



HAL
open science

Développement d'une méthode de type "velocity map imaging" pour la mesure de sections efficaces d'émission d'électrons par des molécules d'intérêt biologique en collision avec des ions

Nicolas Sens

► **To cite this version:**

Nicolas Sens. Développement d'une méthode de type "velocity map imaging" pour la mesure de sections efficaces d'émission d'électrons par des molécules d'intérêt biologique en collision avec des ions. Physique [physics]. Normandie Université, 2020. Français. NNT: 2020NORMC213. tel-03093903

HAL Id: tel-03093903

<https://theses.hal.science/tel-03093903>

Submitted on 4 Jan 2021

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.



Normandie Université

THÈSE

Pour obtenir le diplôme de doctorat

Spécialité PHYSIQUE

Préparée au sein de l'Université de Caen Normandie

Développement d'une méthode de type "velocity map imaging" pour la mesure de sections efficaces d'émission d'électrons par des molécules d'intérêt biologique en collision avec des ions

**Présentée et soutenue par
Nicolas SENS**

**Thèse soutenue publiquement le 13/11/2020
devant le jury composé de**

Mme EMILY LAMOUR	Professeur des universités, Université Paris 6 Pierre et Marie Curie	Rapporteur du jury
M. LIONEL POISSON	Directeur de recherche au CNRS, Université Paris-Saclay	Rapporteur du jury
M. ETIENNE LIENARD	Professeur des universités, Université Caen Normandie	Président du jury
M. PATRICK MORETTO-CAPELLE	Chargé de recherche au CNRS, Université Toulouse 3 Paul Sabatier	Membre du jury
Mme VIOLAINE VIZCAÏNO	Chargé de recherche au CNRS, Université Caen Normandie	Membre du jury
M. JEAN-YVES CHESNEL	Professeur des universités, Université Caen Normandie	Directeur de thèse

Thèse dirigée par JEAN-YVES CHESNEL, Centre de recherche sur les ions, les matériaux et la photonique (Caen)



UNIVERSITÉ
CAEN
NORMANDIE



Remerciements

Ça y est me voilà à la fin de ces trois années de mon doctorat et de la rédaction de cette thèse. Ces trois années sont passées un peu trop vite à mon goût mais je pense avoir su profiter de chaque instant. Me voilà maintenant devant la dernière étape : la rédaction des remerciements

Mes premiers remerciements vont naturellement aux membres du jury qui ont eu la patience de lire le manuscrit. Merci, donc à Emily Lamour et Lionel Poisson pour leur rapport après lecture du manuscrit. Je tiens également à remercier Patrick Moretto-Capelle d'avoir fait parti de mon jury et évalué mes travaux. Finalement, merci à Etienne Liénard pour avoir présidé ce jury. En tant qu'experts de leur discipline respective, leurs questions et remarques ont toutes été pertinentes, et leurs félicitations m'ont rendu extrêmement reconnaissant à leurs égards.

Un énorme merci à Violaine Vizcaino qui a encadré ces travaux de thèse. C'est grâce à toi si cette thèse a pu aboutir à ce qu'elle est aujourd'hui et je ne t'en remercierai jamais assez. Je te remercie également de la confiance que tu m'as accordée pendant ces trois années ainsi que tes encouragements. Merci de m'avoir introduit dans ce monde particulier de la recherche. Ces trois années sont en tout point une réussite pour moi. Petite note pour la suite : un chouilla correspond à environ 5 mm et une chouille environ 1-2 mm.

Merci à Jean-Yves Chesnel d'avoir dirigé ces travaux de recherches et de m'avoir accordé sa confiance. Je te remercie également pour ta disponibilité, tes conseils, toujours pertinents et très utiles, ta participation aux différents temps de faisceaux et pour cette semaine d'expérience à l'institut ATOMKI de Debrecen que j'ai beaucoup appréciée.

Ce manuscrit ne serait pas ce qu'il est aujourd'hui sans les innombrables lectures et corrections de Violaine et de Jean-Yves, mais aussi d'Alain que je tiens également à remercier pour le temps qu'il a passé à nous aider sur le dispositif mais aussi pour sa présence pour les différents temps de faisceaux, ainsi que pour ses conseils avisés, surtout en électronique !

Un grand merci à l'équipe technique technique dont la patience a été mise à rude épreuve et qui a toujours réussi à me dépanner. Merci, donc, à Jean-Marc, Thierry, Toiammou, et Claire.

Je remercie également Jimmy et Xavier d'avoir pris le temps de s'intéresser au projet.

Pour finir ce tour du labo, je tiens à remercier Mathieu pour m'avoir aidé à m'intégrer au labo à mes débuts et pour ses conseils tout au long de ma thèse. Un grand merci à Jean-Christophe pour sa disponibilité et son aide mais surtout pour ses jeux de mots de qualité...Merci également à François pour sa bonne humeur et ses déclarations à la cantine, toujours annonciatrices de débats intenses se poursuivant bien au-delà du repas.

Je garde les meilleures pour la fin... Merci à Chiara, Marwa et Suvasthika et avec qui j'ai partagé un bureau pendant ces trois années, pour toutes ces discussions «entre filles », les tutos tricot, vernis, les soirées, et surtout les très bons plats que vous m'avez appris à préparer, mention spéciale au couscous, sri-lentilles, et pizzas (à prononcer pidssa).

En dehors du labo, je tiens à remercier mes coéquipiers de l'équipe de tennis du GANIL composée de Pascal (le patron), Pierre, Ahmed et Sébastien. Mention particulière à Pascal pour m'avoir intégré à cette équipe, à Ahmed et Pierre pour tous les entraînements et matchs partagés pendant ces trois années et à Sébastien pour sa bonne humeur même le dimanche matin à 9h dans le froid glacial de l'hiver Normand.

Pour finir, je tiens à remercier ma famille en commençant par mes parents qui n'ont jamais arrêté de me pousser et de me soutenir dans les études et bien au-delà. Odile pour tous les débats littéraires et Viviane pour tes anecdotes toujours surprenantes. Et je finirai par remercier Nina, qui m'épaule depuis quelques années déjà, et qui m'a accompagné tout au long de cette aventure. Merci pour ton soutien, tes encouragements et ta sincérité.

Table des matières

Introduction générale	1
1 Contexte	3
1.1 Interactions ions/matière et hadronthérapie	3
1.2 Interaction des faisceaux d'ions avec la matière	6
1.2.1 Concept de section efficace	6
1.2.2 Les processus physiques d'émission d'électrons	8
1.3 Méthodes expérimentales de mesure des sections efficaces absolues d'émission d'électrons	10
1.4 La méthode du Velocity Map Imaging (VMI)	14
1.5 Conclusion	16
2 Description du dispositif expérimental IMAGERI et des techniques utilisées	17
2.1 Description générale	18
2.2 Les faisceaux projectiles	19
2.2.1 Faisceau d'ions monochargés de très basse énergie produit par le canon à ions	22
2.2.2 Faisceau d'ions multichargés de l'ordre du keV délivré sur la plateforme ARIBE	24
2.2.3 Faisceau d'ions multichargés de l'ordre du MeV délivré sur la ligne d'IRR-SUD	26
2.2.4 Faisceau de photons délivré par une lampe UV	28
2.3 Les faisceaux cibles	30
2.3.1 Atomes de gaz rares : jet supersonique	32
2.3.2 Biomolécules en phase gazeuse	36
2.3.2.1 Production du faisceau des molécules	36
2.3.2.2 La micro-balance à quartz	38
2.3.2.3 Spectromètre de masse quadripolaire	40
2.4 Le spectromètre VMI	42
2.4.1 Le système de lentille électrostatique	42
2.4.2 Le système de détection : Galettes à micro-canaux, écran phosphore, et caméra	45
2.4.2.1 Description du système de détection	45
2.4.2.2 Description des méthodes de comptage des électrons via le système de détection	49
2.5 Les systèmes de contrôle commande, d'acquisition et de traitement des données	51
2.5.1 Contrôle-commande et acquisition des données (LabVIEW)	52

2.5.2	Traitement et analyse des données (Python)	53
2.6	Détermination des sections efficaces absolues	55
2.7	Conclusion	57
3	Caractérisation du dispositif expérimental IMAGERI	59
3.1	Les faisceaux d'ions projectiles	60
3.1.1	Mesure et simulations de la position du faisceau sur le profileur XY . .	60
3.1.2	Détermination du nombre d'ions projectiles N_{proj}	64
3.2	Les faisceaux cibles	64
3.2.1	Le jet supersonique d'atomes de gaz rares (Ar/Kr)	64
3.2.2	Le jet effusif de biomolécules	70
3.2.2.1	Fragmentation des molécules sous l'effet de la température . .	70
3.2.2.2	Calcul géométrique et détermination expérimentale des dimen- sions de la zone d'interaction l_{ZI}	76
3.2.2.3	Détermination de la densité des biomolécules ρ_{cible}	77
3.3	Caractérisation et réduction du bruit de fond	79
3.3.1	Les différents types de bruit de fond	80
3.3.2	Réduction de $B_{\text{res-OUT}}$: Effet d'écrantage de $V_{\text{écran}}$	84
3.3.3	Réduction de B_{T} : Différence de tension dV entre les électrodes V_0 et V_1	84
3.4	Calibration en énergie du spectromètre VMI	87
3.4.1	Étude du système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$	87
3.4.2	Autres systèmes de collision	91
3.4.3	Effet de la différence de potentiel sur la calibration en énergie du spec- tromètre VMI	92
3.4.4	Calibration en énergie du spectromètre VMI via des simulations SIMION	94
3.5	Résolution du spectromètre VMI	96
3.5.1	Étude SIMION : Facteurs affectant la résolution	96
3.5.1.1	Pixellisation de la caméra et géométrie du spectromètre . . .	98
3.5.1.2	Dimensions de la zone d'interaction	99
3.5.1.3	Champ magnétique B	100
3.5.1.4	Taille des spots sur l'écran phosphore	103
3.5.1.5	Différence de potentiel dV entre les électrodes V_0 et V_1	104
3.5.2	Détermination expérimentale de la résolution	105
3.6	Système de détection des électrons émis N_{e^-} : galettes MCP, écran phosphore et caméra	108
3.6.1	Les galettes à micro-canaux (MCP)	108
3.6.1.1	Différence de potentiel Δ_{MCP}	108
3.6.1.2	Efficacité de détection ϵ	109
3.6.2	Comptage des électrons par l'ensemble écran phosphore/caméra	111
3.6.2.1	Seuil et temps d'exposition de la caméra	111
3.6.2.2	Modélisation du système de détection écran phosphore/caméra	114
3.6.2.3	Conclusion sur le comptage des électrons par l'ensemble du sys- tème écran phosphore/caméra	119
3.6.3	Linéarité de l'encodage d'une image en l'échelle de gris	120
3.6.4	Conclusions et perspectives sur le système de détection	122
3.7	Conclusions sur la caractérisation du dispositif expérimental IMAGERI	123

4 Premiers résultats expérimentaux	127
4.1 Émission d'électrons par l'adénine et l'uracile par impact d'ions : état de l'art .	127
4.2 Émission d'électrons par le système de collision C^{4+} (11,76 MeV) + adénine/uracile	129
4.2.1 Section efficace absolue totale	129
4.2.2 Section efficace simplement différentielle en énergie	130
4.2.3 Comparaison des résultats à des études théoriques et expérimentales . .	132
4.2.4 Dépendance angulaire de l'émission électronique	135
4.3 Analyse de l'émission d'électrons par le système de collision N^{4+} (60 keV) + uracile	138
4.4 Conclusion et perspectives	140
5 Conclusions et perspectives	143
5.1 Développement du dispositif expérimental IMAGERI : caractérisation et validation	143
5.2 Développement de la source de nanoparticules métalliques	144
5.2.1 Description de la source de nanoparticules métalliques	145
5.2.2 Études préliminaires menées avec la source de nanoparticules	147
Annexes	151
A Détails du calcul géométrique du rayon du jet de biomolécules en phase gazeuse	153
B Calibration en énergie avec les systèmes He^+(4 keV) + Ar et $h\nu$(21,22 eV) + Kr	157
Bibliographie	159

Introduction générale

Les interactions entre les rayonnements ionisants (photons, particules chargées) et la matière est un domaine de recherche en physique fondamentale étudié depuis le XX^{ème} siècle et les travaux de Rutherford. Encore aujourd'hui, ce domaine de la physique est largement étudié en raison de ses applications variées en astrophysique avec l'étude des rayonnements cosmiques et des vents solaires, en physique des matériaux avec l'étude de la modification de l'arrangement atomique d'un solide soumis à un rayonnement et la réalisation d'implantation d'atomes, ou encore en physique des plasmas dans l'étude de la fusion thermonucléaire. Les interactions rayonnement/matière jouent également un rôle dans la recherche biomédicale, et sont utilisées afin de mettre au point des traitements thérapeutiques contre le cancer comme la radiothérapie et l'hadronthérapie. Elles sont aussi intéressantes d'un point de vue fondamental afin de déterminer les effets de ces rayonnements sur la matière biologique. C'est dans ce cadre que l'équipe AMA (Atomes, Molécules, et Agrégats) du laboratoire CIMAP (Centre de recherche sur les Ions, les MATériaux et la Photonique) s'intéresse à l'ionisation et à la fragmentation de molécules d'intérêt biologique en phase gazeuse isolées ou sous forme d'agrégats après collisions avec des ions mono ou multichargés d'énergies cinétiques comprises dans les gammes du keV et du MeV.

Le dispositif expérimental associé au projet IMAGERI (détection par velocity map IMAGIng des Électrons émis par des Radiosensibilisants suite à la collision avec des Ions) a été conçu dans l'optique de mesurer les sections efficaces absolues d'émission des électrons par des systèmes tels que des molécules d'intérêt biologique et des radiosensibilisants (nanoparticules métalliques) soumis à l'impact d'ions. C'est une expérience en faisceaux croisés où les faisceaux d'ions projectiles et de particules cibles se croisent orthogonalement au centre du spectromètre. Les électrons émis dans un angle solide de 4π stéradians depuis la zone de recouvrement entre les deux faisceaux sont collectés et analysés par un spectromètre basé sur la technique du Velocity Map Imaging (VMI). La mesure des sections efficaces absolues d'émission des électrons est possible en déterminant certains paramètres comme l'intensité du faisceau projectile avec une cage de Faraday, la densité du faisceau cible avec une micro-balance à quartz, la longueur de la zone de recouvrement entre les deux faisceaux, l'efficacité de détection du spectromètre et le nombre, l'énergie et l'angle des électrons émis.

De manière générale, cette thèse a été essentiellement axée sur le développement du dispositif expérimental et sa caractérisation. De plus, l'ensemble du système a été validé en effectuant les premières mesures de sections efficaces pour des molécules d'intérêt biologique simples. Ce manuscrit s'articule en cinq chapitres :

Le chapitre 1 aborde le contexte scientifique, présente les différents processus d'interactions ions/matière et les méthodes expérimentales généralement utilisées permettant la mesure de

sections efficaces absolues simplement ou doublement différentielles d'émission d'électrons en physique atomique et moléculaire. La technique du Velocity Map Imaging (VMI) est également présentée.

Le chapitre 2 traitera de la description complète du dispositif expérimental, des différents faisceaux projectile et cible utilisés. Les méthodes et les techniques expérimentales mises en place au long de la thèse afin de mesurer les sections efficaces absolues d'émission d'électrons sont également présentées.

Dans le chapitre 3, il sera question de la caractérisation du dispositif IMAGERI et plus particulièrement des faisceaux projectile et cible, du bruit de fond présent dans le dispositif et des méthodes utilisées pour le réduire et le soustraire efficacement. La calibration et la résolution du spectromètre VMI sont également discutées en détail dans ce chapitre.

Le chapitre 4 présente dans un premier temps une étude bibliographique portant sur l'ionisation de molécules d'intérêt biologique par impact d'ions possédant une énergie dans la gamme du MeV. Il est ensuite question de présenter les premières mesures de sections efficaces d'ionisation absolues de biomolécules (adénine et uracile) obtenues avec le dispositif expérimental et de les comparer à des études expérimentales et théoriques existantes.

Le chapitre 5 constitue la conclusion et apporte une vue d'ensemble des travaux réalisés pendant cette thèse et discute des limitations du dispositif expérimental. Les perspectives du projet IMAGERI et en particulier le développement de la source de nanoparticules sont également discutés.

Chapitre 1

Contexte

Sommaire

1.1 Interactions ions/matière et hadronthérapie	3
1.2 Interaction des faisceaux d'ions avec la matière	6
1.2.1 Concept de section efficace	6
1.2.2 Les processus physiques d'émission d'électrons	8
1.3 Méthodes expérimentales de mesure des sections efficaces abso-	
lues d'émission d'électrons	10
1.4 La méthode du Velocity Map Imaging (VMI)	14
1.5 Conclusion	16

Ce chapitre est consacré à la description des différentes interactions ions/matière, aux méthodes de détections des électrons via des analyseurs électrostatiques et à la description de la méthode du Velocity Map Imaging.

1.1 Interactions ions/matière et hadronthérapie

La découverte des rayons X par W.K. Roentgen en 1895 et de la radioactivité par H. Becquerel un an plus tard sont à l'origine de la radiothérapie. Cette méthode utilisée pour traiter des tumeurs est basée sur les interactions entre les photons et la matière biologique: en traversant la matière, les photons mettent en mouvement des électrons secondaires qui cèdent de l'énergie sur leur parcours avant d'être capturés par une molécule. Cette énergie cédée au milieu peut induire des dommages sur les cellules environnantes par simple ou double cassure de la double hélice de l'ADN, favorisant ainsi leur destruction. La quantité d'énergie déposée dans les cellules est appelée dépôt de dose, mesuré en Gray (c'est-à-dire J.kg^{-1}). La figure 1.1a illustre l'inconvénient d'un tel traitement lorsque des photons (rayons X) sont utilisés, le dépôt de dose maximal ayant lieu près de la surface d'entrée du milieu biologique et empêchant ainsi le traitement des tumeurs profondes. De plus, le dépôt n'est pas correctement localisé dans l'espace et ne permet pas de cibler précisément une tumeur en préservant les tissus sains environnants. Ainsi, les rayons X sont bien adaptés au traitement de tumeurs superficielles (peau par exemple). Pour les photons, il est important d'introduire la notion de coefficient d'atténuation linéique μ qui caractérise l'aptitude d'un milieu à arrêter un faisceau de photons en fonction de sa densité. Pour un faisceau d'ions on parle de pouvoir d'arrêt. Il est noté $S = -dE/dx$ avec E l'énergie du faisceau d'ions et x la profondeur du milieu.

À partir des années 1950, les études fondamentales menées sur les mécanismes d'interaction entre les rayonnements ionisants et la matière ont permis de mettre au point une nouvelle méthode de traitement appelée hadronthérapie. Celle-ci consiste à remplacer les faisceaux de photons par des faisceaux d'ions d'énergie de l'ordre de quelques centaines de MeV par nucléon. Les ions possèdent une efficacité balistique bien supérieure aux photons, c'est-à-dire que le dépôt de dose des ions dans la matière est mieux localisé, il se fait à la fin du parcours des ions dans la matière et est concentré dans un pic appelé pic de Bragg (figure 1.1a). Le but est alors de choisir l'énergie du faisceau d'ions de manière à ce que la position du pic de Bragg coïncide avec la localisation de la tumeur. L'hadronthérapie permet ainsi une réelle avancée dans le traitement des cancers puisqu'elle permet de traiter des tumeurs radiorésistantes ou de localisation délicate.

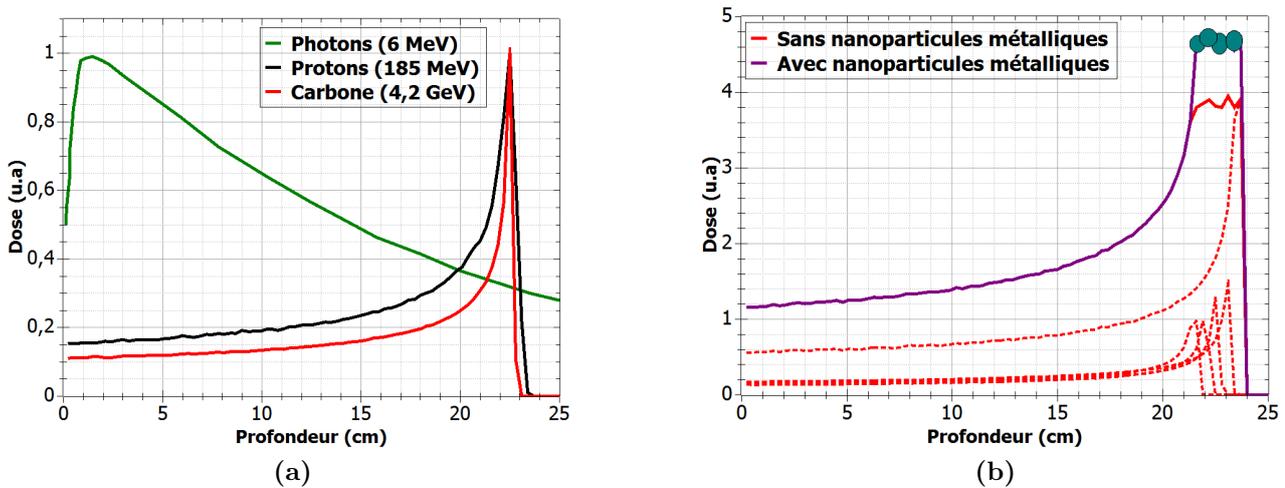


Figure 1.1 – Figure 1.1a : Dose exprimée en unité arbitraire déposée par un faisceau de photons (courbe tirée de [1]) et deux faisceaux d'ions (proton et carbone) dans de l'eau liquide (simulations avec le logiciel SRIM). **Figure 1.1b :** Dose exprimée en unité arbitraire déposée par des faisceaux modulés d'ions C^{6+} (courbes en pointillés), les énergies des différents faisceaux (simulés avec le logiciel SRIM) sont comprises entre 4 GeV et 4,32 GeV. La dose totale déposée est représentée par la courbe rouge pleine. Dans le cas de l'utilisation de nanoparticules métalliques, schématisés par des cercles bleus, la dose totale déposée est représentée par la courbe violette (l'augmentation de dose est définie de façon arbitraire).

Sur la figure 1.1a, les courbes obtenues pour un faisceau de protons et d'ions carbone ont été normalisées pour mettre en évidence le fait que pour une même dose déposée à une même profondeur, le pic de Bragg des ions carbone est plus fin que celui des protons. Cet effet est appelé "straggling". Il est causé par les processus aléatoires de ralentissement des ions dans la matière qui entraînent une dispersion dans leur parcours. Plus l'ion sera lourd et plus le straggling sera faible (car plus difficilement dévié par les atomes du milieu). La masse des ions influe également sur leur "pouvoir destructeur" sur les cellules, plus un ion est lourd et plus il est capable de déposer une dose importante au niveau du pic de Bragg. D'un point de vue clinique, il convient d'irradier la tumeur uniformément ; pour cela, le faisceau d'ions est modulé en énergie et en fluence (courbes rouges en pointillés) afin que la tumeur reçoive une dose uniforme (courbe rouge pleine). Cependant, les ions très lourds ($Z > 12$) ne sont pas utilisés car, d'une part, ils sont soumis à des phénomènes de fragmentation qui impliquent la création d'ions plus légers capables de déposer de l'énergie derrière le pic de Bragg (donc dans des tissus sains derrière la tumeur) et, d'autre part, la finesse de leur pic de Bragg force à une forte modulation en

énergie : il est donc nécessaire de tirer un plus grand nombre de faisceaux. Actuellement, les protons et les ions carbone sont couramment utilisés pour traiter les tumeurs. Des détails sont disponibles dans le manuscrit [2].

Afin d'améliorer encore davantage l'efficacité du traitement, des radiosensibilisants fixés directement sur la tumeur peuvent être utilisés afin d'augmenter localement le dépôt de dose sur la tumeur. Les nanoparticules métalliques (NPs) apparaissent comme étant des radiosensibilisants prometteurs car elles possèdent une taille similaire (de quelques nm à quelques dizaines de nm) à celle des molécules d'intérêt biologique comme les enzymes, anticorps et récepteurs, leur permettant de traverser les membranes des cellules et de faciliter les interactions. Des expériences sur des plasmides (molécules d'ADN double brin modifiées à des fins de recherches) recouvertes de nanoparticules de gadolinium ont montré une augmentation de 73 % du nombre de cassures double brin par impact d'ions C^{4+} par rapport à une irradiation sans présence de nanoparticules [3]. Le mécanisme responsable de l'augmentation du dépôt de dose est causé par l'importante émission d'électrons par les nanoparticules déclenchée par le faisceau d'ions incident ou par interaction avec des particules chargées secondaires créées sur le parcours des ions. L'émission d'électrons secondaires est responsable de l'augmentation de la dose déposée sur la tumeur soit par interactions directes avec la tumeur, soit par interactions indirectes via la création de radicaux HO^\bullet (figure 1.2).

La comparaison des différents mécanismes d'interaction d'un faisceau d'ions dans la matière en présence ou non de nanoparticules métalliques est illustrée sur la figure 1.2. La tumeur est représentée par une double hélice d'ADN, les interactions directes sont représentées en bleu et les indirectes en vert. Parmi les interactions indirectes, la production d'espèces réactives comme des radicaux hydroxyle (HO^\bullet) émis par interaction entre les électrons et les molécules d'eau du milieu via une réaction de radiolyse est particulièrement efficace pour l'augmentation des effets d'endommagement [4]. Les électrons de basses énergies, même en dessous du seuil d'ionisation des molécules d'intérêt biologique (environ 10 eV) sont capables d'induire des dommages aux molécules. Ces dernières années, différentes études ont montré que des électrons de basses énergies étaient capables d'induire des cassures simple et double brins sur des plasmides [5, 6]. Le mécanisme responsable de ces phénomènes irréversibles est l'attachement dissociatif d'électrons (DEA). L'électron est capturé par la molécule créant ainsi un ion négatif qui se dissocie ensuite en un ion négatif et une molécule neutre, qui souvent, deviennent des radicaux libres [7, 8].

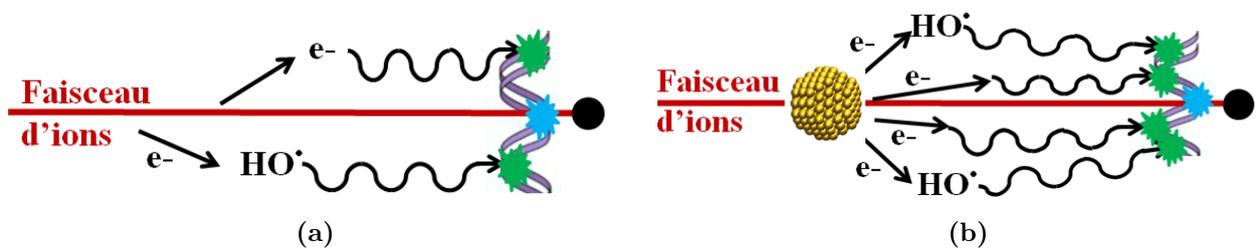


Figure 1.2 – Mécanismes de dépôt de dose sur une tumeur (représentée par une double hélice d'ADN) par un faisceau d'ions sans nanoparticules métalliques sur la tumeur (figure 1.2a) et en présence de nanoparticules métalliques sur la tumeur (figure 1.2b).

Dans ce contexte, le projet IMAGERI développé par des chercheurs du CIMAP se propose

de quantifier l'émission des électrons de basses énergies (en dessous de 200 eV) émis par des nanoparticules métalliques après collisions avec un faisceau d'ions en déterminant les sections efficaces absolues doublement différentielles d'émission d'électrons (en angle et en énergie d'émission des électrons). Ces données doivent permettre d'identifier les processus physiques responsables de l'augmentation du dépôt de dose par les radiosensibilisants en hadronthérapie. D'un point de vue physique, l'émission d'électrons par des nanoparticules a notamment été étudiée de manière théorique [9, 10]. Ces études ont montré que l'émission d'électrons de basses énergies (inférieures à 50 eV) était le résultat de deux types d'excitation: pour les énergies en dessous de 10 eV, le spectre d'émission des électrons est dominé par l'excitation collective des électrons de valence délocalisés (excitation plasmon). Pour des énergies plus élevées comprises entre 10 eV et une centaine d'électron-Volts, les électrons sont également soumis à des résonances atomiques géantes dues à l'excitation individuelle des atomes qui constituent les nanoparticules. Ces études montrent également que lorsque l'énergie du projectile augmente (de 100 keV à 10 MeV), la contribution de l'excitation plasmon diminue de près d'un ordre de grandeur. Dans le cadre du projet IMAGERI, afin de tester ces modèles, la réponse de différentes nanoparticules (taille et matériaux) à différentes énergies de projectiles sera étudiée expérimentalement.

Au cours de cette thèse et dans l'optique de la caractérisation et de la validation du dispositif expérimental, l'émission d'électrons a été étudiée non pas pour des nanoparticules mais pour deux molécules d'intérêt biologique :

- une base azotée de l'ADN: l'adénine, de formule brute $C_5H_5N_5$ ($m = 135$ u.m.a)
- une base azotée de l'ARN: l'uracile de formule chimique $C_4H_4N_2O_2$ ($m = 112$ u.m.a)

Ces molécules sont représentées sur la figure 1.3. Elles ont été choisies car les sections efficaces d'émission d'électrons de ces deux molécules ont été largement étudiées ces dernières années. Une étude bibliographique est détaillée dans l'introduction du chapitre 4.

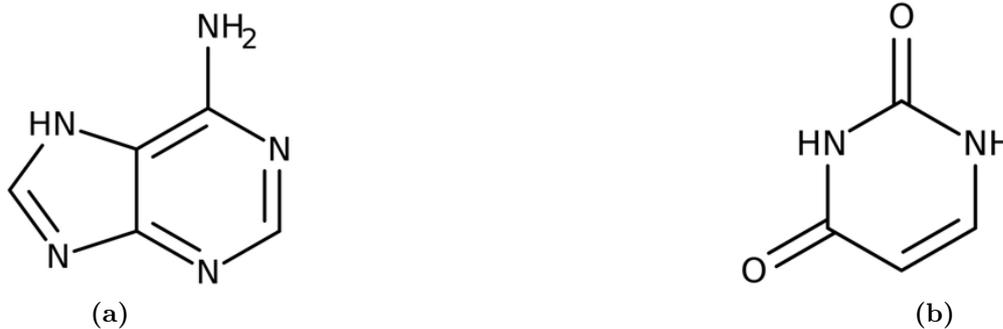


Figure 1.3 – **Figure 1.3a** : Molécule d'adénine. **Figure 1.3b** : Molécule d'uracile.

1.2 Interaction des faisceaux d'ions avec la matière

1.2.1 Concept de section efficace

Soit n atomes cibles répartis uniformément sur un plan de surface S . La probabilité géométrique p de collision entre une particule projectile (considérée ponctuelle) et un atome cible se note $p = \frac{n \cdot \sigma}{S}$ où la surface σ représente la section efficace de collision, c'est-à-dire la surface qu'auraient les particules cibles pour arrêter le projectile si celles-ci étaient de simples disques

durs infranchissables. Plus généralement, la section efficace représente la surface fictive des particules cibles qui permet de reproduire la probabilité p d'interaction (collision, diffusion, émission d'électrons, capture, ionisation, etc...). Elle dépend de la nature et de l'énergie de la particule incidente ainsi que du type d'interaction. Elle s'exprime en unité de surface, en cm^2 ou en barn ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{cm}^2$).

Dans le cadre de cette thèse, il a été question de mesurer la section efficace d'émission d'électrons de molécules d'intérêt biologique par impact d'ions. Les sections efficaces sont fréquemment exprimées et mesurées en fonction de différents paramètres comme l'énergie E des électrons émis et/ou leur angle d'émission θ . Dans ce cas, on parle de sections efficaces simplement ou doublement différentielles, notées $\frac{d\sigma}{dE}$ (cm^2/eV) ou $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ (cm^2/sr) pour les sections efficaces simplement différentielles et $\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega}$ ($\text{cm}^2/\text{eV}/\text{sr}$) pour les sections efficaces doublement différentielles, avec :

$$\sigma = \int_0^{+\infty} \frac{d\sigma}{dE} dE = \int_0^{4\pi} \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega = \int_0^{+\infty} \int_0^{4\pi} \frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} dEd\Omega \quad (1.1)$$

En explicitant l'angle solide d'émission $d\Omega$, il vient :

$$\sigma = \int_0^{+\infty} \int_0^{\pi} \int_0^{2\pi} \frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} \sin\theta dEd\theta d\varphi = 2\pi \int_0^{+\infty} \int_0^{\pi} \frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} \sin\theta dEd\theta \quad (1.2)$$

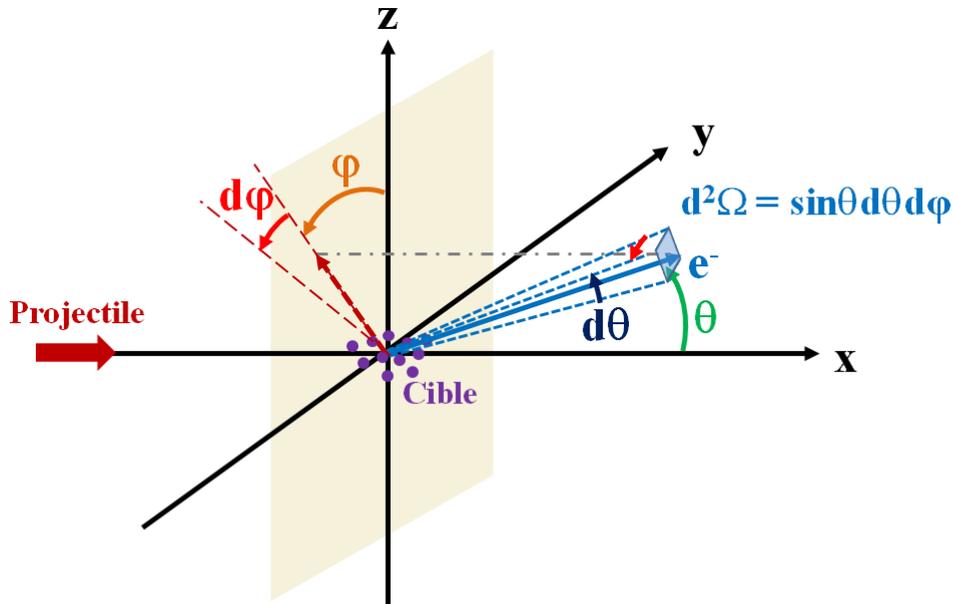


Figure 1.4 – Définition des différents angles intervenant dans le calcul des sections efficaces

Dans l'équation 1.2, l'angle θ est l'angle d'émission des électrons (angle polaire) défini par rapport à l'axe de propagation du faisceau d'ions projectiles comme indiqué sur la figure 1.4 (0° correspondant à une émission des électrons vers l'avant). De la même manière, l'angle φ est l'angle azimutal. L'émission d'électrons suit une symétrie cylindrique selon l'axe de propagation du faisceau projectile, ce qui permet la simplification de l'équation 1.2. Dans le cadre de cette thèse, les sections efficaces différentielles d'émission d'électrons sont déterminées en fonction de l'énergie E des électrons émis et/ou de leur angle d'émission θ ; elles permettent de mettre

en lumière des mécanismes d'émission d'électrons n'apparaissant que pour certaines gammes d'énergies ou certains angles d'émission. Les différents mécanismes d'émission d'électrons sont discutés dans la section suivante.

1.2.2 Les processus physiques d'émission d'électrons

On se propose dans cette partie de présenter les principaux phénomènes d'émission d'électrons après collision entre un ion projectile et une particule cible neutre. Lors de l'interaction d'un faisceau d'ions avec une cible électriquement neutre (atomes ou molécules), différents processus élémentaires représentés sur la figure 1.5 menant à l'émission d'électrons par la cible peuvent intervenir, chacun étant prédominant dans une certaine gamme d'énergies du projectile. À titre indicatif, les différentes plateformes du GANIL utilisées pendant cette thèse sont également présentes sur la figure 1.5, chacune propose des faisceaux d'ions dans des gammes d'énergies différentes. Deux phénomènes distincts contribuent à l'émission d'électrons d'une cible neutre par un projectile chargé :

- L'ionisation: l'interaction entre le faisceau d'ions projectiles et la cible entraîne l'éjection d'un ou plusieurs électrons de la cible dans le continuum.
- La capture électronique en couche interne de valence: l'interaction entre le faisceau d'ions projectiles et la cible entraîne un transfert des électrons de la cible vers le projectile. La lacune électronique entraîne ensuite des réarrangements électroniques au sein de la cible menant souvent à l'émission d'un ou plusieurs électrons.

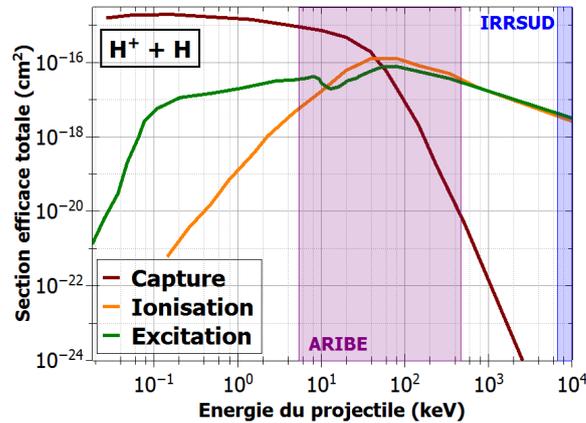


Figure 1.5 – Section efficace totale pour différents phénomènes menant à l'émission d'électrons après interaction entre un faisceau d'ions projectiles et une cible neutre. Le système de collision présenté ici est $H^+ + H$. La figure est issue de la publication [11].

Plusieurs mécanismes peuvent être à l'origine de l'émission d'électrons lors de collisions entre des particules chargées et des atomes ou molécules. Ces mécanismes sont discutés en tenant compte du rôle des interactions entre les électrons émis et les centres de collision associés aux particules projectiles et cibles [12, 13]. La figure 1.6a illustre les différents cas possibles et la figure 1.6b représente un spectre d'émission électronique (section efficace doublement différentielle) obtenu pour le système de collision $Mo^{40+}(25MeV/u) + He$ et rend compte des différents mécanismes de production d'électrons en fonction de l'énergie de l'électron émis.

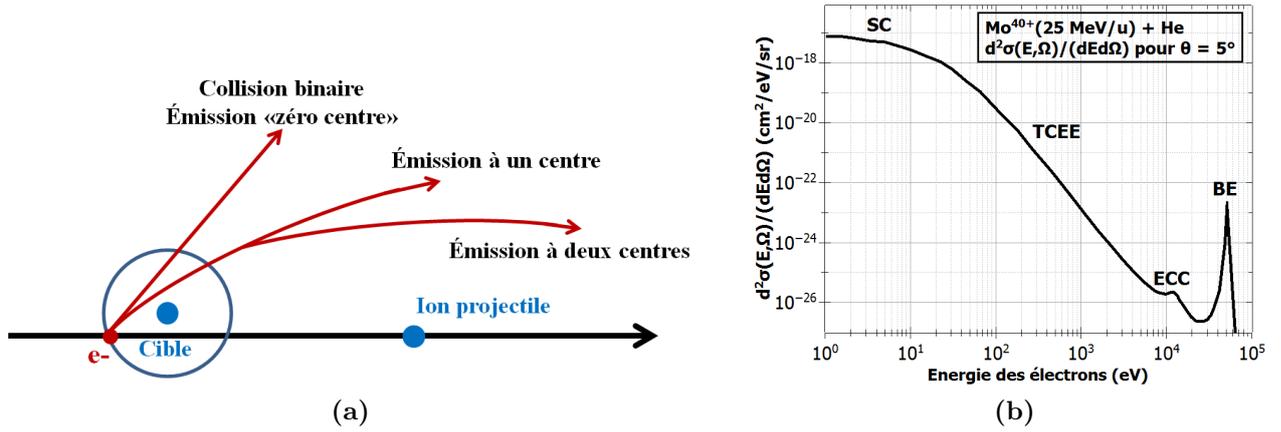


Figure 1.6 – Figure 1.6a : Schéma illustrant les différents mécanismes menant à l'émission d'électrons en raisonnant en terme de centres de collisions. Schéma tiré de [12]. **Figure 1.6b :** Section efficace doublement différentielle d'émission d'électrons par le système Mo^{40+} (25MeV/u) + He présentant les différents mécanismes d'émission des électrons [14].

Émission "zéro centre" : collision binaire

Un premier mécanisme simple menant à l'ionisation est dû à l'interaction du faisceau projectile avec un électron de la cible lors d'une collision binaire [15, 16] (notée BE sur la figure 1.6b pour Binary Encounter), c'est-à-dire ne faisant intervenir que ces deux corps (noyau atomique projectile et électron cible) dans le cas où l'influence des champs électriques du projectile et de la cible est négligeable. L'électron n'est alors pas affecté par la cible ni le projectile et il suit une trajectoire rectiligne. Bien que la cible soit responsable de la distribution initiale des vitesses des électrons dans le cortège électronique, elle joue un rôle négligeable dans les processus d'émission des électrons. C'est ce qui arrive lorsque l'électron éjecté a subi une collision à faible paramètre d'impact avec le projectile (< 1 u.a). Pour des électrons émis avec un angle θ compris entre 0° et 90° , l'énergie cédée à l'électron par collision binaire E_{BE} est donnée par :

$$E_{BE} = 4 \cdot \frac{m_e}{M_p} \cdot E_p \cdot \cos^2(\theta) - E_L \quad (1.3)$$

avec m_e et M_p les masses de l'électron et du projectile, E_p l'énergie du projectile et E_L l'énergie de liaison de l'électron. L'énergie de l'électron émis par ce mécanisme de collision dépend donc fortement de l'énergie de l'ion projectile et de l'angle d'émission.

Émission à "un centre" : collision douce

Si, lors de l'émission de l'électron, il est possible de négliger l'influence de la cible ou du projectile, on parle d'émission à un centre. Lorsque l'influence du champ coulombien du noyau cible avec l'électron émis est plus forte que l'interaction entre l'électron et l'ion projectile (figure 1.6a), le mécanisme d'ionisation est appelé collision douce (SC pour soft collisions sur la figure 1.6b). Il est caractérisé par un faible transfert d'énergie et d'impulsion du projectile vers un électron de la cible avec une faible déflexion due au faisceau projectile. Ce mécanisme est prépondérant pour des électrons de basses énergies ($< 20\text{eV}$). Ces électrons de faible énergie sont prépondérants à tous les angles d'émission. De manière générale, ils sont préférentiellement émis à des angles d'émission autour de 90° [17]. L'influence du champ coulombien du noyau

cible sur l'électron peut cependant entraîner une perte de la "mémoire" de cette distribution autour de 90° et une émission isotrope peut alors apparaître [12].

Émission à "deux centres"

L'électron émis par interaction entre l'ion projectile et la cible peut être influencé par les champs coulombiens du projectile et de la cible. Dans ce cas, on parle d'ionisation à deux centres (Two Center Electron Emission noté TCEE sur la figure 1.6b). Ce type d'émission est prédominant dans la région située entre les collisions douces notées SC et le pic correspondant aux collisions binaires notées BE (figure 1.6b): les électrons émis sont déviés par le champ de la cible avant d'être attirés par le champ de l'ion projectile, entraînant une émission préférentielle vers l'avant (figure 1.6a), c'est-à-dire selon l'axe de propagation des ions projectiles [18]. Deux processus particuliers entrent dans cette catégorie: la capture électronique vers le continuum (noté ECC pour Electron Capture to Continuum sur la figure 1.6b) [19, 20] et l'émission d'électrons du point-selle (saddle point electron emission) [21, 22]. La capture électronique vers le continuum apparaît lorsque l'électron émis par la cible est attiré par le champ coulombien de l'ion projectile, il en résulte une résonance qui correspond à la condition $v_e = v_p$ avec v_e et v_p les vitesses de l'électron et du projectile respectivement. L'émission d'électrons au point-selle se caractérise par un électron possédant une vitesse égale à la moitié de celle du projectile et possède un maximum pour les électrons émis à 0° (axe de propagation des ions projectiles) et un minimum à 90° (axe perpendiculaire à l'axe de propagation des ions projectiles).

Auto-ionisation de la cible

Pour des ions multichargés de basse énergie, la capture électronique devient le processus dominant (figure 1.5). Après capture d'un électron de la cible par l'ion projectile, la cible peut se trouver dans un état excité. Lors de la désexcitation, un électron dont l'énergie est définie par les règles de transition entre les différents états impliqués peut être émis. Ce mécanisme est appelé auto-ionisation ou effet Auger. Ce processus d'auto-ionisation produisant des électrons d'énergies bien définies a notamment été utilisé pour calibrer le spectromètre VMI (section 3.4.1). Ce processus sera décrit en détail pour le système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ dans la section 3.4.1.

1.3 Méthodes expérimentales de mesure des sections efficaces absolues d'émission d'électrons

Afin de mesurer des sections efficaces d'émission d'électrons, une des méthodes les plus communément utilisées consiste à utiliser un spectromètre électrostatique dans des expériences en faisceaux croisés (figure 1.7). Un tel spectromètre est basé sur un champ électrique permettant la sélection de particules chargées (ions positifs et négatifs ou électrons) possédant une énergie cinétique spécifique, et émises suite aux collisions entre un faisceau projectile (photons ou ions) et un faisceau cible (atomes ou molécules). De plus, il est placé à un angle θ donné par rapport à l'axe de propagation du faisceau projectile. Le faisceau cible est injecté via une buse placée au plus proche de la zone d'interaction comme illustré sur la figure 1.7. Pour obtenir les distributions en énergie et/ou angulaire des particules chargées, il convient de faire varier l'angle du spectromètre θ (monté sur une plateforme rotative). Pour chaque position θ , il faut

également faire varier le champ électrique appliqué au spectromètre afin de détecter les particules chargées dans une certaine gamme en énergie. Le nombre de particules chargées pour chaque angle θ et pour chaque énergie E est mesuré au niveau du détecteur (cage de Faraday, channeltron, ou galettes à micro-canaux) situé à la sortie du spectromètre.

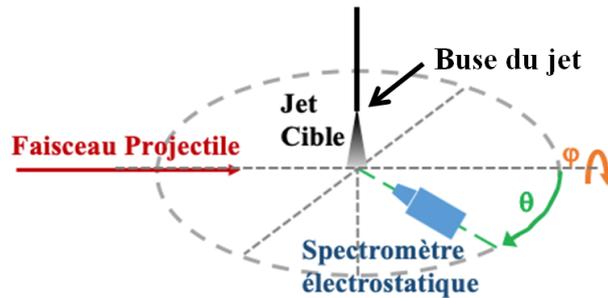


Figure 1.7 – Schéma de principe d'un analyseur électrostatique dans une expérience en faisceaux croisés.

Les analyseurs électrostatiques les plus utilisés pour la mesure de sections efficaces d'émission d'électrons sont les analyseurs hémisphériques et les analyseurs à plaques parallèles. Pour des particules chargées dont l'énergie est supérieure à 1 keV, les champs électrostatiques sont parfois couplés à des champs magnétiques. La figure 1.8 illustre le principe de fonctionnement des deux analyseurs électrostatiques cités dans ce paragraphe.

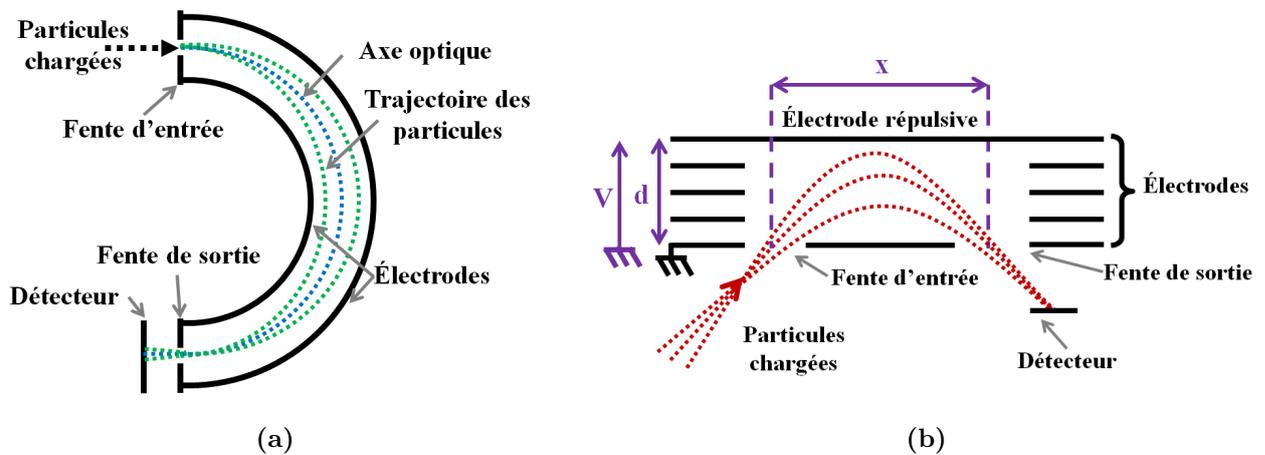


Figure 1.8 – Schémas de principe d'analyseurs électrostatiques hémisphériques (figure 1.8a) et à plaques parallèles (figure 1.8b).

