier l'interaction entre les agrégats et le faisceau de protons d'énergie comprises entre 20 et 150 keV. L'énergie déposée sur ces systèmes sera alors plus importante pouvant entraîner leur ionisation. Comme cette irradiation se fera sur des petits systèmes de tailles contrôlées, les résultats obtenus permettront une analyse fine des mécanismes d'irradiation et pourront être confrontés aux modèles théoriques (fonctionnelle de la densité dépendante du temps), effectués sur ces petits systèmes.

Une fois que le cryostat sera testé sous vide, il sera possible de produire des gouttelettes de gaz rares et de les caractériser en taille et en nombre d'atomes, par des méthodes optiques. Ensuite, le dispositif annexe opérationnel sera intégré au sein du DIAM. Ainsi, nous pourrons piéger les agrégats, produits par la source, à l'intérieur des gouttelettes de gaz rares de manière à ce qu'ils soient plus proches de leur état d'énergie fondamentale. Le complexe agrégat-gouttelette pourra alors être irradié par le faisceau de protons et les résultats obtenus pourront être confrontés directement aux modèles théoriques, établis à températures nulles.

## Résumé :

L'étude de l'irradiation dans le système moléculaire à l'échelle du nanomètre est un domaine d'investigation innovant des sciences des radiations. Le Dispositif d'Irradiation d'Agrégats Moléculaires (DIAM) est conçu en vue des conséquences de l'irradiation dans des petits systèmes moléculaires modèles comme les agrégats d'eau protonés. L'irradiation provoque la fragmentation en plusieurs fragments neutres ou chargés. La technique de spectrométrie de masse COINTOF (Correlated Ion and Neutral Time of Flight) permet la détection corrélée des fragments neutres et chargés issus de la dissociation d'un système moléculaire préalablement sélectionné en masse et en vitesse. Les données collectées sont traitées et structurées pour permettre l'analyse statistique des corrélations sur un grand nombre d'événements de fragmentation. Parallèlement à l'identification des canaux de fragmentation, la technique COINTOF permet la mesure de leur rapport de branchement et de leur section efficace. La méthode est présentée pour la dissociation induite par collision sur un atome d'argon, d'agrégats d'eau protonés  $H^+(H_2O)_{n.[2;7]}$ , accélérés à 8keV. L'efficacité de détection, information déterminante pour la production de données quantitatives, est mesurée à partir des données et étudiée en fonction de la distribution l'amplitude des signaux de détection. Enfin, un nouveau système de cible constituée de nanogouttes de gaz rares a été développé.

## Mots clés :

Spectrométrie de masse, corrélation de temps de vol des fragments chargés et neutres, détection événement par événement, dissociation induite par collision, agrégat d'eau protoné, efficacité de détection, rapport de branchement, section efficace de dissociation, fragment neutre, nanogouttes de gaz rares, détente isentropique.

## **Abstract :**

The study of irradiation in molecular systems at the nanometer scale is an innovative field of research in radiation sciences. The DIAM set-up (Dispositif d'Irradiation d'Agrégats Moléculaires) is designed in order to observe and to characterize the consequences of radiation action on model molecular nanosystems such as protonated water clusters. Irradiation induces the fragmentation of the nanosystem in several neutral and charged fragments. The COINTOF (Correlated Ion and Neutral fragments Time of Flight) mass spectrometry techniques allows the correlated detection of the neutral and charged fragments resulting from the dissociation of a mass and velocity selected molecular system. The data processing is performed before the statistical analysis of the fragment production over a large number of fragmentation events. In parallel with the fragmentation channel identification, branching ratio and cross sections are measured with the COINTOF technique. The method is presented here for the collision induced dissociation on argon atoms of protonated water clusters  $H^+(H_2O)_n$ ,  $n=2-7$ , accelerated at 8keV. The detection efficiency, key parameter for the production of quantitative results, is measured from the set of data itself and studied as a function of the amplitude distribution of the detection signal. Finally, a new set-up for production of rare-gas nanodroplets target has been developed.

## **Key words :**

Masse spectrometer, Time of flight correlation between charged and neutral fragments, Event by event detection, Collision induced dissociation, Protonated water clusters, Detection efficiency, Branching ratio, Dissociation cross section, Neutral fragment, Rare gas nanodroplets, Isentropic expansion.





NOM : BURIDON		DATE de SOUTENANCE		
Prénoms : Victor		13 Décembre 2013		
<b>TITRE : Application de la spectrométrie de masse COINTOF à l'étude de la dissociation de petits agrégats d'eau protonés par collision sur un atome d'argon. Développement d'une cible de nano-gouttes de gaz rare.</b>				
		Numéro d'ordre : 262-2013		
DIPLOME DE DOCT.	DOCTEUR- INGENIEUR	DOCTORAT D'ETAT	DOCTORAT DE 3e CYCLE	Spécialité : Physique des Agrégats
X	<input type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>	<input type="checkbox"/>	
Cote B.I.U. - Lyon : T 50/210/19 / et bis			CLASSE :	
<b>RESUME :</b> L'étude de l'irradiation dans le système moléculaire à l'échelle du nanomètre est un domaine d'investigation innovant des sciences des radiations. Le Dispositif d'Irradiation d'Agrégats Moléculaires (DIAM) est conçu en vue les conséquences de l'irradiation dans des petits systèmes moléculaires modèles comme les agrégats d'eau protonés. L'irradiation provoque la fragmentation en plusieurs fragments neutres ou chargés. La technique de spectrométrie de masse COINTOF (Correlated Ion and Neutral Time of Flight) permet la détection corrélées des fragments neutres et chargés issus de la dissociation d'un système moléculaire préalablement sélectionné en masse et en vitesse. Les données collectées sont traitées et structurées pour permettre l'analyse statistique des corrélations sur un grand nombre d'événements de fragmentation. Parallèlement à l'identification des canaux de fragmentation, la technique COINTOF permet la mesure de leur rapport de branchement et de leur section efficace. La méthode est présentée pour la dissociation induite par collision sur un atome d'argon, d'agrégats d'eau protonés $H^+(H_2O)_{n,[2;7]}$ , accélérés à 8keV. L'efficacité de détection, information déterminante pour la production de données quantitatives, est mesurée à partir des données et étudiée en fonction de la distribution l'amplitude des signaux de détection. Enfin, un nouveau système de cible constituée de nanogouttes de gaz rares a été développé.				
<b>MOTS-CLES :</b> Spectrométrie de masse, corrélation de temps de vol des fragments chargés et neutres, détection événement par événement, dissociation induite par collision, agrégat d'eau protoné, efficacité de détection, rapport de branchement, section efficace de dissociation, fragment neutre, nanogouttes de gaz rares, détente isentropique.				
Directeurs de recherches : Hassan Abdoul Carime et Michel Farizon				
Composition du jury : G. Chanfray - S. Ouaskit - A. Clouvas - P. Moretto-Capelle			212 pages	