Un analyseur électrostatique hémisphérique [23, 24] est constitué de deux électrodes creuses hémisphériques, chacune étant portée à un certain potentiel électrique. La géométrie de l'analyseur et les tensions appliquées sur les électrodes sont choisies de telle sorte que seules les particules de charge q possédant une certaine énergie notée E/q (également appelée énergie de transmission) décrivent une trajectoire stable dans l'analyseur. Ce type d'analyseur a été pensé pour permettre aux particules possédant l'énergie de transmission mais ayant différents angles d'incidence de décrire une trajectoire stable. La différence de potentiel ΔV entre les électrodes à appliquer afin de permettre la transmission de ces particules est définie par:

$$\Delta V = \frac{E}{q} \cdot C \quad (1.4)$$

avec C une constante associée à la géométrie de l'analyseur. Un détecteur est placé derrière la fente de sortie afin de mesurer le nombre de particules chargées sortant de l'analyseur hémisphérique. Les qualités principales d'un analyseur hémisphérique sont une bonne résolution en énergie couplée à une large transmission.

Contrairement aux analyseurs hémisphériques dans lesquels l'énergie des particules chargées reste constante le long de l'axe optique, les analyseurs électrostatiques à plaques parallèles (miroirs électrostatiques) [25, 26, 23] sont basés sur l'utilisation d'un champ électrique uniforme permettant dans un premier temps de freiner les particules puis de les réaccélérer en inversant leur trajectoire (figure 1.8b). Ce champ électrique est appliqué au moyen d'électrodes planes et parallèles. Les particules chargées entrent dans le miroir électrostatique via une fente d'entrée et suivent une trajectoire parabolique dans l'analyseur en raison du champ électrique qui y règne. L'énergie des particules capables de sortir du miroir électrostatique est déterminée par la distance entre les fentes d'entrée et de sortie, mais également par la valeur du champ électrique:

$$\frac{E}{q} = \frac{V \cdot x}{2 \cdot d} \quad (1.5)$$

avec x la distance entre les fentes, E l'énergie des particules chargées transmises par l'analyseur, q leur charge, d la distance entre la première et la dernière électrode du miroir électrostatique et V la différence de potentiel entre ces deux électrodes. Sur le même principe que l'analyseur hémisphérique, la distribution en énergie des particules chargées s'obtient en mesurant le nombre de particules à la sortie de l'analyseur. Afin de détecter des particules de différentes énergies, il convient de faire varier la valeur du champ électrique du miroir électrostatique.

L'utilisation d'un spectromètre électrostatique permet donc de mesurer le nombre $N_{e^-}(E, \theta)$ d'électrons émis par seconde à une certaine énergie E et à un angle θ donné et donc de déterminer les sections efficaces doublement différentielles $\frac{d^2\sigma(E, \theta)}{dE d\Omega}$ qui s'expriment selon l'équation :

$$\frac{d^2\sigma(E, \theta)}{dE d\Omega} = \frac{N_{e^-}(E, \theta)}{\epsilon \cdot \rho_{\text{cible}} \cdot N_{\text{proj}} \cdot l \cdot \Delta\theta \cdot \Delta E} \quad (1.6)$$

avec ϵ l'efficacité de détection du détecteur placé en sortie de l'analyseur électrostatique, ρ_{cible} la densité du faisceau cible, N_{proj} le nombre d'ions ou photons projectiles par seconde, l la longueur de la zone de recouvrement entre les faisceaux projectile et cible, $\Delta\theta$ et ΔE la résolution angulaire et la résolution en énergie du spectromètre.

Afin de déterminer les valeurs absolues des sections efficaces, il est nécessaire de déterminer avec précision les différents paramètres de l'équation 1.6. Les paramètres les plus délicats à déterminer sont la densité de la cible ρ_{cible} et l'efficacité de détection. Pour s'affranchir de ces difficultés, plusieurs méthodes de normalisation ont été développées.

Une méthode employée afin de s'affranchir de la détermination de la densité de la cible ρ_{cible} consiste à déterminer le rapport $\Gamma = \frac{N_{e^-}^{(u)}(E, \theta)}{N_{e^-}(E, \theta)}$ entre (*i*) le nombre $N_{e^-}^{(u)}(E, \theta)$ d'électrons émis lorsque le gaz cible est injecté de manière uniforme dans la chambre de collision (buse du jet éloignée du faisceau projectile) à une certaine pression P mesurable par une jauge à ionisation et (*ii*) le nombre $N_{e^-}(E, \theta)$ d'électrons déterminé avec le jet de gaz cible (buse du jet

proche du faisceau projectile, figure 1.7). La densité du jet est alors calculable via l'équation $\rho_{\text{cible}} = \frac{P}{\Gamma \cdot k_B \cdot T}$ [27, 28]. Dans le cas de cette thèse, dans laquelle les molécules sont mises en phase gazeuse par sublimation d'une poudre, cette méthode n'est pas applicable car il n'est pas possible d'injecter de manière uniforme le gaz dans la chambre de collision et d'obtenir une pression P . En effet, les biomolécules ont tendance à coller aux parois du dispositif. Dans ce cas là, une méthode souvent utilisée est la normalisation des spectres à une section efficace connue, soit du même processus physique (émission d'électrons) [29, 30] mais d'une cible différente, soit d'un autre processus physique (diffusion Rutherford du projectile sur la cible) [31, 32].

Par exemple, l'équipe du Pr. Tribedi du laboratoire Tata Institute of Fundamental Research (Mumbai) utilise le pic des électrons Auger KLL des atomes d'oxygène présents dans la molécule d'uracile (environ 450 eV) comme référence pour mettre les sections efficaces d'émission d'électrons de l'uracile sur une échelle absolue [30]. Tout d'abord, la section efficace $\sigma_{\text{O-KLL}}$ d'émission d'électrons par la molécule O_2 est déterminée par la méthode précédente (détermination du facteur Γ dans le cas d'un jet effusif de dioxygène). Ensuite, en faisant l'hypothèse que la valeur de la section efficace d'émission d'électrons de l'oxygène est la même dans la molécule O_2 que dans une molécule d'uracile, la section efficace d'émission d'électrons par la molécule d'uracile est mise sur une échelle absolue en ajustant le pic des électrons Auger KLL de l'uracile à la valeur déterminée pour la molécule O_2 . Dans le cas de la molécule d'adénine, la normalisation des sections efficaces s'effectue par rapport au pic d'électrons Auger KLL de l'azote [33] dont l'énergie se situe aux alentours de 325 eV.

La méthode de normalisation par la diffusion Rutherford du projectile sur la cible a été utilisée dans le cadre de la détermination des sections efficaces d'émission d'électrons de l'adénine [34] et de l'uracile [32] par impact de protons. Le nombre $N_{\text{ion}}(\theta)$ d'ions diffusés à un angle θ est mesuré dans un certain angle solide $\Delta\Omega$ et dépend de l'intensité du faisceau projectile, de la densité du faisceau cible ρ_{cible} , de la longueur de la zone de recouvrement entre les faisceaux projectiles et cibles, de l'efficacité de détection ϵ_{ion} des ions projectiles diffusés et de la section efficace de diffusion Rutherford $\sigma_R(\theta)$. Il est possible de déterminer cette dernière théoriquement et ainsi d'exprimer les sections efficaces d'émission d'électrons en fonction des sections efficaces de diffusion Rutherford $\sigma_R(\theta)$ en s'affranchissant de la mesure de la densité ρ_{cible} .

Parmi ces deux méthodes de normalisation, celle employée par Tribedi et al. pour mettre sur une échelle absolue les sections efficaces d'émission d'électrons de biomolécules en utilisant le pic des électrons Auger des atomes d'oxygène ou d'azote serait possible en normalisant aux sections efficaces absolues théoriques $\sigma_{\text{O-KLL}}$ ou $\sigma_{\text{N-KLL}}$. Avec le dispositif IMAGERI, il n'est pas possible de déterminer expérimentalement des sections efficaces absolues d'émission d'électrons par des molécules simples telles que O_2 ou N_2 . La méthode de normalisation se basant sur la diffusion Rutherford du projectile par la cible pourrait également être utilisée, mais cette méthode n'a pas été retenue lors de la conception initiale du dispositif expérimental. Le choix a été fait de déterminer directement les différents paramètres ϵ , ρ_{cible} , N_{proj} et l sans passer par une méthode de normalisation. Le chapitre 3 est largement consacré à la détermination de ces différents paramètres.

Les méthodes utilisant des analyseurs électrostatiques pour déterminer les distributions en énergie et en angle de particules chargées analysent généralement une seule énergie et un seul

angle d'émission à la fois. Dans le cadre du projet IMAGERI, il a été décidé d'implémenter la méthode du Velocity Map Imaging (VMI) car elle permet de mesurer simultanément les électrons émis dans un angle solide de 4π stéradians et dans une gamme en énergie pouvant aller jusqu'à environ 200 eV. Le principe de la méthode du Velocity Map Imaging est détaillé dans la section suivante.

1.4 La méthode du Velocity Map Imaging (VMI)

La première méthode d'imagerie des vitesses a été développée en 1987 par Chandler et Houston [35]. L'expérience consistait à étudier la distribution spatiale de produits de dissociation de la molécule CH_3I par impact de photons. Les fragments chargés étaient extraits vers un détecteur sensible en position à l'aide d'un champ électrique créé par une différence de potentiel entre deux grilles métalliques dont une placée directement devant le détecteur [36]. Cette méthode a ensuite été utilisée afin d'étudier la distribution spatiale de photoélectrons provenant d'atomes de xénon. La technique Velocity Map Imaging (VMI) a été inventée par Eppink et Parker [37] en 1997, elle consiste à imager la distribution des vitesses de particules chargées émises dans un volume après collisions entre un faisceau projectile (électrons, ions ou photons) et un faisceau cible neutre (atomes, molécules, agrégats) en utilisant une lentille électrostatique.

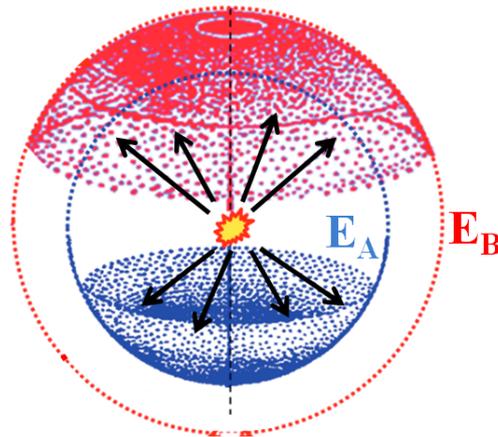


Figure 1.9 – Sphères de Newton dans l'espace des vitesses créées par des électrons d'énergies E_A et E_B avec $E_A < E_B$. Cette image est issue de l'article [38].

Après collision entre les faisceaux projectile et cible, les électrons émis dans un angle solide 4π stéradians possédant la même vitesse forment des sphères (en se plaçant dans l'espace des vitesses) de rayon r proportionnel à leur vitesse (et donc à la racine carré de leur énergie). Ces sphères sont appelées sphères de Newton [38, 39]. La figure 1.9 illustre les sphères de Newton créées par des électrons d'énergies E_A et E_B avec $E_A < E_B$.

Ces électrons émis dans l'angle solide 4π stéradians sont ensuite attirés vers le détecteur via une lentille électrostatique (figure 1.10), elle est constituée d'électrodes circulaires creuses qui sont polarisées de telle sorte à créer un champ électrique inhomogène permettant d'accélérer et de focaliser sur le détecteur des particules chargées possédant le même vecteur vitesse mais des positions initiales différentes. La lentille électrostatique des spectromètres VMI les plus simples n'est constituée que de trois électrodes: une électrode pleine répulsive, une première

électrode creuse extractrice et une dernière électrode mise au même potentiel que le détecteur afin d'assurer une zone de vol libre aux particules. L'ajout d'autres électrodes permet d'améliorer la focalisation des électrons sur le détecteur [40]. Ainsi, pour un champ fixé et des particules chargées de masses identiques, les moins énergétiques impacteront le détecteur au centre, tandis que les plus énergétiques pourront atteindre les bords du détecteur.

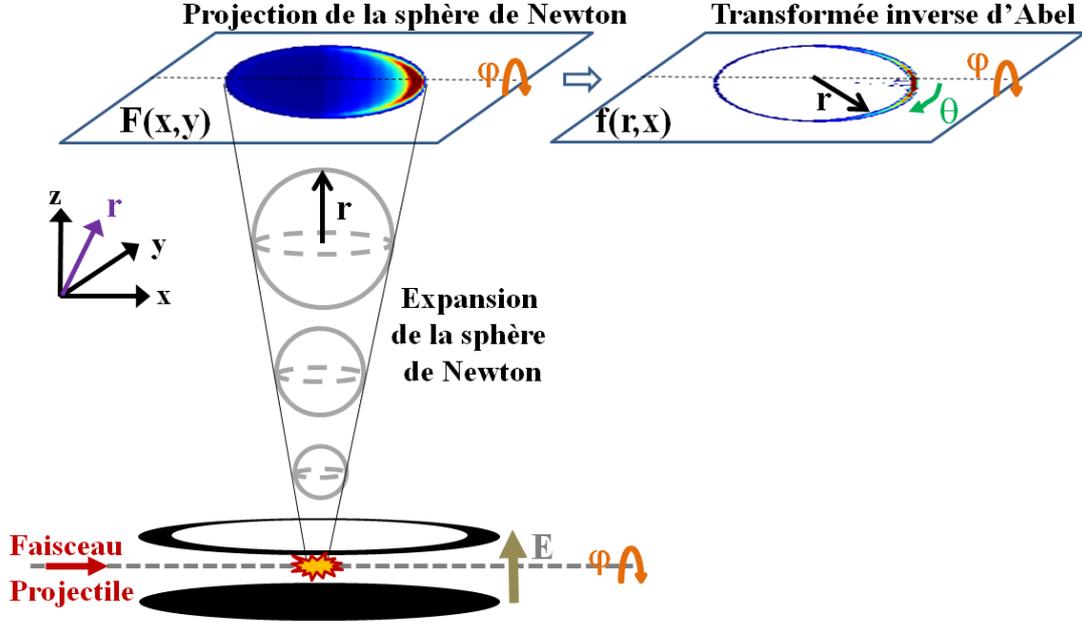


Figure 1.10 – Principe de fonctionnement d'un spectromètre VMI: Projection en deux dimensions sur le détecteur de la distribution initiale en trois dimensions d'électrons monoénergétiques (émis préférentiellement vers l'avant dans cet exemple) et transformée inverse d'Abel.

L'image obtenue sur le détecteur correspond à la projection des sphères de Newton sur le détecteur et contient l'information à la fois sur l'angle et sur l'énergie des électrons. Pour reconstruire la distribution initiale des vitesses des électrons à partir de la distribution spatiale des électrons sur le détecteur, la transformée inverse d'Abel [41, 42, 43, 44, 45] est communément utilisée. Afin de simplifier le problème à résoudre, il convient de prendre en compte les éléments suivants : le faisceau d'ions projectiles est monodirectionnel et la zone d'interaction est de forme cylindrique et d'axe parallèle au plan du détecteur. Il en résulte une symétrie cylindrique le long de l'axe x , axe de propagation du faisceau d'ions. En appelant $f(x,y,z)$ la distribution initiale des vitesses des électrons au niveau de la zone d'interaction (3D) et $F(x,y)$ la distribution spatiale des électrons dans le plan xy du détecteur (2D), il est possible d'écrire l'équation 1.7 :

$$F(x, y) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x, y, z) dz = 2 \int_0^{\infty} f(x, y, z) dz \quad (1.7)$$

En considérant la symétrie cylindrique autour de l'axe x (axe du faisceau projectile) et en considérant le changement de variable $r^2 = y^2 + z^2$ avec r le rayon de la sphère de Newton, la distribution des vitesses devient $f(r,x)$ [46, 47] et il devient possible d'écrire :

$$dz = \frac{r}{\sqrt{r^2 - y^2}} dr \quad (1.8)$$

En substituant dz dans l'équation 1.7 par l'expression trouvée avec l'équation 1.8, il vient :

$$F(x, y) = 2 \int_{|y|}^{\infty} \frac{f(r, x) \cdot r}{\sqrt{r^2 - y^2}} dr \quad (1.9)$$

La formule 1.9 est la transformée d'Abel permettant d'obtenir la projection $F(x, y)$ en deux dimensions des positions d'impact des électrons sur le détecteur à partir d'une distribution des vitesses $f(r, x)$ en trois dimensions. La transformée inverse d'Abel permet, quant à elle, de passer de la projection en deux dimensions sur le détecteur $F(x, y)$ à la distribution initiale des vitesses des électrons $f(r, x)$ en trois dimensions (représentée en deux dimensions sur la figure 1.10). Elle est donnée par l'équation 1.10 et le calcul de cette intégrale est effectué numériquement :

$$f(r, x) = -\frac{1}{\pi} \int_{|r|}^{\infty} \frac{dF(x, y)}{dy} \cdot \frac{1}{\sqrt{y^2 - r^2}} dy \quad (1.10)$$

Il est donc possible de mesurer le rayon sur l'image après transformée inverse d'Abel qui est proportionnel à la vitesse initiale des électrons émis. Afin de remonter à l'énergie E_{e^-} initiale des électrons, il convient d'utiliser l'équation suivante :

$$E_{e^-} = \text{Constante} \cdot r^2 \quad (1.11)$$

La constante tient compte du champ électrique appliqué et de la géométrie du spectromètre. La calibration en énergie du spectromètre VMI dans le dispositif expérimental IMAGERI est détaillée dans la section 3.4. Il est important de noter que plus le champ électrique appliqué sur la lentille est élevé, et plus des particules chargées de haute énergie seront susceptibles d'impacter le détecteur.

1.5 Conclusion

La connaissance des processus fondamentaux d'interaction entre les ions et la matière biologique est d'une importance capitale pour certaines applications médicales comme l'hadronthérapie. Utiliser un faisceau d'ions à la place d'un faisceau de photons a déjà permis une amélioration du traitement: les faisceaux d'ions permettent de traiter des tumeurs plus profondes et le dépôt de dose des ions dans l'organisme est mieux localisé (pic de Bragg). L'utilisation de radiosensibilisants comme des nanoparticules métalliques possédant un numéro atomique élevé et donc un grand nombre d'électrons, directement fixées sur la tumeur, pourrait permettre d'augmenter le dépôt de dose par émission d'électrons secondaires. La quantification du nombre d'électrons émis passe par la mesure des sections efficaces absolues d'émission d'électrons. Dans le cadre du projet IMAGERI, un nouveau dispositif expérimental basé sur un spectromètre VMI a été mis en place afin de déterminer les sections efficaces absolues d'émission d'électrons par des atomes, molécules et nanoparticules métalliques. Un tel dispositif basé sur un spectromètre VMI n'a jamais été utilisé dans l'étude des interactions ions/molécules pour la détection des électrons émis par les biomolécules. Le chapitre suivant sera consacré à la description générale du dispositif, et plus particulièrement au détail des différents faisceaux utilisés et des spécifications du spectromètre VMI. Une explication détaillée de la méthode de calcul des sections efficaces absolues d'émission d'électrons est également fournie.

Chapitre 2

Description du dispositif expérimental IMAGERI et des techniques utilisées

Sommaire

2.1	Description générale	18
2.2	Les faisceaux projectiles	19
2.2.1	Faisceau d'ions monochargés de très basse énergie produit par le canon à ions	22
2.2.2	Faisceau d'ions multichargés de l'ordre du keV délivré sur la plateforme ARIBE	24
2.2.3	Faisceau d'ions multichargés de l'ordre du MeV délivré sur la ligne d'IRRSUD	26
2.2.4	Faisceau de photons délivré par une lampe UV	28
2.3	Les faisceaux cibles	30
2.3.1	Atomes de gaz rares : jet supersonique	32
2.3.2	Biomolécules en phase gazeuse	36
2.3.2.1	Production du faisceau des molécules	36
2.3.2.2	La micro-balance à quartz	38
2.3.2.3	Spectromètre de masse quadripolaire	40
2.4	Le spectromètre VMI	42
2.4.1	Le système de lentille électrostatique	42
2.4.2	Le système de détection : Galettes à micro-canaux, écran phosphore, et caméra	45
2.4.2.1	Description du système de détection	45
2.4.2.2	Description des méthodes de comptage des électrons via le système de détection	49
2.5	Les systèmes de contrôle commande, d'acquisition et de traitement des données	51
2.5.1	Contrôle-commande et acquisition des données (LabVIEW)	52
2.5.2	Traitement et analyse des données (Python)	53
2.6	Détermination des sections efficaces absolues	55
2.7	Conclusion	57

Ce chapitre a pour but de décrire le dispositif expérimental dans son état actuel ainsi que de détailler son fonctionnement. Dans une première section (2.1), une description générale du dispositif sera faite. Ensuite, les trois grandes parties du dispositif seront présentées, à savoir, la production et les outils de caractérisation des faisceaux projectiles (section 2.2) et cibles (section 2.3) et le spectromètre VMI (section 2.4). Finalement, la méthode utilisée pour l’acquisition et le traitement des données sera discutée dans la partie 2.5. Plus particulièrement, la détermination des sections efficaces absolues d’émission d’électrons ainsi que les incertitudes associées à cette mesure seront également détaillées dans la section 2.6.

2.1 Description générale

Le dispositif expérimental IMAGERI doit permettre la mesure des sections efficaces absolues d’émission d’électrons de cibles atomiques ou moléculaires par impact d’ions. Cette mesure passe par l’étude du nombre, de l’énergie et de l’angle d’émission des électrons émis à l’aide du spectromètre VMI. Durant cette thèse ont été étudiées les collisions entre des faisceaux projectiles d’ions d’énergies pouvant varier de la gamme du keV à la gamme du MeV et des faisceaux cibles atomiques (Ar, Kr) ou constitués de biomolécules en phase gazeuse (adénine, uracile). Tous les faisceaux projectiles et cibles utilisés durant cette thèse seront décrits en détail dans les sections 2.2 et 2.3 respectivement. Ces deux faisceaux sont produits de manière continue et se croisent orthogonalement au niveau d’une zone de recouvrement entre les deux faisceaux appelée zone d’interaction, qui se trouve au centre du spectromètre VMI utilisé afin d’extraire et d’analyser les électrons émis par les collisions. Conformément à la méthode du Velocity Map Imaging détaillée dans la section 1.4 du chapitre précédent, les électrons émis dans l’angle solide 4π stéradians au niveau de la zone d’interaction après collisions sont extraits, via des tensions appliquées sur les électrodes du spectromètre VMI et focalisés vers un détecteur sensible en position (PSD) qui sera décrit dans la section 2.4. Le rayon des électrons sur l’image après la transformée inverse d’Abel est directement lié à leur énergie. Il est donc possible d’obtenir les distributions en énergie et en angle de ces électrons.

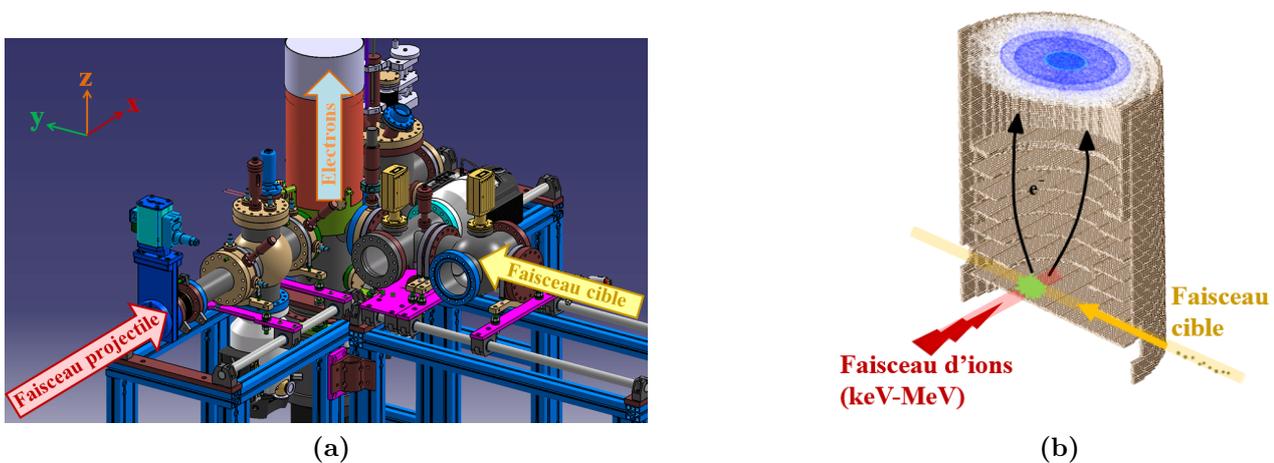


Figure 2.1 – Figure 2.1a : Schéma général du dispositif expérimental IMAGERI obtenu avec le logiciel CATIA. **Figure 2.1b :** Vue en coupe du Spectromètre VMI dans le dispositif IMAGERI.

En connaissant d’autres paramètres comme l’intensité du faisceau projectile, la densité du

faisceau cible, l'efficacité de détection du détecteur ainsi que la taille de la zone d'interaction, il est possible de remonter aux sections efficaces absolues d'émission d'électrons. L'équation utilisée et les incertitudes associées seront décrites dans la section 2.6. Le dispositif IMAGERI représenté sur la figure 2.1a peut être séparé en trois parties :

- La partie projectile, dans laquelle se propage le faisceau d'ions incident (selon l'axe x sur la figure 2.1a).
- La partie cible, dans laquelle se trouve la source du faisceau atomique ou le faisceau de biomolécules (selon l'axe y sur la figure 2.1a).
- La partie spectromètre VMI nommée "Électrons" sur la figure 2.1a (coupe visible sur la figure 2.1b), composée des différentes électrodes permettant l'extraction des électrons et du système de détection basé sur un détecteur sensible en position et une caméra (selon l'axe z).

2.2 Les faisceaux projectiles

Les faisceaux projectiles sont produits soit par des instruments commerciaux directement installés sur le dispositif expérimental IMAGERI et utilisés pour sa caractérisation tels qu'un canon à ions produisant des ions monochargés d'énergie de 1 à 5 keV (section 2.2.1) et une lampe UV (section 2.2.4), soit via les sources d'ions du GANIL. Dans ce cas, le dispositif expérimental IMAGERI est raccordé sur les lignes de faisceaux d'ions. Au cours de cette thèse, la ligne ARIBE (Accélérateur pour la Recherche avec des Ions de Basse Énergie) délivrant des faisceaux d'ions multichargés d'énergie de l'ordre du keV et la ligne IRRSUD délivrant des faisceaux d'énergie de l'ordre du MeV ont été utilisées pour la mesure des sections efficaces absolues d'émission d'électrons de molécules d'intérêt biologique et seront détaillées dans les sections 2.2.2 et 2.2.3 respectivement. Le faisceau projectile se propage ensuite dans le dispositif en suivant l'axe de la partie projectile visible sur la figure 2.2.

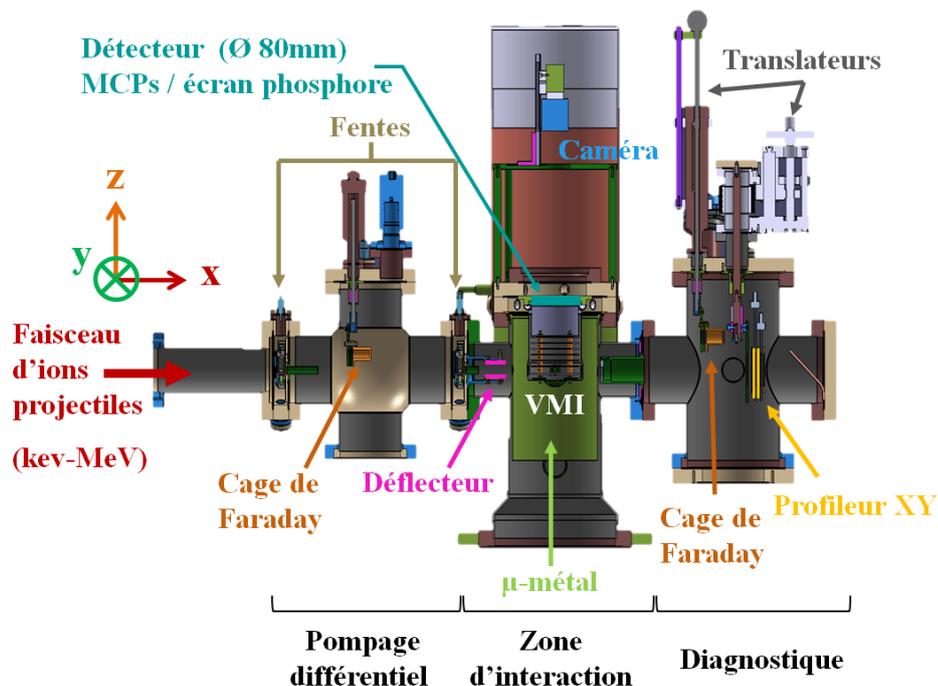


Figure 2.2 – Coupe de la partie du dispositif expérimental IMAGERI dans laquelle se propagent les faisceaux projectiles.

Le faisceau projectile traverse trois chambres consécutives : les chambres dites "pompage différentiel", "zone d'interaction" et "diagnostique" (figure 2.2). La chambre "zone d'interaction" est maintenue à un vide poussé par l'utilisation d'une pompe turbomoléculaire Leybold 1000 L/s, les deux chambres adjacentes par des pompes turbomoléculaires Leybold 290 L/s. Ces trois pompes sont elles-mêmes connectées à une pompe primaire Leybold Scrollvac 30 m³/h. Les pressions de l'ordre de 10⁻⁸ mbar sont monitorées par des jauges à ionisation à cathode chaude (Leybold, Ionivac ITR 90), les jauges de Penning étant à proscrire à cause du champ magnétique pouvant modifier les trajectoires des électrons de basses énergies.

Plusieurs éléments de contrôle et de diagnostic sont présents dans cette partie du dispositif. En effet, deux jeux de fentes de forme carrée, manuelles, horizontales et verticales de section comprise entre 1 mm² et 121 mm² permettent de tailler le faisceau et ainsi de modifier son intensité (figure 2.3).



Figure 2.3 – Photographie des fentes présentes dans le dispositif expérimental afin de modifier sa section et son intensité.

Le déflecteur horizontal placé en amont du spectromètre VMI permet de redresser le faisceau d'ions verticalement afin de compenser sa déviation par les champs électriques à l'intérieur du spectromètre VMI. Il est constitué de deux plaques métalliques parallèles de taille 30 mm par 30 mm de côté et espacées de 17 mm. La tension à appliquer sur le déflecteur dépend de l'énergie du faisceau projectile et de la tension d'extraction V_{ext} du spectromètre VMI. Son utilisation est détaillée dans la section 3.1.

Derrière le spectromètre, une cage de Faraday et un profileur permettent de mesurer certaines caractéristiques du faisceau d'ions. Des photographies de ces deux équipements sont présentes sur la figure 2.4. La cage de Faraday (figure 2.4a) de diamètre d'entrée 2 cm et de profondeur 4 cm permet de mesurer le courant d'ions projectiles ayant interagi avec le faisceau cible au niveau de la zone d'interaction et de remonter au nombre d'ions projectiles N_{proj} indispensable à la détermination des sections efficaces absolues. En reliant la cage de Faraday à un picoampèremètre, il est possible de mesurer le courant d'électrons via l'équation 2.1:

$$N_{\text{proj}} = \frac{I_{\text{proj}}}{q \cdot e} \quad (2.1)$$

où I_{proj} est l'intensité lue par le picoampèremètre, q la charge de l'ion et e la charge élémentaire ($e = 1,602 \cdot 10^{-19}$ C). Afin d'estimer au plus juste l'intensité du faisceau d'ions projectiles, une plaque métallique inclinée d'un angle de 45° est installée dans la cage de Faraday afin d'empêcher les ions d'être rétrodiffusés. De plus, un anneau de garde porté à une tension négative d'une centaine de Volts est placé entre la cage de Faraday et un anneau à la masse



Figure 2.4 – Figure 2.4a : Photographie de la cage de Faraday permettant la mesure de l’intensité du faisceau d’ions projectiles. **Figure 2.4b :** Photographie du profileur XY permettant de mesurer la position du faisceau d’ions dans le plan vertical et horizontal.

(figure 2.4a). Ces anneaux permettent d’éviter que les électrons secondaires créés par le faisceau d’ions dans la cage de Faraday ne ressortent, ce qui entraînerait une surestimation de l’intensité mesurée. L’ensemble est monté sur un translateur permettant de modifier sa position verticale afin d’assurer la mesure du courant même lorsque que le faisceau d’ions est dévié vers le bas en raison de la tension d’extraction appliquée dans le spectromètre VMI pour la détection des électrons émis. Ce translateur permet également de sortir entièrement la cage de faraday afin d’utiliser le profileur situé juste derrière.

Le profileur XY (figure 2.4b) est constitué de deux plans de fils conducteurs horizontaux et verticaux et permet d’estimer la forme et la taille du faisceau d’ions. Chaque plan de dimensions 23x23 mm contient 47 fils parallèles d’épaisseur 70 μm et espacés d’une distance de 500 μm , l’aire des fils représente environ 30 % de la surface de chaque plan. Le profileur est monté sur un translateur pour les mêmes raisons que la cage de Faraday et permet également de mesurer l’intensité du faisceau d’ions projectile. À chaque impact d’ion sur un des fils du profileur, un courant électrique est créé puis intégré pendant un certain temps d’intégration noté τ dans une capacité C montée en parallèle avec une résistance R selon le circuit représenté sur la figure 2.5. La valeur de la capacité sur le schéma tient compte de la capacité intrinsèque du condensateur (2,2 nF) et de la capacité du câble (0,2 nF).

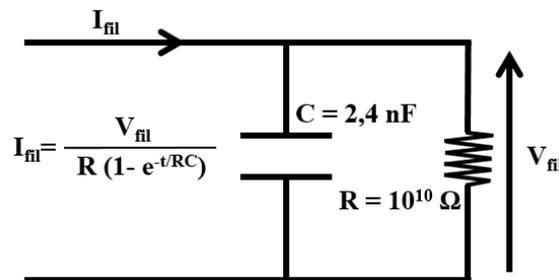


Figure 2.5 – Circuit électrique relié à chaque fil du profileur afin de mesurer la tension engendrée par l’impact d’ions.

Ainsi, la tension mesurée aux bornes de la résistance est reliée à l’intensité du courant circulant dans chaque fil du profileur et l’intensité du faisceau projectile I_{proj} est donnée par l’équation 2.2:

$$I_{\text{proj}} = \gamma f_{\text{grille}} \frac{V(\tau) - V_0}{R(1 - e^{-\tau/RC})} \quad (2.2)$$

avec τ le temps d'intégration pendant lequel la mesure est effectuée, $V(\tau)$ la somme des tensions mesurées sur l'ensemble des deux plans de fils du profileur à la fin du temps τ , f_{grille} un facteur tenant compte du fait que les fils du profileur ne recouvrent que 30 % de la surface totale du profileur, R et C correspondent à une résistance et un condensateur internes au profileur, avec $R = 100 \text{ G}\Omega$ et $C = 2,4 \text{ nF}$ ($R.C = 240 \text{ s}$). La tension $V(\tau)$ présente un offset V_0 et s'écrit $V(\tau) = a\tau + V_0$. La détermination de cet offset s'effectue en traçant la tension mesurée en fonction du temps d'intégration (figure 2.6), il est de l'ordre de $(90 \pm 3) \text{ mV}$.

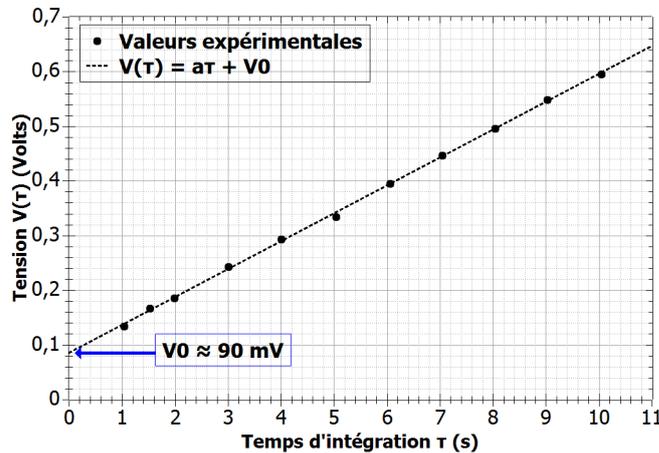


Figure 2.6 – Tension V mesurée sur les deux plans de fils du profileur en fonction du temps d'intégration pour une intensité de faisceau de 600 pA mesurée sur la cage de Faraday.

Il faut donc soustraire cet offset afin que l'intensité du faisceau d'ions calculée à partir des données du profileur soit constante quel que soit le temps d'intégration. Il est également nécessaire de corriger cette nouvelle valeur de l'intensité du faisceau par un facteur de correction γ qui peut varier entre 0,75 et 1,5 afin de retrouver la valeur du courant initialement mesurée par la cage de Faraday. Ce facteur de correction est en particulier nécessaire dans le cas où le faisceau est très fin, 1 à 2 mm de diamètre, alors que les fils du profileur sont quant à eux espacés de $500 \mu\text{m}$. On comprend alors que la position du faisceau sur le plan de fils du profileur (sur 1 fil ou entre 2 fils) peut vite créer une erreur dans la mesure du courant. Lors des mesures, ce facteur est régulièrement ajusté en mesurant le courant donné par la cage de Faraday.

2.2.1 Faisceau d'ions monochargés de très basse énergie produit par le canon à ions

La disponibilité des faisceaux d'ions via les lignes du GANIL (ARIBE, IRRSUD) étant limitée à quelques jours par an, l'installation d'un canon à ions sur le dispositif expérimental permet de passer outre cette limitation et de caractériser le dispositif expérimental hors ligne. Le canon à ions utilisé est un canon commercial PREVAC, modèle IS40E1 (alimentation électrique du canon à ions : modèle IS40E-PS) [48]. Il permet de produire des ions monochargés à partir de différents gaz. Les énergies des ions produits par cette source sont comprises dans la gamme $1 \text{ keV} - 5 \text{ keV}$, pour une intensité de l'ordre de quelques centaines de nA. Une photo du canon à ions ainsi qu'un schéma représentant son raccord au dispositif IMAGERI sont montrés sur la figure 2.7.

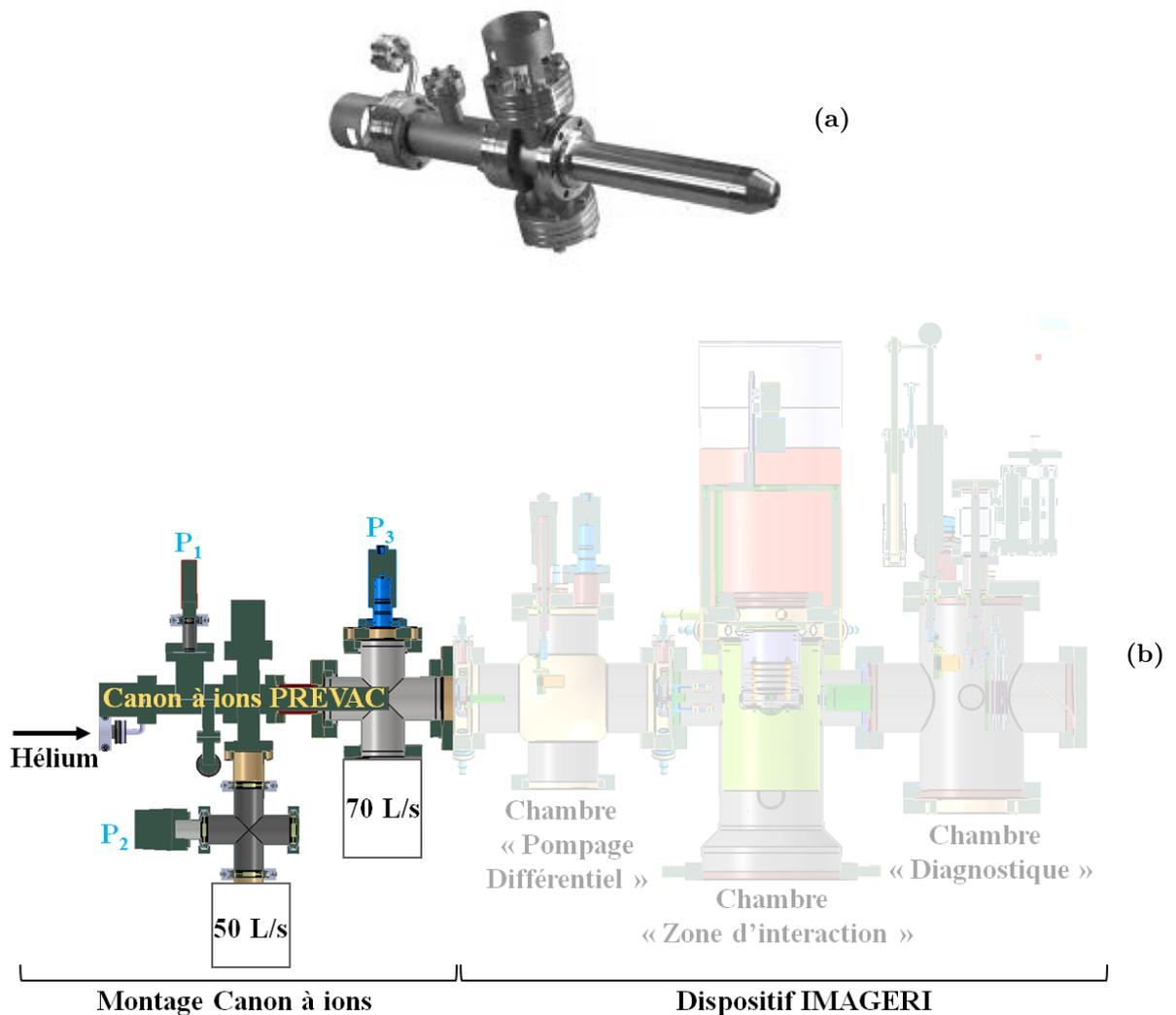


Figure 2.7 – Figure 2.7a : Photographie du canon à ions commercial PREVAC, modèle IS40E1. **Figure 2.7b :** Schéma de la partie projectile du dispositif lorsque le canon à ions est raccordé au dispositif expérimental IMAGERI

Le canon à ions comprend deux parties séparées par un diaphragme de 2 mm de diamètre: la source d'ions monochargés (ionisation du gaz par impact d'électrons) et la mise en forme du faisceau (lentilles électrostatiques et défecteurs). Le principe de production d'ions monochargés à l'intérieur du canon à ions est basé sur l'ionisation d'un gaz neutre par impact d'électrons. Le gaz d'hélium, injecté à l'aide d'une vanne microfuite dans la source d'ions est pompé à travers le diaphragme par une pompe turbomoléculaire Leybold 50 L/s. La quantité de gaz injectée est régulée de sorte que P_2 soit de l'ordre de 1.10^{-6} mbar. Le canon est monté sur une chambre pompée par une seconde pompe turbomoléculaire Pfeiffer 70 L/s qui atteint des pressions de l'ordre de 1.10^{-7} mbar.

Le gaz atomique est injecté dans la source d'ions (la tête du canon à ions) représentée sur la figure 2.8 qui contient notamment une anode (grille métallique) et une cathode (filament autour de l'anode) portées aux potentiels respectifs V_A et V_C avec $V_A - V_C = 120$ V. La cathode est constituée d'un fil de tungstène, qui, lorsqu'il est chauffé, émet des électrons qui sont ensuite accélérés par la différence de potentiel entre la cathode et l'anode. Ce courant d'électrons pouvant atteindre une intensité de 10 mA ionise le gaz atomique neutre en ions principalement monochargés. Les ions ainsi créés sont ensuite accélérés par la différence de

tension entre l'anode et l'anneau de centrage (porté à la masse) permettant la production d'un faisceau d'énergie E pouvant varier de 1 keV à 5 keV. L'électrode d'extraction intermédiaire, dont le potentiel V_{ex} correspond à un pourcentage (entre 60 % et 100 %) de la tension V_A appliquée à l'anode permet de focaliser le faisceau avant son émission hors de la tête du canon à ions. Si la trajectoire du faisceau d'ions après son émission hors de la source d'ions n'est pas dans l'axe du canon à ions, il est possible de la redresser avec deux déflecteurs électrostatiques (un déflecteur horizontal et un vertical). Deux lentilles électrostatiques permettent également de modifier le point focal du faisceau dans le dispositif expérimental.

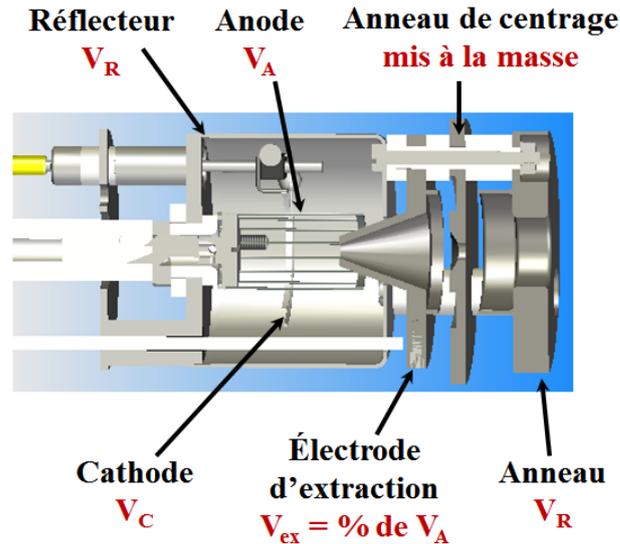


Figure 2.8 – Schéma de la tête du canon à ions commercial PREVAC, modèle IS40E1.

Le canon à ions permet, entre autre, de disposer de faisceaux d'ions de très basses énergies inaccessibles avec la plateforme ARIBE. Pour les besoins de cette thèse et particulièrement de la caractérisation du dispositif, un faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV a été largement utilisé.

2.2.2 Faisceau d'ions multichargés de l'ordre du keV délivré sur la plateforme ARIBE

ARIBE (Accélérateur pour la Recherche avec des Ions de Basse Énergie) est une plateforme du GANIL pour la recherche interdisciplinaire sur les ions de basse énergie. Elle permet de produire des ions multichargés [49] dans la gamme en énergie du keV. Afin de produire et d'accélérer les ions, une source d'ions ECR (Electrons Cyclotron Resonance) [50, 51] est utilisée.

Concernant les performances de la source, les ions formés possèdent une énergie cinétique de quelques eV dans le plasma et en sont extraits via la différence de potentiel V_S entre la chambre plasma et l'électrode d'extraction. Le faisceau d'ions créé possède une intensité allant de quelques μA à quelques centaines de μA [52]. La source est capable de produire un large panel d'ions allant de l'ion $^1\text{H}^+$ à l'ion $^{129}\text{Xe}^{33+}$ avec un potentiel d'extraction V_S variant entre 5 kV et 15 kV. Finalement, un ion de charge q et de masse m extrait à la tension V_S possède une énergie cinétique :

$$E_C = q \cdot V_S = \frac{1}{2} \cdot m \cdot v^2 \quad (2.3)$$

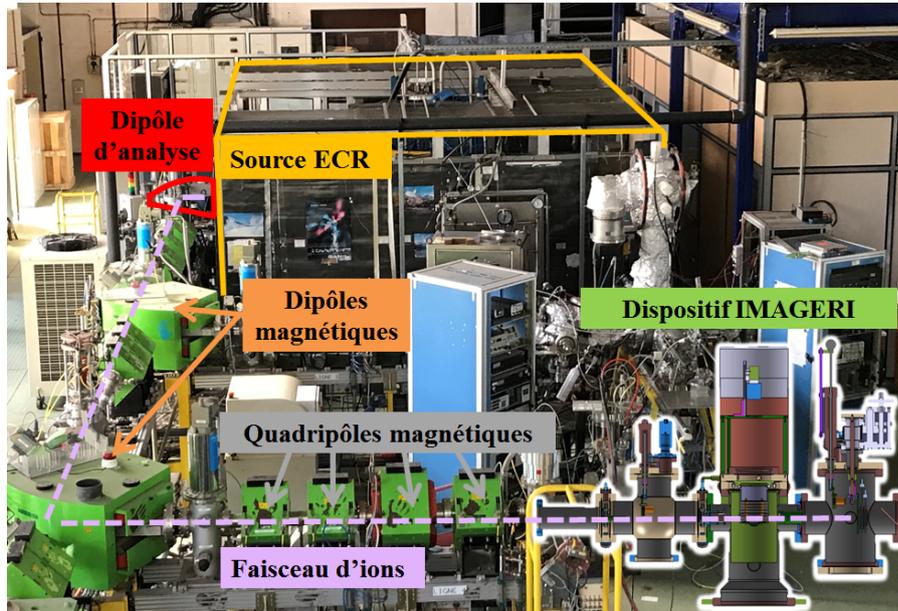


Figure 2.9 – Photographie légendée de la ligne de transport des ions sur la plateforme ARIBE.

Afin de séparer les différentes espèces extraites de la source, un dipôle magnétique est utilisé. Il est appelé dipôle d'analyse (visible sur la figure 2.9) et relie la source d'ions au reste de la ligne. Il permet une sélection des ions suivant leur rapport m/q avec m et q la masse et la charge de l'ion. En effet, un ion de masse m , de charge q et de vitesse v évoluant dans un champ magnétique B uniforme et perpendiculaire à son vecteur vitesse suit une trajectoire circulaire de rayon de courbure ρ_C . Ainsi, dans le dipôle d'analyse, les ions sont soumis à la composante magnétique de la force de Lorentz $\vec{F}_B = q \cdot \vec{v} \times \vec{B}$ et leur trajectoire est définie par l'équation du mouvement:

$$m \cdot \vec{a} = q \cdot \vec{v} \times \vec{B} \quad (2.4)$$

avec \vec{a} l'accélération radiale de l'ion définie par:

$$\vec{a} = -\frac{v^2}{\rho_C} \cdot \vec{u}_{\vec{r}} \quad (2.5)$$

Ainsi, le rayon de courbure ρ_C peut être déterminé à partir des équations 2.4 et 2.5:

$$\rho_C = \frac{m \cdot v}{q \cdot B} \quad (2.6)$$

Finalement, pour une valeur de champ magnétique fixe appliquée au dipôle d'analyse, il est possible de sélectionner les ions suivant leur rapport m/q :

$$B \cdot \rho_C = \frac{m}{q} \cdot v = \sqrt{\frac{m}{q}} \cdot \sqrt{2 \cdot V_s} \quad (2.7)$$

Le produit $B \cdot \rho_C$ correspond à la rigidité magnétique. Pour le dipôle d'analyse présent sur ARIBE, $B \cdot \rho_C$ ne peut dépasser 0,136 T.m [53], ce qui limite la nature des ions qui peuvent être sélectionnés, en particulier les ions lourds monochargés. Deux facteurs limitent donc le type de faisceau que la plateforme d'ARIBE peut délivrer: la tension d'extraction de la source V_s (entre 5 et 15 kV) et la rigidité magnétique $B \cdot \rho_C$ ($< 0,136$ T.m).

Comme illustré sur la figure 2.9, différents éléments d'optique ionique sont mis en place le long de la ligne de faisceau. Des multipôles électromagnétiques permettent le guidage et la mise en forme du faisceau grâce aux forces magnétiques $\vec{F} = q \vec{v} \times \vec{B}$. Plus particulièrement, les dipôles magnétiques permettent de faire tourner le faisceau d'ions, les quadrupôles permettent quant à eux de focaliser ou défocaliser le faisceau d'ions dans le plan orthogonal à la propagation du faisceau. Des jeux de défecteurs magnétiques horizontaux et verticaux permettent de corriger la trajectoire du faisceau d'ions si elle n'est pas parallèle à l'axe de la ligne. Enfin, des fentes horizontales et verticales sont présentes et permettent de couper le faisceau si ce dernier est trop large ou trop intense. Des éléments de contrôle comme des cages de Faraday et des profileurs sont également en place sur la ligne de faisceau et permettent de mesurer l'intensité du faisceau ainsi que de mesurer sa position afin de s'assurer de la bonne propagation des ions dans la ligne.

Au cours des différentes campagnes d'expériences sur la plateforme ARIBE, les faisceaux d'ions He^+ d'énergie 15 keV et N^{4+} d'énergie 60 keV ont été utilisés pour la calibration du spectromètre VMI et la mesure de sections efficaces absolues d'émission d'électrons de la molécule d'uracile.

2.2.3 Faisceau d'ions multichargés de l'ordre du MeV délivré sur la ligne d'IRRSUD

Le GANIL est un accélérateur de particules produisant des faisceaux d'ions multichargés (du carbone à l'uranium) dans la gamme en énergie du MeV, produits et pré-accélérés par des sources ECR et accélérés par différents cyclotrons. L'action combinée d'un champ électrique et magnétique permet d'accélérer les particules chargées. Un dispositif injecteur de particules chargées (provenant des sources ECR) est situé au voisinage du centre des cyclotrons. Un schéma de l'installation complète c'est-à-dire les sources ECR, les cyclotrons et les différentes lignes de faisceaux est visible sur la figure 2.10. Les ions produits par ces sources ECR référencées sur la figure 2.10 sont produits (comme sur la plateforme ARIBE) avec une énergie cinétique de l'ordre de quelques dizaines de keV et sont faiblement chargés (jusqu'à $q = 10$). Ils sont alors guidés et accélérés dans un des deux cyclotrons d'injection C01 ou C02 où leur énergie maximale peut atteindre jusqu'à 1 MeV/u (ces deux cyclotrons pré-accélèrent les ions qui seront ensuite injectés dans les deux cyclotrons principaux du GANIL CSS1 et CSS2). Pour les besoins du projet IMAGERI, et pour les études de physique moléculaire en lien avec l'hadronthérapie en général, il est intéressant d'utiliser des ions dont l'énergie cinétique est de l'ordre de quelques MeV car cela correspond à l'énergie du pic du Bragg (voir section 1.1).

Dans ce contexte, la ligne de faisceau IRRSUD est utilisée. Elle est située en sortie des deux cyclotrons injecteurs C01 et C02 (figure 2.10) et permet d'obtenir des ions multichargés dans une gamme d'énergies allant de 0,3 MeV/u (pour ^{238}U) à 1 MeV/u (pour ^{12}C) pour des états de charge maximum d'environ 10+. L'intensité des faisceaux d'ions dans la ligne IRRSUD est de l'ordre de quelques centaines de nA et peut aller jusqu'à quelques μA pour certains ions. À l'image de la plateforme ARIBE, l'axe de propagation du faisceau d'ions en sortie des cyclotrons d'injection C01 ou C02 fait un angle avec la ligne d'irradiation IRRSUD et un dipôle magnétique dont le champ maximum vaut 1,1 T relie ces deux parties de ligne. Il a pour objectif de sélectionner les ions en fonction de leur rapport m/q avec m et q la masse et la

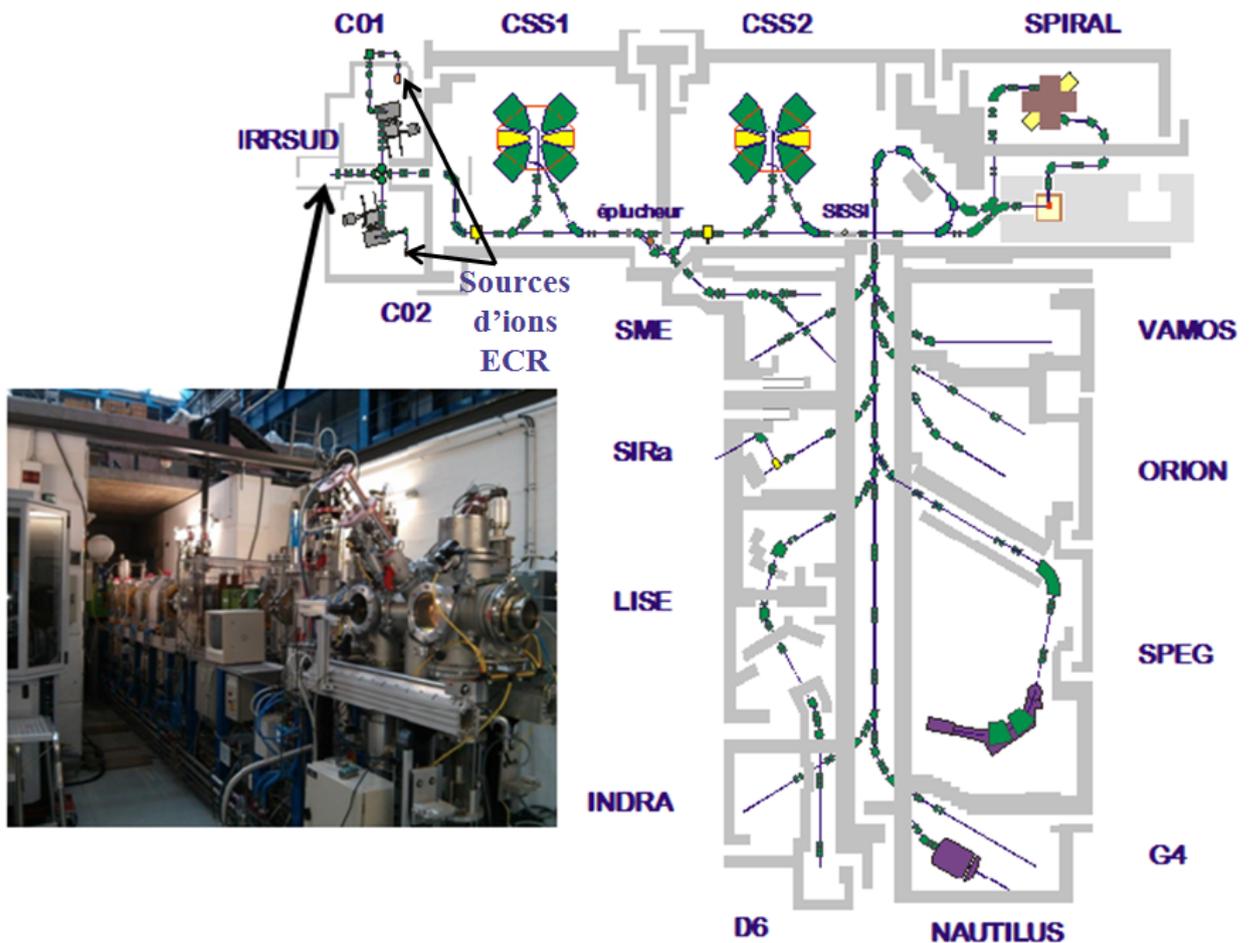


Figure 2.10 – Schéma de l'accélérateur d'ions et des différentes lignes de faisceaux du GANIL.

charge de l'ion. L'optique faisceau de la ligne IRRSUD est constituée d'un dipôle et quatre quadrupôles magnétiques qui permettent de focaliser ou défocaliser le faisceau d'ions ainsi que des déviateurs et deux paires de fentes verticales et horizontales. De plus, deux profileurs et deux cages de Faraday sont présents sur la ligne pour le diagnostic du faisceau. Les différentes caractéristiques de cette plateforme décrites ici sont disponibles dans le rapport de fin de projet de la plateforme IRRSUD [54]. Lors de la campagne d'expériences sur la plateforme IRRSUD, un faisceau d'ions $^{12}\text{C}^{4+}$ d'énergie 11,76 MeV a été utilisé. La ligne SME située en sortie du cyclotron CSS1 permet de délivrer des faisceaux d'ions d'énergies comprises entre 4 MeV/u et 13 MeV/u. Dans le cadre du projet IMAGERI, il est envisagé de raccorder le dispositif à cette ligne dans le futur.

En plus des faisceaux d'ions présentés dans cette partie, un faisceau de photons a également été utilisé afin de caractériser le dispositif et en particulier d'estimer la résolution du spectromètre qui sera discutée dans la section 3.5.2.

En conclusion de cette partie, le tableau 2.1 récapitule les caractéristiques principales des différents faisceaux d'ions projectiles disponibles et ceux utilisés pendant cette thèse :

Grandeur physique	Canon à ions	ARIBE	IRRSUD
Énergie des ions	1 keV - 5 keV	5 keV - 500 keV	12 MeV - 71,4 MeV
Vitesses min et max	0,01 u.a - 0,5 u.a	0,04 u.a - 0,55 u.a	3,5 u.a - 6,3 u.a
Intensité du faisceau	~ 300 nA	1 μ A - >350 μ A	1 nA - >3 μ A
Faisceaux utilisés	He ⁺ (4keV)	He ⁺ (15keV) et N ⁴⁺ (60keV)	¹² C ⁴⁺ (11,76 MeV)
Vitesses utilisées	0,17u.a	0,3u.a He ⁺ et 0,17u.a N ⁴⁺	5 u.a
Intensités utilisées	100 pA	100 pA	100 pA

Table 2.1 – Caractéristiques des différents faisceaux projectiles produits à l’aide du canon à ions et des plateformes du GANIL, ARIBE et IRRSUD.

2.2.4 Faisceau de photons délivré par une lampe UV

Afin d’effectuer différentes études sur le dispositif expérimental en vue de sa validation, notamment la calibration en énergie (section 3.4) et la résolution du spectromètre (section 3.5), il est intéressant de disposer d’une source de particules permettant l’émission d’électrons d’énergies discrètes. Ainsi, une lampe UV commerciale [55] visible sur la figure 2.11 capable de créer des photons dans une gamme d’énergie entre 10 eV et 50 eV (selon le gaz support) est utilisée.



Figure 2.11 – Photographie de la lampe UV utilisée afin de créer un faisceau de photons d’énergie 21,22 eV.

Son fonctionnement se base sur l’injection d’un gaz dans la lampe UV via une vanne micro-fuite qui traverse ensuite un capillaire en verre de quelques mm de diamètre dans lequel les atomes du gaz sont excités par un champ RF. Ces atomes se dés excitent par émission d’un photon. Dans le cadre de cette thèse, un gaz atomique d’hélium a été utilisé avec la lampe UV. Les mécanismes provoquant l’émission des photons, à savoir, l’interaction entre le champ RF émis par la lampe UV et un atome d’hélium ainsi que la dés excitation radiative sont schématisés sur la figure 2.12.

L’excitation d’atomes d’hélium par un champ RF favorise la formation de l’état simplement excité He I 1s2p (¹P₁) de nombre d’onde $\kappa = 1/\lambda = 171134,8970 \text{ cm}^{-1}$ [56, 57] depuis son état fondamental noté 1s² (¹S₀), un des deux électrons reste sur la sous-couche 1s tandis que le deuxième électron est envoyé sur la sous-couche externe 2p. L’état excité He I possède une durée de vie de 5,66 ms [58], et en revenant dans son état fondamental, le cortège électronique d’un atome d’hélium émet une radiation de longueur d’onde $\lambda = 58,43 \text{ nm}$, soit un photon d’énergie $E_\varphi = 21,22 \text{ eV}$. L’énergie des photons étant bien inférieure à une centaine d’électrons-Volts, leur mode d’interaction dominant avec la matière (atomes ou molécules en phase gaz) est l’effet

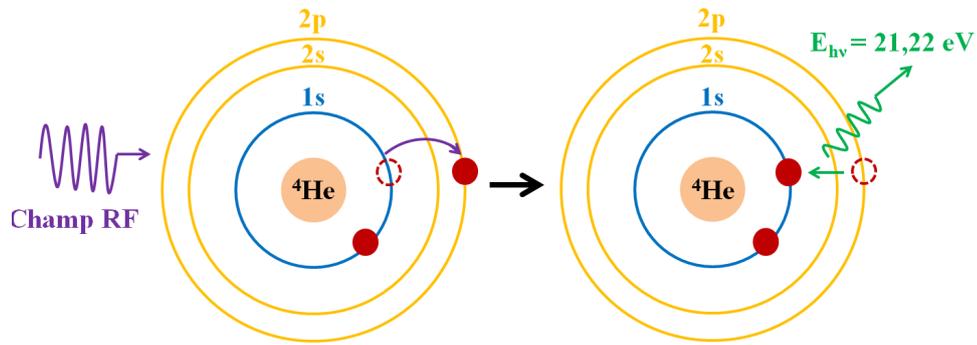


Figure 2.12 – Schéma de l’excitation d’un atome d’hélium (He I) par un champ RF d’une puissance de 20 W (gauche) et décroissance de l’état excité avec émission d’un photon UV (droite)

photoélectrique [59, 60]. Ainsi, lors de l’interaction d’un photon incident avec la matière, toute l’énergie du photon est transférée au cortège électronique d’un atome et, si l’énergie de liaison E_L d’un des électrons est inférieure à l’énergie du photon incident E_φ , l’atome est ionisé et l’électron émis possède une énergie cinétique :

$$E_{e^-} = E_\varphi - E_L \quad (2.8)$$

Afin que la lampe fonctionne dans un régime stable, c’est-à-dire que la densité de photons émise par interactions entre le champ RF et le gaz atomique d’hélium soit suffisante pour observer un signal sur le détecteur, il est nécessaire d’injecter une grande quantité d’hélium dans le dispositif. Elle est ajustée avec la vanne micro-fuite afin que la couleur des rayonnements se situe entre le rose pâle et le blanc laiteux, ce qui correspond à une pression $P_1 \simeq 5 \cdot 10^{-4}$ mbar dans la lampe UV. La nécessité d’injecter une telle quantité de gaz dans le dispositif détériore la qualité du vide dans le dispositif et notamment dans la chambre contenant la zone d’interaction.

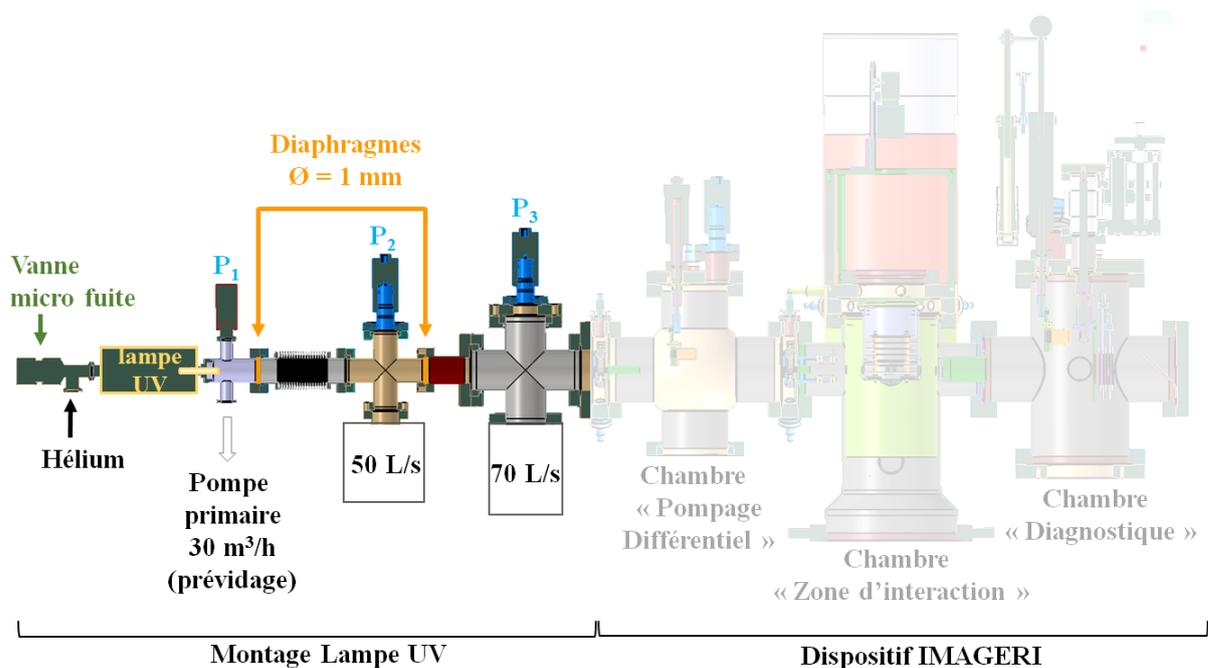


Figure 2.13 – Schéma de la partie projectile du dispositif lorsque la lampe UV est raccordée au dispositif expérimental IMAGERI.

Pour assurer un bon niveau de vide global dans le dispositif expérimental, deux étages de pompage différentiel sont installés entre la lampe UV et le dispositif IMAGERI (figure 2.13) pompés respectivement par une pompe turbomoléculaire Leybold 50 L/s et une pompe turbomoléculaire Pfeiffer 70 L/s connectées à une pompe primaire Leybold Scrollvac 30m³/h. Une perspective d'amélioration de la lampe UV serait d'ajouter une fenêtre permettant de filtrer uniquement les photons de 21,22 eV émis par l'hélium et de bloquer le flux de gaz d'hélium dans le reste du dispositif.

Le premier étage de pompage différentiel possède à ses extrémités deux diaphragmes de 1mm de diamètre, le premier étant monté sur un soufflet (figure 2.13). Ces diaphragmes permettent d'une part d'améliorer le vide en limitant la quantité d'hélium injectée dans le dispositif expérimental ($P_2 \simeq 5.10^{-4}$ mbar et $P_3 \simeq 10^{-6}$ mbar) et d'autre part de s'assurer que le faisceau est centré et fin (figure 2.2). À titre indicatif, si la lampe UV fait un angle de 1° avec l'axe du faisceau projectile, alors, au niveau de la zone d'interaction (à une distance d'environ 50 cm de la lampe UV) le faisceau subira finalement une déviation de 8 mm.

2.3 Les faisceaux cibles

Le faisceau projectile croise le faisceau cible perpendiculairement au niveau de la zone d'interaction au centre du spectromètre VMI. Pendant cette thèse, deux types de faisceaux cibles ont été utilisés: un jet supersonique atomique de gaz rares (Ar et Kr) décrit en section 2.3.1 et des biomolécules (adénine et uracile) en phase gazeuse (section 2.3.2). Les configurations de la partie cible lorsque le jet supersonique (figure 2.14a) ou le four (figure 2.14b) sont raccordés sur le dispositif sont également illustrées sur ces figures.

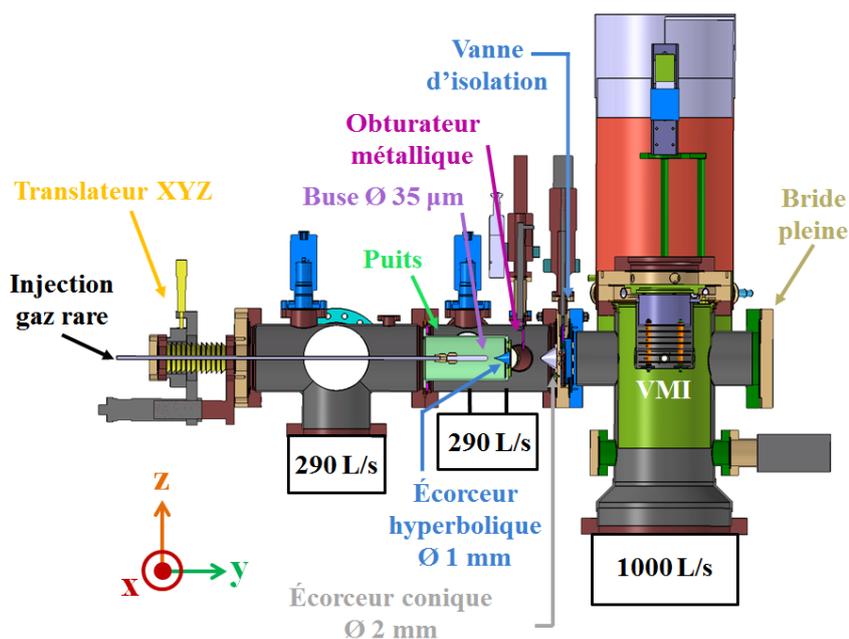


Figure 2.14a – Coupe de la partie cible du dispositif expérimental IMAGERI lorsque le jet supersonique est raccordé au dispositif.

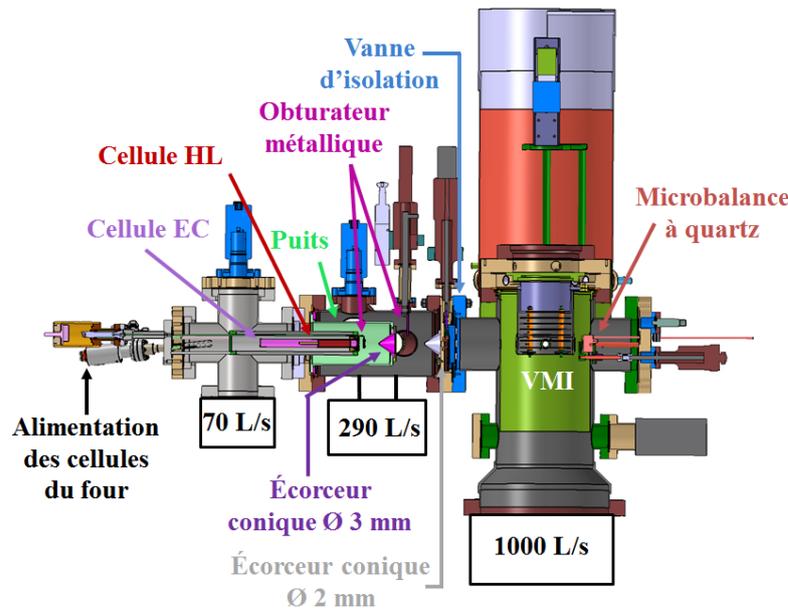


Figure 2.14b – Coupe de la partie cible du dispositif expérimental IMAGERI lorsque le four permettant la mise en phase gazeuse des biomolécules est raccordé au dispositif.

Chaque chambre de la partie cible du dispositif expérimental est reliée à une pompe turbomoléculaire, elle-même reliée à une pompe primaire (Leybold Scrollvac 30m³/h) permettant le pompage des atomes ou molécules qui ne traversent pas l'ensemble des écorceurs. Les deux configurations présentées sur les figures 2.14a et 2.14b sont assez similaires, seule la première chambre et les écorceurs diffèrent. Dans le cas du jet supersonique, la première chambre est pompée par une pompe turbomoléculaire Leybold 290 L/s, alors que le four est monté dans une plus petite chambre raccordée à une pompe turbomoléculaire Pfeiffer de capacité 70 L/s. La deuxième chambre raccordée à une pompe turbomoléculaire Leybold 290 L/s contient les deux écorceurs permettant de définir la taille du faisceau cible. Le puits permet de placer les écorceurs à une distance égale à 75 mm l'un de l'autre, assurant ainsi une transmission suffisante de l'intensité du faisceau cible entre les différentes chambres de pompage différentiel [61] et permettant ainsi d'obtenir un faisceau cible suffisamment dense dans la zone d'interaction. Les obturateurs métalliques sont des petites pièces pouvant être mises en travers de la trajectoire des faisceaux cibles. Celui du four est actionné par un moteur à courant continu, celui se trouvant entre les deux écorceurs et utilisé pour le jet supersonique est actionné par un vérin pneumatique. Ces obturateurs permettent de mesurer alternativement le signal et le bruit de fond selon des cycles courts de quelques dizaines de secondes afin d'éviter qu'une dérive lente de l'intensité du faisceau projectile n'impacte les résultats. Le second écorceur est monté sur une vanne qui permet d'isoler la partie cible de la partie projectile du dispositif afin d'éviter de remettre la partie projectile à la pression atmosphérique en cas de changement de faisceau cible. Les figures 2.15a et 2.15b schématisent la propagation du faisceau cible dans le spectromètre VMI, ainsi que la zone de recouvrement cylindrique (de longueur l_{Z1} et de rayon r_{Z1}) entre les deux faisceaux.

Dans le cadre des biomolécules en phase gazeuse, une microbalance à quartz (décrite dans la section 2.3.2.2) permet de mesurer la densité ρ_{cible} du flux du faisceau de biomolécules pour la détermination des sections efficaces absolues. Un troisième faisceau cible a été également développé durant cette thèse : il s'agit d'un faisceau de nanoparticules métalliques produites

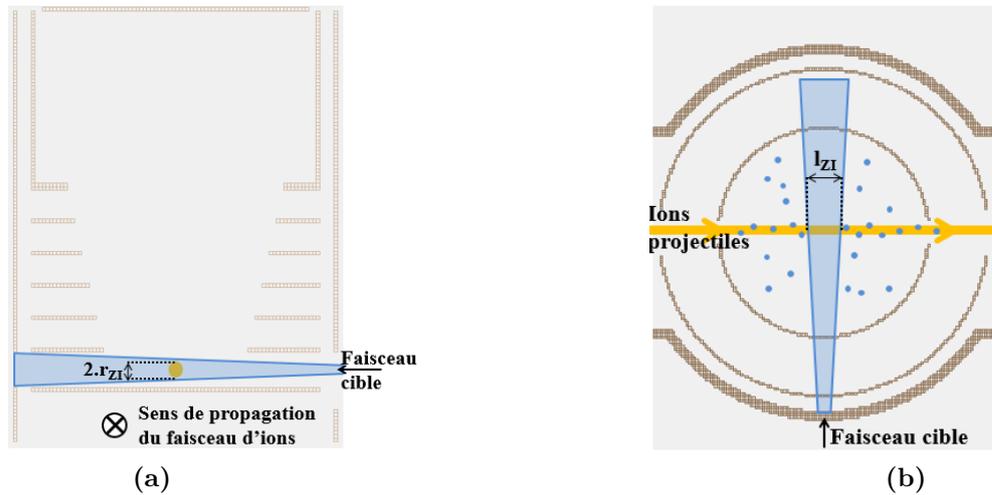


Figure 2.15 – Schémas montrant le recouvrement entre le faisceau d’ions projectiles (orange) et le faisceau cible (bleu). **Figure 2.15a** : Profil de la zone d’interaction. **Figure 2.15b** : Vue de dessus de la zone d’interaction, les points bleus représentent les atomes ou molécules du faisceau cible se diffusant dans le spectromètre VMI.

et injectées dans le dispositif à l’aide d’un nébuliseur et d’une lentille aérodynamique. Ce faisceau est directement lié aux perspectives du projet IMAGERI présentées dans la section 1.1, mais les caractéristiques et le fonctionnement du nébuliseur et de la lentille aérodynamique seront précisées dans les perspectives de cette thèse (chapitre 5). La suite de cette partie se concentre uniquement sur la description du jet supersonique (section 2.3.1) et du four utilisé pour sublimer les biomolécules (section 2.3.2).

2.3.1 Atomes de gaz rares : jet supersonique

En physique des collisions, les jets atomiques ou moléculaires sont formés par l’expansion d’un gaz depuis une enceinte de pression P_0 et de température T_0 à travers une buse de petite taille [62] placée dans une enceinte sous vide (à défaut une enceinte où la pression est inférieure à la pression du réservoir). Ces jets sont caractérisés par deux grandeurs: D le diamètre de la buse et λ_0 le libre parcours moyen des atomes du gaz qui représente la distance moyenne que parcourent les différents atomes du gaz entre deux collisions. Elle est calculée par l’équation 2.9 issue de [63] :

$$\lambda_0 = \frac{k_B \cdot T_0}{\sqrt{2} \cdot P_0 \cdot \pi \cdot d^2} \quad (2.9)$$

où $k_B = 1,380 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$, P_0 et T_0 sont la pression et la température du gaz, et d le diamètre d’un atome de gaz. Dans le cas où $\lambda_0 \gg D$, le jet est dit effusif et dans ce cas, les atomes s’échappent du réservoir sans rentrer en collision les uns avec les autres, de plus, le faisceau ainsi créé a tendance à se disperser après la buse. Si la pression avec laquelle les atomes sont injectés vers la buse augmente ou si le diamètre de la buse diminue de manière à avoir $\lambda_0 \ll D$, le jet est dit supersonique. Dans ce cas, les atomes du gaz vont s’entrechoquer pendant la phase d’expansion à travers la buse, entraînant une conversion de l’énergie totale disponible en énergie cinétique le long de l’axe du faisceau. Il en résulte un faisceau atomique quasi-unidirectionnel. Ce phénomène s’explique par une diminution des degrés de liberté des atomes durant la phase d’expansion. Ainsi, pour un gaz atomique de nature fixée, les régimes effusif ($\lambda_0 \gg D$) et supersonique ($\lambda_0 \ll D$) peuvent être obtenus en modifiant la pression d’injection du gaz dans

le dispositif et/ou le diamètre de la buse. Lors des premières expériences sur le dispositif, un gaz cible d'argon était injecté dans un capillaire de diamètre interne de l'ordre du mm avec une pression $p \simeq 10^{-3}$ mbar à l'aide d'une vanne micro-fuite. En reprenant les résultats précédemment présentés dans cette section il vient $\langle \lambda_0 \rangle = 30$ mm, bien supérieur devant le diamètre interne $\varnothing_{\text{capillaire}} = 1$ mm du capillaire. Un jet effusif était donc injecté dans le dispositif avec pour conséquence un faisceau de faible densité et mal défini ne permettant pas d'obtenir un signal satisfaisant sur le détecteur pour la caractérisation du dispositif. Il a donc été décidé de développer un jet supersonique.

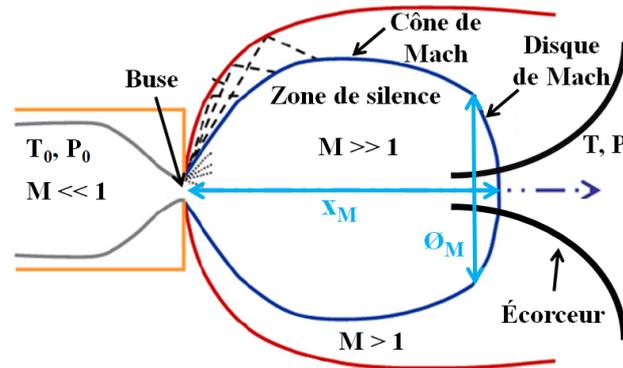


Figure 2.16 – Schéma de l'expansion d'un gaz atomique à travers une buse et des différentes zones caractéristiques formées par le jet supersonique après l'expansion.

Comme montré sur la figure 2.16, l'expansion d'un gaz depuis une enceinte de pression P_0 et de température T_0 via une buse de diamètre D est possible dans une enceinte placée sous vide à la pression P . Lors de l'expansion, la vitesse du gaz augmente rapidement et peut être exprimée à l'aide du nombre de Mach noté M_a et défini selon l'équation 2.10 comme étant le rapport de la vitesse du gaz dans un milieu considéré (notée v) sur la vitesse du son dans ce même milieu (notée c_s) [64]:

$$M_a = \frac{v}{c_s} \quad (2.10)$$

Le régime du jet est supersonique dans les régions $M_a \gg 1$. Les différentes ondes de choc délimitent une zone idéale appelée cône de Mach (ou zone de silence) [65, 66] dans laquelle les propriétés thermodynamiques du gaz sont constantes et les collisions quasi-inexistantes, elle est délimitée par le disque de Mach. En pratique, afin d'avoir un jet de densité et vitesse maximales, il est intéressant de placer l'écorceur dans la zone de silence, comme indiqué sur la figure 2.16. La distance théorique x_M entre la buse et la limite de la zone de silence ainsi que le diamètre du disque de Mach \varnothing_M sont donnés par les équations suivantes [64, 67]:

$$x_M = 0,67.D.\sqrt{\frac{P_0}{P}} \quad (2.11)$$

$$\varnothing_M = 0,36.D.\sqrt{\frac{P_0}{P} - 3,9} \quad (2.12)$$

avec P_0 et P les pressions du réservoir et de l'enceinte sous vide, respectivement, et D le diamètre de la buse. Par exemple, pour une buse de diamètre $D = 35 \mu\text{m}$, $P_0 = 6,5$ bar et $P = 10^{-3}$ mbar, il vient $x_M = 60$ mm et $\varnothing_M = 32$ mm.

La thermodynamique de l'expansion du jet à travers la buse du jet est aussi en mesure de donner une formule théorique capable d'estimer la vitesse du jet supersonique. À partir d'un

bilan enthalpique à l'entrée et à la sortie de la buse [68], il est possible d'écrire:

$$h_0 = h + \frac{v^2}{2} \quad (2.13)$$

avec h_0 l'enthalpie massique du gaz dans le réservoir, son énergie cinétique y est considérée nulle. h correspond à l'enthalpie par unité de masse du gaz après l'expansion du jet et $v^2/2$ son énergie cinétique (également normalisée par la masse du gaz). Aussi, pour les gaz rares, une variation d'enthalpie est donné par:

$$dh = C_p \cdot dT \quad (2.14)$$

avec C_p la capacité calorifique du gaz. En combinant les équations 2.13 et 2.14, il vient:

$$v^2 = 2 \cdot (h_0 - h) = 2 \int_{T_{\text{buse}}}^{T_0} C_p \cdot dT \quad (2.15)$$

La température du gaz dans le réservoir est notée T_0 . En raison du refroidissement du gaz à la température T_{buse} lors de la phase d'expansion du jet supersonique à travers l'écorceur, le rapport T_0/T_{buse} est très supérieur à 1 et il est possible de faire l'approximation $T_0 - T_{\text{buse}} \simeq T_0$ et d'en déduire la vitesse des atomes du gaz correspondant à la conversion de l'énergie thermique en vitesse:

$$v_\infty = \sqrt{2 \cdot C_p \cdot T_0} = \sqrt{\frac{2 \cdot k_B}{m} \left(\frac{\gamma}{\gamma - 1} \right) \cdot T_0} \quad (2.16)$$

k_B est la constante de Boltzmann ($k_B = 1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$), m la masse de l'atome considéré ($m(\text{Ar}) = 40 \text{ uma}$), $C_p = \frac{2k_B}{m} \left(\frac{\gamma}{\gamma - 1} \right)$ pour un gaz parfait, γ est le coefficient de Laplace, et pour un gaz d'argon monoatomique $\gamma = 5/3$.

Les jets supersoniques permettent notamment une amélioration de la densité du faisceau et une répartition plus étroite des vitesses dans le jet [69, 70]:

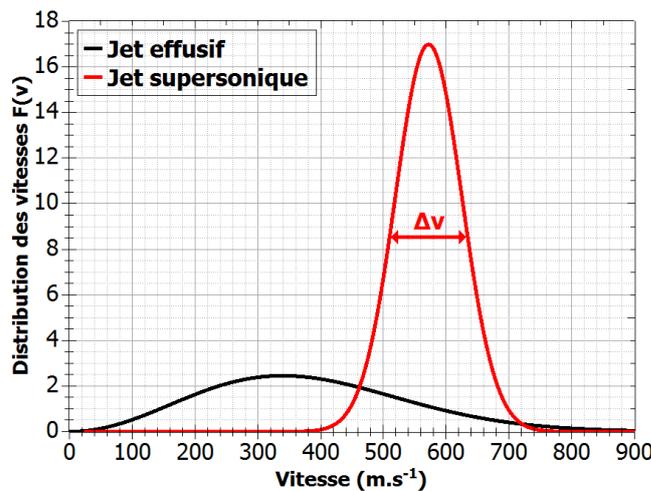


Figure 2.17 – Exemple de la distribution des vitesses d'un jet effusif et d'un jet supersonique pour un gaz d'argon à la température $T_0 = 293 \text{ K}$.

La distribution $F(v)$ des vitesses dans un jet supersonique peut être obtenue en utilisant la

même approche cinétique que pour les jets effusifs (Maxwell-Boltzmann) [71, 72] :

$$F(v) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \cdot \left(\frac{m}{k_B \cdot T_0}\right)^{3/2} \cdot v^2 \cdot \exp\left(\frac{m \cdot (v - u)^2}{2 \cdot k_B \cdot T_0}\right) \quad (2.17)$$

Dans l'équation 2.17, u est un facteur homogène à une vitesse tenant compte du refroidissement du gaz lors de son expansion à travers la buse :

$$u = \sqrt{\frac{2 \cdot k_B \cdot T_0}{m}} \cdot \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma - 1}} \cdot \sqrt{1 - \frac{T_{\text{buse}}}{T_0}} \quad (2.18)$$

avec T_0 la température ambiante du gaz et T_{buse} la température du jet au niveau de la buse. Dans le cas d'un jet effusif, il n'y a pas de refroidissement du gaz, ainsi, dans l'équation 2.18, le terme $T_{\text{buse}}/T_0 = 1$ et $u = 0$. L'équation 2.17 se ramène donc à une équation de Maxwell-Boltzmann classique. Ainsi, la figure 2.17, qui montre les distributions de vitesses pour un jet effusif et un jet supersonique (gaz d'argon à une température ambiante $T_0 = 293$ K) permet tout d'abord de remarquer que l'élargissement des vitesses Δv du jet supersonique est de l'ordre d'une centaine de $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ [71, 73] contre quelques centaines de $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ pour un jet effusif. Cet affinement de la répartition des vitesses du jet supersonique est causé par le refroidissement du gaz lors de son passage dans la buse. De plus, il est possible d'observer que la vitesse la plus probable du jet supersonique est plus élevée que celle du jet effusif. Ce phénomène est causé par les nombreuses collisions entre les atomes du gaz qui augmentent l'énergie cinétique globale du système. D'autre part, la densité d'un jet supersonique se situe entre 10^{11} et 10^{15} particules/ cm^3 [74].

Sur le dispositif IMAGERI, le jet supersonique est simplement formé d'un tube en inox de 6 mm de diamètre avec à son extrémité une buse possédant un orifice de quelques dizaines de μm (figure 2.18b).

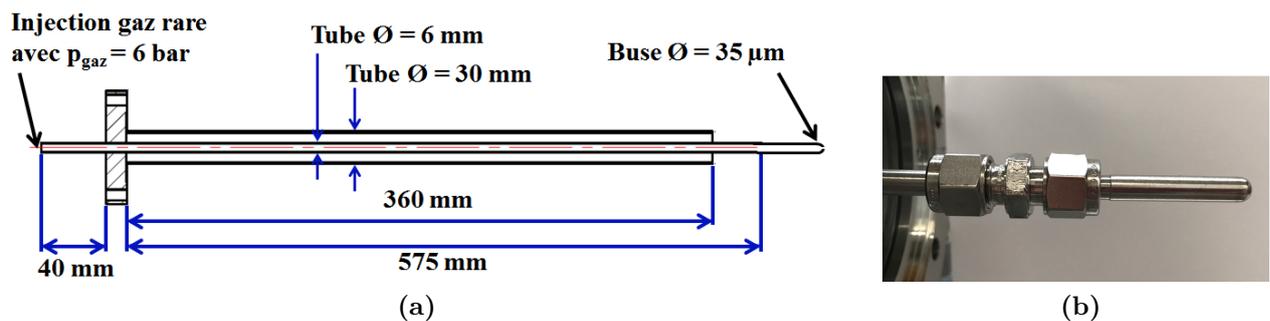


Figure 2.18 – Figure 2.18a : Schéma du jet supersonique utilisé sur le dispositif expérimental IMAGERI. **Figure 2.18b :** Photographie de la buse utilisée sur le jet supersonique dans le dispositif expérimental.

Cette buse de marque Lenox laser est un tube creux, fermé à une extrémité et possédant au centre un orifice percé au laser. Au cours de cette thèse, plusieurs tailles de buses ont été testées, mais par la suite, l'ensemble des expériences ont été réalisées avec une buse possédant un diamètre de $35 \mu\text{m}$. En raison de la longueur du tube et de sa masse, l'extrémité a tendance à s'affaisser et le faisceau possède un angle à la sortie de la buse. Pour palier à ce problème, un tube de 30 mm de diamètre est installé avec des vis de serrage à son extrémité et assure le réglage de l'horizontalité du jet supersonique (figure 2.18a). Le jet est également monté sur

un translateur XYZ (figure 2.14a) qui permet de corriger le centrage du faisceau afin qu'il traverse l'ensemble des deux écorceurs sans être coupé. L'écorceur le plus proche de la buse du jet est un écorceur hyperbolique de diamètre 1 mm (figure 2.19a), le deuxième écorceur est de forme conique et possède un diamètre de 2 mm (figure 2.19b). L'écorceur hyperbolique permet une meilleure transmission du jet que l'écorceur conique par une diminution du phénomène de diffraction du jet. Il est placé dans la zone de silence créée par le jet supersonique. Le translateur permet également de modifier la distance entre la buse et l'écorceur hyperbolique (de 0,3 mm à quelques cm), cette distance ayant un impact direct sur la quantité de signal enregistrée par le spectromètre. Cette distance est l'objet de la section 3.3.1.

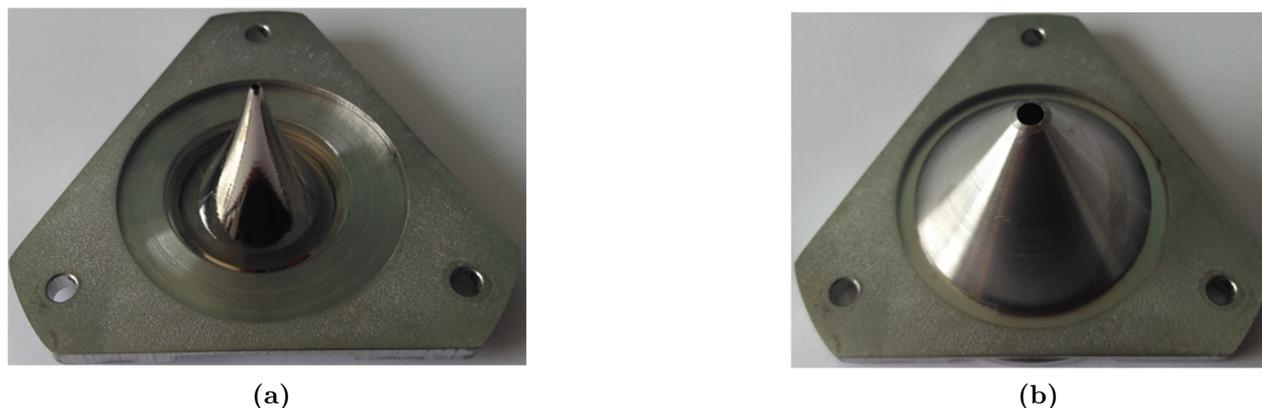


Figure 2.19 – Figure 2.19a : Photographie de l'écorceur hyperbolique de diamètre 1 mm.
Figure 2.19b : Photographie de l'écorceur de forme conique et de diamètre 2 mm.

Les faisceaux cibles atomiques ont été utilisés uniquement pour la caractérisation et la calibration du spectromètre, ces aspects seront présentés dans le chapitre 3. La configuration du jet supersonique présentée ici n'est pas optimale mais elle a permis l'obtention de résultats fiables ne nécessitant pas d'améliorations supplémentaires. La buse actuelle pourrait être remplacée par une buse "pleine" de plusieurs centimètres de long [75] traversée de bout en bout par un capillaire de quelques dizaines de μm à la place d'un simple orifice afin d'améliorer la propriété monodirectionnelle de l'écoulement. L'étude du rendement du doublet d'écorceurs permettrait aussi de trouver leur position et diamètre optimaux.

2.3.2 Biomolécules en phase gazeuse

Cette partie décrit le moyen de production des biomolécules en phase gazeuse (section 2.3.2.1) à l'aide d'un four commercial. Une seconde partie (2.3.2.2) détaille le principe de fonctionnement de la micro-balance à quartz utilisée afin de déterminer la densité ρ_{cible} du faisceau de biomolécules. Enfin, la section 2.3.2.3 explique le fonctionnement du spectromètre de masse quadripolaire (QMS) qui a été utilisé pendant cette thèse afin de s'assurer de l'absence de dégradation thermique lors de la mise en phase gazeuse des biomolécules.

2.3.2.1 Production du faisceau des molécules

Les molécules étudiées au cours de cette thèse, l'adénine et l'uracile, sont initialement présentes sous forme de poudres blanches commerciales pures à plus de 99%. Afin d'en faire un faisceau moléculaire gazeux, elles sont insérées dans un creuset en céramique entièrement démontable et supportant des températures jusqu'à 1500 °C puisqu'il est conçu pour sublimer

des atomes métalliques (Ag, Au, Pt, Gd). Le creuset est placé dans un four commercial CREATEC de type DFC (Dual Filament Cell) [76], c'est-à-dire, possédant deux cellules de chauffage indépendantes EC (Effusion Cell) et HL (Hot Lip). Un schéma illustrant une coupe du four et des deux cavités EC et HL est représenté sur la figure 2.20b. Les deux cellules chauffantes de ce four sont alimentées par une alimentation électrique CREATEC PS-800 [77]. La position de l'obturateur visible sur la figure 2.20b est réglable, il sert à bloquer le jet de biomolécules afin de mesurer le signal et le bruit de fond selon des cycles de quelques dizaines de secondes. Un schéma illustrant les différentes parties du creuset est visible sur la figure 2.20a.

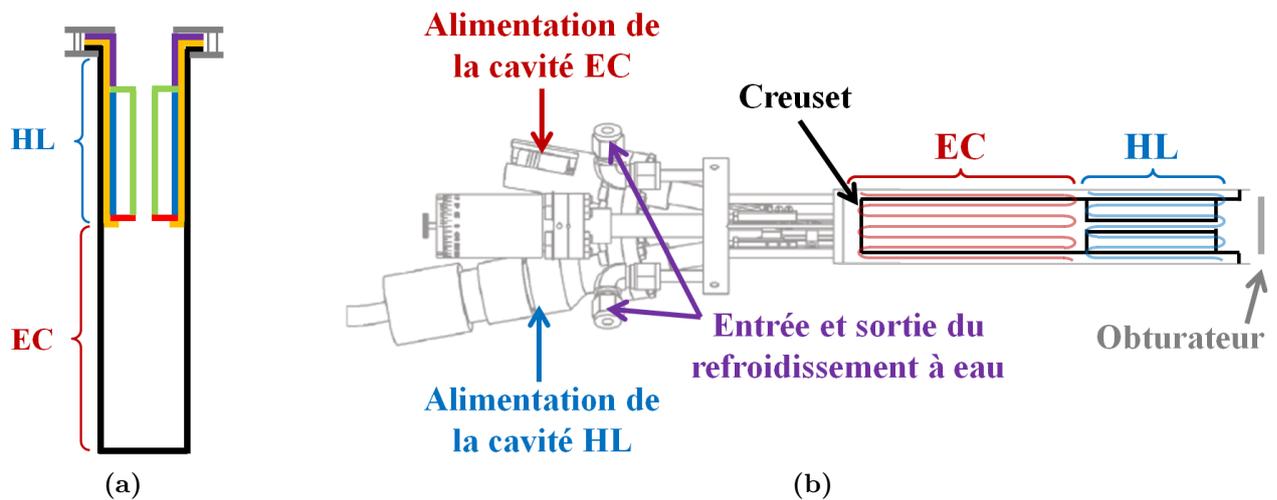


Figure 2.20 – Figure 2.20a : Creuset en céramique ou en aluminium dans lequel sont placées les biomolécules sous forme de poudres commerciales. **Figure 2.20b :** Schéma montrant le profil du four et du creuset avec les deux cavités EC et HL.

La cellule EC est remplie avec des biomolécules (en laissant un intervalle vide d'environ 1 cm avec le premier diaphragme de la cellule HL), le creuset est ensuite assemblé et inséré dans le four. Dans le dispositif, le four étant placé dans une enceinte sous un vide poussé ($\sim 10^{-8}$ mbar), le chauffage des biomolécules se fait par contact entre des filaments disposés sur la surface interne du four comme illustré sur la figure 2.20b et le creuset contenant les biomolécules. La cellule HL n'est pas indispensable mais elle permet d'éviter la condensation des molécules sublimées dans la cellule EC après leur expansion sous l'effet de la chaleur, ainsi, la température T_{HL} de la cellule HL est supérieure à la température T_{EC} de la cellule EC de plusieurs dizaines de degrés Celsius. En augmentant la température des cellules du four, le nombre de molécules sublimées augmente également et le faisceau devient donc plus dense. Cependant, passé une certaine température, la chaleur casse les liaisons covalentes existantes entre les atomes et fragmente les molécules. Les températures typiques à utiliser se situent autour de $T_{EC} = 150$ °C et $T_{HL} = 250$ °C. Une étude approfondie sur les températures à utiliser pour chaque biomolécule est détaillée dans la section 3.2.2.1. Afin de sublimer des atomes d'argent présents sous forme de billes, il convient d'utiliser au minimum les températures $T_{EC} = 1200$ °C et $T_{HL} = 1250$ °C. Pour de telles températures, le refroidissement à eau présenté sur la figure 2.20b est utilisé. Le jet atomique ou moléculaire est émis du four via un tube de diamètre interne égal à 3 mm servant à diriger le faisceau gazeux (représenté en vert sur la figure 2.20a). La vitesse la plus probable v_{cible} des biomolécules de masse m (en kg) à la sortie du four provient de l'énergie thermique E_{th} reçue dans le four à la température T exprimée en Kelvin (la constante de Boltzmann $k_B = 1,380.10^{-23} \text{J.K}^{-1}$) :

$$E_{\text{th}} = \frac{3}{2} \cdot k_B \cdot T = \frac{1}{2} \cdot m \cdot v_{\text{cible}}^2 \quad (2.19)$$

$$v_{\text{cible}} = \sqrt{\frac{3 \cdot k_B \cdot T}{m}} \quad (2.20)$$

A titre indicatif, les vitesses des molécules d'adénine et d'uracile sont de l'ordre de 180 m.s⁻¹ pour des températures autour de 200°C. Le jet de biomolécules, contrairement au jet d'atomes n'est pas dans un régime supersonique mais effusif. Cependant, il est tout aussi important que le faisceau soit le mieux défini possible au niveau de la zone d'interaction, où les faisceaux projectile et cible se recouvrent. La figure 2.14b montre les différents éléments utilisés afin d'affiner et de diriger le faisceau de biomolécules.

L'extrémité du four se trouve dans un puits afin qu'elle se rapproche de la zone d'interaction (plus l'extrémité est proche de la zone d'interaction et plus le faisceau sera dense). Comme expliqué dans l'introduction de cette section, le puits sert à rapprocher les deux écorceurs pour un fonctionnement optimal de ce doublet. Il permet également d'éviter que les biomolécules se condensent directement sur les parois des chambres du dispositif ou sur les hélices des pompes turbomoléculaires. Le premier écorceur de diamètre $\varnothing_1 = 3$ mm est situé à 28 mm de l'extrémité du four et permet de bloquer les molécules dont l'angle d'émission est trop éloigné de l'axe de propagation du faisceau cible. Le deuxième écorceur de diamètre $\varnothing_2 = 2$ mm situé à 75 mm du premier, permet une seconde correction de la trajectoire des particules: il bloque les molécules sortant du premier écorceur avec un angle d'émission supérieur à 1,15° par rapport à l'axe de propagation du faisceau cible. Contrairement au jet supersonique, l'écorceur le plus proche de l'extrémité du four n'est pas hyperbolique mais conique.

Un calcul géométrique présenté dans la section 3.2.2.2 permet d'estimer la taille du faisceau de biomolécules au niveau de la zone d'interaction. Afin d'évaluer les sections efficaces absolues, il est nécessaire de connaître la densité ρ_{cible} du faisceau de biomolécules qui est mesurée à l'aide d'une micro-balance à quartz dont la description fait l'objet de la prochaine section.

2.3.2.2 La micro-balance à quartz

L'estimation du flux de biomolécules traversant les deux écorceurs de la partie cible du dispositif expérimental se fait avec une micro-balance à quartz INFICON PN 074-156N [78] et le moniteur INFICON STM-2 de référence PN074-613-P1D [79]. La micro-balance est montée sur le dispositif dans l'alignement de la partie cible de façon à ce que son centre soit aligné avec l'axe passant par les écorceurs et le centre de la zone d'interaction comme le montre la figure 2.14b. La densité ρ_{cible} de biomolécules est estimée en mesurant la modification de la fréquence d'oscillation d'un cristal contenant du quartz piégé entre deux électrodes d'or provoquée par la masse déposée sur le cristal. Située 4,2 mm devant le cristal, une pièce contenant un ensemble de diaphragmes de différentes sections visibles sur la figure 2.21b (5 mm², 10 mm², 20 mm², 35 mm²) est montée. Les diaphragmes permettent notamment de vérifier l'homogénéité du faisceau et d'estimer sa taille (section 3.2.2.2). Comme sur le four, un refroidissement à eau est aussi présent sur la micro-balance à quartz afin d'améliorer la condensation des molécules sur le cristal. Des photos de la micro-balance avec le cristal, l'ensemble des diaphragmes ainsi qu'un schéma montrant une coupe d'un cristal sont visibles sur la figure 2.21. En particulier, la figure 2.21a montre la position de la microbalance dans le dispositif : le cristal se situe à une distance $d_{\text{ZI}-\mu\text{balance}} = 75\text{mm}$ de la zone d'interaction.

Bien que le diamètre d'un cristal soit de 14 mm, en pratique, il est monté sur un porte cristal

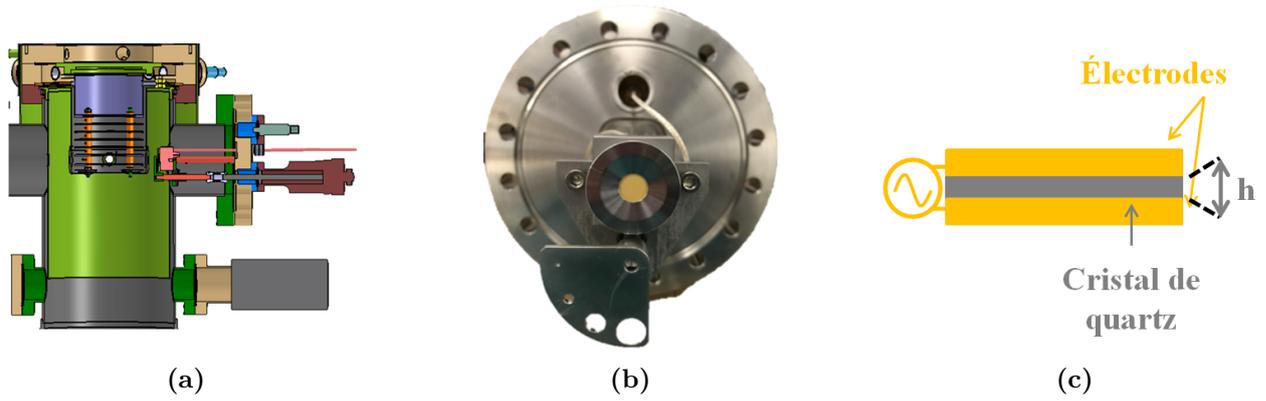


Figure 2.21 – Figure 2.21a : Coupe du dispositif expérimental montrant la position de la micro-balance dans le dispositif. **Figure 2.21b :** Photographie de la micro-balance avec le cristal contenant le quartz et l'ensemble des différents diaphragmes d'aires 5 mm², 10 mm², 20 mm², 35 mm². **Figure 2.21c :** Schéma illustrant une coupe d'un cristal utilisé pour la mesure du flux de biomolécules.

visible sur la figure 2.21b et la surface apparente sur laquelle viennent se condenser les biomolécules possède un diamètre de 8,2 mm, ce qui représente une surface de détection de 52,8 mm². La mesure du flux de biomolécules est basée sur les propriétés piézoélectriques du quartz [80, 81] contenu dans le cristal utilisé: le quartz est un matériau capable de se déformer lorsqu'il est soumis à des contraintes électriques. Comme l'illustre la figure 2.21c, le cristal est constitué d'une épaisseur h de quartz comprise entre deux électrodes conductrices reliées entre elles via un circuit électrique. Le champ électrique génère ainsi des ondes acoustiques dans le quartz d'une certaine fréquence pouvant aller de quelques kHz à 100 MHz. Pour les cristaux INFICON utilisés dans le dispositif IMAGERI représentés sur la figure 2.21b, la fréquence d'oscillation nominale du quartz dans le cristal vaut $f = 5$ MHz. Un dépôt de masse de l'ordre du ng sur une des deux électrodes (condensation du faisceau de biomolécules) entraîne une diminution de la fréquence de résonance du quartz, et il est possible de relier la variation de fréquence du cristal Δf à la variation de masse Δm déposée sur le cristal. En effet, en définissant c_s comme la vitesse du son dans le quartz, h, f et ρ_q comme l'épaisseur, la fréquence de résonance et la masse volumique du quartz dans le cristal, et A l'aire de recouvrement entre les deux électrodes, il est possible d'écrire que la masse additionnelle Δm déposée sur le cristal est reliée à l'épaisseur Δh de ce dépôt par l'équation 2.21 [80, 81] :

$$\Delta m = \rho_q \cdot A \cdot \Delta h \quad (2.21)$$

Quelque soit le mode de résonance du quartz, une demi longueur d'onde est confinée à l'intérieur du cristal et il est possible d'écrire :

$$f = \frac{c_s}{2 \cdot h} \quad (2.22)$$

En dérivant l'équation 2.22, on trouve les équations 2.23 et 2.24 :

$$\frac{\Delta f}{\Delta h} = \frac{-c_s}{2 \cdot h^2} \quad (2.23) \quad \frac{\Delta f}{f} = \frac{-\Delta h}{h} \quad (2.24)$$

Finalement, en reliant les équations 2.21 et 2.24, il est possible d'en déduire l'équation 2.25 qui lie la variation de masse Δm de biomolécules déposées sur le cristal à la variation de fréquence

Δf engendrée par le dépôt de masse :

$$\Delta f = \frac{-2.f^2}{A.\rho_q.c_s}.\Delta m \quad (2.25)$$

Il y a donc une diminution de la fréquence d'oscillation du quartz lorsque de la matière est déposée sur le cristal. Le logiciel fourni avec la micro-balance permet d'afficher l'évolution de la fréquence du cristal dont est déduit le flux de masse déposé en $\mu\text{g.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ via l'équation 2.25 (temps d'intégration égal à 500 ms). La section 3.2.2.3 présentera comment, à partir de cette grandeur, il est possible d'évaluer la densité du faisceau de biomolécules ρ_{cible} (en molécules.cm^{-3}) aussi bien au niveau de la micro-balance qu'au niveau de la zone d'interaction.

2.3.2.3 Spectromètre de masse quadripolaire

La spectrométrie de masse est une technique d'analyse permettant la détermination de masses moléculaires, leur identification et quantification. Elle se base sur la séparation et la détection d'ions en phase gazeuse créés à partir de l'espèce moléculaire neutre à analyser via une source d'ionisation. Le spectre de masse résultant montre l'intensité des différents fragments ioniques en fonction de leur rapport masse sur charge noté m/z . Dans cette thèse, le spectromètre de masse quadripolaire (QMS pour Quadrupole Mass Spectrometer) balzers 200 [82] présenté sur la photo 2.22a est utilisé. Il permet d'étudier la fragmentation des biomolécules (adénine et uracile) sous l'effet de la chaleur générée par le four (section 3.2.2.1) et se raccorde sur le dispositif expérimental à la place de la micro-balance à quartz.

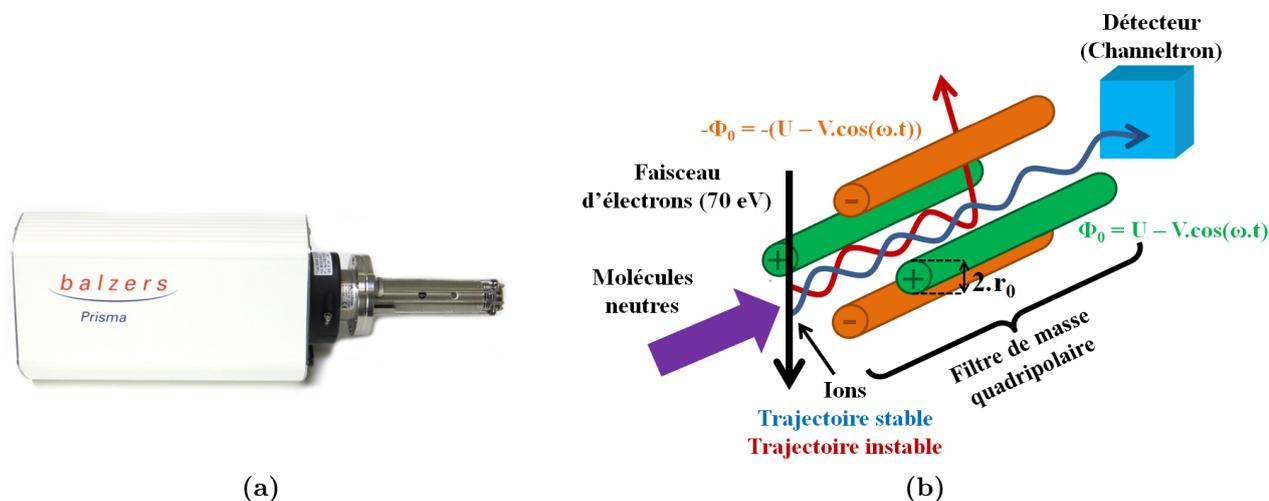


Figure 2.22 – Figure 2.22a : Photographie du spectromètre de masse quadripolaire (QMS), le boîtier blanc renferme l'électronique associée à l'analyseur de masse quadripolaire (QMA pour Quadrupole Mass Analyser), représenté en gris. **Figure 2.22b :** Schéma illustrant le principe de fonctionnement d'un analyseur de masse quadripolaire.

De manière plus précise, le principe d'un spectromètre de masse quadripolaire est d'ioniser, trier en fonction du rapport masse sur charge (noté m/z) et détecter des espèces ioniques créées par ionisation de molécules neutres en phase gaz. Comme l'illustre la figure 2.22b, en entrant dans l'analyseur, le faisceau de biomolécules en phase gazeuse entre en collision avec un faisceau d'électrons possédant une énergie de l'ordre de quelques dizaines d'électron-Volts, entraînant l'ionisation et la fragmentation de la biomolécule [83, 84, 85] en différents fragments.

Pour que l'intensité des différents fragments soit maximale sur le spectre de masse, il est intéressant de choisir l'énergie des électrons afin que la section efficace d'ionisation des biomolécules par impact d'électrons soit maximale. Ainsi, l'article écrit par Paweł Mozejko et Léon Sanche [86] présente, entre autres, la section efficace d'ionisation absolue de bases de l'ADN par impact d'électrons dans une gamme d'énergies de 0 eV à 120 eV. La figure 2.23, issue de cet article montre uniquement les résultats pour l'uracile et l'adénine et la section efficace d'ionisation maximale induite par impact d'électrons est atteinte pour des électrons d'énergie environ égale à 70 eV, c'est donc cette valeur qui est utilisée par la suite.

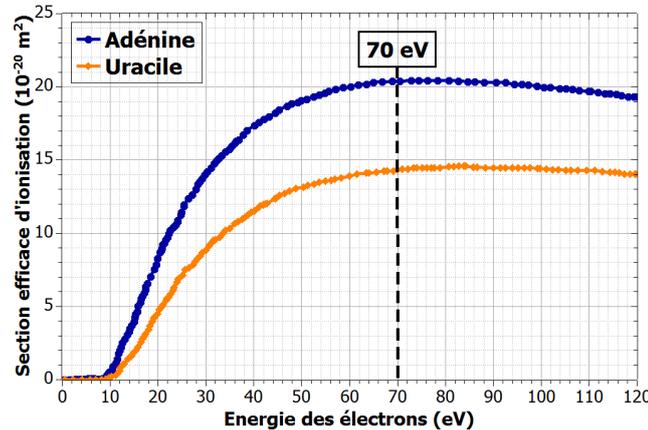


Figure 2.23 – Sections efficaces d'ionisation de l'adénine (courbe bleue) et de l'uracile (courbe orange) par impact d'électrons dont les énergies varient entre 0 eV et 120 eV [86].

Après l'ionisation, les ions traversent un filtre de masse quadripolaire illustré sur la figure 2.22b. Il est constitué de quatre électrodes parallèles à section cylindrique ou hyperbolique. Les électrodes opposées sont reliées au même potentiel Φ_0 ou $-\Phi_0$ tandis que deux électrodes adjacentes sont soumises à une différence de potentiel $2\Phi_0 = 2(U - V \cdot \cos(\omega t))$, avec U une tension continue, $V \cdot \cos(\omega t)$ un champ RF d'amplitude V et de pulsation ω (figure 2.22b). Le filtre de masse agit comme un analyseur de masse dynamique. En effet, les ions possédant un rapport masse sur charge différent suivront des trajectoires différentes en fonction du champ électrique induit par les potentiels Φ_0 et $-\Phi_0$. Ainsi, certains ions, dont la trajectoire reste stable, traverseront le filtre avant d'être détectés, tandis que d'autres, dont la trajectoire oscille trop en seront éjectés. Des exemples de trajectoires stable et instable sont illustrés sur la figure 2.22b.

Les ions possédant une trajectoire stable traversent le filtre de masse quadripolaire et sont détectés par un channeltron: il s'agit d'un tube en forme de cornet dont la section décroît progressivement. L'impact de l'ion primaire dans le channeltron génère des électrons secondaires qui sont ensuite accélérés par le gradient de potentiel appliqué entre les extrémités du tube et génèrent d'autres électrons secondaires par impacts successifs sur les parois. Ainsi, le courant ionique est converti en courant électronique et le gain peut atteindre 10^8 . Une description plus détaillée du fonctionnement d'un channeltron est présentée dans l'article [87].

Dans la section 3.2.2.1, il sera question de comparer différents spectres de masse obtenus pour différentes conditions de chauffage du four afin de détecter une éventuelle décomposition thermique des molécules d'adénine et d'uracile. En cas d'endommagement des molécules dans le four, le faisceau gazeux entrant dans le spectromètre de masse quadripolaire contiendra la mo-

lécule parent ainsi que des fragments, ce qui engendre une modification des spectres de masse mesurés par le QMS.

Après avoir décrit les caractéristiques et des moyens de production des différents faisceaux projectile et cible, la section suivante traitera de la description du spectromètre VMI capable d'extraire et d'analyser l'énergie et l'angle d'émission des électrons émis suite aux collisions entre les faisceaux projectile et cible.

2.4 Le spectromètre VMI

Afin d'estimer des sections efficaces absolues différentielles en angle et en énergie, il est nécessaire de récupérer des informations sur le nombre d'électrons émis mais également sur leur énergie et/ou l'angle d'émission après interaction des faisceaux projectile et cible. Le spectromètre VMI utilisé durant cette thèse, entièrement pensé et construit au CIMAP, permet de récupérer ces différentes informations. Il est constitué de deux parties:

- Un système de lentille électrostatique (section 2.4.1) responsable de l'extraction des électrons vers le détecteur sensible en position.
- Un système de détection (section 2.4.2) composé d'un détecteur sensible en position comprenant des galettes à micro-canaux (notées MCP par la suite pour Micro Channel Plates), un écran phosphore et une caméra CMOS qui permettent de récupérer les informations sur la position d'impact et le nombre d'électrons qui ont interagi avec le détecteur.

2.4.1 Le système de lentille électrostatique

Le système de lentille électrostatique, constitué d'un empilement d'électrodes conductrices, permet d'extraire et de guider, dans le spectromètre VMI, les électrons émis suite à l'interaction entre les faisceaux projectile et cible jusqu'à leur impact sur le détecteur. Une photographie légendée du système de lentille électrostatique est représentée sur la figure 2.24a ; elle permet notamment de distinguer les différentes électrodes utilisées (par la suite, les électrodes seront nommées en fonction des tensions qui leur sont appliquées).

La figure 2.24b représente une coupe du spectromètre VMI avec les dimensions des différents éléments. Le spectromètre possède une longueur totale (distance entre l'électrode V_0 et le détecteur sensible en position) de 105 mm. Il est composé de 6 électrodes minces circulaires et d'une électrode épaisse cylindrique V_{tube} illustrées sur la figure 2.24. Toutes les électrodes minces possèdent un diamètre extérieur $\varnothing_{\text{ext}} = 80$ mm, une épaisseur $e = 1$ mm et sont espacées de 8 mm, excepté les deux électrodes extractrices V_0 et V_1 qui sont séparées d'une distance de 10 mm. La première électrode V_0 est pleine, contrairement aux cinq autres, qui possèdent un diamètre interne \varnothing_{int} croissant allant de $\varnothing_{\text{int}} = 40$ mm pour V_1 à $\varnothing_{\text{int}} = 56$ mm pour la sixième électrode. L'électrode épaisse V_{tube} est un tube d'une longueur de 50 mm avec $\varnothing_{\text{ext}} = 80$ mm et $\varnothing_{\text{int}} = 78$ mm, elle est également positionnée 8 mm au-dessus de la sixième électrode mince, son diamètre d'entrée est de 60 mm. Cet assemblage d'électrodes est placé à l'intérieur d'un tube ($V_{\text{écran}}$) de dimensions $\varnothing_{\text{ext}} = 90$ mm, $\varnothing_{\text{int}} = 88$ mm, agissant comme un écran électrostatique qui empêche les particules chargées créées ou présentes à l'extérieur du spectromètre de rentrer à l'intérieur (voir la section 3.3.2 pour une étude quantitative). Le détecteur (deux galettes à

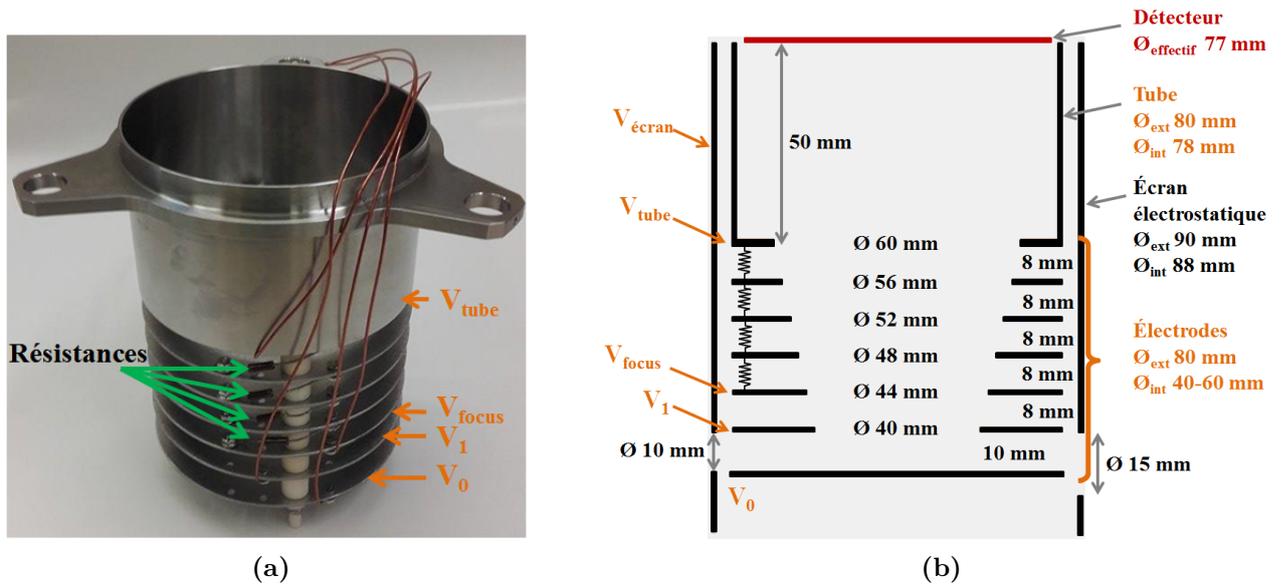


Figure 2.24 – Figure 2.24a : Photographie du système de lentilles électrostatiques du spectromètre VMI utilisé sur le dispositif IMAGERI. **Figure 2.24b :** Schéma du système de lentilles électrostatiques du spectromètre VMI utilisé sur le dispositif IMAGERI.

micro-canaux et un écran phosphore) est monté sur une bride séparée et sa face avant se situe 2 mm au dessus de l'électrode V_{tube} . La face avant du détecteur MCP_{IN} est portée au potentiel V_{IN} qui est égal au potentiel V_{tube} pour ne pas déformer la trajectoire des électrons.

Les tensions V_0 , V_1 , V_{focus} et V_{tube} sont appliquées directement sur les électrodes correspondantes via des alimentations hautes tensions (HT) ISEG (modèle NHS 60 05x-K01 et NHQ 205M). Toutes ces tensions sont de l'ordre de quelques centaines de Volts. Les électrodes V_0 et V_1 ainsi que l'écran électrostatique $V_{\text{écran}}$ sont portés à un même potentiel négatif, afin de réduire la détection des électrons créés par ionisation du gaz résiduel par le projectile en dehors du spectromètre. Il est également possible de modifier la valeur de ces tensions pour avoir $V_{\text{écran}} = V_0 = V_1 - dV$ avec $dV < 0$. Cette modification du champ électrique dans le spectromètre permet de réduire la détection des électrons créés sur la trajectoire du faisceau projectile à l'intérieur du spectromètre mais à l'extérieur de la zone de recouvrement entre les deux faisceaux projectile et cible (zone d'interaction). Une étude des différentes contributions de bruit de fond et des méthodes électrostatiques utilisées pour les réduire est détaillée dans la section 3.3.

Dans la suite du manuscrit, il sera souvent question de la tension d'extraction V_{ext} qui correspond à la différence de potentiel perçue par les électrons créés au niveau de la zone d'interaction et qui vaut $V_{\text{ext}} = V_{\text{tube}} - V_0$. La tension d'extraction permet la focalisation sur le détecteur des électrons possédant une énergie E_{e^-} appartenant à une certaine gamme d'énergie $[E_{\text{min}} - E_{\text{max}}]$. On rappelle que l'énergie de l'électron E_{e^-} est proportionnelle à r^2 , le carré du rayon après la transformée inverse d'Abel, et plus précisément :

$$E_{e^-} = \text{Cste} \cdot r^2 = \alpha \cdot V_{\text{ext}} \cdot r^2 \quad (2.26)$$

avec α une constante qui dépend de la géométrie du spectromètre VMI, et dont la détermination fait l'objet de la section 3.4. L'énergie maximale atteignable E_{max} est de l'ordre de 200 eV.

Elle est limitée par la tension d'extraction maximale V_{ext} de 4000 V applicable sur le détecteur et par la taille des galettes (diamètre = 77 mm).

L'application des tensions sur les électrodes intermédiaires entre les électrodes V_{focus} et V_{tube} se fait via un pont de résistances schématisé sur la figure 2.24b et visible sur la photographie de la figure 2.24a. La valeur des tensions de ces électrodes dépend donc des potentiels appliqués sur les électrodes V_{focus} et V_{tube} . Ces électrodes servent en particulier à focaliser de manière précise les électrons sur le détecteur. L'utilisation d'un système multi-électrodes permet d'avoir une meilleure résolution [40] que le système standard à deux électrodes produit par Eppink et Parker [37].

La résolution du spectromètre VMI notée $\Delta r/r$ ou $\Delta E/E$ (avec $\Delta E/E = 2.\Delta r/r$) correspond à la trace circulaire de rayon r et d'épaisseur Δr laissée par des électrons mono-énergétiques d'énergie E_e . La résolution correspond à la capacité du spectromètre à distinguer deux électrons d'énergies proches, elle est limitée par la taille de la zone d'interaction, la focalisation des électrons sur le détecteur, le champ magnétique terrestre et la résolution de la caméra. La section 3.5 détaille les différents paramètres affectant la résolution du spectromètre VMI en se basant sur des simulations SIMION et des mesures expérimentales. Sur le dispositif IMAGERI, le spectromètre a été pensé afin de détecter des électrons d'énergies allant jusqu'à 200 eV en utilisant différentes tensions d'extraction et avec une résolution moyenne de l'ordre de 5%.

La tension appliquée sur l'électrode V_{focus} permet de régler la position du point de focalisation de la trajectoire des électrons qui influe sur la largeur de l'impact des électrons sur le détecteur (figure 2.25). Pour une extraction fixée, une tension V_{focus} n'est optimale que pour des électrons d'une certaine énergie et il est important d'utiliser une valeur permettant d'obtenir la meilleure résolution moyenne sur l'ensemble du détecteur. La tension V_{focus} est déterminée empiriquement par la formule 2.27:

$$V_{\text{focus}} - V_0 = \Gamma.(V_{\text{tube}} - V_0) \text{ avec } \Gamma \text{ une constante positive} \quad (2.27)$$

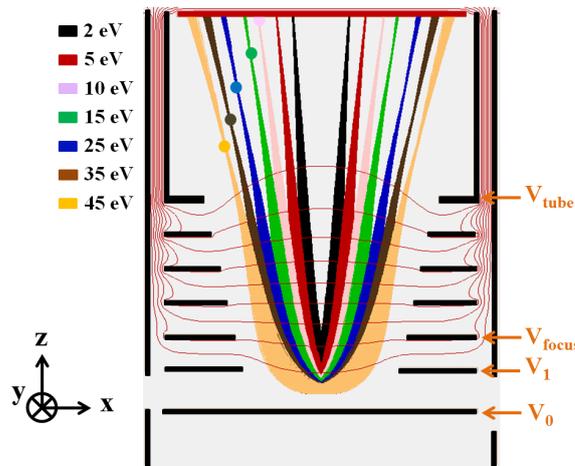


Figure 2.25 – Position de l'impact d'électrons d'énergies comprises entre 2 eV et 45 eV, pour $V_{\text{ext}} = 1 \text{ kV}$ et $\Gamma = 0,22$. Les courbes équipotentielles vont de -100 V à 700 V par pas de 100 V. Le champ électrique au centre de la zone d'interaction vaut environ 10 V/mm.

La figure 2.25 représente, pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 1000 \text{ V}$, la trajectoire simulée

par SIMION d'électrons d'énergies comprises entre 2 eV et 45 eV émis depuis une zone d'interaction de dimensions $l_{ZI} = 7\text{mm}$ et $r_{ZI} = 1\text{mm}$ dans le plan (x,y) parallèle au détecteur, afin de simplifier la visualisation des trajectoires pour un paramètre $\Gamma = 0,22$. Les points focaux des différentes trajectoires sont représentés par un cercle plein. Cette figure met bien en évidence le fait qu'une valeur de Γ et donc de V_{focus} n'est optimale que pour des électrons d'une certaine énergie à une tension d'extraction fixée. Cette valeur est atteinte lorsque le point focal de la trajectoire des électrons coïncide avec leur position d'impact sur le détecteur. La figure 2.26 montre, toujours pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 1000\text{ V}$ et une zone d'interaction de dimensions $l_{ZI} = 7\text{mm}$ et $r_{ZI} = 1\text{mm}$, la résolution du spectromètre en fonction du rayon d'impact des électrons ($\Delta r/r$ en %) pour différentes valeurs de V_{focus} . Les énergies des électrons correspondant aux principaux rayons sont également indiquées.

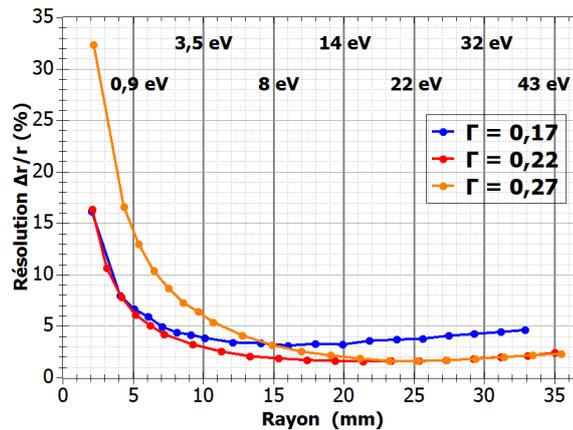


Figure 2.26 – Résolution $\Delta r/r$ à la tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 1000\text{ V}$ pour différentes valeurs de V_{focus} correspondant à $\Gamma = 0,17$, $\Gamma = 0,22$ et $\Gamma = 0,27$.

Ainsi, pour $\Gamma = 0,27$, la résolution du spectromètre est optimale sur le bord du détecteur mais elle est trop dégradée pour les électrons possédant un petit rayon. De façon inverse, pour $\Gamma = 0,17$, la résolution est légèrement meilleure au centre du détecteur mais elle se dégrade rapidement avec l'augmentation du rayon. Ainsi, la valeur de Γ retenue est 0,22 : elle sera utilisée dans toutes les expériences et permet d'obtenir une résolution relativement constante et inférieure à 4% pour des rayons supérieurs à 7 mm.

2.4.2 Le système de détection : Galettes à micro-canaux, écran phosphore, et caméra

Cette partie est séparée en deux. Dans un premier temps, on décrit les caractéristiques des trois éléments qui constituent le système de détection: les galettes à micro-canaux, l'écran phosphore et la caméra (section 2.4.2.1). Ensuite, dans une seconde partie, les deux méthodes de comptage des électrons via ce système de détection sont présentées (section 2.4.2.2).

2.4.2.1 Description du système de détection

Afin de récupérer les informations à la fois sur le nombre et la position d'impact des électrons, il est nécessaire d'utiliser des détecteurs appelés détecteurs sensibles en position. Ils sont constitués de galettes à micro-canaux et sont couplés soit à une anode résistive, soit à une anode à ligne de retard, soit à un écran phosphore. Sur le dispositif IMAGERI, il a été choisi de

coupler des galettes à micro-canaux circulaires de référence F1942-04 [88] du constructeur Hamamatsu à un écran phosphore de type P43 [88] du même constructeur (également circulaire). Une photographie de cet ensemble est visible sur la figure 2.27a.

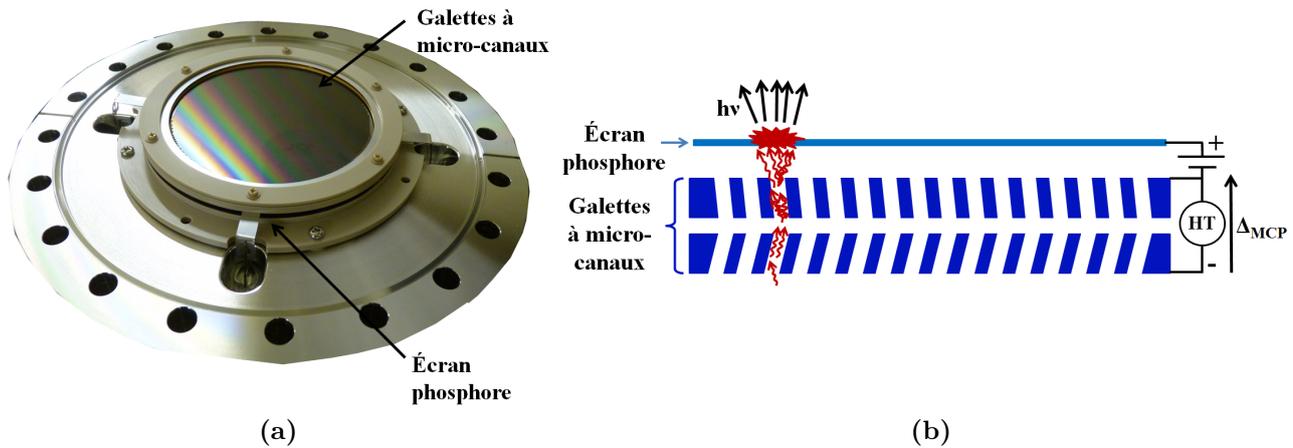


Figure 2.27 – Figure 2.27a : Photographie du détecteur constitué de deux galettes à micro-canaux et d’un écran phosphore. **Figure 2.27b :** Schéma illustrant le fonctionnement des galettes à micro-canaux et de l’écran phosphore.

La détection des électrons via un tel système repose sur le fait que le signal d’électrons impactant le détecteur est d’abord amplifié et que les électrons sont accélérés par les galettes à micro-canaux avant d’interagir avec l’écran phosphore qui permet de convertir le signal électronique en signal lumineux. Le signal lumineux est ensuite capté par la caméra. La suite de cette partie s’articule autour de la description précise des différents éléments constituant le système de détection et de la manière dont ils sont liés.

Sur le dispositif, les galettes possèdent un diamètre effectif de 77 mm et le diamètre D des canaux vaut $25 \mu\text{m}$. Elles sont caractérisées par leur ouverture géométrique $\epsilon_{\text{géo}}$, c’est-à-dire la surface recouverte par les micro-canaux par rapport à la surface totale de la galette. L’ouverture géométrique $\epsilon_{\text{géo}}$ correspond à l’efficacité maximale atteignable par les galettes. Dans le cas où les canaux sont régulièrement répartis sur la surface de la galette selon un motif hexagonal de paramètre de maille p (distance entre deux canaux), l’efficacité géométrique peut être calculée par la formule issue de [89] :

$$\epsilon_{\text{géo}} = \frac{2\pi}{\sqrt{3}} \left(\frac{D}{2 \cdot p} \right)^2 \quad (2.28)$$

Dans le cas des galettes utilisées sur le dispositif IMAGERI, $p = 31 \mu\text{m}$ et $D = 25 \mu\text{m}$, de sorte que l’ouverture géométrique vaut $\epsilon_{\text{géo}} = 60 \%$.

Chaque canal amplifie les électrons: la surface intérieure de chaque canal agit comme une dynode continue, c’est-à-dire que chaque impact d’électron sur la paroi du canal crée des électrons secondaires accélérés par la différence de potentiel Δ_{MCP} entre la face avant (MCP_{IN}) et la face arrière (MCP_{OUT}) des galettes à micro-canaux. Les tensions V_{IN} et V_{OUT} de la face avant et arrière, respectivement, (avec $\Delta_{\text{MCP}} = V_{\text{OUT}} - V_{\text{IN}}$) sont appliquées via une alimentation commerciale du constructeur PHOTEK de référence DPS3 [90]. La section 3.6.1.1 détaille le choix de la différence de potentiel Δ_{MCP} entre les deux faces du détecteur. Cette différence de potentiel est de l’ordre de 2 kV. La figure 2.27b représente un schéma des galettes à micro-canaux

utilisées sur le dispositif IMAGERI.

La géométrie et le nombre de galettes sont des paramètres décisifs pour le phénomène d'amplification. Ainsi, l'angle des canaux par rapport au plan de la galette assure le fait que les électrons possédant un vecteur vitesse perpendiculaire au plan du détecteur impactent la surface interne des canaux et génèrent efficacement des électrons secondaires. La présence de deux étages avec des canaux en chevrons permet d'augmenter le gain total. Avec les galettes à micro-canaux utilisées sur le dispositif IMAGERI, le gain minimal est d'environ 10^4 par galette. En pratique, l'efficacité d'un tel détecteur est limitée par son ouverture géométrique.

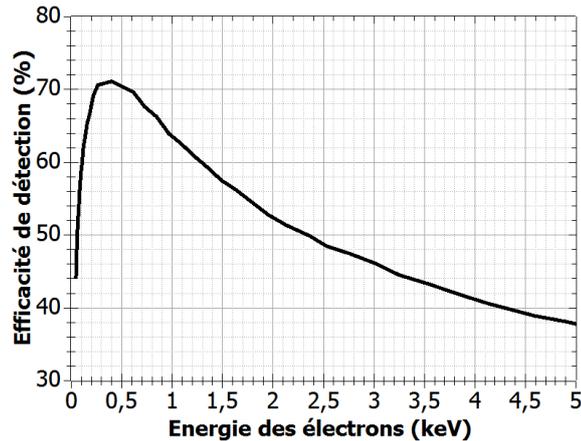


Figure 2.28 – Efficacité de détection des galettes à micro-canaux en fonction de l'énergie incidente des électrons. Courbe présente dans le manuel [88].

En dehors de cet aspect géométrique, l'efficacité de détection des galettes ϵ dépend de plusieurs facteurs comme la nature et la charge des particules qui interagissent avec les canaux [91, 92], leur énergie ou encore leur angle d'incidence sur la face avant MCP_{IN} du détecteur. Dans cette thèse, seuls les électrons possèdent un intérêt, et l'efficacité de détection qui leur est associée dépend de l'énergie incidente des électrons. La courbe issue du manuel du constructeur Hamamatsu (figure 2.28) présente l'efficacité de détection de galettes à micro-canaux en fonction de l'énergie incidente des électrons. Elle est maximale pour des électrons d'énergie comprise entre 300 eV et 400 eV.

Même si l'efficacité de détection donnée par le constructeur a été obtenue pour des galettes dont l'efficacité géométrique est différente de celle des galettes en place sur le dispositif IMAGERI, l'évolution de l'efficacité de détection donnée par le constructeur sera tout de même utilisée afin de discuter de l'influence de l'efficacité de détection des galettes à micro-canaux sur les différents spectres en énergie. Cette étude est présentée en détails dans la section 3.6.1.2.

Après amplification et accélération dans les galettes à micro-canaux, les électrons sont accélérés une seconde fois à l'aide de la différence de tension entre la face arrière des galettes à micro-canaux (V_{OUT}) et l'écran phosphore (V_{PS}). D'après le constructeur, ces deux éléments sont séparés d'une distance de l'ordre de 1 mm [88]. La tension V_{PS} présente sur l'écran phosphore est également fournie par l'alimentation PHOTEK DPS3 et la différence de potentiel entre la face arrière des galettes à micro-canaux et l'écran phosphore est fixée à 3000 V de façon à avoir $V_{\text{PS}} = V_{\text{OUT}} + 3000$ V. Concernant la géométrie de l'écran phosphore, celui-ci possède un diamètre effectif égal à 77 mm. La conversion du signal électronique en signal lumineux

est possible grâce au phénomène d'électroluminescence. Sous l'impact des gerbes d'électrons provenant des galettes à micro-canaux, des transitions électroniques apparaissent dans les différents cortèges électroniques des atomes de phosphore et provoquent l'émission de photons. Il est à noter que l'intensité lumineuse émise par l'écran phosphore dépend principalement de la quantité d'électrons arrivant sur un point de l'écran. Ainsi, si un électron a très peu interagi avec les parois des micro-canaux, la densité de la gerbe d'électrons s'en retrouvera diminuée et l'écran phosphore émettra un signal lumineux de faible intensité. Pour l'écran phosphore de type P43 utilisé sur le dispositif IMAGERI, la longueur d'onde de la raie d'émission la plus intense se situe vers 540 nm. Le phénomène d'électroluminescence, responsable de la conversion d'un courant d'électrons en lumière via l'écran phosphore n'est pas instantané et le temps de décroissance de l'interaction d'un électron avec un atome de phosphore peut durer jusqu'à environ quelques millisecondes pour l'écran phosphore utilisé sur le dispositif IMAGERI [88]. La figure 2.29, issue du manuel du constructeur, représente l'évolution de l'intensité lumineuse relative en fonction du temps. Enfin, on peut noter que des électrons d'énergie inférieure à 10 keV parcourent une distance inférieure à $1,5 \mu\text{m}$ dans le phosphore. Ils ne traversent donc pas l'écran et ne perturbent pas les mesures.

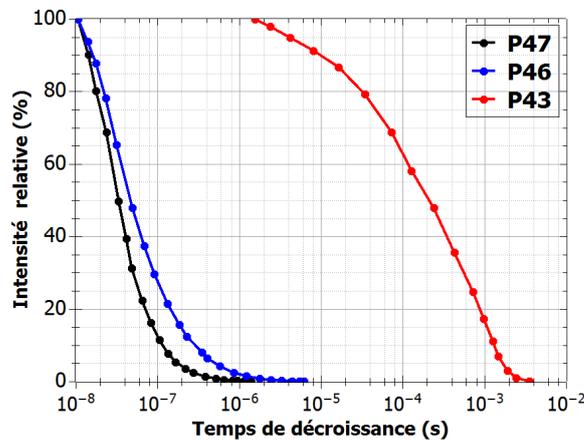


Figure 2.29 – Temps de décroissance des différents modèles d'écrans phosphore P43, P46 et P47 d'après le manuel constructeur [88]. L'écran utilisé sur le dispositif IMAGERI est le modèle P43.

Située une dizaine de centimètres au dessus de l'écran phosphore, la caméra [93] de référence GO-2400M-USB du constructeur JAI couplée à un objectif haute résolution KOWA LM25HC a été utilisée. Son but est de récupérer et d'analyser la lumière émise par le plan contenant l'écran phosphore. La caméra possède un capteur CMOS [94] rectangulaire de taille effective 11,3 mm (H) x 7,13 mm (V), soit 1936x1216 pixels, chaque pixel étant un carré mesurant $5,86 \mu\text{m}$ de côté. C'est une caméra monochrome. Ainsi, le signal lumineux de chaque pixel correspond à une nuance de gris codée sur 256 valeurs (8 bits) allant de 0 (noir) à 255 (blanc). En pratique, le capteur rectangulaire de la caméra est ramené à un capteur de forme carrée de taille 1216x1216 pixels. Il est également possible de regrouper les pixels par groupe de quatre pour se ramener à un capteur contenant uniquement 608x608 pixels. Cependant, dans ce mode, la résolution du spectromètre s'en retrouve dégradée puisque la lumière émise par l'écran phosphore est analysée par un nombre réduit de pixels. L'impact de la pixélisation de la caméra sur la résolution du spectromètre VMI est discutée dans la section 3.5. Le temps d'exposition τ_{exp} de la caméra est une durée comprise entre 0,1 ms et 20 ms. Son influence sur la qualité des images est discutée en détails dans la section 3.6.2.1. Enfin, pour une détection

optimale de la lumière émise par l'écran phosphore, il convient de s'assurer que le capteur de la caméra est bien sensible à la longueur d'onde de la raie d'émission principale du phosphore. La figure 2.30 montre bien que le maximum de sensibilité de la caméra (environ 530 nm) coïncide bien avec la raie de longueur d'onde 540 nm émise par le phosphore.

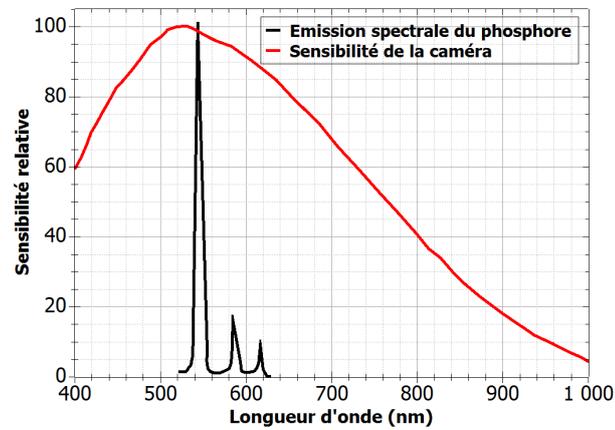


Figure 2.30 – Comparaison entre le spectre d'émission de lumière du phosphore par impact d'électrons et le spectre de sensibilité de la caméra monochrome GO-2400M-USB.

2.4.2.2 Description des méthodes de comptage des électrons via le système de détection

Il est possible de compter les électrons via deux méthodes différentes. Une première consiste à analyser les images de l'écran phosphore prises par la caméra. La deuxième méthode, quant à elle, se base sur la mesure du nombre d'impulsions déclenchées par les électrons en face arrière des galettes à micro-canaux. Avant de rentrer dans le détail de chacune de ces deux méthodes, la figure 2.31 représente de façon schématique le système de détection et les grandes étapes indispensable au comptage des électrons pour chaque méthode.

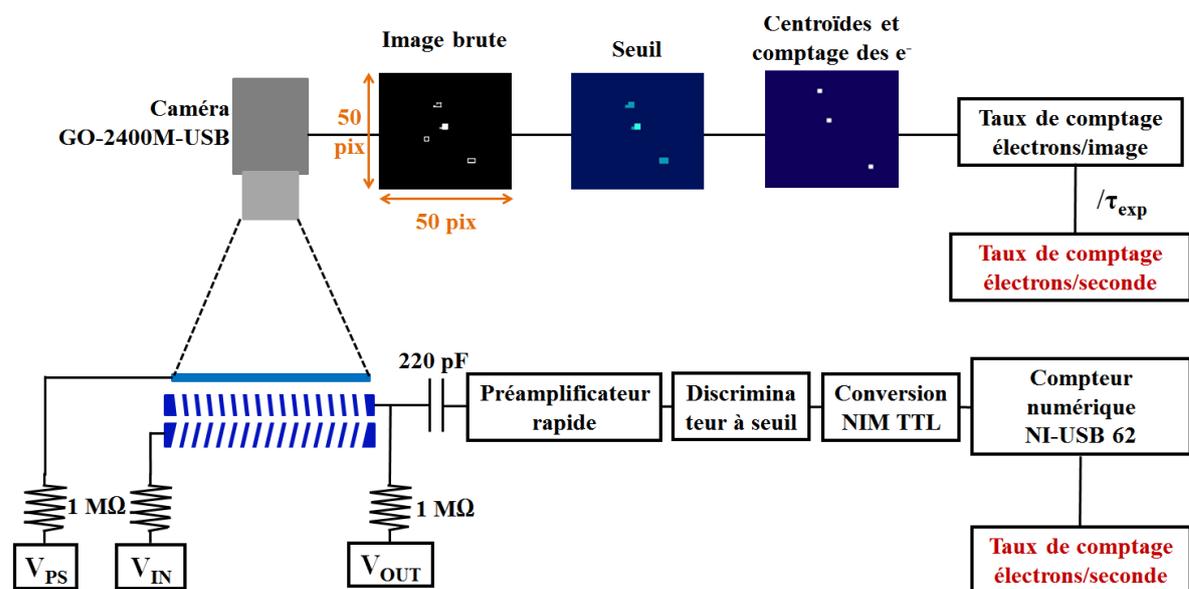


Figure 2.31 – Schéma résumant les étapes principales des deux méthodes de comptage des électrons.

Méthode 1 : Analyse des images de l'écran phosphore.

L'objectif de cette méthode est de récupérer le signal lumineux provenant de l'écran phosphore pendant un certain temps d'exposition de la caméra τ_{exp} . Le traitement se fait via le programme LabVIEW associé au dispositif IMAGERI. Sur la figure 2.31, les images présentées sont des agrandissements d'une zone de taille 50x50 pixels provenant de l'image originale. Lorsque la fenêtre d'exposition est passée, l'image brute en nuances de gris est enregistrée par la caméra et affichée sur le programme LabVIEW. L'intensité lumineuse d'un spot dépend de la densité de la gerbe d'électrons issue des galettes à micro-canaux, du gain de l'écran phosphore (lié notamment à la tension V_{PS}) mais également du temps de décroissance de la lumière dans l'écran phosphore et du temps d'exposition de la caméra. Il est ensuite possible d'appliquer un seuil (compris entre 0 et 256) à cette image afin d'en éliminer les spots de faible intensité lumineuse dus à des événements antérieurs à la fenêtre d'exposition visibles par la caméra en raison du temps de décroissance de l'écran phosphore. La caractérisation du couple de paramètres temps d'exposition/seuil de la caméra et son impact sur la détermination du taux de comptage fait l'objet d'une étude détaillée dans le chapitre suivant (section 3.6.2.1).

Afin d'obtenir une position d'impact, l'étape suivante consiste à calculer les coordonnées du centroïde de chaque spot afin de les ramener à de simples points. Le centroïde correspond aux coordonnées du point le plus intense de chaque spot. On s'affranchit également de l'intensité lumineuse des spots puisque chaque spot correspond à un électron. À ce niveau, on obtient un premier taux de comptage en nombre d'électrons par image qu'il est possible de convertir en nombre d'électrons par seconde en divisant par la valeur du temps d'exposition τ_{exp} utilisé. Ce procédé est ensuite répété sur un certain nombre d'acquisitions noté N_{acq} et les images sont ensuite sommées jusqu'à obtention d'une statistique suffisante. Cette méthode permet donc d'obtenir en même temps le taux de comptage et des informations sur la distribution spatiale des électrons sur le détecteur.

Méthode 2 : Mesure du signal en face arrière des galettes à micro-canaux

Cette méthode de comptage mesure les impulsions des électrons sur la face arrière MCP_{OUT} des galettes à micro-canaux. La première étape consiste à découpler le signal d'électrons de la haute tension V_{OUT} à l'aide d'un filtre composé d'une résistance de valeur 1 M Ω et d'un condensateur de valeur 220 pF monté à la sortie de la face arrière des galettes à micro-canaux comme illustré sur la figure 2.31. Afin d'éviter des réflexions du signal électrique, des résistances de 1 M Ω sont également branchées sur les sorties de MCP_{IN} et de l'écran phosphore. L'ajout de ces résistances entraîne une différence entre les tensions appliquées par l'alimentation haute tension PHOTEK et les tensions réellement appliquées aux bornes du détecteur. Le schéma du circuit électrique est représenté sur la figure 2.32

Selon les tensions utilisées, il en résulte une chute de tension de l'ordre de 70 V à 100 V entre les faces avant et arrière des galettes à micro-canaux. Il est donc nécessaire de prendre en compte cette différence de potentiel afin de s'assurer que la tension appliquée à V_{tube} est bien identique à la tension appliquée sur la face avant du détecteur afin de ne pas modifier la trajectoire des électrons. La section 3.6.1.1 apporte plus de précisions sur ces différences de potentiels et leur influence sur le taux de comptage des électrons.

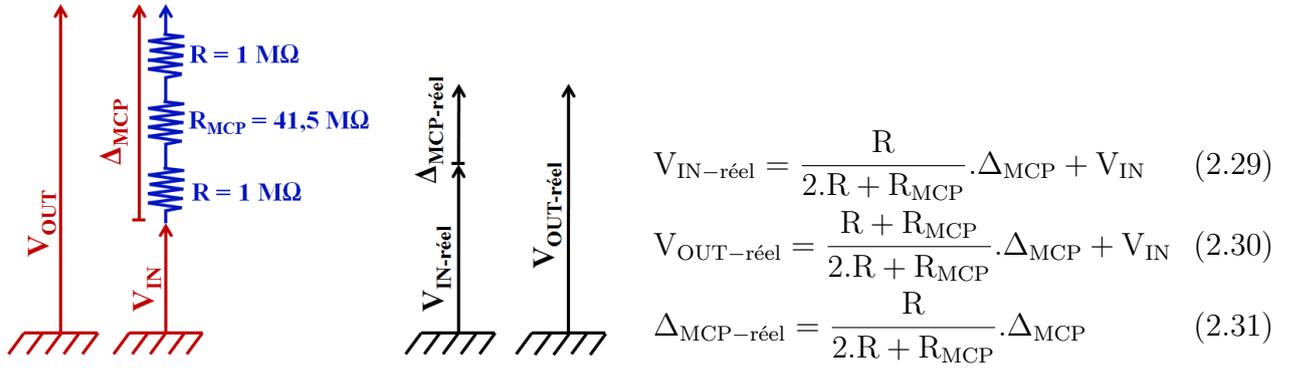


Figure 2.32 – Schéma électrique des galettes à micro-canaux en présence des résistances de $1 \text{ M}\Omega$.

Le signal électrique récupéré sur la face arrière des galettes à micro-canaux après découplage de la haute tension est un signal impulsionnel positif d'environ 30 mV d'amplitude et quelques ns de largeur temporelle. L'amplitude du signal dépend de la différence de tension ΔV_{MCP} appliquée. Ce signal est inversé avant d'être amplifié par un préamplificateur rapide afin d'avoir une amplitude de l'ordre de quelques Volts. Il est alors traité par un discriminateur qui permet, d'une part, de sélectionner uniquement les signaux d'amplitude supérieure à un seuil de quelques dizaines de mV pour filtrer le bruit et, d'autre part, de comptabiliser uniquement une impulsion par fenêtre de quelques dizaines de ns afin de s'affranchir des échos parfois visibles sur ce type de chaîne d'acquisition. Le signal en sortie du discriminateur est un signal logique négatif d'amplitude 1 V (signal NIM, Nuclear Instrumentation Module). Il est converti en signal positif d'amplitude 5 V (signal TTL, Transistor-Transistor Logic) afin d'être envoyé à l'ordinateur d'acquisition via le compteur numérique du module National Instrument (NI USB 6220) qui permet de compter les fronts du train d'impulsions TTL et donc de récupérer un taux de comptage en nombre d'électrons par seconde. Cette méthode, contrairement au système écran phosphore/caméra, permet uniquement de mesurer le nombre d'électrons émis par seconde. Afin d'avoir l'information sur la position d'impact des électrons sur le détecteur, les images brutes en échelle de gris sont également enregistrées par la caméra et moyennées. L'image finale est ensuite normalisée par le taux de comptage mesuré en sortie des galettes à micro-canaux.

Dans la section 3.6 du chapitre suivant, les avantages et inconvénients de chacune de ces deux méthodes seront discutées en détail.

2.5 Les systèmes de contrôle commande, d'acquisition et de traitement des données

Afin de déterminer les sections efficaces, il est nécessaire, en plus des images enregistrées par la caméra, d'extraire du dispositif certaines grandeurs comme l'intensité du faisceau projectile I_{proj} et la densité du faisceau cible ρ_{cible} estimée par la micro-balance à quartz. Pour cela, un programme LabVIEW développé au CIMAP est utilisé, il permet la relecture et l'enregistrement de ces différentes grandeurs mais il est également utilisé afin de contrôler les différents

équipements et notamment d'appliquer les tensions aux électrodes et détecteur du spectromètre VMI. Les données sont ensuite analysées par un programme développé sous Python grâce au progiciel PyAbel [95] permettant de déduire les sections efficaces absolues simplement ou doublement différentielles.

2.5.1 Contrôle-commande et acquisition des données (LabVIEW)

La figure 2.33 schématise tous les appareils connectés à l'ordinateur de contrôle et d'acquisition du dispositif IMAGERI ainsi que le type de connexion utilisée. Les éléments qui permettent de piloter le dispositif à distance sont légendés par des flèches vertes tandis que les éléments qui permettent de faire du diagnostic, c'est-à-dire mesurer et afficher des valeurs sur l'interface sont représentés par des flèches bleues. De manière plus précise, les différents

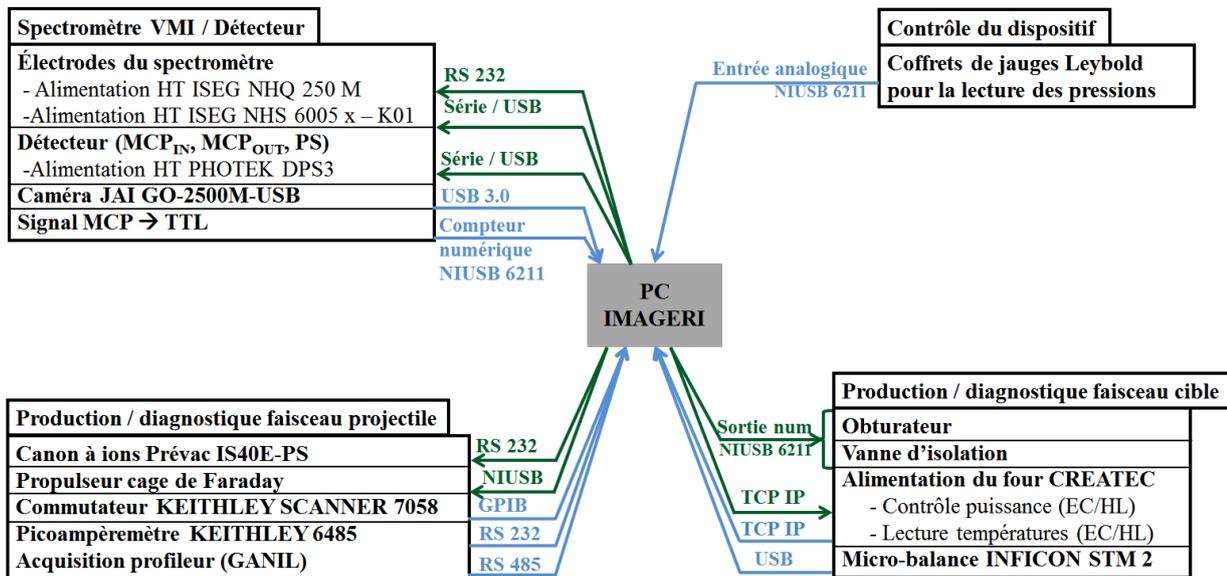


Figure 2.33 – Schéma montrant les différents appareils de mesure reliés à l'ordinateur de contrôle du dispositif IMAGERI ainsi que les connexions utilisées.

appareils pilotables à distance grâce au programme LabVIEW permettant le fonctionnement du spectromètre VMI sont les alimentations haute tension NHQ 205 M et NHS 6005x-K01 du constructeur ISEG (électrodes du spectromètre) et l'alimentation haute tension PHOTEK DPS3 (détecteur). Le signal en sortie de la caméra (GO-2400M-USB) est affiché en temps réel sur l'interface LabVIEW. Le signal en sortie des galettes à micro-canaux est également envoyé à l'ordinateur via le compteur numérique National Instrument (NIUSB 6211). Concernant les parties projectile et cible, l'ordinateur de contrôle permet de gérer la production et le diagnostic des faisceaux.

Ainsi, pour le faisceau projectile, l'interface LabVIEW permet de contrôler à distance les différents paramètres du canon à ions IS40E-PS présenté dans la section 2.2: l'énergie et l'intensité du faisceau, sa focalisation via une tension appliquée sur une lentille électrostatique, et la valeur des tensions sur le déflecteur. Un picoampèremètre KEITHLEY, modèle 6458 couplé à un commutateur de courant KEITHLEY SCANNER 7058, permet de mesurer l'intensité du faisceau d'ions projectiles sur les deux fentes en amont du spectromètre ainsi que sur les deux cages de Faraday. Ces différents éléments sont visibles sur la figure 2.2. Le commutateur permet de sélectionner le canal (correspondant à une des deux fentes ou cages de Faraday)

sur lequel lire l'intensité. Le profileur XY décrit dans la section 2.2 permet, via l'affichage d'histogrammes horizontaux et verticaux sur l'interface, de visualiser la taille et la position du faisceau projectile mais également d'estimer l'intensité du faisceau projectile. La cage de Faraday positionnée devant le profileur peut être déplacée via un vérin pneumatique contrôlé par la sortie numérique du NIUSB 6211.

Concernant la partie cible du dispositif, l'alimentation CREATEEC du four servant à sublimer les biomolécules est également pilotée via le programme LabVIEW et permet, d'une part, de contrôler les températures des deux cellules EC et HL, et d'autre part, d'afficher en temps réel l'évolution des températures sur un graphe. Le moniteur de la micro-balance INFICON de référence STM-2 permet également d'afficher en temps réel différentes grandeurs relatives au dépôt de biomolécules sur le cristal présentées dans la section 2.3.2.2. Via un calcul directement intégré à l'interface et présenté dans la section 3.2.2.3, il est possible de remonter jusqu'à la densité du faisceau cible ρ_{cible} . Pour permettre un contrôle à distance total du dispositif, les différentes jauges de pressions (via des coffrets de jauges affichant plusieurs pressions), la vanne d'isolation entre la partie cible de la partie projectile, ainsi que l'obturateur permettant de stopper la propagation du faisceau cible, sont reliés et pilotables via LabVIEW directement.

Parmi toutes les grandeurs abordées dans ce paragraphe, seule l'image de la caméra est indispensable afin d'afficher la distribution en énergie des électrons, appelée $g(E)$ par la suite. Les valeurs de la densité du faisceau cible ou l'intensité du faisceau projectile sont uniquement des constantes utilisées pour normaliser $g(E)$ et évaluer des sections efficaces absolues. Les différentes images capturées par la caméra lors des acquisitions sont sommées et il en résulte une matrice carrée dont la taille dépend de la résolution de la caméra: 608x608 ou 1212x1212 pixels. Selon la méthode de détection (section 2.4.2), la matrice sauvegardée correspond soit à la somme des images analysées par application d'un seuil (méthode 1), soit à la somme des images brutes qui sera normalisée par le taux de comptage MCP (méthode 2). La suite de cette section se concentre sur l'analyse de l'image enregistrée par la caméra. Le programme d'analyse de cette image est un programme écrit sous python également développé pendant cette thèse et utilisant différentes fonctions disponibles dans la bibliothèque PyAbel [95].

2.5.2 Traitement et analyse des données (Python)

L'image est importée dans le programme afin d'être traitée puis analysée. Dans un premier temps, elle est nettoyée du bruit de fond (déterminé grâce à l'image obtenue sans gaz cible, en analysant les électrons créés par interactions entre les ions projectiles et le gaz résiduel dans le spectromètre). L'image est ensuite centrée car il existe une différence de quelques pixels entre le centre théorique correspondant au centre de l'image et le centre réel.

L'image du détecteur sur la figure 2.34a représente la projection en deux dimensions, sur le plan du détecteur, des sphères de Newton des électrons émis au niveau de la zone d'interaction (détails disponibles section 1.4). Dans un second temps, la transformée inverse d'Abel (section 1.4), opération mathématique qui consiste à recréer la distribution initiale des électrons dans l'espace (3D) au niveau de la zone d'interaction à partir de sa projection en deux dimensions sur le détecteur, est numériquement appliquée à l'image. Il existe une bibliothèque PYTHON regroupant les différentes méthodes utilisables développées ces dernières années :

— basex [96]

- rbasex [97, 98]
- Hansen-Law [99, 100]
- onion [41, 45, 101]
- two points et three points [101]

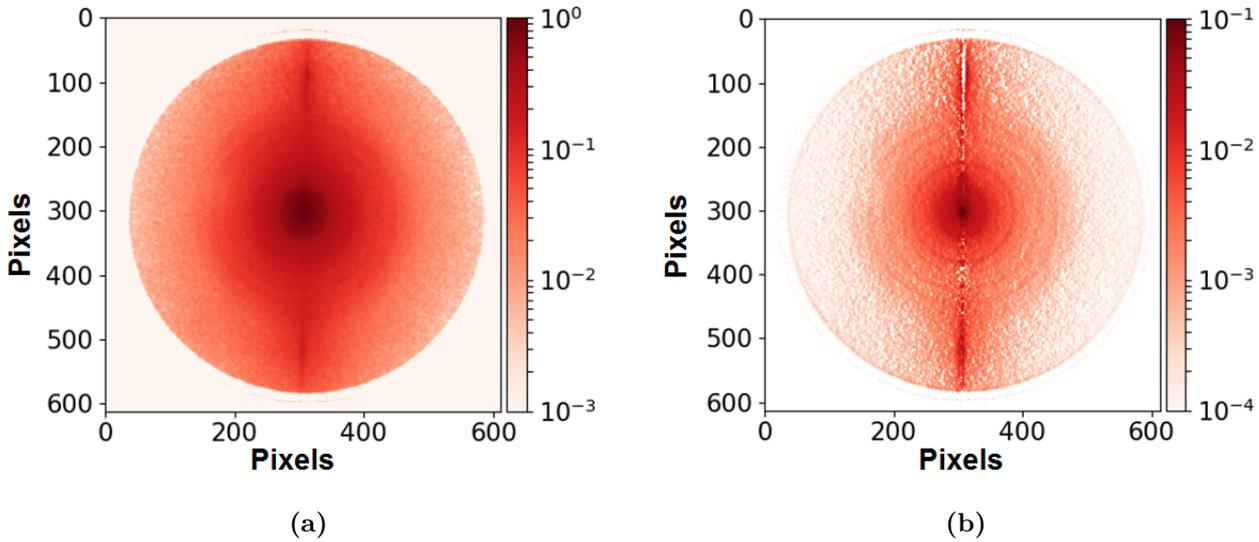


Figure 2.34 – Figure 2.34a : Image brute obtenue après soustraction du bruit de fond et recentrage. Le système de collision utilisé est $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 800\text{V}$. La résolution de la caméra est fixée sur 608x608 pixels. **Figure 2.34b :** Image obtenue après transformée inverse d'Abel de l'image présente sur la figure 2.34a par la méthode développée par E.W Hansen et P.L Law [99].

L'article écrit par D.Hickstein et al. [102] décrit et compare en détail l'efficacité de l'intégralité de ces méthodes notamment en fonction de leur précision, temps de calcul, et taille de l'image à analyser. À l'échelle des travaux présentés dans ce manuscrit, toutes les méthodes sont équivalentes. La méthode retenue est Hansen-Law, nommée d'après E.W Hansen et P.L Law. La figure 2.34b montre la transformée inverse d'Abel de l'image présente sur la figure 2.34a avec cette méthode. La trace verticale visible est induite par le passage du faisceau projectile.

Dans un troisième temps, il convient de déterminer la distribution radiale $f(r)$ de cette image qui correspond maintenant à la distribution initiale d'émission des électrons, puis d'estimer la distribution en énergie $g(E)$ afin de pouvoir évaluer les sections efficaces absolues. Pour obtenir la distribution radiale, une intégration angulaire de l'image présente sur la figure 2.34b sur tous les angles de 0 à 2π est nécessaire. Par soucis pratique, une conversion en mm des distances exprimées en pixels est effectuée: l'image possède un diamètre de 77 mm (surface effective des galettes et écran phosphore). Après mesure, son diamètre est estimé à 555 pixels. La relation pour convertir en mm les distances exprimées en pixels est donc la suivante :

$$r_{\text{mm}} = \frac{77}{555} \cdot r_{\text{pixels}} \quad (2.32)$$

La figure 2.35a montre la distribution radiale des électrons sur le détecteur, résultat de l'intégration angulaire.

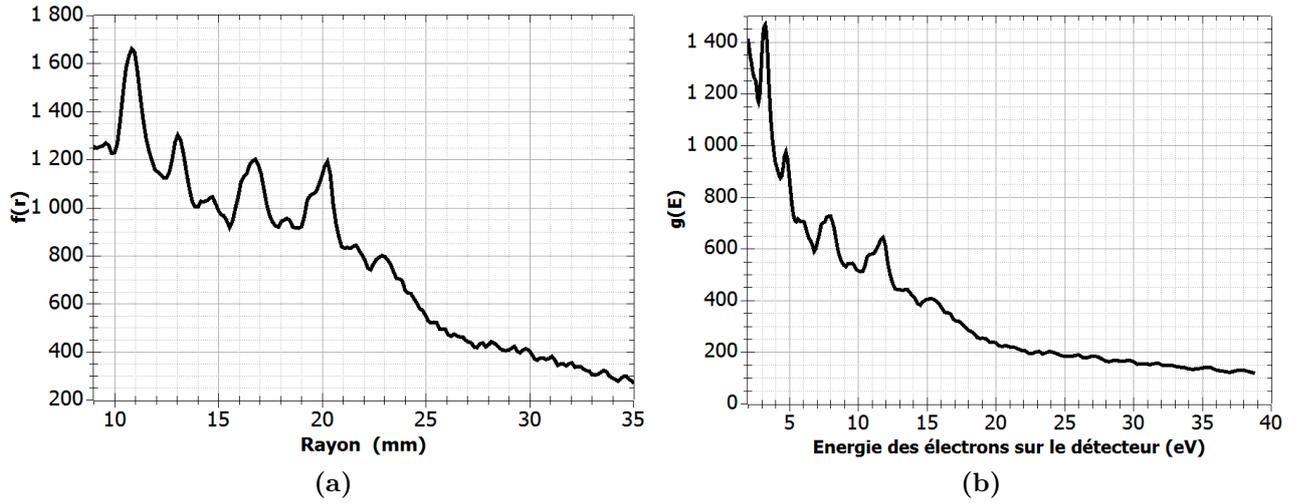


Figure 2.35 – Figure 2.35a : Distribution radiale $f(r)$ donnée par la transformée inverse d’Abel représentée sur la figure 2.34b obtenue par intégration angulaire. **Figure 2.35b :** Distribution en énergie $g(E)$ des électrons obtenue d’après la distribution radiale $f(r)$.

Pour passer de la distribution $f(r)$ à $g(E)$ il est important de poser que l’intégrale de ces deux distributions doit forcément être égale puisqu’elles contiennent les mêmes informations. Il est donc possible d’écrire:

$$\int_{r_{\min}}^{r_{\max}} f(r) dr = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} g(E) dE \quad (2.33)$$

En sachant que:

$$E = \alpha V_{\text{ext}} \cdot r^2 \quad (2.34)$$

et en dérivant l’équation 2.34, il vient:

$$dE = 2 \cdot \alpha V_{\text{ext}} \cdot r \cdot dr \quad (2.35)$$

En substituant l’expression de dE dans l’équation 2.33, il vient finalement une relation entre les distributions radiale $f(r)$ et en énergie $g(E)$:

$$g(E) = \frac{f(r)}{2 \cdot \alpha \cdot V_{\text{ext}} \cdot r} \quad (2.36)$$

Le résultat de l’équation 2.36 représente directement la distribution en énergie $g(E)$ des électrons. Elle est représentée sur la figure 2.35b. Il est maintenant possible de normaliser cette distribution en tenant compte de différentes grandeurs (efficacité de détection, densité du faisceau cible, intensité du faisceau projectile, longueur de la zone d’interaction) afin de déterminer des sections efficaces absolues.

2.6 Détermination des sections efficaces absolues

Le spectromètre VMI en place dans le dispositif IMAGERI permet d’extraire et de détecter en même temps tous les électrons dont l’énergie appartient à l’intervalle permis par la tension d’extraction et émis dans tout l’espace, soit un angle solide de 4π stéradians. Il est possible d’en déduire la section efficace totale d’émission d’électrons σ (cm^2) mais également les sections efficaces simplement différentielles en énergie $d\sigma/dE$ ($\text{cm}^2 \cdot \text{eV}^{-1}$), en angle $d\sigma/d\Omega$ ($\text{cm}^2 \cdot \text{sr}^{-1}$)

(ou doublement différentielles $d^2\sigma/dEd\Omega$ ($\text{cm}^2.\text{eV}^{-1}.\text{sr}^{-1}$) si la statistique des données est suffisante). Dans cette thèse majoritairement consacrée à la caractérisation et à la validation du dispositif expérimental IMAGERI, il a été essentiellement question d'évaluer les sections efficaces totales σ et simplement différentielles en énergie d'émission $d\sigma(E)/dE$. Ces résultats sont présentés dans le chapitre 4 pour des molécules d'adénine et d'uracile.

Section efficace absolue totale σ

Avec le dispositif IMAGERI la détermination de la section efficace totale est directe. Il n'est pas nécessaire d'analyser l'image du détecteur, il suffit de mesurer le nombre d'électrons émis par seconde N_{e^-} par le système de collision et de corriger par différents facteurs de normalisation selon l'équation :

$$\sigma = \frac{N_{e^-}}{\epsilon \cdot N_{\text{proj}} \cdot l_{\text{ZI}} \cdot \rho_{\text{cible}}} \quad (2.37)$$

Avec :

- ϵ l'efficacité de détection du détecteur (section 3.6.1.2).
- N_{proj} le nombre d'ions projectiles par seconde, cette grandeur est déterminée à l'aide de la mesure de l'intensité du faisceau projectile d'ions au moyen de la cage de Faraday ou du profileur (détails dans la section 3.1.2).
- l_{ZI} la longueur de la zone d'interaction. L'étude menée afin d'estimer la longueur de la zone d'interaction et son incertitude associée est développée dans la section 3.2.1.
- ρ_{cible} la densité du faisceau cible de biomolécules mesurée à l'aide d'une micro-balance à quartz. La micro-balance est décrite dans la section 2.3.2.2 et la méthode permettant de déterminer la densité du faisceau de biomolécules est détaillée dans la partie 3.2.2.3.

Section efficace absolue simplement différentielle en énergie d'émission

La section efficace absolue simplement différentielle en énergie d'émission notée $d\sigma(E)/dE$ s'exprime en $\text{cm}^2.\text{eV}^{-1}$. Elle est obtenue à partir de la distribution en énergie $g(E)$ établie dans la section 2.5 et qui correspond à l'intégration angulaire de l'image 2D après transformée inverse d'Abel et s'exprime selon l'équation 2.38 :

$$\frac{d\sigma(E)}{dE} = \frac{g(E)}{\epsilon \cdot N_{\text{proj}} \cdot l_{\text{ZI}} \cdot \rho_{\text{cible}}} \quad (2.38)$$

Section efficace absolue doublement différentielle

À partir des images du détecteur et après transformé inverse d'Abel, il est possible d'extraire la distribution en énergie des électrons émis pour un angle d'émission θ que l'on note $g(E, \theta)$ avec θ l'angle défini par rapport à l'axe de propagation du faisceau projectile (section 1.2.1). De cette distribution, il est possible de déduire de la même manière la section efficace doublement différentielle notée $d^2\sigma(E, \theta)/dEd\Omega$. Les sections efficaces absolues doublement différentielles sont représentées soit à un angle θ donné en fonction de l'énergie E de l'électron émis, soit à une énergie donnée en fonction de l'angle. La détermination des sections efficaces absolues doublement différentielles permet d'une part de mettre en évidence des corrélations entre angle

et énergie d'émission des électrons et, d'autre part, de comparer les résultats aux études expérimentales effectuées avec des spectromètres de type analyseur électrostatique hémisphérique ou à plaques parallèles qui mesurent directement cette grandeur.

Section efficace absolue simplement différentielle en angle d'émission

Enfin, il est possible de déterminer les sections efficaces absolues simplement différentielles en angle solide d'émission des électrons, notées $d\sigma(\theta)/d\Omega$ et qui s'expriment en $\text{cm}^2.\text{sr}^{-1}$, en intégrant $g(E, \theta)$ sur le domaine d'énergie mesuré afin d'étudier uniquement la dépendance angulaire.

Incertitude associée à la détermination des sections efficaces

Il est également nécessaire de déterminer l'incertitude associée à l'estimation des sections efficaces absolues. Pour la détermination de la section efficace totale (équation 2.37), à chaque grandeur (N_{e^-} , N_{proj} , ϵ , l_{ZI} , ρ_{cible}) peut être associée une incertitude systématique (inhérente à la méthode de mesure) et/ou une incertitude statistique (écart-type). L'incertitude totale étant la somme de ces deux composantes. L'estimation de ces incertitudes systématiques et/ou statistiques est détaillée dans le chapitre 3, dans la même section que sa grandeur associée. Ainsi, par propagation des incertitudes, l'incertitude $\delta\sigma$ sur les sections efficaces totales σ s'écrit :

$$\frac{\delta\sigma}{\sigma} = \sqrt{\left(\frac{\delta N_{e^-}}{N_{e^-}}\right)^2 + \left(\frac{\delta\epsilon}{\epsilon}\right)^2 + \left(\frac{\delta N_{\text{proj}}}{N_{\text{proj}}}\right)^2 + \left(\frac{\delta\rho_{\text{cible}}}{\rho_{\text{cible}}}\right)^2 + \left(\frac{\delta l_{\text{ZI}}}{l_{\text{ZI}}}\right)^2} \quad (2.39)$$

Elle est de l'ordre de 30 %. Dans le cas des section efficaces absolues simplement différentielles en énergie d'émission, les barres d'erreurs peuvent atteindre 50% pour des énergies supérieures à 100 eV (chapitre 4). En effet, les sections efficaces diminuent drastiquement à haute énergie et il est donc nécessaire de faire attention à la statistique sur les bords du détecteur afin d'obtenir une mesure fiable.

2.7 Conclusion

En conclusion, cette partie a permis, dans son ensemble, de décrire le dispositif expérimental IMAGERI et de présenter les différentes méthodes d'analyse des données expérimentales permettant de mesurer les sections efficaces absolues d'émission d'électrons de molécules d'intérêt biologique. Plus particulièrement, il a été question de décrire les différents éléments de mise en forme et de diagnostic des faisceaux projectiles, ainsi que leur moyen de production, tel que le canon à ions, les sources ECR et la lampe UV. Les différents faisceaux cibles utilisés au cours de cette thèse, à savoir, un jet supersonique atomique de gaz rare et un jet effusif de biomolécules, leur moyen de production et la manière dont ils sont raccordés au dispositif ont également été présentés. Le fonctionnement du spectromètre VMI a également été expliqué dans son ensemble, à savoir, le système de lentille électrostatique permettant l'extraction des électrons et le système de détection constitué de galettes à micro-canaux, d'un écran phosphore et d'une caméra utilisés pour compter et déterminer la position d'impact des électrons sur le détecteur. Enfin, la méthode d'analyse et de traitement des données via le programme LabVIEW et un programme d'analyse Python, ainsi que les différentes grandeurs permettant l'évaluation des sections efficaces absolues ont été explicitées. Dans le chapitre 3, il sera question

de la caractérisation du dispositif expérimental et plus particulièrement de tous les éléments et grandeurs qui permettent de déterminer les sections efficaces absolues. Les limites du dispositif seront également discutées.

Chapitre 3

Caractérisation du dispositif expérimental IMAGERI

Sommaire

3.1 Les faisceaux d'ions projectiles	60
3.1.1 Mesure et simulations de la position du faisceau sur le profileur XY	60
3.1.2 Détermination du nombre d'ions projectiles N_{proj}	64
3.2 Les faisceaux cibles	64
3.2.1 Le jet supersonique d'atomes de gaz rares (Ar/Kr)	64
3.2.2 Le jet effusif de biomolécules	70
3.2.2.1 Fragmentation des molécules sous l'effet de la température	70
3.2.2.2 Calcul géométrique et détermination expérimentale des dimensions de la zone d'interaction l_{ZI}	76
3.2.2.3 Détermination de la densité des biomolécules ρ_{cible}	77
3.3 Caractérisation et réduction du bruit de fond	79
3.3.1 Les différents types de bruit de fond	80
3.3.2 Réduction de $B_{\text{res-OUT}}$: Effet d'écrantage de $V_{\text{écran}}$	84
3.3.3 Réduction de B_{T} : Différence de tension dV entre les électrodes V_0 et V_1	84
3.4 Calibration en énergie du spectromètre VMI	87
3.4.1 Étude du système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$	87
3.4.2 Autres systèmes de collision	91
3.4.3 Effet de la différence de potentiel sur la calibration en énergie du spectromètre VMI	92
3.4.4 Calibration en énergie du spectromètre VMI via des simulations SIMION	94
3.5 Résolution du spectromètre VMI	96
3.5.1 Étude SIMION : Facteurs affectant la résolution	96
3.5.1.1 Pixellisation de la caméra et géométrie du spectromètre	98
3.5.1.2 Dimensions de la zone d'interaction	99
3.5.1.3 Champ magnétique B	100
3.5.1.4 Taille des spots sur l'écran phosphore	103
3.5.1.5 Différence de potentiel dV entre les électrodes V_0 et V_1	104
3.5.2 Détermination expérimentale de la résolution	105

3.6	Système de détection des électrons émis N_{e^-} : galettes MCP, écran phosphore et caméra	108
3.6.1	Les galettes à micro-canaux (MCP)	108
3.6.1.1	Différence de potentiel Δ_{MCP}	108
3.6.1.2	Efficacité de détection ϵ	109
3.6.2	Comptage des électrons par l'ensemble écran phosphore/caméra	111
3.6.2.1	Seuil et temps d'exposition de la caméra	111
3.6.2.2	Modélisation du système de détection écran phosphore/caméra	114
3.6.2.3	Conclusion sur le comptage des électrons par l'ensemble du système écran phosphore/caméra	119
3.6.3	Linéarité de l'encodage d'une image en l'échelle de gris	120
3.6.4	Conclusions et perspectives sur le système de détection	122
3.7	Conclusions sur la caractérisation du dispositif expérimental IMAGERI	123

Cette thèse étant consacrée au développement et à la caractérisation du dispositif expérimental IMAGERI, il sera question dans ce chapitre de présenter le dispositif dans son état actuel ainsi que de détailler son fonctionnement et ses caractéristiques. En particulier seront détaillés tous les moyens mis en œuvre au cours de cette thèse afin de déterminer les paramètres essentiels à la détermination des sections efficaces absolues tels que le nombre de projectiles N_{proj} , la densité du faisceau cible ρ_{cible} , la longueur l_{ZI} de la zone de recouvrement entre les deux faisceaux et l'efficacité de détection ϵ . Dans ce chapitre, nous détaillerons, dans un premier temps, la caractérisation des faisceaux projectiles (section 3.1) et cibles (section 3.2) utilisés au cours de cette thèse et des différents types de bruits de fond (section 3.3) qu'ils engendrent. Dans un deuxième temps, nous nous intéresserons à l'étude du spectromètre VMI, en particulier sa calibration en énergie (section 3.4) et résolution (section 3.5) ainsi qu'aux systèmes de détection utilisés pour compter et analyser les électrons créés par l'interaction entre les deux faisceaux (section 3.6). En conclusion, les limites du dispositif ainsi que les améliorations potentielles seront discutées.

3.1 Les faisceaux d'ions projectiles

Les faisceaux projectiles (ions et photons) utilisés ainsi que leurs caractéristiques ont déjà été décrits dans le chapitre précédent (partie 2.2). Dans cette partie, la trajectoire du faisceau d'ions dans le dispositif expérimental et plus particulièrement sa déviation par les champs électriques présents dans le spectromètre seront discutées. Pour cela, les mesures expérimentales seront comparées aux résultats de simulations obtenus avec le logiciel SIMION. Le dispositif permettant la mesure de l'intensité du faisceau sera également présenté.

3.1.1 Mesure et simulations de la position du faisceau sur le profil XY

Les expériences étant réalisées en faisceaux croisés, un bon recouvrement entre les faisceaux projectile et cible est nécessaire. Cependant, la tension d'extraction (V_{ext}) utilisée pour la détection des électrons par le spectromètre VMI est appliquée en continu, ce qui implique une déviation du faisceau projectile au centre de la zone d'interaction. Pour une énergie de faisceau

projectile fixée, sa position au centre de la zone d'interaction varie avec la tension d'extraction. Plus l'énergie des ions produits sera importante, plus la déviation du faisceau par le champ électrique dans le spectromètre sera négligeable.

Afin d'étudier ce phénomène de déviation du faisceau projectile, le cas le plus défavorable est choisi comme exemple: il s'agit d'un faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV produits avec le canons à ions. La figure 3.1 schématise la déviation du faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV pour deux tensions d'extraction différentes $V_{\text{ext}} = 100 \text{ V}$ et $V_{\text{ext}} = 1000 \text{ V}$. Le programme SIMION utilisé ici permet de reproduire la trajectoire suivie par un faisceau d'ions projectiles à travers le dispositif expérimental, c'est-à-dire de simuler le passage du faisceau à travers le déflecteur, le spectromètre VMI et le profileur XY tout en choisissant la nature et l'énergie des ions, la tension à appliquer sur le déflecteur, ainsi que l'extraction qui définit l'intensité du champ électrique présent dans le spectromètre VMI. Dans les simulations SIMION, les positions horizontale et verticale du faisceau sont mesurées et enregistrées lorsque ce dernier traverse le plan correspondant à la position du profileur dans le dispositif expérimental.

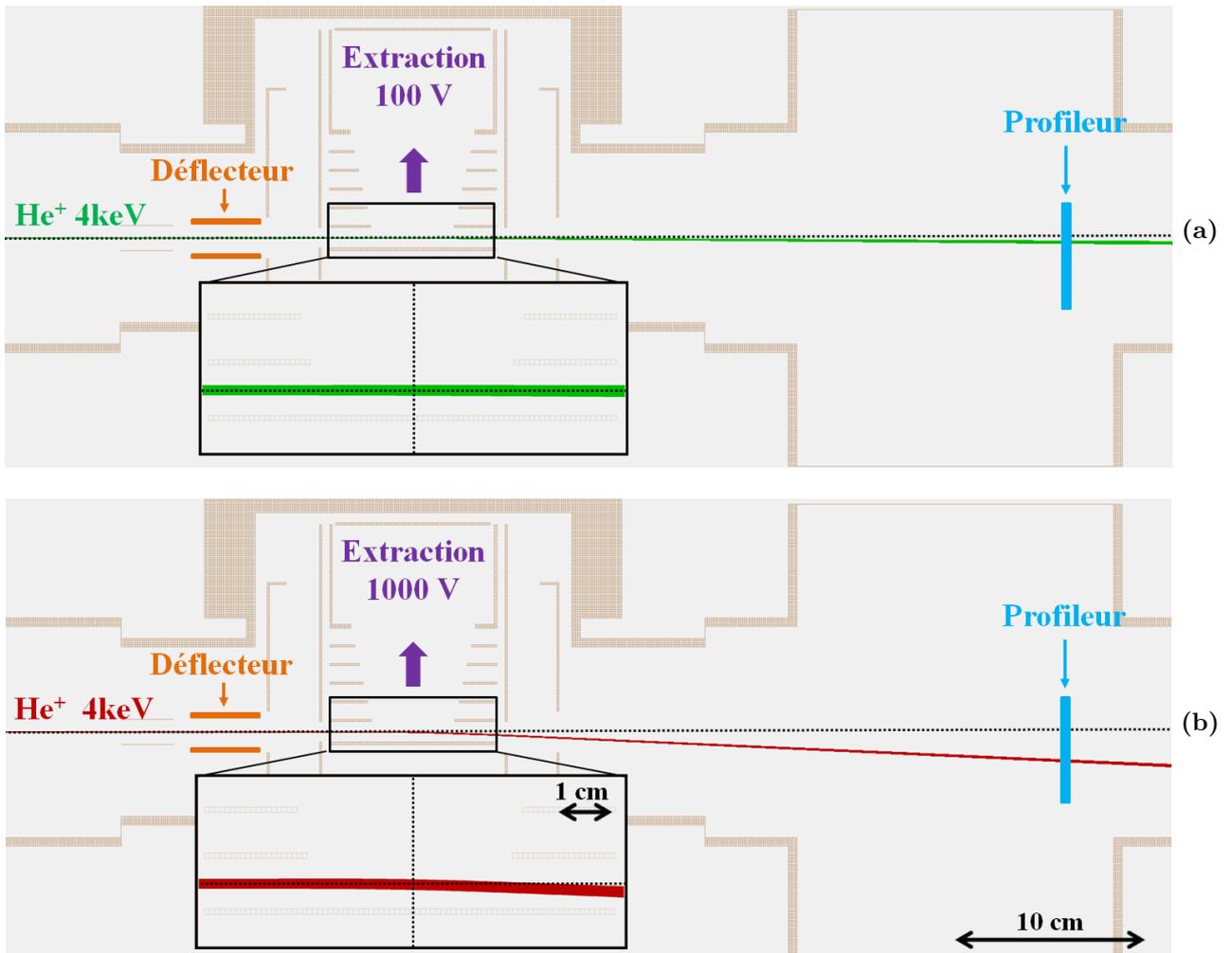


Figure 3.1 – Simulation de la trajectoire d'un faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV à l'intérieur du dispositif expérimental, avec une tension d'extraction de 100 V (figure 3.1a) et 1000 V (figure 3.1b). Aucune tension n'est appliquée sur les déflecteurs.

Pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 100 \text{ V}$, le faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV n'est pas dévié au niveau de la zone d'interaction, mais il est dévié de quelques centaines de micro-mètres dans le plan du profileur (figure 3.1a). Pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 1000 \text{ V}$, le faisceau

dévie déjà vers le bas au centre de la zone d'interaction (quelques dizaines de micro-mètres), et plus on s'en éloigne, plus cet effet s'accroît (figure 3.1b), la déviation atteignant alors environ 1 cm dans le plan du profileur. Il faut donc s'assurer que le faisceau d'ions, quelque soit son énergie ou la tension d'extraction utilisée, passe par le centre de la zone d'interaction pour que le recouvrement entre les faisceaux projectile et cible soit optimal. Afin de recentrer le faisceau, des tensions peuvent être appliquées sur le déflecteur placé en amont du spectromètre pour compenser les champ électrique au voisinage du spectromètre qui est de l'ordre de 1 V/mm pour $V_{\text{ext}} = 100 \text{ V}$ et 10 V/mm pour $V_{\text{ext}} = 1000 \text{ V}$.

Expérimentalement, il est difficile de mesurer la position du faisceau d'ions dans la zone d'interaction et les positions horizontale et verticale du faisceau d'ions se mesurent en aval de la zone d'interaction sur le profileur XY décrit au chapitre précédent (section 2.1). Il est donc nécessaire de s'appuyer sur des simulations SIMION afin d'obtenir une relation de correspondance entre la position du faisceau d'ions au centre de la zone d'interaction et sur le profileur. La figure 3.2 montre la position du faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV sur le profileur mesurée expérimentalement et simulée pour différentes tensions d'extraction entre 100 V et 1000 V lorsqu'aucune tension n'est appliquée sur le déflecteur et que l'ensemble du spectromètre est porté à un potentiel de -500 V ($V_{\text{écran}} = V_0 = V_1 = -500 \text{ V}$). Les positions moyennes simulées et mesurées expérimentalement se correspondent, de sorte que les simulations décrivent correctement la trajectoire du faisceau projectile à travers le dispositif expérimental. Les histogrammes sur la figure de droite représentent la position du faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV sur le profileur pour deux tensions d'extraction: $V_{\text{ext}} = 300 \text{ V}$ et $V_{\text{ext}} = 800 \text{ V}$. La valeur expérimentale de la déviation du faisceau d'ions sur le profileur est déduite de la position du maximum des histogrammes comme l'illustre la figure 3.2 (pour rappel $V_{\text{ext}} = V_{\text{tube}} - V_0$).

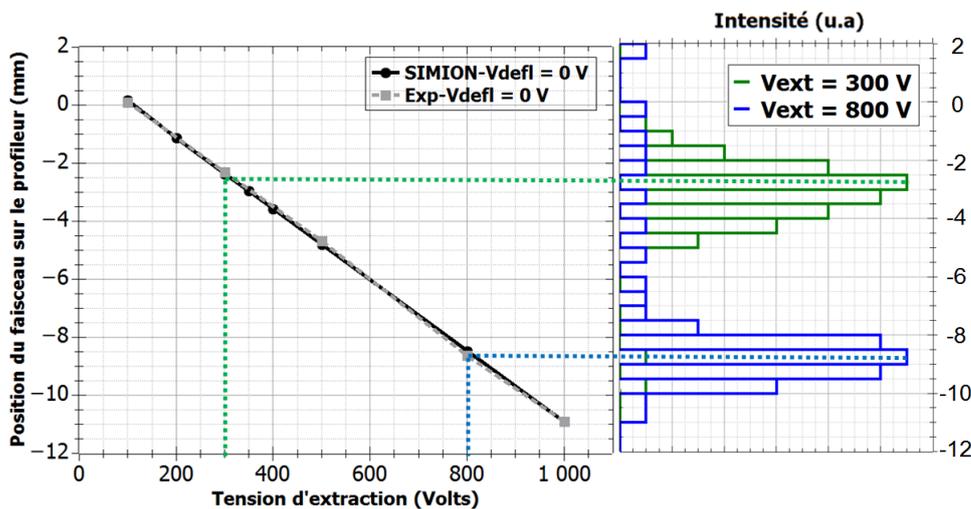


Figure 3.2 – Comparaison entre les simulations SIMION et les résultats expérimentaux montrant la position d'un faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV sur le profileur en fonction de la tension d'extraction appliquée sur le spectromètre VMI avec $V_{\text{écran}} = V_0 = V_1 = -500 \text{ V}$.

La figure de droite montre les histogrammes verticaux du profileur pour les tensions d'extraction $V_{\text{ext}} = 300 \text{ V}$ et $V_{\text{ext}} = 800 \text{ V}$.

Les simulations SIMION étant en accord avec les mesures expérimentales concernant la position du faisceau d'ions sur le profileur, il est donc possible de les utiliser afin d'estimer la déviation du faisceau au niveau de la zone d'interaction au centre du spectromètre VMI. De la même

manière que précédemment, la trajectoire d'ions He^+ d'énergie 4 keV est simulée avec le logiciel SIMION pour différentes tensions d'extraction, toujours avec $V_{\text{écran}} = V_0 = V_1 = -500 \text{ V}$, et la position verticale moyenne du faisceau au centre de la zone d'interaction est ensuite enregistrée et tracée en fonction de la tension d'extraction (figure 3.3a).

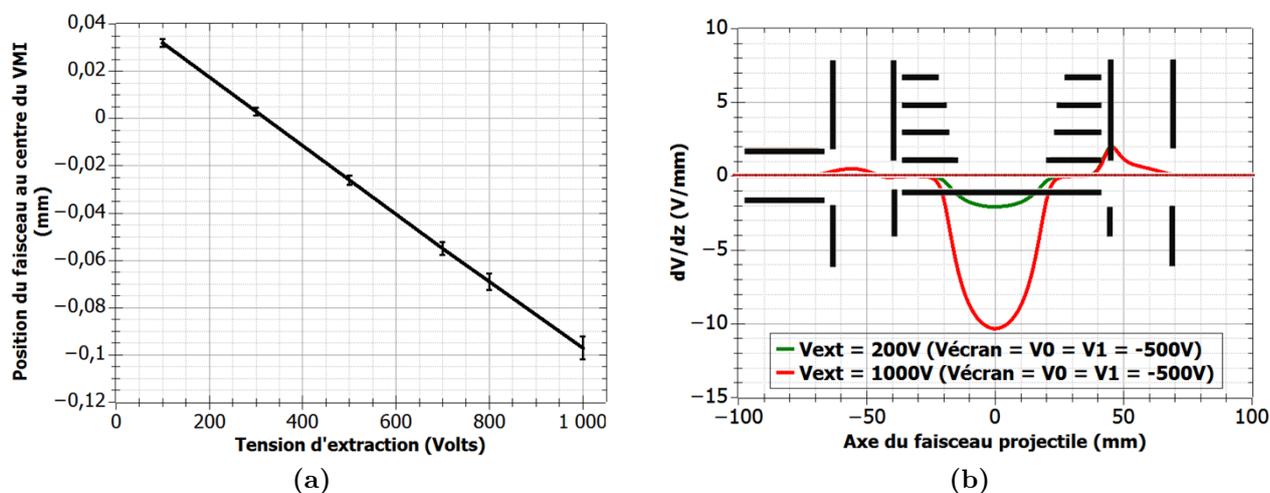


Figure 3.3 – **Figure 3.3a** : Simulations SIMION montrant la position d'un faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV dans le spectromètre VMI en fonction de la tension d'extraction appliquée avec $V_0 = V_1 = -500 \text{ V}$. **Figure 3.3b** : Champ électrique selon l'axe vertical z induit par les différentes électrodes du spectromètre VMI pour les tensions d'extraction $V_{\text{ext}} = 200 \text{ V}$ et 1000 V .

On pourrait s'attendre au fait que le faisceau d'ions projectiles soit centré dans la zone d'interaction pour les faibles tensions d'extraction et subisse une déviation vers le bas pour les tensions d'extraction élevées comme le suggèrent les observations de la figure 3.1. Cependant, la figure 3.3a montre que le faisceau projectile est dévié vers le haut en dessous d'une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 350 \text{ V}$. Ce phénomène est dû à la présence de l'écrantage électrostatique ($V_{\text{écran}} = -500 \text{ V}$) qui n'est pas symétrique par rapport à l'axe du faisceau projectile et qui dévie légèrement le faisceau d'ions à l'entrée et à la sortie du spectromètre VMI. Le champ électrique selon l'axe vertical est représenté sur la figure 3.3b pour deux tensions d'extraction $V_{\text{ext}} = 200 \text{ V}$ et 1000 V . De manière générale, même à des tensions d'extraction élevées, la déviation du faisceau projectile reste faible (0,1 mm pour $V_{\text{ext}} = 1000 \text{ V}$). Néanmoins, il est possible d'appliquer des tensions sur le déflecteur afin de forcer le centrage du faisceau au niveau de la zone d'interaction. Ces tensions, déterminées avec le logiciel SIMION sont de l'ordre de quelques Volts.

Cette partie s'est appuyée sur l'exemple le plus défavorable d'un faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV largement utilisé pendant cette thèse à des fins de caractérisation du dispositif expérimental. Il est important de noter que la déviation du faisceau projectile induite par la tension d'extraction ainsi que la valeur de la tension à appliquer sur le déflecteur pour compenser cette déviation dépendent de l'énergie E et de la charge q de l'ion via le rapport E/q . Par exemple, les faisceaux He^+ d'énergie 15 keV et N^{4+} d'énergie 60 keV (soit un rapport E/q de 15 kV/q) utilisés lors des campagnes de mesures sur la ligne de faisceau ARIBE sont moins influencés par la tension d'extraction du spectromètre VMI. Le faisceau utilisé lors des campagnes de mesures sur la ligne de faisceau d'IRRSUD (C^{4+} à 11,76 MeV) quant à lui ne subit aucune déviation et donc ne nécessite pas de compensation électrostatique.

3.1.2 Détermination du nombre d'ions projectiles N_{proj}

On rappelle que pour déterminer les sections efficaces absolues d'émission d'électrons, il est nécessaire de déterminer le nombre d'ions projectiles par seconde, N_{proj} , défini par l'équation 2.1 et rappelé ici:

$$N_{\text{proj}} = \frac{I_{\text{proj}} \cdot 10^{-12}}{qe} \quad (3.1)$$

où I_{proj} est l'intensité du faisceau en pA, q la charge de l'ion et e la charge élémentaire ($e = 1,602 \cdot 10^{-19}$ C). En pratique, l'intensité du faisceau d'ions projectiles est mesurée avant et après chaque acquisition avec la cage de Faraday. Les fluctuations de l'intensité du faisceau d'ions pendant une acquisition sont mesurées à l'aide du profileur XY. En effet, si la cage de Faraday est laissée sur la trajectoire du faisceau d'ions, il arrive qu'elle renvoie des ions et/ou électrons qui perturbent les mesures et ce, malgré la présence d'un anneau de garde et d'une plaque inclinée à 45° au fond de la cage de Faraday (figure 2.4a). L'erreur δN_{proj} associée à la mesure du nombre d'ions projectiles est directement liée à l'incertitude de mesure δI_{proj} sur l'intensité. Elle dépend d'une erreur systématique qui est gouvernée par la mesure du courant avec la cage de Faraday. L'incertitude associée est causée par l'imprécision de mesure du picoampèremètre estimée à 0,5 % pour un courant de quelques centaines de pA (données constructeur [103]) mais surtout par les électrons secondaires créés dans la cage de Faraday susceptibles de ressortir (phénomène limité par la présence de l'anneau de garde). Ce deuxième phénomène est très difficile à quantifier et, à ce jour, l'erreur associée est fixée à 5 %. L'instabilité du courant pendant une acquisition correspond à l'écart-type de la mesure du courant monitoré avec le profileur, elle est de l'ordre de 10 %-15 %.

3.2 Les faisceaux cibles

Cette partie fait état de la caractérisation des différents faisceaux cibles utilisés pendant cette thèse et décrits dans la partie 2.3, à savoir un jet supersonique d'atomes d'argon et des jets effusifs de molécules d'intérêt biologique (adénine et uracile). En particulier, sera détaillée dans cette partie la détermination de la longueur de la zone d'interaction l_{ZI} (section 3.2.1 pour le jet supersonique et section 3.2.2.2 pour le faisceau de biomolécules). La détermination de la densité ρ_{cible} des faisceaux de biomolécules est décrite dans la section 3.2.2.3. Ces deux paramètres sont essentiels à la détermination des sections efficaces absolues. Une étude sur la détermination de la vitesse du jet supersonique ainsi qu'une étude afin de déterminer la température maximale du four à utiliser pour la mise en phase gaz des biomolécules sans dégradation thermique seront également détaillées dans les sections 3.2.1 et 3.2.2.1 respectivement.

3.2.1 Le jet supersonique d'atomes de gaz rares (Ar/Kr)

Au commencement de cette thèse, le gaz cible, constitué d'un gaz rare (Ar ou Kr) était injecté dans le dispositif expérimental via un jet effusif constitué d'un simple tube d'un diamètre de quelques millimètres de diamètre. Cependant, le jet n'était pas assez dense et était diffusé dans toute la chambre contenant le spectromètre, entraînant un signal très faible et une zone d'interaction mal définie. Un capillaire en verre d'un diamètre interne de 1 mm a ensuite été installé à l'extrémité du jet effusif afin d'injecter les atomes plus près du faisceau projectile. Mais, le capillaire se chargeait électrostatiquement et déformait la trajectoire des électrons. La

solution retenue a été d'installer un jet supersonique (décrit dans la partie 2.3.1) pour obtenir un faisceau fin, dense et bien défini. Dans cette partie, la méthodologie permettant d'imager la zone d'interaction et donc de déterminer la longueur de la zone d'interaction et la vitesse du jet supersonique sera détaillée.

Méthodologie de calcul des dimensions de la zone d'interaction et de la vitesse du jet supersonique

Afin de déterminer expérimentalement les dimensions de la zone d'interaction et notamment sa longueur l_{ZI} , nous avons imagé les ions provenant du gaz cible créés après interaction des deux faisceaux dans le spectromètre VMI. Pour cela, les tensions des différentes électrodes du spectromètre sont réglées afin que l'extraction des ions du gaz cible soit homogène afin d'obtenir une image la moins déformée possible de la zone d'interaction. La figure 3.4a montre une image des ions Ar^+ créés après interaction entre un faisceau projectile d'ions He^+ d'énergie 4 keV et un faisceau d'atomes d'argon injectés dans le dispositif avec une pression de 6 bar via le jet supersonique pour un champ d'extraction de 35 V.cm^{-1} . Les projections de l'image du détecteur selon l'axe du faisceau cible (profil horizontal) et selon l'axe du faisceau projectile (profil vertical) sont également montrées sur la figure 3.4a.

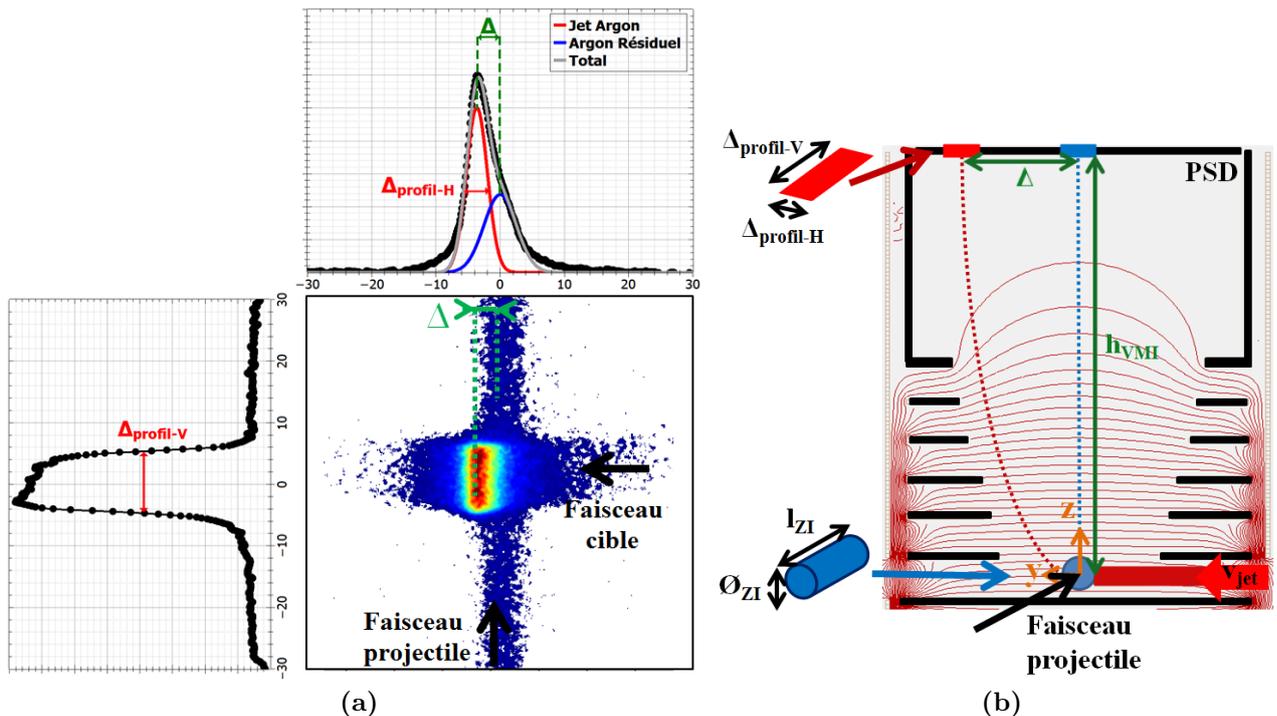


Figure 3.4 – Figure 3.4a : Projection de la zone d'interaction et de la trace du faisceau projectile sur le détecteur (PSD) après l'extraction homogène d'ions Ar^+ pour un champ d'extraction de 35 V.cm^{-1} . Les graphiques représentent le profil horizontal de largeur à mi-hauteur $\Delta_{profil-H}$ permettant de calculer le rayon de la zone d'interaction et le profil vertical de largeur à mi-hauteur $\Delta_{profil-V}$ permettant de calculer la longueur de la zone d'interaction. Les distances sont exprimées en mm. **Figure 3.4b :** Trajectoire des ions Ar^+ dans le spectromètre VMI.

La figure 3.4a montre deux contributions différentes:

- Une trace bleue verticale qui parcourt la totalité de l'image caractéristique du faisceau d'ions projectiles. En effet, les atomes du gaz cible sont également diffusés dans le

spectromètre VMI et interagissent avec le faisceau, de sorte que des ions Ar^+ sont créés sur toute la trace du faisceau projectile (courbe bleue sur la figure 3.4a). La contribution du gaz résiduel a été soustraite.

- Une trace rouge rectangulaire, projection de la zone d'interaction cylindrique sur le détecteur (courbe rouge sur la figure 3.4a).

Comme le montre la figure 3.4a, la zone d'interaction ne se superpose pas avec la trace du faisceau d'ions projectile et est décalée de quelques millimètres dans le sens de propagation du faisceau cible en raison de la vitesse v_{jet} des atomes de gaz du jet supersonique. Sur la figure 3.4b, la trajectoire des ions provenant des atomes du jet supersonique est indiquée en pointillés rouges, celle des ions créés sur la trace du faisceau projectile est indiquée en pointillés bleus. L'écart entre la projection du faisceau projectile et celle de la zone d'interaction est appelé Δ , tandis que h_{VMI} représente la hauteur selon l'axe vertical entre la zone d'interaction et le détecteur (PSD).

Bien que le champ électrique ne soit pas parfaitement homogène (il existe une zone de vol libre entre l'électrode V_{tube} et le détecteur illustrée sur la figure 3.4b), en première approximation, on considérera le champ électrique constant dans tout le spectromètre. Avec cette hypothèse, la résolution des équations du mouvement d'une particule chargée dans le plan yz donnent:

$$\begin{cases} \Delta = v_{\text{jet}} \cdot t_{\text{TOF}} \\ h_{\text{VMI}} = \frac{q \cdot E \cdot t_{\text{TOF}}^2}{2m} \end{cases} \quad \begin{cases} \Delta = v_{\text{jet}} \sqrt{\frac{2 \cdot m \cdot h_{\text{VMI}}}{q \cdot E}} = \frac{\mu}{\sqrt{E}} \\ \text{et } \mu = v_{\text{jet}} \sqrt{\frac{2 \cdot m \cdot h_{\text{VMI}}}{q}} \end{cases} \quad (3.2)$$

avec $h_{\text{VMI}} = 100$ mm, t_{TOF} le temps de vol des ions dans le spectromètre VMI, E le champ d'extraction, q la charge, m la masse et v_{jet} la vitesse de l'ion. Lors de l'expansion du gaz atomique des zones de haute pression (buse du jet) vers les zones de plus basse pression (dispositif expérimental), le jet subit des collisions modifiant la vitesse et l'angle du vecteur vitesse des atomes le constituant. Le vecteur vitesse des atomes possède donc une composante longitudinale v_{\parallel} selon l'axe de propagation du faisceau cible et une composante transverse v_{\perp} selon l'axe du faisceau projectile. Ainsi, la distribution des vitesses longitudinales Δv_{\parallel} induit un élargissement du diamètre \varnothing_{ZI} de la zone d'interaction. De la même manière, la distribution des vitesses transverses Δv_{\perp} induit un élargissement de la longueur de la zone d'interaction l_{ZI} . Les largeurs $\Delta_{\text{profil-H}}$ et $\Delta_{\text{profil-V}}$ des profils expérimentaux observés et représentés sur la figure 3.4a sont donc la convolution des dimensions réelles \varnothing_{ZI} et l_{ZI} de la zone d'interaction par son élargissement longitudinal et transverse:

$$\Delta_{\text{profil-H}} = \sqrt{\varnothing_{\text{ZI}}^2 + (\Delta v_{\parallel} \cdot t_{\text{TOF}})^2} = \sqrt{\varnothing_{\text{ZI}}^2 + \left(\frac{\mu_{\parallel}}{E}\right)^2} \quad (3.3)$$

$$\Delta_{\text{profil-V}} = \sqrt{l_{\text{ZI}}^2 + (\Delta v_{\perp} \cdot t_{\text{TOF}})^2} = \sqrt{l_{\text{ZI}}^2 + \left(\frac{\mu_{\perp}}{E}\right)^2} \quad (3.4)$$

Expérimentalement, il est possible de retrouver les valeurs de la vitesse moyenne v_{jet} du jet supersonique via l'équation 3.2 et les valeurs des dimensions \varnothing_{ZI} et l_{ZI} de la zone d'interaction via les équations 3.3 et 3.4. Pour cela, il convient de relever les valeurs de Δ ou de $\Delta_{\text{profil-H}}$ et $\Delta_{\text{profil-V}}$ pour différents champs d'extraction E . Cette étude est menée avec le système de collision He^+ (4keV) + Ar.

Détermination de la vitesse moyenne v_{jet} du jet supersonique

La vitesse moyenne du jet supersonique v_{jet} se détermine expérimentalement en mesurant l'écart Δ entre la projection de la zone d'interaction et la trace du faisceau projectile sur le détecteur pour différents champs d'extraction E compris entre 5 V.cm^{-1} et 50 V.cm^{-1} . Le champ électrique ne peut pas excéder 50 V.cm^{-1} : au delà, la déviation du faisceau d'ions projectiles est trop importante et le recouvrement entre les deux faisceaux n'est plus assuré. Sur la figure 3.5a, l'écart Δ est tracé en fonction du champ d'extraction et un ajustement est fait avec une fonction de la forme μ/\sqrt{E} issue de l'équation 3.2. Les barres d'erreur sont calculées en estimant l'erreur faite sur la mesure de la valeur Δ à partir des différents profils pour chaque champ d'extraction.

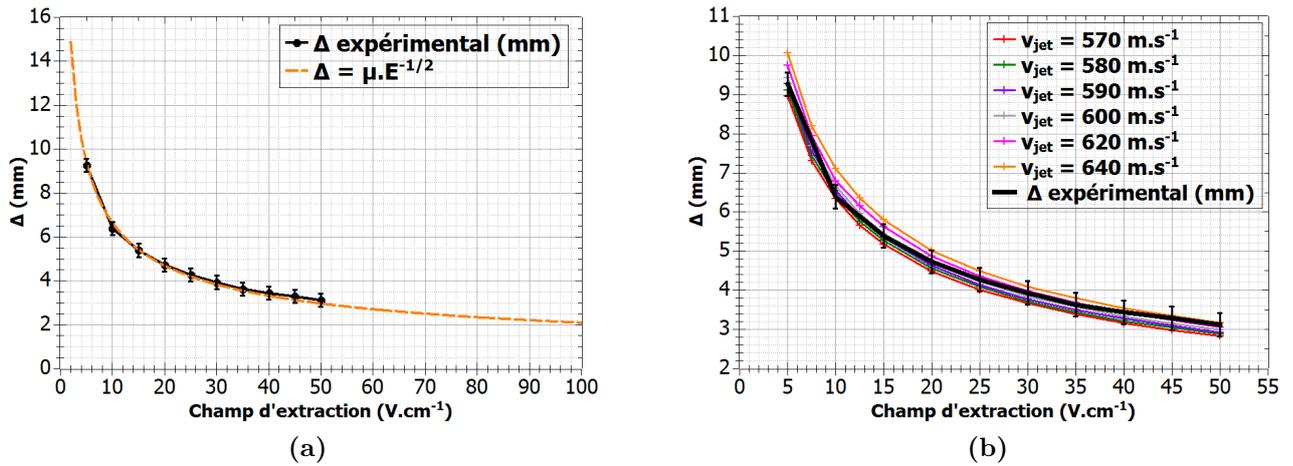


Figure 3.5 – Figure 3.5a : Écart Δ mesuré expérimentalement entre la projection de la trace du faisceau projectile et de la zone d'interaction sur le détecteur pour différents champs d'extractions entre 5 V.cm^{-1} et 50 V.cm^{-1} . **Figure 3.5b :** Comparaison entre Δ_{exp} (courbe pleine noire) et Δ_{SIMION} pour différentes vitesses du jet supersonique entre 570 m.s^{-1} et 640 m.s^{-1} (courbes en pointillés).

Finalement, pour le système de collision He^+ (4 keV) + Ar étudié ici, l'ajustement des points expérimentaux donne $\mu = (0,209 \pm 0,03) \text{ V}^{1/2}.\text{m}^{3/2}.\text{s}^{-1}$. L'incertitude $\delta(\mu)$ sur la grandeur μ provient des différents ajustements utilisés afin de reproduire au mieux les points expérimentaux. Cette incertitude est finalement propagée sur la valeur de la vitesse v_{jet} par l'équation 3.2. La valeur de la vitesse du jet supersonique vaut $v_{\text{jet}} = 740 \pm 30 \text{ m.s}^{-1}$. À partir de l'équation théorique 2.16 démontrée dans la section 2.3.1 qui propose une estimation de la vitesse d'un jet supersonique, il est possible de calculer une vitesse théorique du jet supersonique qui donne $v_{\infty} = 554 \text{ m.s}^{-1}$. La différence s'explique par le fait que la vitesse est déterminée ici en considérant un champ d'extraction homogène dans le spectromètre. Or nous avons vu que cette hypothèse n'est pas pleinement valide (figure 3.4b).

Afin de prendre en compte la non-homogénéité du champ électrique dans le spectromètre et d'estimer au plus juste la vitesse des atomes du jet supersonique, des simulations avec le logiciel SIMION sont utilisées: des ions Ar^+ sont créés depuis une zone d'interaction cylindrique de rayon $\varnothing_{\text{ZI}} = 1 \text{ mm}$ et de longueur $l_{\text{ZI}} = 7 \text{ mm}$, avec une vitesse orientée dans le sens de propagation du faisceau cible dans le dispositif expérimental.

La figure 3.5b compare le décalage expérimental Δ pour différents champs d'extraction (courbe

noire pleine) au décalage simulé pour six vitesses de jets entre 570 m.s^{-1} et 640 m.s^{-1} . Il est possible de remarquer que les valeurs expérimentales ne coïncident pas avec une seule et même courbe simulée. Une vitesse moyenne peut être déduite de cette courbe en admettant des barres d'erreur sur le décalage Δ déjà représentées sur la figure 3.5a. D'après les simulations, chaque barre d'erreur correspond à une incertitude sur la vitesse d'environ 50 m.s^{-1} et il vient $v_{\text{jet-SIMION}} = (600 \pm 50) \text{ m.s}^{-1}$. Cette valeur est en accord avec celle estimée théoriquement.

Détermination expérimentale de la longueur l_{ZI} de la zone d'interaction

La longueur l_{ZI} de la zone d'interaction se détermine en mesurant la largeur $\Delta_{\text{profil-V}}$ pour différents champs d'extraction et en extrapolant les valeurs à champ d'extraction infini pour lesquelles $\Delta_{\text{profil-V}} = l_{\text{ZI}}$. Expérimentalement, les largeurs des profils sont mesurées pour des champs compris entre 5 V.cm^{-1} et 50 V.cm^{-1} et les valeurs expérimentales $\Delta_{\text{profil-V}}$ sont représentées en fonction du champ d'extraction sur la figure 3.6. Les données expérimentales sont ajustées à l'aide d'une fonction de type $\sqrt{\lambda + \mu/E}$ avec E le champ d'extraction en Volts/cm et λ et μ des constantes. μ tient compte des caractéristiques du spectromètre et $\lambda = l_{\text{ZI}}^2$ (voir équation 3.4).

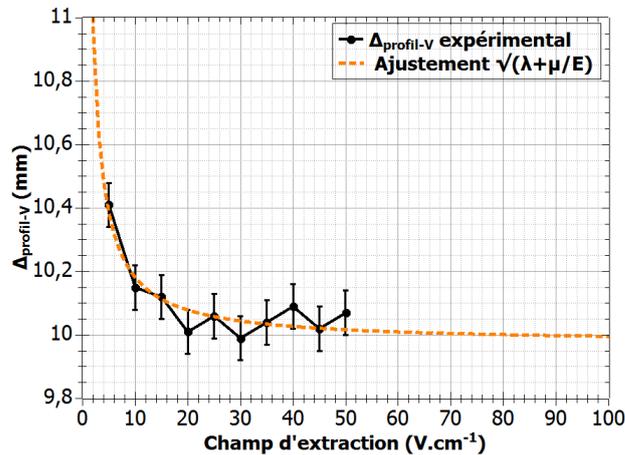


Figure 3.6 – Largeur à mi-hauteur du profil vertical ($\Delta_{\text{profil-V}}$) tracée pour différents champs d'extraction.

Finalement, lorsque le champ d'extraction tend vers l'infini, il vient $\Delta_{\text{profil-V}} = l_{\text{ZI}}(\text{exp}) = (9,9 \pm 0,1) \text{ mm}$, les incertitudes provenant des erreurs de lecture sur les valeurs de $\Delta_{\text{profil-V}}$ lors de l'analyse des données.

Un simple calcul géométrique de la taille du faisceau cible en considérant les distances entre la buse du jet supersonique et les écorceurs consécutifs ainsi que leur diamètre respectif (figure 3.7) donne un diamètre du faisceau cible au niveau de la zone d'interaction $l_{\text{ZI}}(\text{géom}) = 6,75 \text{ mm}$. La valeur mesurée expérimentalement à l'aide du champ d'extraction $l_{\text{ZI}}(\text{exp}) = 9,9 \text{ mm}$ diffère donc de près de 30 % de la valeur géométrique $l_{\text{ZI}}(\text{géom}) = 6,75 \text{ mm}$. Ceci s'explique par le fait que le champ d'extraction n'est pas parfaitement homogène dans le spectromètre VMI et induit très certainement une déformation de la zone d'interaction.

Des simulations SIMION permettent de vérifier l'effet du champ électrique. Pour cela, une zone d'interaction fictive de longueur $l_{\text{ZI}}(\text{simu})$ connue contenant des ions Ar^+ est créée, la vitesse des ions est orientée selon l'axe du faisceau cible et vaut 500 m.s^{-1} , le champ d'extraction est

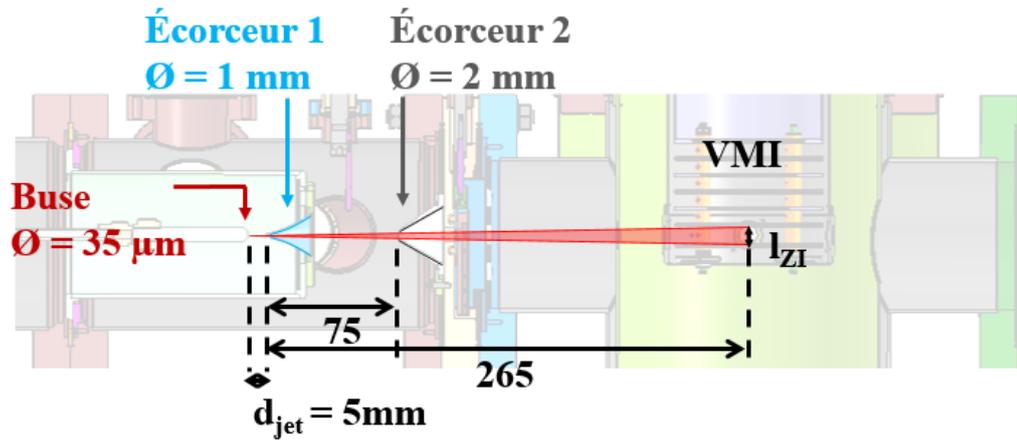


Figure 3.7 – Coupe du dispositif expérimental montrant les distances entre la buse du jet supersonique, les différents écorceurs et la zone d'interaction.

fixé à 100 V.cm^{-1} . Afin de regarder uniquement l'effet du champ d'extraction, la distribution des vitesses longitudinales et angulaires n'est pas introduite dans les simulations. Il s'agit ici de corriger uniquement les valeurs mesurées expérimentalement lorsque le champ d'extraction tend vers l'infini. La figure 3.8 montre, pour certaines longueurs simulées notées $l_{ZI}(\text{simu})$ la longueur projetée sur le détecteur $l_{ZI}(\text{PSD})$.

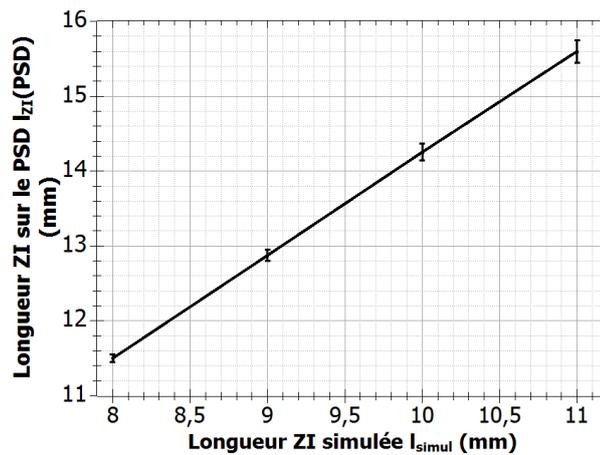


Figure 3.8 – Comparaison des longueurs de la zone d'interaction simulées $l_{ZI}(\text{simu})$ aux longueurs de la projection de la zone d'interaction sur le détecteur $l_{ZI}(\text{PSD})$ après extraction d'ions Ar^+ pour un champ d'extraction de 100 V.cm^{-1} possédant une vitesse selon l'axe du faisceau cible de 500 m.s^{-1} .

Par lecture graphique, il est effectivement possible de remarquer que la longueur $l_{ZI}(\text{PSD})$ de la zone d'interaction projetée sur le détecteur est plus grande que la longueur simulée $l_{ZI}(\text{simu})$ au centre du spectromètre VMI en raison de l'inhomogénéité du champ d'extraction utilisé. Un ajustement linéaire donne le facteur d'agrandissement suivant: $\frac{l_{ZI}(\text{PSD})}{l_{ZI}(\text{simu})} = 1,42 \pm 0,02$. Il est donc nécessaire de corriger les dimensions de la zone d'interaction précédemment déduites de l'étude expérimentale des profils de la zone d'interaction par ce facteur d'agrandissement. Finalement, la valeur réelle de longueur de la zone d'interaction lors de cette étude est $l_{ZI} = l_{ZI}(\text{exp})/1,42 = (6,97 \pm 0,12) \text{ mm}$, en comparaison $l_{ZI}(\text{géom}) = 6,75 \text{ mm}$.

Une étude similaire afin de déterminer le diamètre \varnothing_{ZI} de la zone d'interaction est également

faisable, mais cette valeur n'est pas pérenne. \varnothing_{ZI} dépend principalement de l'ouverture des fentes en amont du spectromètre, la valeur trouvée est donc grandement affectée par le réglage du faisceau projectile. l_{ZI} est beaucoup moins susceptible de varier puisqu'elle dépend des caractéristiques du faisceau cible uniquement. Ainsi, pour un certain couple d'écorceurs utilisés, une distance entre la buse du jet et le premier écorceur fixée, ainsi qu'une pression constante dans le réservoir, l_{ZI} est constante.

3.2.2 Le jet effusif de biomolécules

Afin de créer un faisceau de biomolécules gazeuses, le four commercial CREATEC décrit dans le chapitre précédent est utilisé. Les biomolécules considérées dans cette étude sont une base de l'ADN: l'adénine (135 uma) et une base de l'ARN: l'uracile (112 uma). Elles sont déposées directement dans le four sous forme de poudre et sont sublimées lorsque leur température devient suffisamment élevée. La quantité de biomolécules vaporisée par le four croît avec la température de ce dernier. Cependant, au-delà d'une certaine température, les biomolécules fragmentent sous l'effet de la chaleur. Lors d'une expérience visant à mesurer les sections efficaces absolues d'ionisation de ces biomolécules, il est nécessaire de s'assurer que les électrons détectés par le spectromètre VMI proviennent bien de la biomolécule intacte et non d'un de ses fragments. La section 3.2.2.1 a donc pour objectif d'étudier les températures maximales T_{EC} et T_{HL} applicables aux deux cavités du four EC (Effusion Cell) et HL (Hot Lips), afin que les biomolécules restent intactes lors de leur passage en phase gazeuse. Afin de déterminer les sections efficaces absolues, la longueur de la zone d'interaction ainsi que la densité du faisceau de biomolécules doivent être connues. La densité du faisceau est mesurée à l'aide de la micro-balance à quartz INFICON décrite dans la partie 2.3.2.2. L'estimation de la longueur l_{ZI} de la zone d'interaction (section 3.2.2.2) ainsi que la mesure de la densité des biomolécules ρ_{cible} en fonction de la température du four (section 3.2.2.3) seront donc également discutées.

3.2.2.1 Fragmentation des molécules sous l'effet de la température

La dégradation thermique de molécules se caractérise par une rupture des liaisons interatomiques dans la molécule et donc la création de différents fragments ou l'apparition de nouvelles espèces chimiques. Le spectromètre de masse décrit dans la partie 2.3.2.3 est monté à la place de la micro-balance à quartz afin d'enregistrer le spectre de masse pour différentes températures de chauffage et d'observer la présence ou non de fragments liés à la dégradation de la biomolécule sous l'effet de la chaleur du four. Dans cette partie, le cas de l'adénine sera en particulier détaillé, la même étude ayant aussi été menée pour l'uracile.

Cas de l'Adénine ($C_5H_5N_5$, 135 u.m.a)

Un exemple de spectre de masse est montré sur la figure 3.9a, il montre les différentes espèces issues du gaz résiduel présentes dans le dispositif. On y retrouve les principaux constituants de l'air N_2 , O_2 , CO_2 et H_2O , ainsi que les fragments associés C^+ , O^+ , H^+ , OH^+ formés par l'impact des électrons d'énergie 70 eV sur le gaz.

Sur la figure 3.9b est tracé le spectre de masse de l'adénine pour les températures $T_{EC} = 140$ °C et $T_{HL} = 260$ °C après soustraction du gaz résiduel. Il est admis que pour ces températures, la dégradation thermique de l'adénine est négligeable. Les fragments observés sur le spectre de masse de l'adénine (figure 3.9b) correspondent donc à ceux créés par l'impact d'électrons

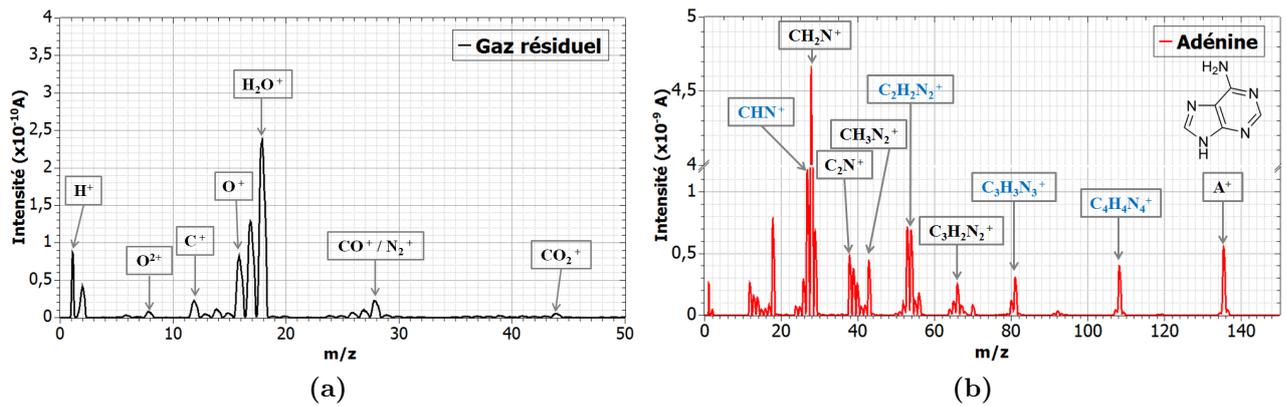


Figure 3.9 – **Figure 3.9a** : Spectre de masse du gaz résiduel dans le dispositif. **Figure 3.9b** : Spectre de masse de l'adénine avec le four aux températures $T_{EC} = 140\text{ °C}$ et $T_{HL} = 260\text{ °C}$

d'énergie 70 eV sur une molécule d'adénine, ils sont également en accord avec d'autres études menées sur la fragmentation de l'adénine par impact d'électrons [104, 105, 106]. Toujours sur le spectre de masse de l'adénine, il est possible d'observer des fragments particuliers indexés en bleu correspondant aux groupements $C_nH_nN_n^+$ avec $n = (1,2,3,4)$ révélateurs de la perte de groupements CHN par l'adénine : c'est le mode de fragmentation privilégié [104, 107, 108] qui explique la majeure partie des pics les plus intenses du spectre de masse. Cependant, ces fragments ne sont pas stables et se dissocient en perdant différents groupements: CH_2N_2 , CHN ou H. La figure 3.10 tirée de la publication [106] illustre les voies de fragmentation d'une molécule d'adénine et permet également d'expliquer la présence des principaux fragments observés expérimentalement.

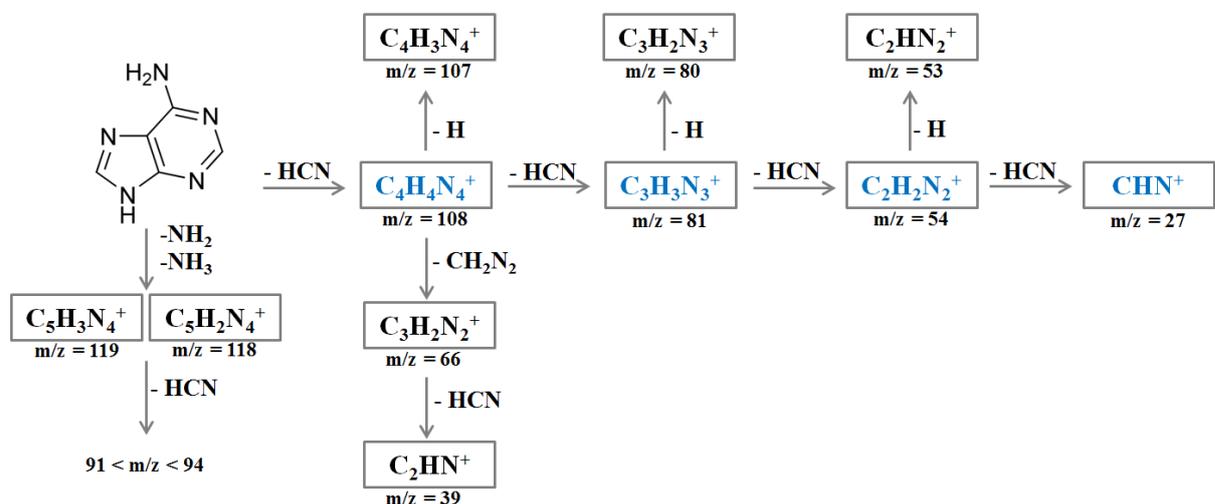


Figure 3.10 – Proposition des mécanismes de fragmentation d'une molécule d'adénine permettant d'expliquer les différents fragments sur le spectre de masse expérimental (fig 3.9b).

La fragmentation de l'adénine en $C_5H_3N_4^+$ ($m/z = 119$) et $C_5H_2N_4^+$ ($m/z = 118$) serait donc due à la perte d'un groupement NH_2 ou NH_3 . Ces fragments instables, se dissocient ensuite en libérant un groupement CHN pour donner deux nouvelles molécules $C_4H_2N_3^+$ ($m/z = 94$) et $C_4HN_3^+$ ($m/z = 93$) susceptibles à leur tour de perdre un atome d'hydrogène pour donner le groupe de molécules comprises dans l'intervalle $m/z = [91 ; 94]$.

La détermination du seuil de fragmentation de l'adénine induit par une trop forte température générée par le four repose sur la comparaison de l'intensité des différents fragments principaux pour plusieurs températures de chauffage. Le spectre présent sur la figure 3.11a montre donc une superposition de spectres de masses de l'adénine obtenus pour différentes températures T_{HL} de 200 °C à 360 °C, T_{EC} étant fixée à 140 °C. En particulier, les deux encadrés montrent les variations d'intensité de l'adénine ($m/z = 135$) et de l'ion $C_4H_4N_4^+$ ($m/z = 108$), un des principaux fragments de l'adénine.

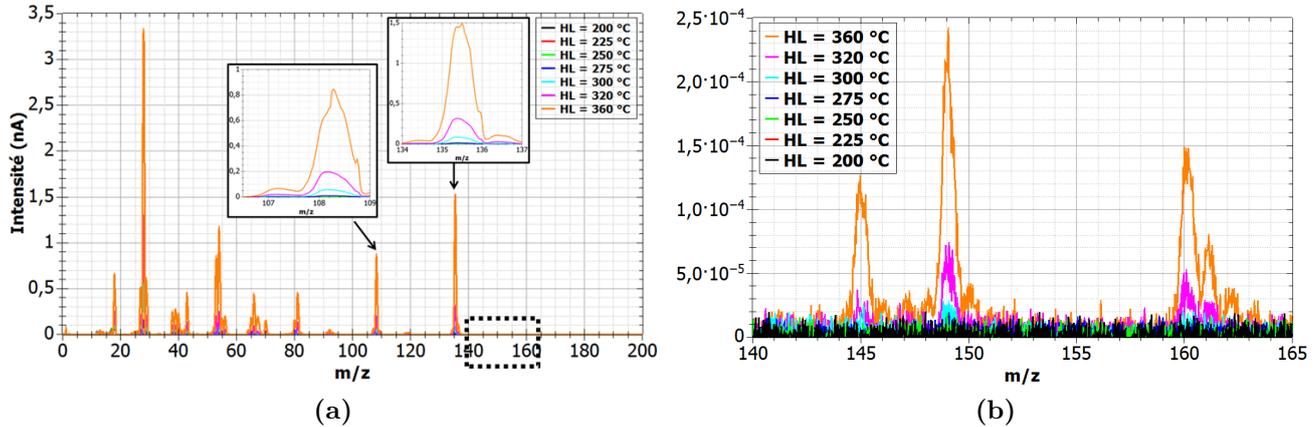


Figure 3.11 – Figure 3.11a : Spectre de masse de l'adénine pour différentes températures HL, EC est fixé à 140 °C. **Figure 3.11b :** Agrandissement de la région $m/z = [140 ; 165]$ du spectre de masse de l'adénine pour différentes températures HL

La figure 3.11b est un agrandissement de la zone $140 < m/z < 165$ où l'apparition de nouvelles espèces est observable à partir de $T_{HL} = 300$ °C. Ces espèces n'apparaissent qu'à partir d'une certaine température. Elles ne sont pas dues à l'ionisation de l'adénine par les électrons d'énergie 70 eV du spectromètre de masse puisqu'elles ont un rapport m/z supérieur à la masse de l'adénine, mais sont bien le résultat de la dégradation de l'adénine sous l'effet de la chaleur. Dans la littérature, aucune étude ne fait mention d'espèces pour des masses supérieures à celle de l'adénine. Cependant, en étudiant le schéma de fragmentation de l'adénine (fig 3.10), il est possible de faire l'hypothèse que les nouvelles espèces pourraient correspondre aux molécules:

- $C_6H_3N_5^+$ ($m/z = 145$), combinaison du fragment $C_5H_2N_4^+$ ($m/z = 118$) et d'un groupement CHN ($m/z = 27$)
- $C_5H_5N_6^+$ ($m/z = 149$), combinaison du fragment $C_4H_4N_4^+$ ($m/z = 108$) et d'un groupement CHN_2 ($m/z = 41$)
- $C_6H_4N_6^+$ ($m/z = 160$), combinaison des fragments $C_3H_2N_3^+$ ($m/z = 80$)
- $C_6H_5N_6^+$ ($m/z = 161$), combinaison des fragments $C_3H_2N_3^+$ ($m/z = 80$) et $C_3H_3N_3^+$ ($m/z = 81$) ou combinaison des fragments $C_4H_4N_4^+$ ($m/z = 108$) et C_2HN_2 ($m/z = 53$)

Ces espèces pourraient aussi être le résultat de la fragmentation suite à l'ionisation d'une espèce de masse plus élevée possiblement créée sous l'effet de la température dans le four. Il est également à noter que ces nouvelles espèces ont une intensité très inférieure (facteur 10^{-4}) par rapport aux fragments de l'adénine. Elles sont négligeables, mais elles sont le signe d'une dégradation thermique.

La figure 3.11a montre donc une augmentation de l'intensité des différents fragments lorsque la température T_{HL} augmente et T_{EC} reste fixe à 140°C. S'il n'y a pas de dégradation thermique, alors augmenter la température T_{HL} permet de sublimer plus de molécules d'adénine et d'ob-

tenir un faisceau plus dense. Pour cette gamme de températures, on observe une augmentation proportionnelle de l'intensité de l'adénine par rapport à l'intensité des différents fragments sur le spectre de masse. Ainsi, l'intensité des fragments normalisée par l'intensité de l'adénine reste constante quelque soit la température (figure 3.12).

La température critique à partir de laquelle la dégradation thermique de l'adénine apparaît se détermine donc en étudiant le rapport entre l'intensité des fragments et l'intensité de l'adénine. La figure 3.12 montre l'évolution de ce rapport pour deux des principaux fragments $C_4H_4N_4^+$ ($m/z = 108$) et $C_3H_3N_3^+$ ($m/z = 81$) en fonction de la température T_{HL} (figure 3.12a) et T_{EC} (figure 3.12b). Pour une température $T_{EC} = 140$ °C, les rapports d'intensités des deux princi-

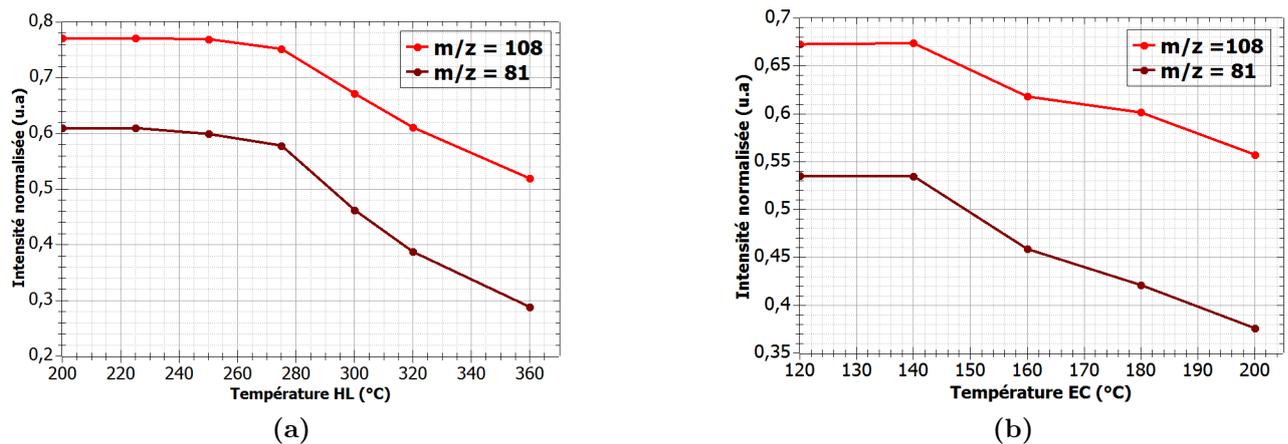


Figure 3.12 – Figure 3.12a : Évolution de l'intensité normalisée des principaux fragments lors de la fragmentation de l'adénine en fonction de la température T_{HL} pour $T_{EC} = 140$ °C.

Figure 3.12b : Évolution de l'intensité normalisée des principaux fragments lors de la fragmentation de l'adénine en fonction de la température T_{EC} pour $T_{HL} = 260$ °C.

paux fragments de l'adénine restent constants jusqu'à une température $T_{HL} = 260$ °C. Au delà de cette température, ces rapports diminuent, indiquant une éventuelle dégradation thermique de la molécule dans le four. On rappelle que les espèces de rapport m/z compris entre 140 et 165 apparaissent aux alentours de la température $T_{HL} = 300$ °C (figure 3.12a). Il n'est pas exclu que ces deux observations soient liées. Une interprétation possible serait l'augmentation du signal d'adénine due à la fragmentation de ces nouvelles espèces résultant en une diminution des intensités normalisées des fragments. Bien qu'il soit difficile d'expliquer exactement ce qu'il se passe dans le four sous l'effet de la température, cette étude a permis de montrer que pour une température T_{EC} fixée à 140 °C, il ne faut pas dépasser $T_{HL} = 260$ °C afin de s'assurer que l'adénine ne soit pas dégradée dans le four.

Ce raisonnement est également transposable à l'étude de la température T_{EC} pour laquelle l'adénine se fragmente dans le four. La température T_{HL} est fixée à 260 °C et T_{EC} varie de 120 °C à 200 °C par pas de 20 °C, les fragments étudiés étant toujours les deux fragments principaux $C_4H_4N_4^+$ ($m/z = 108$) et $C_3H_3N_3^+$ ($m/z = 81$). La figure 3.12b montre ainsi l'évolution de l'intensité de ces deux fragments normalisée par l'intensité de l'adénine. La valeur de ce rapport diminue à partir de $T_{EC} = 140$ °C, fixant ainsi la valeur de la température T_{EC} à utiliser afin d'éviter la fragmentation de l'adénine dans le four. D'après les résultats de cette étude, les températures maximales applicables au four afin de ne pas dégrader l'adénine sous l'effet de la température sont donc fixées à $T_{EC} = 140$ °C et $T_{HL} = 260$ °C. La valeur plus

élevée de T_{HL} s'explique par le fait que la cavité HL sert uniquement à éviter la condensation des biomolécules, qui sont stockées dans la cellule EC. En revanche, une telle différence entre T_{EC} et T_{HL} est étonnante et peut venir d'une mauvaise mesure de la température de la cellule HL. Une étude précise de la température des deux cellules EC et HL est envisagée dans le futur.

Cas de l'Uracile ($C_4H_4N_2O_2$, 112 u.m.a)

Le cas de la fragmentation de l'uracile sous l'effet de la température ne sera pas autant détaillé que l'étude sur la fragmentation de l'adénine. Mais, il est tout de même intéressant de le discuter. La figure 3.13a montre un spectre de masse de l'ionisation et fragmentation de l'uracile par des électrons de 70 eV pour les températures $T_{EC} = 140$ °C et $T_{HL} = 240$ °C.

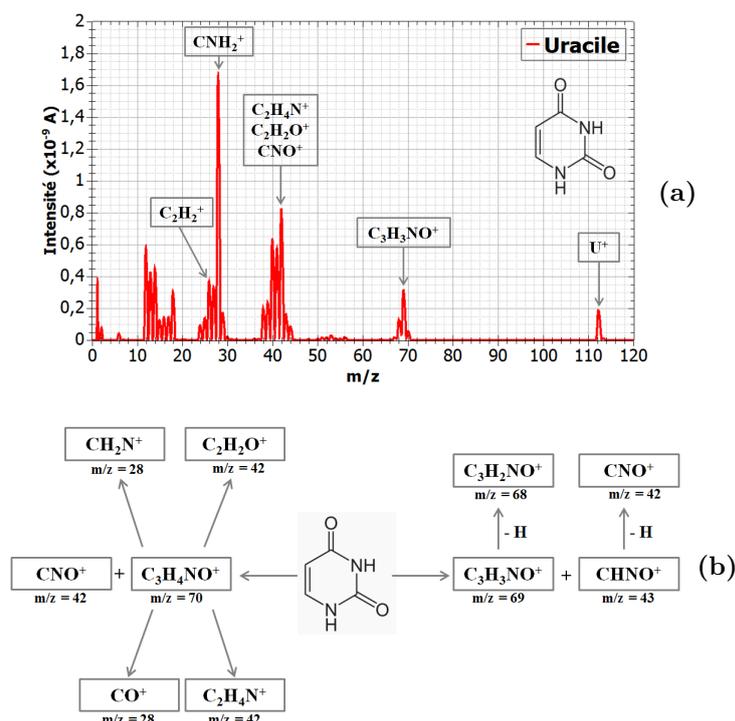


Figure 3.13 – Figure 3.13a : Spectre de masse de l'uracile pour le four aux températures $T_{EC} = 140$ °C et $T_{HL} = 240$ °C. **Figure 3.13b :** Proposition de mécanismes de fragmentation de l'uracile pour expliquer la présence des principaux fragments.

En plus de l'uracile ($m/z = 112$), les principaux fragments visibles correspondent aux masses $m/z = 69$; 42 ; 28 et sont également présents lors des études menées sur la fragmentation de l'uracile par impact d'électrons d'énergie 70 eV [109, 110, 111]. La figure 3.13b extraite de la publication [83] propose des mécanismes de fragmentation de l'uracile afin de permettre l'identification de leur nature. D'après la figure 3.13b, la molécule $C_3H_3NO^+$ correspondrait au pic $m/z = 69$. Pour le fragment $m/z = 42$, les interprétations divergent: Imhoff et al. [109] associent ce fragment à la molécule $C_2H_4N^+$ tandis que Deniff et al. [112] l'associent à la molécule CNO^+ . La molécule $C_2H_2O^+$ qui pourrait également correspondre n'est présente que sur les spectres de masse de l'uracile obtenus par impact de photons [108, 84]. Enfin, le fragment $m/z = 28$ serait soit la molécule CO^+ , soit CH_2N^+ , selon la liaison cassée dans la molécule $C_3H_4NO^+$. Des atomes de carbone, d'azote, et d'oxygène peuvent aussi être émis lors de la fragmentation de l'uracile, ce qui explique la présence de fragments pour $m/z = 12$; 14 ; et 18 .

À l'image de l'adénine, la figure 3.14a montre différents spectres de masses pour une molécule d'uracile obtenus par impact d'électrons produits par le spectromètre de masse et d'énergie égale à 70 eV, pour différentes températures T_{HL} avec T_{EC} fixé à 140 °C. De nouvelles espèces

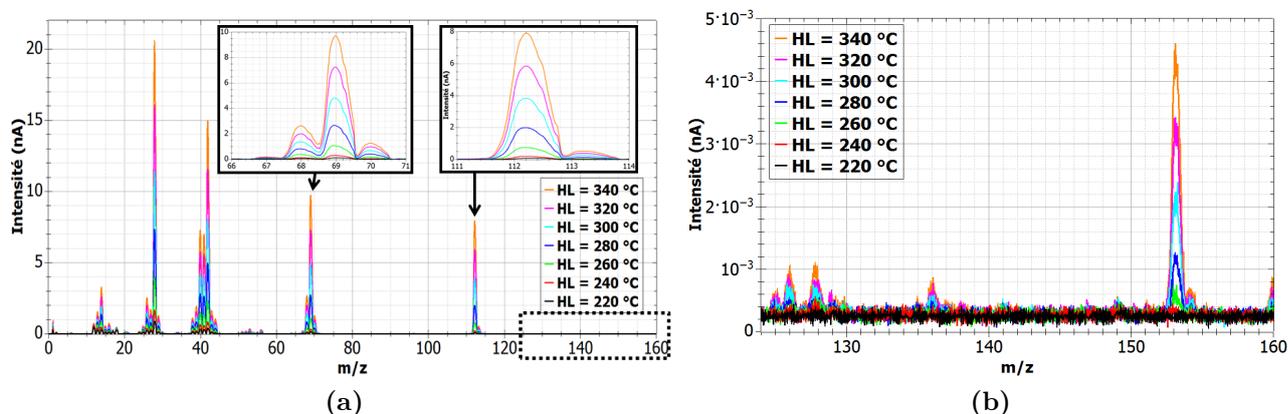


Figure 3.14 – Figure 3.14a : Spectre de masse de l'uracile pour différentes températures T_{HL} , T_{EC} est fixé à 140 °C. **Figure 3.14b :** Agrandissement de la région $m/z = [124 ; 160]$ du spectre de masse de l'uracile pour différentes températures T_{HL} .

de rapports m/z supérieurs au pic parent de l'uracile apparaissent lorsque la température T_{HL} dépasse le seuil de 260 °C (figure 3.14b). Elles sont également deux ordres de grandeur moins intenses que les principaux fragments. Aucune étude ne fait état de ces espèces créées sous l'effet de la température. Cependant, à l'aide de la figure 3.13b, il est possible d'identifier les espèces $m/z = 153$ et 154 comme étant la combinaison d'une molécule d'uracile ($m/z = 112$) avec :

- soit l'ion $C_2H_3N^+$ ($m/z = 41$) pour donner $C_6H_7N_3O_2^+$ ($m/z = 153$)
- soit l'ion CNO^+ ($m/z = 42$) pour donner $C_5H_4N_5O_2^+$ ($m/z = 154$)

L'analyse des autres espèces ($m/z = 126 ; 128 ; 136$) n'apportant pas de réponse concrète, elle ne sera pas détaillée dans ce manuscrit. Concernant les températures limites à utiliser afin de ne pas détériorer les molécules d'uracile, il est d'ores et déjà possible d'affirmer que la température $T_{HL} = 260$ °C est trop élevée car elle correspond à l'apparition de nouvelles espèces. Une étude plus fine a été menée en prenant soin d'étudier l'impact des températures T_{EC} et T_{HL} des deux cavités du four sur l'intensité des fragments. Les températures limites retenues correspondent au moment où l'intensité d'un fragment donné, normalisée par l'intensité du pic de l'uracile, décroît en fonction de la température T_{EC} ou T_{HL} . Les températures maximales à utiliser dans le cas de l'uracile sont $T_{EC} = 140$ °C et $T_{HL} = 240$ °C.

Finalement, l'étude des spectres de masse de l'adénine et de l'uracile en phase gazeuse, obtenus pour différentes températures de chauffage des deux cavités du four T_{EC} et T_{HL} ont permis d'en déduire les températures à partir desquelles les biomolécules se dégradent sous l'effet de la chaleur. Pour l'adénine les températures maximales possibles sont $T_{EC} = 140$ °C et $T_{HL} = 260$ °C, tandis que pour l'uracile $T_{EC} = 140$ °C et $T_{HL} = 240$ °C. Concernant la création de nouvelles espèces de masses supérieures à la molécule parent sous l'effet de la chaleur, l'analyse proposée a consisté à dire qu'elles correspondaient à des recombinaisons de fragments entre eux ou avec la biomolécule dans le four. Il est aussi possible que ces espèces proviennent simplement de la présence d'impuretés présentes dans la poudre et dont la température de sublimation serait supérieure à celle de l'adénine ou de l'uracile. Dans tous les cas, les températures retenues

évitent la pollution du faisceau cible par des molécules "indésirables".

3.2.2.2 Calcul géométrique et détermination expérimentale des dimensions de la zone d'interaction l_{ZI}

Comme expliqué dans l'introduction de ce chapitre, il est indispensable de connaître la longueur de la zone d'interaction l_{ZI} afin de déterminer des sections efficaces absolues d'émission d'électrons. Dans le cadre du jet supersonique, la détermination des dimensions de la zone d'interaction est basée sur l'extraction des ions Ar^+ créés après collisions entre des ions He^+ d'énergie 4keV et des atomes d'argon. Appliquer la même méthode pour les biomolécules s'avère complexe. En effet, après collisions entre des ions He^+ et l'adénine ou l'uracile, en plus de l'émission des ions Ad^+ et Ur^+ correspondant aux molécules d'adénine et d'uracile simplement ionisées, des fragments de masses très diverses sont également émis [113, 114]. Ces fragments sont émis avec une énergie cinétique de l'ordre de quelques centaines de meV, voire quelques eV [115, 116]. Cela correspond à des vitesses initiales de l'ordre de 1000 m.s^{-1} qui ne sont pas compensées par un champ d'extraction homogène de 50 V/cm . Les fragments sont donc dispersés sur toute la surface du détecteur. Il n'est donc pas possible d'utiliser cette méthode pour imaginer la zone d'interaction. Nous avons donc opté dans un premier temps pour une méthode géométrique afin d'estimer la taille du faisceau cible au niveau de la zone d'interaction. Dans ce contexte, un schéma de toute la partie cible est représenté sur la figure 3.15 ci-dessous.

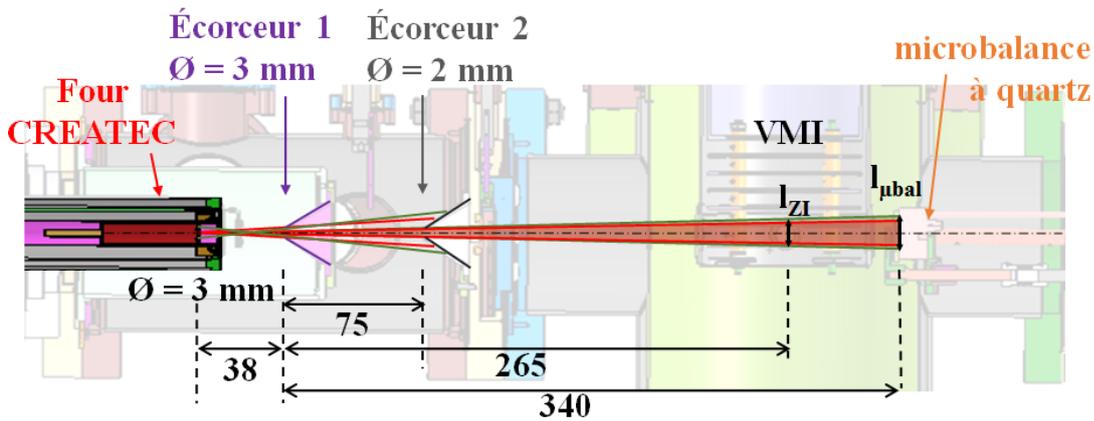


Figure 3.15 – Schéma de la partie cible lorsque le four est monté sur le dispositif expérimental, les distances sont indiquées en mm

Le four représenté en orange sur la figure 3.15, dont la sortie est marquée par la présence d'un diaphragme circulaire de diamètre égal à 3 mm, peut, selon les cas, être considéré comme étant une source ponctuelle ou une source étendue. Avec le jet supersonique, le diamètre de la buse responsable de l'expansion du gaz étant très inférieur au diamètre des différents écorceurs (voir figure 3.7), il était possible de considérer la source comme ponctuelle. Dans le cas des biomolécules en phase gazeuse, le diamètre du diaphragme du four est du même ordre de grandeur que celui des écorceurs (figure 3.15) et il n'est donc pas possible de considérer que les biomolécules sont éjectées du four depuis un seul point. Par un calcul géométrique explicité dans l'annexe A, il est possible d'estimer le diamètre du jet de biomolécules au niveau de la zone d'interaction et de la micro-balance : $l_{ZI}(\text{géom}) = 6,05 \text{ mm}$ et $l_{\mu\text{balance}}(\text{géom}) = 7,7 \text{ mm}$.

Une autre manière de calculer le diamètre du faisceau est d'utiliser les quatre diaphragmes installés devant la micro-balance possédant des sections de 5 mm^2 , 10 mm^2 , 20 mm^2 et 35

mm^2 afin de modifier la surface de détection du cristal. Le cas sans diaphragme correspond à une détection sur la surface totale du cristal, c'est-à-dire $52,8 \text{ mm}^2$. Cette méthode permet également de vérifier l'homogénéité de la répartition des biomolécules dans le faisceau. Plus précisément, il convient de mesurer le flux de masse brut (noté FMB) exprimé en $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ pour les différents diaphragmes. La figure 3.16 représente l'évolution du flux d'un faisceau d'uracile aux températures $T_{\text{EC}} = 140 \text{ }^\circ\text{C}$ et $T_{\text{HL}} = 250 \text{ }^\circ\text{C}$ en fonction de la surface des différents diaphragmes utilisés. Les incertitudes présentes sur le graphe proviennent de l'erreur statistique sur la mesure du flux de masse brut.

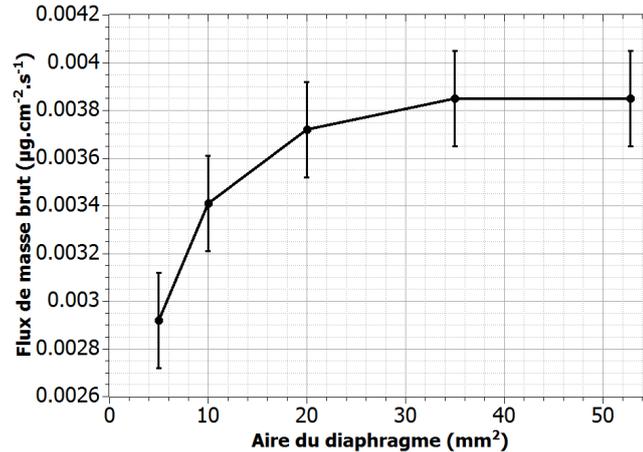


Figure 3.16 – Évolution de la densité d'uracile en fonction de la surface de détection effective du cristal de quartz de la micro-balance. Les températures utilisées sont $T_{\text{EC}} = 140 \text{ }^\circ\text{C}$ et $T_{\text{HL}} = 250 \text{ }^\circ\text{C}$.

La figure montre une non-linéarité du flux de masse des biomolécules en fonction de l'aire des différents diaphragmes. Or, en considérant un alignement idéal entre le faisceau, les différents diaphragmes et la micro-balance, cela implique une non-homogénéité de la densité de molécules dans le faisceau. Le graphe représenté sur la figure 3.16 montre également que 85 % des biomolécules sont contenues dans une section d'aire 20 mm^2 et que le flux de biomolécules n'augmente plus au-delà d'une surface égale à 35 mm^2 , ce qui représente un faisceau de diamètre $l_{\mu\text{balance}}(\text{exp}) = 6,5 \text{ mm}$. Le diamètre du faisceau au niveau de la zone d'interaction est obtenu via la formule A.5, et il vient $l_{\text{ZI}}(\text{exp}) = 5,4 \text{ mm}$.

En conclusion, il s'avère que les biomolécules ne sont pas réparties uniformément dans le faisceau et que la quasi-totalité des particules sont réparties sur une surface plus petite que celle calculée géométriquement. Pour le calcul des sections efficaces, la longueur de la zone d'interaction l_{ZI} dans le cas d'un jet de biomolécules est fixée à $(5,4 \pm 1) \text{ mm}$. Ne pouvant pas estimer précisément une incertitude sur cette mesure, elle est volontairement surestimée et portée à $\delta(l_{\text{ZI}}) = 1 \text{ mm}$.

3.2.2.3 Détermination de la densité des biomolécules ρ_{cible}

La détermination des sections efficaces absolues, simplement ou doublement différentielles présentée dans la partie 2.6 fait intervenir la densité du gaz cible ρ_{cible} exprimée en nombre de molécules/ cm^3 . La micro-balance à quartz INFICON décrite dans la partie 2.3.2.2 est livrée avec un logiciel permettant d'afficher plusieurs grandeurs en fonction du temps comme la fréquence d'oscillation du cristal (Hz) et le flux de masse déposé sur le cristal appelé flux de

masse brut, noté FMB ($\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$). Cette dernière grandeur permet de remonter jusqu'à la densité du gaz cible $\rho_{\text{cible-}\mu\text{balance}}$ au niveau de la micro-balance :

$$\rho_{\text{cible-}\mu\text{balance}}(\text{molécules}\cdot\text{cm}^{-3}) = \frac{\text{FMB}(\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1})}{m(\mu\text{g})\cdot v_{\text{thermique}}(\text{cm}\cdot\text{s}^{-1})} \times \frac{A_{\text{quartz}}(\text{cm}^2)}{A_{\text{faisceau-mesuré}}(\text{cm}^2)} \quad (3.5)$$

avec m la masse de la molécule utilisée, $v_{\text{thermique}} = \sqrt{\frac{3\cdot k_B \cdot T}{m}}$ la vitesse thermique de la molécule induite par le chauffage à la température T exprimée en Kelvin. Le rapport adimensionnel $A_{\text{quartz}}/A_{\text{faisceau-mesuré}}$ tient compte de la section mesurée du faisceau de molécules par rapport à la surface du cristal de quartz de la micro-balance. En effet, la micro-balance renvoie le flux de masse en $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$, c'est-à-dire la masse déposée par seconde normalisée par la surface totale du cristal. Mais si le faisceau de biomolécules possède une section $A_{\text{faisceau-mesuré}}$ plus petite (pour des raisons géométriques ou par l'utilisation des diaphragmes) que l'aire du cristal A_{quartz} , la densité déduite sera sous-estimée. Dans le rapport $A_{\text{quartz}}/A_{\text{faisceau-mesuré}}$, A_{quartz} représente l'aire du cristal de quartz et vaut $52,8 \text{ mm}^2$. $A_{\text{faisceau-mesuré}}$ correspond à l'aire du diaphragme dans le cas où il est utilisé, soit la section du faisceau au niveau de la micro-balance, et vaut 35 mm^2 (figure 3.16)

Afin de corriger la divergence du faisceau entre la zone d'interaction et la micro-balance, on corrige la valeur de la densité du faisceau au niveau de la micro-balance estimée par l'équation 3.5 par le rapport adimensionnel $A_{\text{faisceau-}\mu\text{balance}}/A_{\text{faisceau-ZI}}$:

$$\rho_{\text{cible}}(\text{molécules}\cdot\text{cm}^{-3}) = \rho_{\text{cible-}\mu\text{balance}}(\text{molécules}\cdot\text{cm}^{-3}) \cdot \frac{A_{\text{faisceau-}\mu\text{balance}}(\text{cm}^2)}{A_{\text{faisceau-ZI}}(\text{cm}^2)} \quad (3.6)$$

avec $A_{\text{faisceau-}\mu\text{balance}}$ l'aire du faisceau sur la micro-balance et $A_{\text{faisceau-ZI}}$ la section du faisceau au niveau de la zone d'interaction qui vaut $A_{\text{faisceau-ZI}} = \pi(l_{\text{ZI}}/2)^2$. La détermination de l'erreur sur la mesure de ρ_{cible} provient de la propagation des différentes incertitudes liées aux mesures des différentes grandeurs présentes dans les formules 3.5 et 3.6. Elles sont représentées sur la figure 3.17 et valent entre 10 % et 20 % de la valeur ρ_{cible} pour les températures utilisées pendant les différentes acquisitions ($T_{\text{EC}} = 140 \text{ }^\circ\text{C}$ et $T_{\text{HL}} = 250 \text{ }^\circ\text{C}$), elles tiennent compte des incertitudes systématiques sur les différents termes des équations 3.5 et 3.6 et de l'incertitude statistique sur la mesure du flux de masse brut par la micro-balance pendant les acquisitions.

Les courbes caractéristiques de l'évolution de la densité du faisceau de biomolécules en fonction des températures du four sont représentées sur la figure 3.17. Dans cette étude, la molécule étudiée est l'uracile. Aucun diaphragme n'est présent devant la micro-balance et la densité du faisceau ρ_{cible} est calculée pour les deux configurations de températures possibles avec le four, c'est-à-dire en fixant T_{EC} à $140 \text{ }^\circ\text{C}$ et en faisant varier T_{HL} d'une part, et d'autre part avec T_{HL} constante et égale à $250 \text{ }^\circ\text{C}$ en modifiant T_{EC} (figure 3.17). Cette étude a fait apparaître deux fois le même jeu de températures $T_{\text{EC}} = 140 \text{ }^\circ\text{C}$ et $T_{\text{HL}} = 250 \text{ }^\circ\text{C}$. Pour T_{EC} constante, la densité mesurée est $\rho_{\text{cible}} = 2\cdot 10^9 \text{ molécules}/\text{cm}^{-3}$ et lorsque T_{HL} est fixée, il vient $\rho_{\text{cible}} = 1,75\cdot 10^9 \text{ molécules}/\text{cm}^{-3}$. Ainsi, lors d'une acquisition en présence de biomolécules aux températures $T_{\text{EC}} = 140 \text{ }^\circ\text{C}$ et $T_{\text{HL}} = 250 \text{ }^\circ\text{C}$, la densité moyenne vaut $\rho_{\text{cible}} = (1,9 \pm 0,4)\cdot 10^9 \text{ molécules}/\text{cm}^{-3}$. Pour rappel, au delà de ces températures, les molécules d'uracile se fragmentent sous l'effet de la chaleur.

Il est intéressant de comparer ce résultat à la densité du gaz résiduel présent dans le dispositif

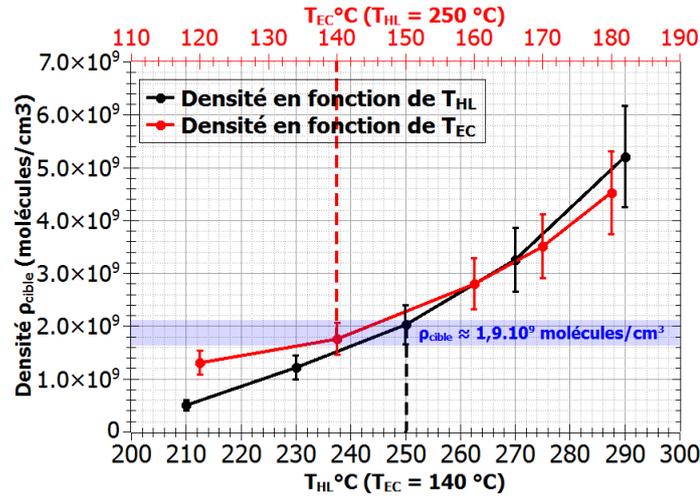


Figure 3.17 – Évolution de la densité d'uracile en fonction des températures du four. Courbe rouge : T_{EC} varie et $T_{HL} = 250$ °C. Courbe noire : $T_{EC} = 140$ °C et T_{HL} varie.

expérimental pendant les acquisitions. Ainsi, une pression résiduelle p de l'ordre de 1.10^{-8} mbar dans la chambre contenant le spectromètre, principalement causée par la présence de molécules N_2 ($M = 28$ u.m.a) à une température $T \simeq 20^\circ C$, correspond à une densité $\rho_{résiduel}$ définie par l'équation :

$$\rho_{résiduel} = \frac{p.M}{R.T.m} \quad (3.7)$$

avec m la masse du diazote en kg et $R = 8,314$ J.mol $^{-1}$.K $^{-1}$ la constante des gaz parfaits, il vient $\rho_{résiduel} = 2,5.10^8$ molécules.cm $^{-3}$. La densité de gaz résiduel est donc inférieure d'un facteur 10 à la densité de biomolécules au centre de la zone d'interaction. De plus, la probabilité de collision est bien plus grande pour les biomolécules que pour des molécules de diazote compte tenu de leur section efficace géométrique respective et l'émission d'électrons est proportionnelle au nombre d'électrons de valence. On s'attend donc à un rapport entre le signal provenant des biomolécules et du gaz résiduel largement supérieur à un facteur 10. Malheureusement, le gaz résiduel est présent sur tout le trajet du faisceau d'ions projectiles et le spectromètre collecte les électrons provenant du gaz résiduel non pas sur la distance l_{ZI} mais sur environ 50 mm (en tenant compte des trajectoires courbes des électrons dans le spectromètre). Il est donc primordial d'identifier les différentes sources de signal ne provenant pas de la molécule étudiée, mais pouvant affecter les mesures, et de mettre au point des méthodes afin de les soustraire efficacement. Ces aspects sont discutés dans la section suivante.

3.3 Caractérisation et réduction du bruit de fond

Dans cette partie, on note S le signal provenant de la molécule cible suite à l'interaction avec le faisceau projectile au niveau de la zone de recouvrement entre les deux faisceaux et B le bruit de fond, c'est-à-dire tout autre signal pouvant perturber la mesure. Même s'il est en partie soustrait lors des acquisitions, le bruit de fond reste très présent dans le dispositif expérimental. Les différentes contributions de bruit de fond sont détaillées dans la section 3.3.1. Des méthodes électrostatiques permettant de réduire les différentes contributions de bruit de fond présentes dans le dispositif expérimental seront présentées dans les sections 3.3.2 et 3.3.3.

3.3.1 Les différents types de bruit de fond

La figure 3.18 représente une tranche du spectromètre VMI où sont présentes les variables qui vont être discutées : S , B_T , B_{res-IN} , $B_{res-OUT}$. Les différentes sources de bruit de fond indiquées sur la figure proviennent aussi bien de l'intérieur que de l'extérieur du spectromètre VMI et sont dues à l'ionisation de différents gaz présents dans le dispositif par le faisceau projectile.

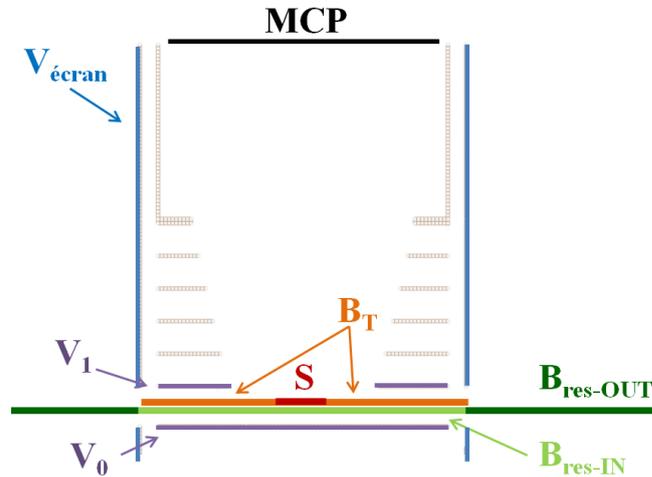


Figure 3.18 – Schéma du spectromètre VMI avec les différentes sources de bruits de fond

Les différentes contributions du bruit de fond présentes dans le dispositif sont au nombre de trois :

- $B_{res-OUT}$ (Bruit résiduel extérieur) : Sur son parcours le faisceau projectile ionise le gaz résiduel (N_2 , O_2) présent dans le dispositif. Il en résulte la création d'électrons, qui, s'ils sont produits suffisamment proches du spectromètre VMI parviennent à rentrer et à atteindre le détecteur.
- B_{res-IN} (Bruit résiduel intérieur) : Il correspond à l'ionisation du gaz résiduel à l'intérieur du spectromètre VMI en dehors de la zone de recouvrement entre les faisceaux projectile et cible.

Ces deux sources peuvent être soustraites en faisant une acquisition sans faisceau cible. Il est également possible de réduire le nombre de coups qu'elles engendrent sur le détecteur, comme expliqué dans la suite de cette partie.

- B_T (Bruit cible, T pour Target) : Même avec un faisceau cible fin, et malgré la présence d'un pompage différentiel, des atomes ou des molécules peuvent être diffusés en faible quantité dans toute la chambre contenant le spectromètre VMI et sont donc susceptibles d'interagir avec le faisceau projectile à n'importe quel endroit sur son parcours dans le spectromètre. Cette source de bruit est donc causée par l'émission d'électrons après interaction entre le faisceau projectile et des particules cibles en dehors de la zone de recouvrement entre les faisceaux. Même si la densité de cette cible "diffusée" est faible devant celle du jet, elle est une source non négligeable de bruit de fond. En effet, même s'il s'agit d'électrons émis par la cible d'intérêt, les électrons ne sont pas focalisés correctement sur le détecteur et leur position d'impact n'est plus corrélée avec leur énergie initiale. Cette source de bruit de fond peut être réduite par une méthode électrostatique ou en améliorant la qualité du faisceau cible mais ne peut pas être soustraite expérimentalement.

Afin d'imager et de quantifier les différentes sources de bruit de fond, le spectromètre est placé en configuration homogène positive afin d'extraire les ions. Cela permet d'obtenir une image sur le détecteur la plus fidèle possible de l'émission initiale des ions à l'intérieur du spectromètre VMI. La figure 3.19a montre l'exemple de l'extraction d'ions Ar^+ créés après collisions entre des ions He^+ d'énergie 4 keV sur de l'argon injecté via le jet supersonique à une pression de 6,5 bar et à une distance de 5 mm de l'écorceur.

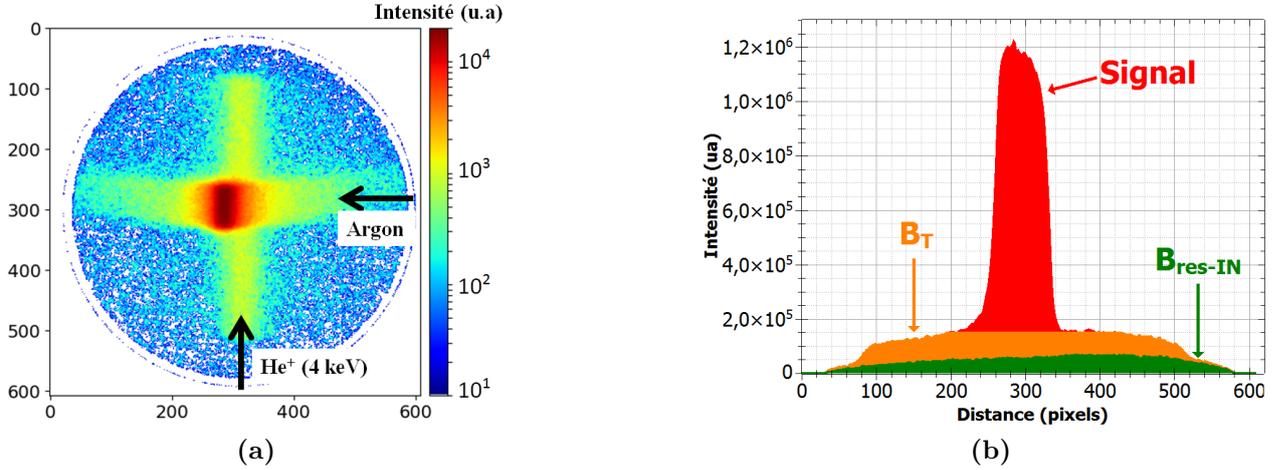


Figure 3.19 – Figure 3.19a : Image obtenue après extraction homogène des ions issus de l'interaction entre un faisceau d'hélium He^+ (4 keV) et un jet supersonique d'argon. La contribution des ions du gaz résiduel n'est pas soustraite, les distances sont exprimées en pixels. **Figure 3.19b :** Projection sur l'axe du faisceau projectile de cette image.

La figure 3.19b représente la projection de l'image 3.19a sur l'axe du faisceau projectile et montre les différentes contributions S , $B_{\text{res-IN}}$ et B_{T} . La contribution $B_{\text{res-IN}}$ est mesurée à partir de la projection de l'image obtenue sans injecter le jet supersonique (image non montrée). Les différentes contributions du bruit de fond sont quantifiables (en intégrant) et il est possible d'estimer les différents rapports S/B suivants (la quantité $B_{\text{res-OUT}}$ n'apparaît pas dans ces rapports, elle est discutée plus loin dans cette partie) :

- $\frac{S + B_{\text{T}}}{B_{\text{res-IN}}}$: représente le rapport de la quantité totale de signal créé par la cible ($S + B_{\text{T}}$) sur le bruit de fond engendré par le gaz résiduel à l'intérieur du spectromètre ($B_{\text{res-IN}}$)
- $\frac{S}{B_{\text{T}}}$: représente le rapport du signal créé au niveau de la zone d'interaction par la cible (S) sur le bruit de fond engendré par la cible (B_{T})
- $\frac{S}{B_{\text{res-IN}} + B_{\text{T}}}$: représente le rapport du signal créé au niveau de la zone d'interaction par la cible (S) sur la quantité totale de bruit de fond dans le spectromètre ($B_{\text{res-IN}} + B_{\text{T}}$)

Cas du jet supersonique

Il est possible d'augmenter ou de diminuer la quantité de signal en modifiant les caractéristiques du jet supersonique telles que la pression P_{Ar} avec laquelle le gaz est injecté ou la distance entre la buse du jet et l'écorceur d_{jet} . Cela permet de trouver la pression de gaz à injecter pour laquelle le rapport $\frac{S + B_{\text{T}}}{B_{\text{res-IN}}}$ est maximal (fig 3.20a). La même étude pour connaître la distance d_{jet} est également menée (fig 3.20b). Le rapport $\frac{S + B_{\text{T}}}{B_{\text{res-IN}}}$ est simplement déterminé

en mesurant le taux de comptage avec le jet supersonique, $S + B_T + B_{\text{res-IN}}$, et sans, $B_{\text{res-IN}}$, à l'aide d'un obturateur qui se trouve entre les deux écorceurs (présent sur la figure 2.14a).

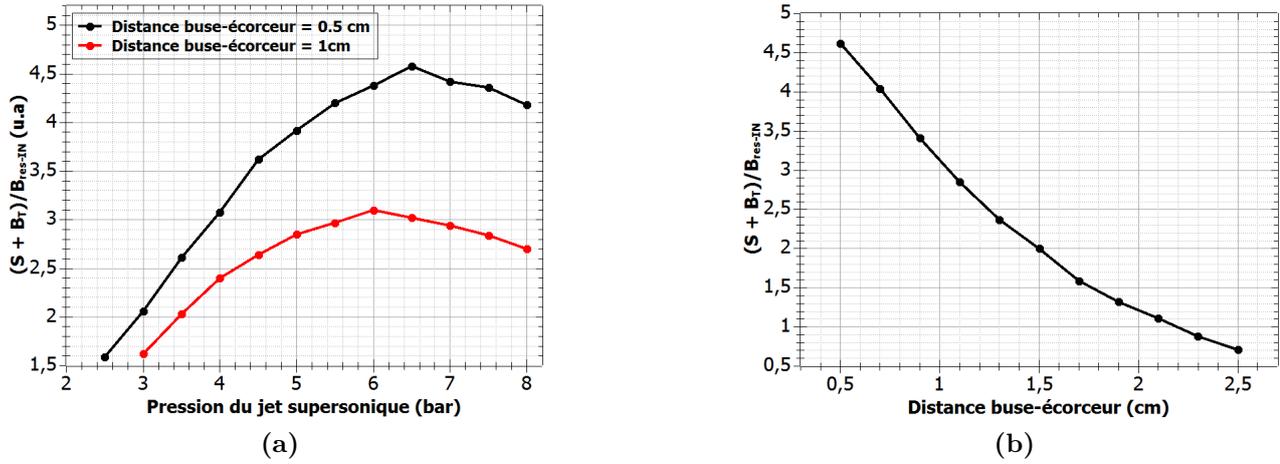


Figure 3.20 – Évolution du rapport $(S + B_T)/B_{\text{res-IN}}$ (obtenu en extraction homogène positive des ions Ar^+ avec le système He^+ d'énergie 4 keV et Ar) en fonction de la distance d_{jet} entre la buse du jet supersonique et l'écorceur pour $P_{\text{Ar}} = 6,5$ bar (figure 3.20b) et de la pression de gaz P_{Ar} injectée dans le jet (figure 3.20a).

Les courbes présentes sur la figure 3.20a montrent que pour une distance fixe entre la buse du jet et l'écorceur, la pression optimale varie. En effet, si la distance buse-écorceur d_{jet} vaut 10 mm, la pression à utiliser est d'environ $P_{\text{Ar}} = 6$ bar, tandis que pour une distance buse-écorceur $d_{\text{jet}} = 5$ mm, la pression à utiliser est $P_{\text{Ar}} = 6,5$ bar. Comme le suggère la figure 3.20b, il est plus intéressant que la buse soit la plus proche possible de l'écorceur afin de maximiser le rapport $\frac{S + B_T}{B_{\text{res-IN}}}$. Pour toutes les utilisations du jet supersonique, la buse est donc placée à une distance de 5 mm de l'écorceur et la pression de gaz injectée est comprise dans un intervalle entre 5 et 7 bar. Dans ces conditions, le rapport $\frac{S + B_T}{B_{\text{res-IN}}}$ vaut 4,5. Ces valeurs obtenues avec de l'argon sont susceptibles de changer en fonction du gaz utilisé.

Il est également intéressant d'étudier le rapport S/B_T qui est plus critique pour les acquisitions puisque, contrairement à $B_{\text{res-IN}}$, le bruit de fond B_T ne se soustrait pas. Le rapport S/B_T se calcule, après soustraction de la contribution du gaz résiduel $B_{\text{res-IN}}$, en intégrant sur le profil correspondant à la projection de l'image sur l'axe projectile, l'aire correspondant au signal S et au bruit de fond B_T (figure 3.21). L'étude du rapport S/B_T montre qu'il est indépendant de la pression P_{Ar} dans la gamme entre 2 et 8 bar (figure 3.21b) et de la distance d_{jet} jusqu'à 2,5 cm (figure 3.21a) : il reste constant et vaut $S/B_T \simeq 2$ dans la configuration actuelle du dispositif. On peut donc déduire que pour une distance buse-écorceur $d_{\text{jet}} = 5$ mm et une pression $P_{\text{Ar}} = 6,5$ bar, le rapport $\frac{S}{B_{\text{res-IN}} + B_T}$ vaut 1,2 et on a donc quasiment autant de signal que de bruit. On rappelle qu'il s'agit ici du rapport S/B pour la détection des ions et non des électrons. L'amélioration de ce rapport nécessiterait une modification du jet supersonique en diminuant par exemple le diamètre de la buse et en augmentant la pression. Cependant, dans le cadre de cette thèse, le jet supersonique est utilisé principalement pour la caractérisation du spectromètre VMI, en particulier pour déterminer la calibration en énergie (section 3.4) et la résolution (section 3.5). Le rapport S/B de la configuration actuelle du jet est considéré comme

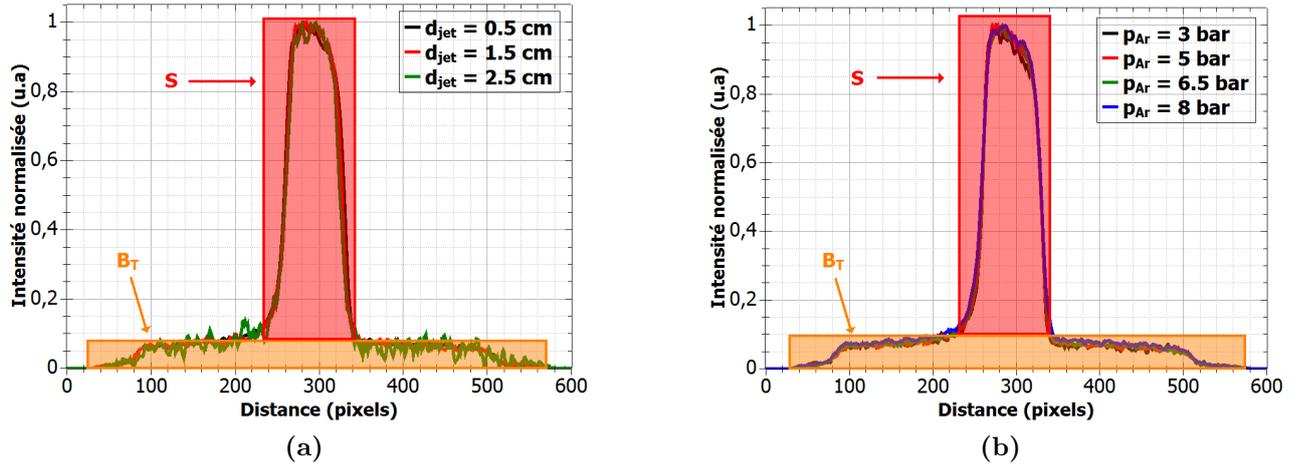


Figure 3.21 – Projections des images du détecteur sur l’axe du faisceau projectile indiquant les contributions respectives des quantités S et B_T pour différentes distances d_{jet} entre l’écorceur et la buse (figure 3.21a) et pressions d’injection du gaz P_{Ar} (figure 3.21b).

satisfaisant pour ces études. En pratique, afin de s’assurer d’un recouvrement optimal entre les deux faisceaux, le rapport retenu sera $\frac{S + B_T}{B_{\text{res-IN}}}$ car il dépend de la pression de gaz utilisée ainsi que de la distance entre le jet et l’écorceur. Ce rapport peut être calculé pendant l’acquisition des données.

Cas des biomolécules

Comme évoqué précédemment dans la partie 3.2.2.2, il n’est pas possible d’imager la zone d’interaction via une extraction homogène positive des ions créés après interaction entre un faisceau d’ions projectiles et un faisceau de biomolécules en phase gazeuse à cause de la fragmentation des biomolécules. L’étude des différents rapports S/B possibles pour les biomolécules s’avère donc bien plus complexe. En effet, il n’est pas possible de distinguer la quantité de signal S de la contribution du bruit de fond B_T . En revanche, il est possible de déterminer le rapport $\frac{S + B_T}{B_{\text{res-IN}}}$. L’augmentation du signal ou plus exactement de $S + B_T$ est possible via une augmentation de la température du four qui entraîne une augmentation de la densité des biomolécules émises par le four. Dans le cas de l’uracile par exemple, pour les températures $T_{\text{EC}} = 140$ °C et $T_{\text{HL}} = 240$ °C, ce qui correspond à une densité de l’ordre de 10^9 molécules/cm³, le rapport $\frac{S + B_T}{B_{\text{res-IN}}}$ vaut 0,7 (en extraction homogène). Ce rapport est donc bien plus faible que dans le cas du jet supersonique. On rappelle encore une fois que le rapport critique est le rapport S/B_T puisqu’il est possible de soustraire $B_{\text{res-IN}}$. Malheureusement, il n’est pas possible de le déterminer dans le cas du jet effusif de biomolécules. Cependant, dans le cas des biomolécules, on s’attend à un rapport S/B_T plus favorable, car contrairement à l’argon, les biomolécules ont moins tendance à se diffuser partout dans la chambre puisqu’elles ont plutôt tendance à se coller aux parois.

Dans cette partie, nous avons distingué et caractérisé les différentes contributions du bruit de fond en imageant les ions créés en extraction homogène. Dans la suite, nous revenons à la configuration habituelle du spectromètre VMI pour la détection des électrons et détaillons les méthodes électrostatiques pour minimiser les contributions de bruit $B_{\text{res-IN}}$, $B_{\text{res-OUT}}$ et B_T .

3.3.2 Réduction de $B_{\text{res-OUT}}$: Effet d'écrantage de $V_{\text{écran}}$

Comme expliqué précédemment, le bruit de fond $B_{\text{res-OUT}}$ dû aux électrons créés à l'extérieur du spectromètre par ionisation du gaz résiduel par le faisceau projectile peut être soustrait lors des acquisitions. Cependant, pour éviter la saturation du système de détection, il est important de le réduire autant que possible. Pour ce faire, l'écran électrostatique en place autour du spectromètre est porté au potentiel négatif $V_{\text{écran}}$ (avec $V_{\text{écran}} = V_0 = V_1$) afin d'empêcher les électrons créés de rentrer dans le spectromètre VMI et d'être détectés. Afin de mener cette étude, le spectromètre VMI est placé dans sa configuration classique d'extraction d'électrons, la tension d'extraction est fixée à 1000 V, le potentiel appliqué à $V_{\text{écran}}$ varie, et $V_0 = V_1 = V_{\text{écran}}$. Seuls les électrons issus de l'ionisation du gaz résiduel sont observés, aucun gaz cible n'est injecté.

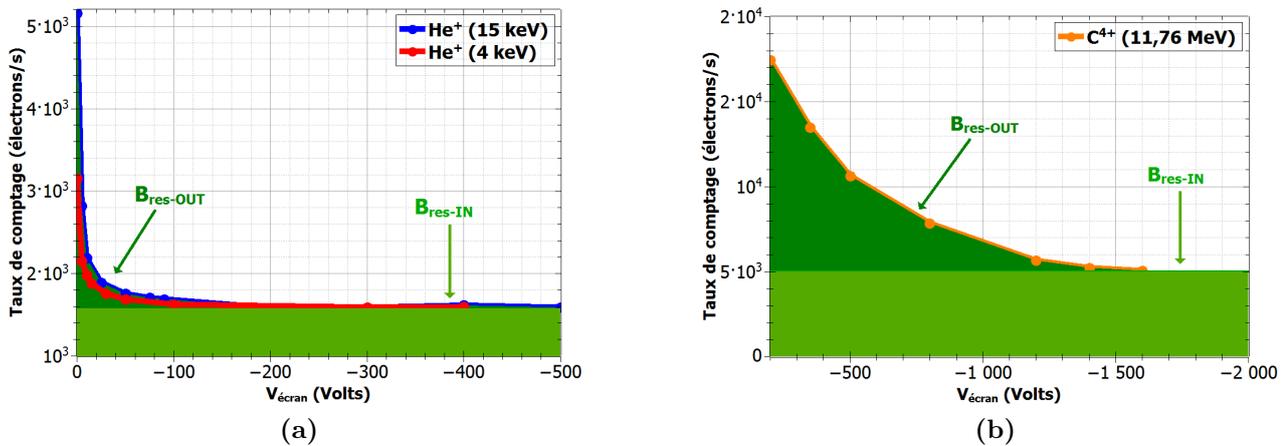


Figure 3.22 – Nombre d'électrons détectés suite à l'ionisation du gaz résiduel en fonction de la tension appliquée sur l'écran électrostatique $V_{\text{écran}}$ pour les faisceaux projectiles utilisés pendant cette thèse : He⁺ d'énergie 4 keV et 15 keV (figure 3.22a) et C⁴⁺ d'énergie 11,76 MeV (figure 3.22b).

$V_{\text{écran}}$ n'étant efficace que sur les électrons créés à l'extérieur du VMI, il n'a aucun impact sur $B_{\text{res-IN}}$ qui reste constant quelque soit la valeur appliquée sur l'écran électrostatique (figure 3.22a). L'énergie de l'ion projectile est déterminante dans le choix de la tension de $V_{\text{écran}}$. En effet, pour des ions He⁺ d'énergie 4 keV ou 15 keV, appliquer une tension $V_{\text{écran}} = -200$ V est déjà suffisant pour faire disparaître $B_{\text{res-OUT}}$ (fig 3.22a). Pour des ions C⁴⁺ possédant une énergie de 11,76 MeV pouvant ioniser plusieurs fois les atomes du gaz résiduel, une tension beaucoup plus élevée est nécessaire afin de réduire $B_{\text{res-OUT}}$. La figure 3.22b montre que la tension à appliquer sur $V_{\text{écran}}$ (et donc sur V_0 et V_1) est d'au moins $V_{\text{écran}} = -1600$ V.

3.3.3 Réduction de B_T : Différence de tension dV entre les électrodes V_0 et V_1

Introduire une différence de potentiel dV entre les électrodes V_0 et V_1 avec $V_0 > V_1$ revient à modifier le champ électrique entre V_0 et V_1 et permet donc de dévier la trajectoire des électrons créés sur la trace du faisceau projectile à l'intérieur du spectromètre VMI. Cette différence de potentiel affecte à la fois $B_{\text{res-IN}}$ et B_T , en notant que réduire B_T est plus critique car $B_{\text{res-IN}}$ est soustrait expérimentalement. L'utilisation de simulations SIMION a permis de comprendre l'impact de la différence de potentiel dV sur le champ électrique entre les

électrodes V_0 et V_1 et donc sur la trajectoire des électrons créés sur la trajectoire du faisceau projectile à l'intérieur du spectromètre VMI (figure 3.23). Afin de se rapprocher au mieux de l'expérience, des électrons de quelques eV sont donc simulés sur l'axe du faisceau projectile afin de recréer la source de bruit de fond B_T (en orange sur la figure 3.23). Les électrons issus de la collision avec la cible (représentant le signal S) sont émis d'une zone d'interaction cylindrique de longueur $l = 7$ mm et $r = 1$ mm (en rouge sur la figure 3.23). Il s'agit ici de simulations qualitatives ne cherchant pas à reproduire exactement les résultats expérimentaux. Lorsque $dV = 0$ V (fig 3.23a), les électrons créés le long de l'axe de propagation du faisceau projectile et plus particulièrement ceux créés près de la zone d'interaction sont extraits par le champ électrique dans le spectromètre VMI et parviennent à atteindre le détecteur. Ils créent deux lobes (entourés en orange) de part et d'autre de la projection de la zone d'interaction sur le détecteur. Si $dV = 60$ V (fig 3.23b), alors les électrons créés sur l'axe du faisceau projectile sont attirés vers V_0 car la différence de potentiel dV est choisie telle que $V_0 > V_1$. Même en présence de cette différence de potentiel, une partie des électrons créés sur la trajectoire du faisceau d'ions projectiles sont extraits, mais les deux lobes observés dans le cas précédent ne sont plus visibles : la composante du signal reste constante, tandis que la composante B_T du bruit de fond est réduite.

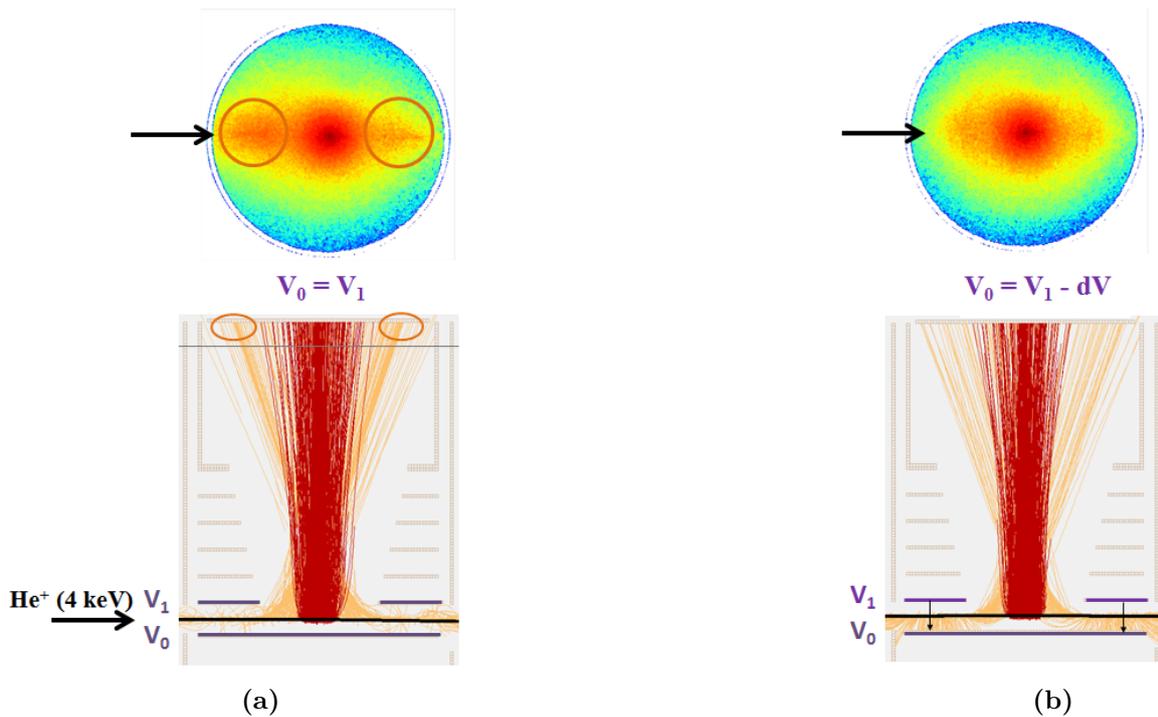


Figure 3.23 – Simulations SIMION de la trajectoire dans le spectromètre VMI des électrons créés depuis la zone d'interaction (trajectoire rouge) et sur la trace du faisceau projectile (trajectoire orange) pour $dV = 0$ V (figure 3.23a) et $dV = 60$ V (figure 3.23b). Les images du détecteur au dessus de chaque figure représentent une vérification expérimentale avec le système He^+ (4 keV) sur un jet d'argon (5 bar).

Expérimentalement, il est possible de vérifier le résultat des simulations SIMION, les électrons émis après collisions entre un faisceau d'ions He^+ d'énergie 4 keV et un jet d'argon (5 bar) sont extraits avec une tension d'extraction de 500 V et pour une différence de potentiel $dV = 0$ V ($V_0 = V_1 = -300$ V), et $dV = 60$ V ($V_0 = -300$ V, $V_1 = -360$ V). Les images du détecteur obtenues expérimentalement sont représentées au dessus des schémas du spectromètre VMI

sur les figures 3.23a (pour $dV = 0$ V) et 3.23b (pour $dV = 60$ V). Lorsque la différence dV est nulle, les deux lobes (entourés en orange) de part et d'autre du signal sont également présents expérimentalement, tandis que si une différence de tension est appliquée entre V_0 et V_1 , les lobes ne sont plus visibles.

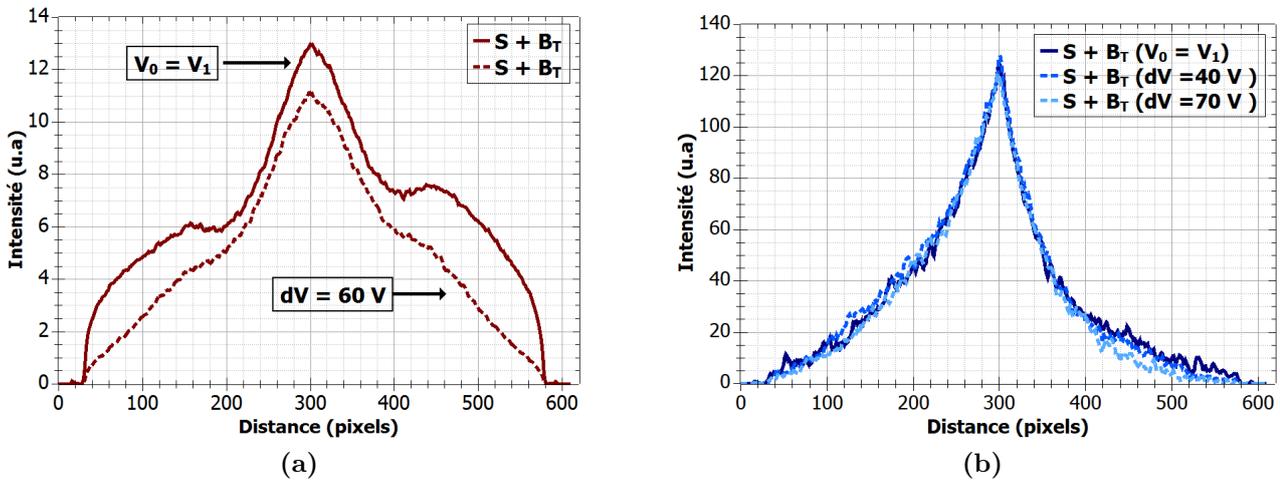


Figure 3.24 – Projection de l'image du détecteur selon l'axe du faisceau projectile de la quantité $S+B_T$ selon la valeur de la différence de potentiel dV dans le cas d'un faisceau cible d'argon (figure 3.24a) et d'un faisceau de biomolécules (figure 3.24b).

Les projections selon l'axe du faisceau projectile (figure 3.24a) obtenues à partir des images expérimentales présentes sur la figure 3.23 permettent de mieux cerner l'effet de la différence de potentiel dV sur la réduction de B_T . Sur cette figure, le profil obtenu en présence d'une différence de potentiel dV est inférieur en tout point au profil correspondant à $dV = 0$ V et illustre bien la réduction des deux lobes présents vers les pixels 100 et 500. La comparaison de la quantité $\frac{S+B_T}{B_{res-IN}}$ entre les deux profils permet d'estimer une amélioration de ce rapport d'environ 1,6 lorsqu'une différence de potentiel est utilisée entre les électrodes V_0 et V_1 dans le cas du jet supersonique.

Dans le cas des biomolécules, la quantité B_T est négligeable car les biomolécules ont tendance à se coller aux parois du dispositif. Ainsi, la différence de potentiel dV est moins utile. En effet, comme le montre la figure 3.24b, les projections de l'image du détecteur selon l'axe du faisceau projectile sont quasiment identiques, indépendamment de la valeur de la différence de potentiel dV (0 V, 40 V ou 70 V).

Toutes les sources de bruit de fond dans le dispositif expérimental peuvent être soustraites ou réduites en utilisant des méthodes électrostatiques, en particulier en modifiant les potentiels des électrodes V_0 , V_1 et $V_{écran}$ afin de repousser les électrons créés à l'extérieur du VMI par ionisation du gaz résiduel, ou en utilisant une différence de tension dV entre V_0 et V_1 afin de modifier la trajectoire des électrons créés à l'intérieur du VMI en dehors de la zone d'interaction. En résumé :

- S : Peut être augmenté en améliorant la densité du faisceau cible et en particulier en optimisant la pression P_{Ar} et la distance d_{jet} entre l'écorceur et la buse du jet dans le cas du jet supersonique et en augmentant la température du four dans le cas des biomolécules (dans la limite de la dégradation thermique des biomolécules).

- $B_{\text{res-IN}}$: Peut être soustrait et réduit en utilisant une différence de potentiel entre V_0 et V_1 , peut également être réduit en améliorant la qualité du vide dans le dispositif expérimental.
- $B_{\text{res-OUT}}$: Peut être soustrait et réduit en utilisant l'écran électrostatique autour du spectromètre VMI en appliquant une tension sur $V_{\text{écran}}$, peut également être réduit en améliorant la qualité du vide dans le dispositif expérimental.
- B_T : Ne peut pas être soustrait, mais peut être réduit en utilisant une différence de potentiel entre V_0 et V_1 .

Il faut cependant noter que l'utilisation d'une différence de potentiel entre V_0 et V_1 n'induit pas seulement une modification du champ électrique entre ces deux électrodes mais dans l'ensemble du spectromètre. La tension V_{focus} doit donc être changée en conséquence, cela affecte la calibration en énergie et la résolution du spectromètre VMI qui seront discutées dans les sections 3.4 et 3.5 respectivement.

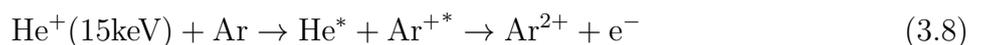
3.4 Calibration en énergie du spectromètre VMI

La calibration en énergie du spectromètre VMI consiste à trouver la relation entre les positions des électrons sur l'image après la transformée inverse d'Abel et leur énergie initiale. C'est une étape essentielle dans la reconstruction du spectre en énergie des électrons. Elle se base sur l'équation $E_{e^-} = \alpha \cdot V_{\text{ext}} \cdot r^2$ déjà abordée dans le chapitre 2, avec E_{e^-} l'énergie de l'électron, r le rayon, V_{ext} la tension d'extraction appliquée au spectromètre et α le facteur à déterminer qui est propre à la géométrie du spectromètre VMI. Le principe de la calibration en énergie est d'ioniser un gaz cible dont le spectre d'émission des électrons est connu et de mesurer les positions des pics Auger pour différentes tensions d'extraction appliquées au spectromètre VMI, afin de tracer la quantité E_{e^-}/V_{ext} en fonction de r^2 . Au cours de cette thèse, différents projectiles (photons UV d'énergie 21,22 eV, ions He^+ d'énergie 4 keV et 15 keV) et différentes cibles (Ar et Kr) ont été utilisées afin de calibrer le spectromètre. Dans cette partie, nous détaillerons en particulier le système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ (section 3.4.1). Nous évoquerons également les deux systèmes de collision $\text{He}^+(4 \text{ keV}) + \text{Ar}$ et photons UV + Kr (section 3.4.2). L'effet sur la calibration en énergie de la différence de potentiel dV utilisée afin de réduire la composante du bruit de fond B_T sera discutée en section 3.4.3. Et enfin, la valeur expérimentale α sera également comparée à la valeur donnée par des simulations SIMION explicitées dans la section 3.4.4.

3.4.1 Étude du système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$

Processus physiques mis en jeu

Le système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ est privilégié pour la calibration car l'émission des électrons par un tel système est déjà connue [117, 118]. Le spectre d'émission des électrons pour la gamme en énergie 1 eV - 25 eV est présent sur la figure 3.25. La structure de ce spectre pour la gamme en énergie considérée correspond à l'excitation de la couche M d'un atome d'argon de structure $K^2L^8M^8$ avec $M^8 = 3s^23p^6$. Le mécanisme réactionnel détaillé du système $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ permettant d'obtenir le spectre d'émission électronique de la figure 3.25 est le suivant :



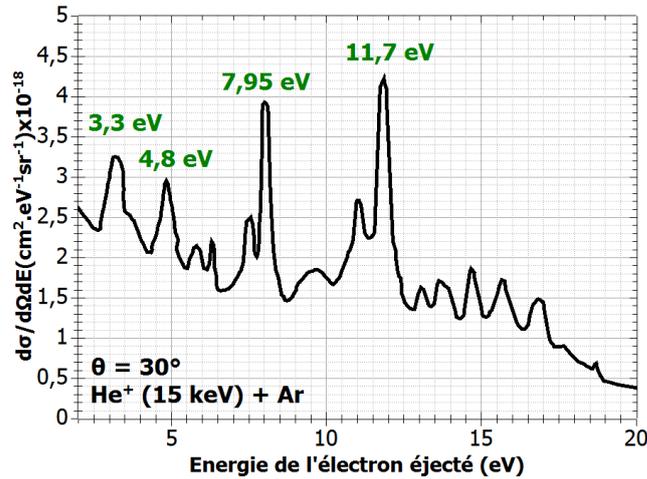


Figure 3.25 – Section efficace doublement différentielle d’émission des électrons par le système $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ (numérisation de la publication [118]).

Cette réaction se déroule en deux étapes : dans un premier temps, une capture électronique d’un électron de la sous-couche 3s d’un atome d’argon par un ion projectile He^+ a lieu (l’orbitale 1s de He^+ possède une énergie similaire à l’orbitale 3s de l’argon). La configuration de l’ion argon excité devient $\text{K}^2\text{L}^83s\ 3p^5\ \text{nl}$, l’orbitale nl pouvant être 4s, 3d ou 4p. En effet, dans ce régime de vitesses du projectile, le phénomène d’interaction prédominant est la capture électronique d’un électron de la cible par l’ion projectile, les sections efficaces d’excitation et d’ionisation étant plus petites d’environ deux ordres de grandeur (voir section 1.2 pour les détails sur l’interaction ions/matière). Dans un second temps, l’ion Ar^{+*} subit un phénomène d’auto-ionisation (effet Auger) avec des réarrangements électroniques. En effet, pour que l’ion Ar^{+*} revienne dans son état fondamental par effet Auger, deux réarrangements électroniques sont envisageables :

- l’électron occupant la sous-couche nl vient fermer la sous-couche 3s tandis qu’un électron 3p est émis
- un électron de la sous-couche 3p ferme la sous-couche 3s et l’électron nl est émis

Ce phénomène d’auto-ionisation de l’ion Ar^{+*} amènera systématiquement à la formation de l’ion Ar^{2+} de structure $\text{K}^2\text{L}^83s^2\ 3p^4$ avec l’émission d’un électron. Le tableau 3.1 détaille les transitions électroniques [117, 118] responsables des principales résonances de la figure 3.25 :

Transition électronique $\text{Ar}^{+*} \rightarrow \text{Ar}^{2+}$	Énergie de l’électron Auger
$3s3p^5(^1P)4s(^2P) \rightarrow 3s^2\ 3p^4(^1D)$	3,3 eV
$3s3p^5(^1P)4s(^2P) \rightarrow 3s^2\ 3p^4(^3P)$	4,8 eV
$3s3p^5(^1P)4p(^2P) \rightarrow 3s^2\ 3p^4(^1D)$	7,95 eV
$3s3p^53d \rightarrow 3s^2\ 3p^4$	11,7 eV

Table 3.1 – Transitions électroniques possibles entre les états Ar^{+*} et Ar^{2+} avec l’énergie de l’électron Auger associé pour le système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$.

Les résonances sur le spectre d’émission électronique de l’argon entre 15 eV et 70 eV s’expliquent par la formation d’un ion argon doublement excité Ar^{+**} après interaction entre le faisceau projectile et l’atome d’argon [117, 119]. Sa structure s’écrit $\text{K}^2\text{L}^83s\ 3p^4\ \text{nl}\ \text{n'l}'$, avec nl, n'l' = 4s, 3d, 4p ou 4f. Les résonances au-dessus de 100 eV témoignent de l’excitation de la couche L d’un atome d’argon [120].

Méthodologie

Comme expliqué dans l'introduction de ce chapitre, les mesures consistent, pour plusieurs tensions d'extraction V_{ext} entre 200 V et 1600 V à relever les rayons r et à les associer aux différentes énergies des pics de la figure 3.25.

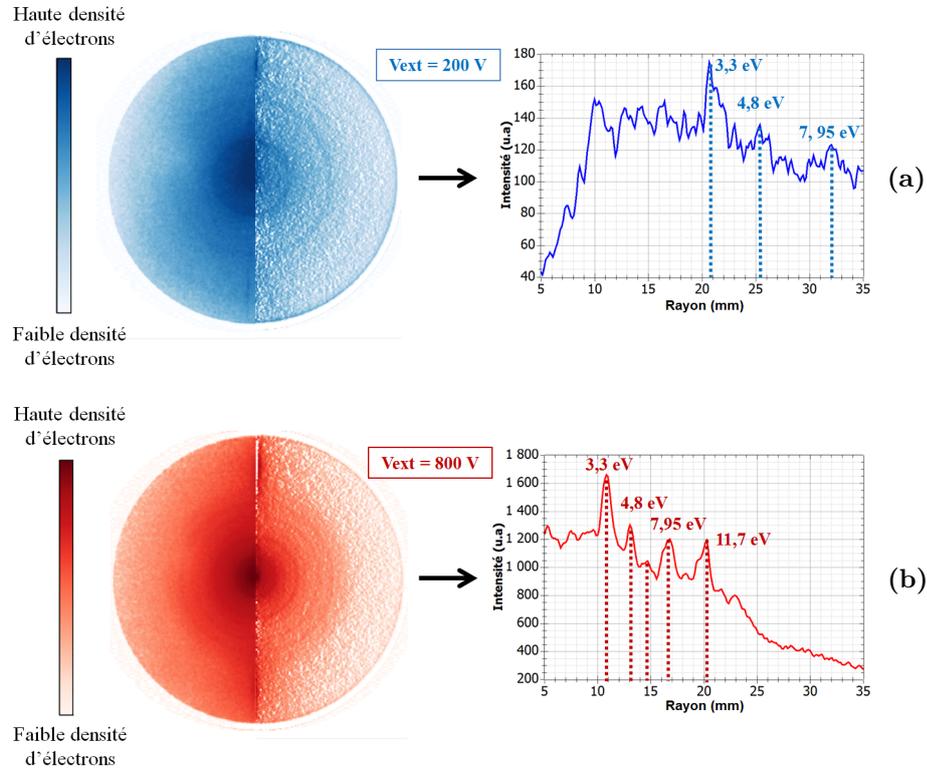


Figure 3.26 – Images du détecteur avant et après transformée inverse d'Abel et distribution radiale pour le système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ pour $V_{\text{ext}} = 200$ V (figure 3.26a) et $V_{\text{ext}} = 800$ V (figure 3.26b).

La figure 3.26 montre les différentes étapes nécessaires permettant la mesure du rayon correspondant aux électrons Auger émis par le système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ pour les deux tensions d'extraction $V_{\text{ext}} = 200$ V (figure 3.26a) et $V_{\text{ext}} = 800$ V (figure 3.26b). Sur les figures illustrant le détecteur, l'hémisphère gauche correspond à l'image du détecteur après soustraction de la composante du bruit de fond $B_{\text{res-IN}}$, tandis que l'hémisphère droit est sa transformée inverse d'Abel, chaque anneau correspondant à des électrons Auger d'une énergie particulière. L'étape suivante consiste à intégrer les images (après transformée inverse d'Abel) sur l'angle 2π afin d'en extraire la distribution radiale $f(r)$. Pour les deux tensions d'extraction $V_{\text{ext}} = 200$ V et $V_{\text{ext}} = 800$ V, ces profils sont visibles sur la figure 3.26, sur lesquels il est possible de distinguer plusieurs résonances correspondant aux électrons Auger. En prenant en compte le spectre d'émission des électrons de référence de la figure 3.25, il est possible d'associer les différents pics de ces distributions radiales à leurs énergies et d'en déduire la valeur du rapport E_{e^-}/V_{ext} .

Courbe de calibration

L'objectif de la calibration en énergie du spectromètre est le calcul du paramètre α de l'équation $E_{e^-}/V_{\text{ext}} = \alpha \cdot r^2$. La mesure des rayons des électrons Auger sur le détecteur et du rapport E_{e^-}/V_{ext} est généralisée à d'autres tensions d'extraction entre 200 V et 1600 V afin

d'obtenir la courbe de calibration la plus précise possible. Pour chaque tension d'extraction, la position r des pics est mesurée en prenant le maximum de chaque pic et le rapport E_{e-}/V_{ext} est calculé. Finalement, le rapport E_{e-}/V_{ext} est tracé en fonction du carré du rayon r^2 (figure 3.27).

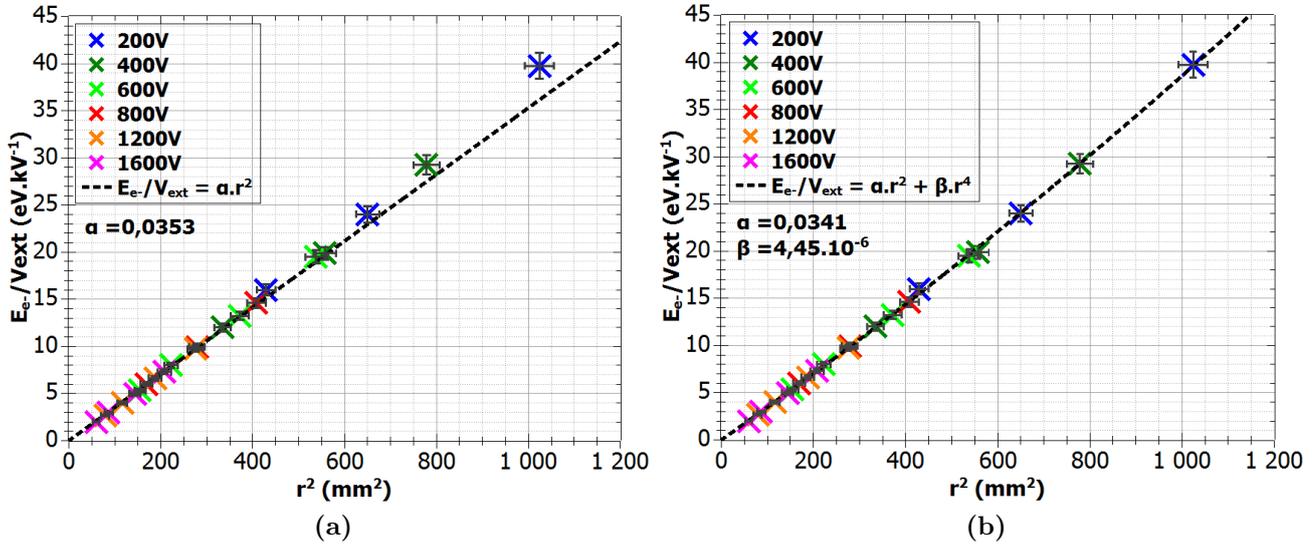


Figure 3.27 – Courbe de calibration en énergie du spectromètre VMI pour un ajustement linéaire $E_{e-}/V_{\text{ext}} = \alpha.r^2$ (figure 3.27a) et polynomial $E_{e-}/V_{\text{ext}} = \alpha.r^2 + \beta.r^4$ (figure 3.27b) des points expérimentaux. Les incertitudes sur le rayon des électrons sont dues aux erreurs de lectures et sont de l'ordre de quelques mm.

Afin de déterminer le paramètre α , plusieurs ajustements sont utilisés. Sur la figure 3.27a, un ajustement linéaire des données est effectué en forçant une ordonnée à l'origine nulle. En effet, un rayon égal à 0 mm correspond à un électron d'énergie 0 eV et il vient :

$$E_{e-}/V_{\text{ext}} = \alpha.r^2 \quad \alpha = (3,53 \pm 0,03).10^{-2} \text{eV.kV}^{-1}.\text{mm}^{-2} \quad (3.9)$$

Cet ajustement vérifie bien les données expérimentales pour des rayons inférieurs à 20 mm ($r^2 < 400 \text{ mm}^2$). Cependant, pour des rayons supérieurs à cette valeur, cette méthode de calibration sous-estime l'énergie des électrons détectés par le spectromètre VMI. En ajoutant un ordre supplémentaire, l'équation de calibration devient :

$$E_{e-}/V_{\text{ext}} = \alpha.r^2 + \beta.r^4 \quad (3.10) \quad \begin{aligned} \alpha &= (3,41 \pm 0,02).10^{-2} \text{eV.kV}^{-1}.\text{mm}^{-2} \\ \beta &= (4,45 \pm 0,5).10^{-6} \text{eV.kV}^{-1}.\text{mm}^{-4} \end{aligned}$$

Cet ajustement polynomial montre une correspondance acceptable avec les points expérimentaux. Afin de convertir les rayons des électrons sur l'image après transformée inverse d'Abel vers leurs énergies, l'équation 3.10, polynomiale de degré 2 en r^2 , sera préférentiellement utilisée. Le fait de devoir utiliser un polynôme d'ordre 2 afin de calibrer le spectromètre VMI en énergie peut venir d'une distorsion de l'image sur les bords de la galette par la caméra ou du fait qu'une ou plusieurs électrodes ne sont pas au potentiel attendu, modifiant ainsi la trajectoire des électrons à l'intérieur du spectromètre et leur rayon d'impact sur le détecteur. Une comparaison de la calibration expérimentale avec des simulations SIMION est présentée plus loin dans cette partie.

Après calibration en énergie du spectromètre VMI, il est intéressant de superposer les différents spectres d'émission d'électrons obtenus pour différentes tensions d'extraction. Les spectres calibrés en énergie d'émission d'électrons du système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ sont donc tracés pour les tensions d'extraction 400 V, 800 V, 1600 V et 3200 V (figure 3.28). Afin de s'assurer de la bonne calibration en énergie, les traits verticaux indiquent les énergies de 3,3 eV, 4,8 eV, 7,95 eV et 11,7 eV.

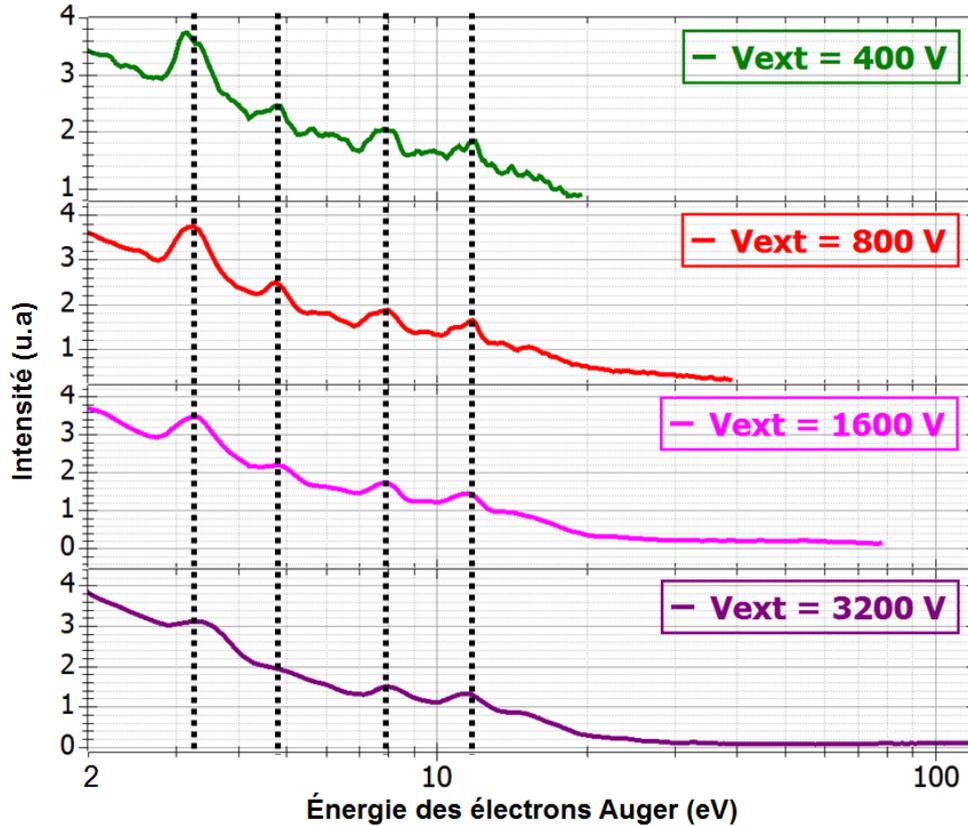


Figure 3.28 – Spectre d'émission des électrons Auger du système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ pour les tensions d'extraction 400 V, 800 V, 1600 V et 3200 V. Les énergies 3,3 eV, 4,8 eV, 7,95 eV et 11,7 eV sont indiquées en pointillés noirs.

Il est aussi possible de remarquer que pour des électrons compris dans une gamme d'énergies 0,5 eV - 15 eV, la largeur des pics augmente avec la tension d'extraction, les meilleurs exemples étant les pics d'énergies 0,7 eV et 3,3 eV qui sont "fins" pour la tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 400 \text{ V}$ et à peine remarquables pour $V_{\text{ext}} = 3200 \text{ V}$. Les fortes tensions d'extraction ($V_{\text{ext}} > 1000 \text{ V}$) ne sont donc pas adéquates pour étudier des électrons d'énergie inférieure à une dizaine d'électron-Volts. En fonction de la gamme en énergie mesurée, il est donc important de choisir une tension d'extraction adaptée pour que la résolution des pics soit la meilleure possible. La résolution du spectromètre VMI sera discutée en détail dans la partie suivante (section 3.5).

3.4.2 Autres systèmes de collision

Le faisceau d'ions He^+ d'énergie 15 keV nécessitant que le dispositif soit raccordé à une des lignes de l'accélérateur ARIBE, deux autres systèmes plus simples à mettre en place ont été utilisés pour la calibration en énergie du spectromètre VMI au cours de cette thèse :

- $\text{He}^+(4 \text{ keV}) + \text{Ar}$
- $h\nu (21,22 \text{ eV}) + \text{Kr}$

Une étude détaillée de ces deux systèmes de collision est présentée dans l'annexe B. De manière générale, pour le système $\text{He}^+(4 \text{ keV}) + \text{Ar}$, la résonance principale permettant la calibration en énergie du spectromètre apparaît pour des électrons d'énergie 7,95 eV qui, pour rappel, correspondent à la transition électronique $3s3p^5(1P)4p(2P) \rightarrow 3s^2 3p^4(1D)$. D'autres résonances sont présentes sur le spectre d'émission d'électrons mais elles ne sont pas assez intenses pour permettre une calibration précise. Le deuxième système $h\nu (21,22 \text{ eV}) + \text{Kr}$ permet d'étudier les photoélectrons émis après interaction entre les photons et le krypton par effet photoélectrique. Une première résonance à une énergie de 7,22 eV est observée et correspond à la différence entre l'énergie du photon et l'énergie de liaison d'un électron 4p du krypton. Une deuxième résonance à une énergie de 6,22 eV est également visible, elle correspond à l'éclatement orbital de la sous-couche 4p du krypton. Ces deux systèmes intermédiaires sont donc moins précis que le système $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ puisque pour chaque tension d'extraction, seulement une ou deux résonances sont observables. La figure 3.29 regroupe les points expérimentaux des courbes de calibration en énergie du spectromètre VMI pour les deux systèmes de collision $\text{He}^+(4 \text{ keV}) + \text{Ar}$ et $h\nu (21,22 \text{ eV}) + \text{Kr}$. L'ajustement polynomial de la courbe de calibration du système $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ d'équation $E_{e^-}/V_{\text{ext}} = \alpha.r^2 + \beta.r^4$ (équation 3.10) est également représenté afin de comparer les différents systèmes de collision.

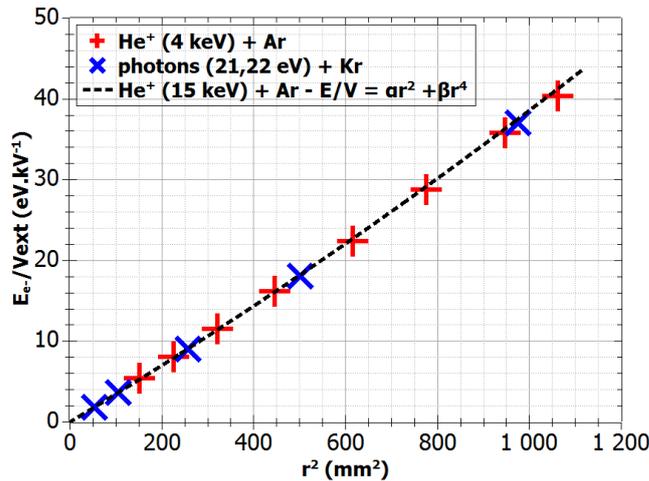


Figure 3.29 – Courbes de calibration en énergie du spectromètre VMI pour les systèmes de collision $\text{He}^+(4 \text{ keV}) + \text{Ar}$ et $h\nu (21,22 \text{ eV}) + \text{Kr}$ pour des tensions d'extraction entre 200 V et 4000 V. L'ajustement en pointillés est celui du système $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ avec $\alpha = 0,03415 \text{ eV.kV}^{-1}.\text{mm}^{-2}$ et $\beta = 4,45.10^{-6} \text{ eV.kV}^{-1}.\text{mm}^{-4}$.

Les points expérimentaux issus de ces deux systèmes de collision sont bien en accord avec la courbe de calibration déterminée précédemment avec le système $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$. Le nombre de points expérimentaux étant beaucoup plus important pour le système $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$, il est gardé comme unique référence dans la suite de cette thèse.

3.4.3 Effet de la différence de potentiel sur la calibration en énergie du spectromètre VMI

La différence de potentiel dV entre les électrodes V_0 et V_1 permet certes une réduction des composantes B_T et $B_{\text{res-IN}}$ du bruit de fond (section 3.3.3), mais elle entraîne également une modification importante du champ électrique à l'intérieur du spectromètre VMI comme l'indiquent les équipotentielles sur la figure 3.30. Lorsqu'une différence de potentiel dV est

appliquée il est nécessaire de modifier la valeur de la tension appliquée à l'électrode V_{focus} afin de conserver les mêmes propriétés de focalisation en l'absence de la différence dV . Les valeurs de la tension V_{focus} à utiliser en fonction de la différence de potentiel dV et de la tension d'extraction V_{ext} sont déterminées à l'aide de simulations SIMION.

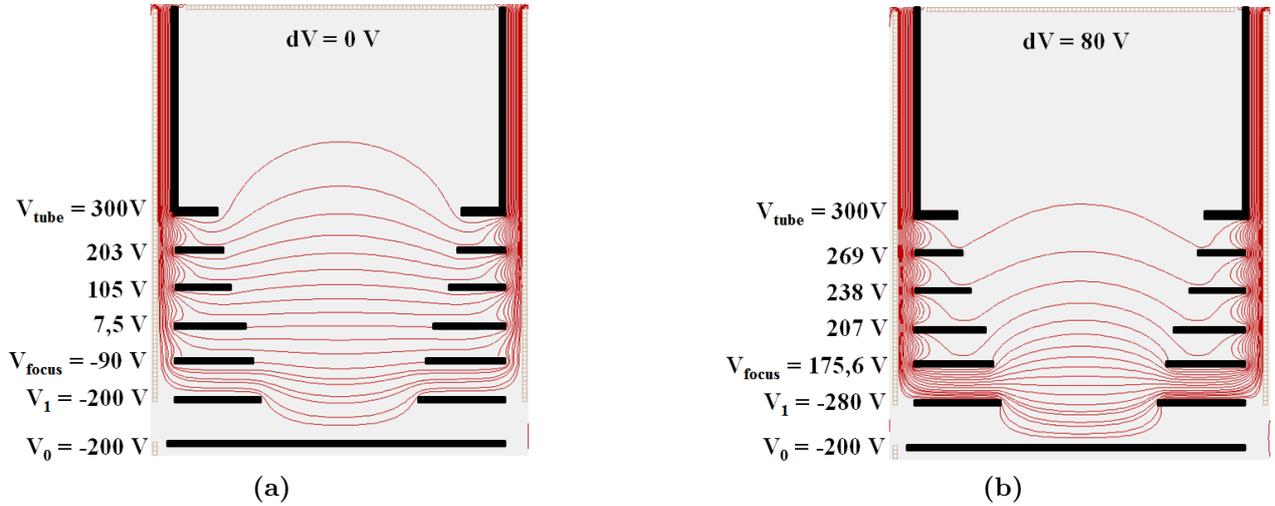


Figure 3.30 – Équipotentiels à l'intérieur du spectromètre lorsque $dV = 0$ V (figure 3.30a) et $dV = 80$ V (figure 3.30b). Les lignes de champ sont espacées d'une différence de potentiel égale à 30 V, $V_{\text{ext}} = 500$ V.

Cette modification du champ électrique à l'intérieur du spectromètre implique donc une modification de la trajectoire des électrons et donc de leur rayon d'impact sur le détecteur comme l'illustre la figure 3.31. Elle montre la distribution radiale des électrons émis par le système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ avec et sans différence de potentiel dV (en considérant que V_{focus} est adapté à dV). Comme suggéré par la figure 3.30, la présence d'une différence de potentiel entre V_0 et V_1 modifie l'effet de lentille du spectromètre VMI et le rayon d'impact des électrons augmente alors par rapport à la situation $V_0 = V_1$.

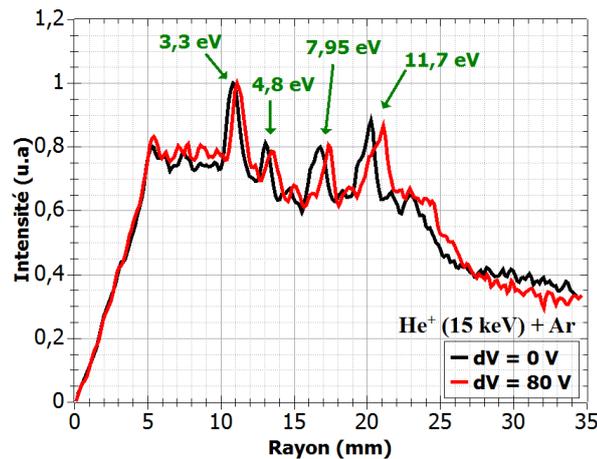


Figure 3.31 – Distribution radiale des électrons émis par le système $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ pour $dV = 0$ V (courbe noire) et $dV = 80$ V (courbe rouge).

En utilisant une valeur de dV fixée à 80 V, la calibration en énergie du spectromètre VMI est réévaluée pour le système de collision apportant le plus de précision : $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$, et pour des tensions d'extraction de 200 V, 400 V, 800 V, 1500 V et 2000 V. La quantité E_{e^-}/V_{ext}

est alors tracée en fonction du rayon au carré r^2 , les résultats sont reportés sur la figure 3.32a. Il est alors intéressant de remarquer qu'entre les différentes tensions d'extraction, les points expérimentaux ne forment pas une seule courbe comme c'est le cas quand la différence de potentiel dV est nulle. L'introduction d'une différence de potentiel entre les électrodes V_0 et V_1 force une calibration en énergie propre à chaque tension d'extraction signifiant ainsi que l'effet de lentille électrostatique du spectromètre VMI n'est pas proportionnel à la tension d'extraction. En première approche, la détermination du paramètre α s'effectue avec un ajustement linéaire $E_{e-}/V_{\text{ext}} = \alpha r^2$. Les différentes valeurs de α sont directement indiquées sur la figure 3.32a.

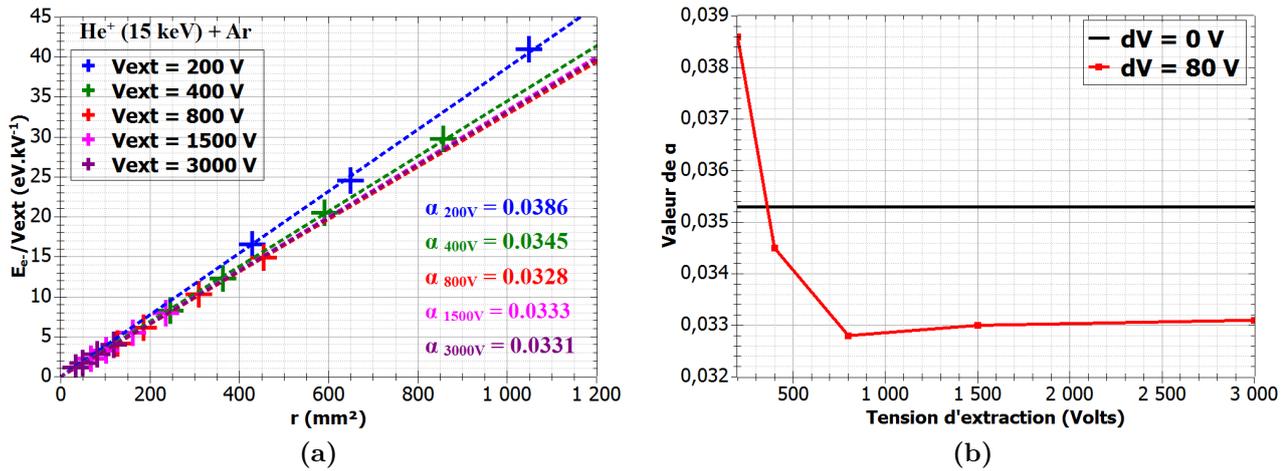


Figure 3.32 – Figure 3.32a : Courbes de calibration du spectromètre VMI via le système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ avec une différence de potentiel $dV = 80 \text{ V}$ entre les électrodes V_0 et V_1 . **Figure 3.32b :** Comparaison de la valeur du paramètre α pour une différence de potentiel $dV = 0 \text{ V}$ (courbe noire) et $dV = 80 \text{ V}$ (courbe rouge).

Ainsi, la figure 3.32b montre, pour une différence de potentiel $dV = 80 \text{ V}$ et chaque tension d'extraction la valeur α à utiliser dans l'équation de calibration en énergie du spectromètre VMI. La valeur à utiliser dans le cas où $V_0 = V_1$ est également indiquée (pour un ajustement linéaire des données, sans terme en r^4). La présence d'une différence de potentiel entre les électrodes V_0 et V_1 modifie donc la calibration en énergie du spectromètre VMI.

3.4.4 Calibration en énergie du spectromètre VMI via des simulations SIMION

La calibration en énergie du spectromètre avec la simulation du dispositif sur le logiciel SIMION suit les mêmes étapes que la calibration expérimentale. Il convient de créer une zone d'interaction cylindrique de rayon $r_{\text{ZI}} = 1 \text{ mm}$ et de longueur $l_{\text{ZI}} = 7 \text{ mm}$ (dans laquelle les électrons sont répartis uniformément), de simuler la trajectoire d'électrons d'énergie connue à travers le spectromètre VMI et, après traitement (pixellisation de l'image, transformée inverse d'Abel et intégration de l'image sur l'angle $2\pi \text{ rad}$), de mesurer le rayon r des électrons sur l'image. L'avantage des simulations SIMION est qu'il est possible de choisir les énergies des électrons de sorte que, pour une même tension d'extraction, leur position impact recouvre tout le détecteur. Il n'est donc pas nécessaire de faire varier V_{ext} pour déterminer la courbe de calibration. Cependant, dans cette étude, nous avons choisi de simuler deux tensions d'extraction différentes $V_{\text{ext}} = 500 \text{ V}$ et $V_{\text{ext}} = 2000 \text{ V}$ pour s'assurer du bon fonctionnement du spectromètre.

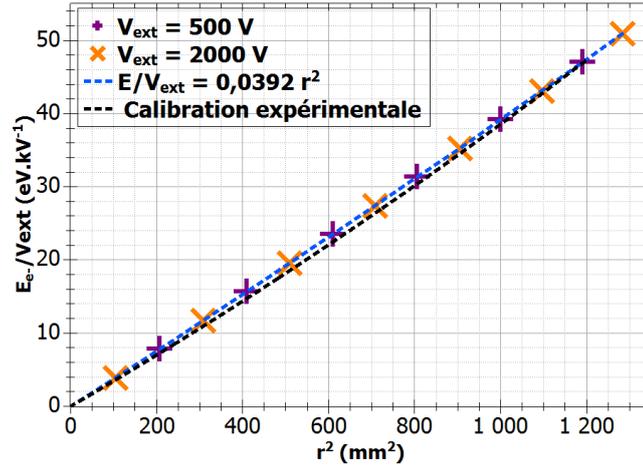


Figure 3.33 – Courbe de calibration en énergie du spectromètre à partir de simulations SIMION pour les tensions d’extraction $V_{\text{ext}} = 2000 \text{ V}$ et $V_{\text{ext}} = 500 \text{ V}$.

Les résultats des simulations visibles sur la figure 3.33 sont ajustés par l’équation $E_{e^-}/V_{\text{ext}} = \alpha r^2$ avec $\alpha = (0,0392 \pm 5.10^{-4})$. À titre de comparaison, l’équation de calibration expérimentale polynomiale $E_{e^-}/V_{\text{ext}} = \alpha r^2 + \beta r^4$ est également représentée sur cette figure. Contrairement à l’étude sur la calibration expérimentale, l’ajustement linéaire correspond en tout point aux valeurs simulées. L’utilisation d’une équation de calibration avec un ordre supplémentaire n’apporte aucune correction essentielle et confirme le bon fonctionnement du spectromètre VMI dans les simulations SIMION. La nécessité d’utiliser une équation de calibration expérimentale d’ordre 2 en r^2 est bien causée par la présence d’un artéfact expérimental qui n’est pas encore compris à ce jour. Cette distorsion pourrait être causée par une déformation de l’image par la caméra sur les bords du détecteur ou par le fait que les faisceaux ne se croisent pas parfaitement au centre du spectromètre VMI. Afin de vérifier cette dernière hypothèse, des simulations SIMION non présentes dans ce manuscrit ont été effectuées. Ces simulations ont montré qu’un décalage de la zone d’interaction le long de l’axe z forcent l’introduction du terme correctif βr^4 pour un ajustement correct des résultats simulés. Cependant les paramètres α et β simulés diffèrent des valeurs expérimentales. Des investigations supplémentaires seront menées afin de comprendre cette observation.

Lorsqu’une différence de tension dV est appliquée entre les électrodes V_0 et V_1 , et de façon similaire à l’expérience, chaque tension d’extraction V_{ext} nécessite une calibration avec une valeur α qui lui est propre. Comme la figure 3.32b avec les points expérimentaux, la figure 3.34 montre donc la valeur α à utiliser quand une différence de potentiel dV est appliquée entre les électrodes V_0 et V_1 .

Bien que les valeurs α pour une différence de potentiel $dV = 80 \text{ V}$ diffèrent entre l’expérience et les simulations SIMION, la tendance des courbes reste la même, montrant bien la modification du champ électrique à l’intérieur du spectromètre VMI par l’application d’une différence de potentiel dV . Il est donc nécessaire de calculer α pour chaque extraction, ce qui peut se montrer imprécis et fastidieux. Cependant, la différence de potentiel dV permet d’éliminer une partie du bruit de fond (B_T et $B_{\text{res-IN}}$) présent dans le dispositif expérimental, en particulier dans le cas du jet supersonique (section 3.3.3).

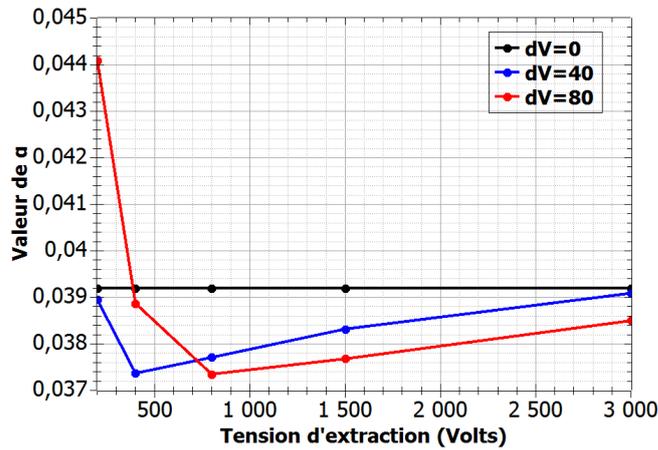


Figure 3.34 – Simulations SIMION montrant la valeur du paramètre α à utiliser pour une différence de potentiel $dV = 0$ V (courbe noire), 40 V (courbe bleue) et 80 V (courbe rouge).

3.5 Résolution du spectromètre VMI

La résolution du spectromètre VMI caractérise la largeur ΔE (de l'ordre de quelques centaines de meV) mesurée d'un pic associé à l'impact d'électrons monoénergétiques sur le détecteur. Il est possible de raisonner sur les rayons et, dans ce cas, la largeur Δr est de l'ordre de quelques mm. Expérimentalement, plusieurs facteurs limitent la résolution avec laquelle sont détectés les électrons. Dans cette thèse, la résolution est définie comme le rapport de la largeur à mi-hauteur d'un pic ΔE ou Δr sur la valeur centrale de ce pic (E ou r) et elle s'écrit $\Delta E/E$ ou $\Delta r/r$. La relation entre la résolution radiale et la résolution en énergie s'écrit $\Delta r/r = \frac{1}{2}\Delta E/E$. Ainsi, dans cette partie, sont détaillées les simulations SIMION menées afin de montrer les différents facteurs affectant la résolution du spectromètre VMI (section 3.5.1) ainsi que les mesures effectuées sur le système de collision $h\nu$ (21, 22 eV) + Kr pour déterminer expérimentalement la résolution (section 3.5.2). Les résultats expérimentaux et les résultats issus des simulations SIMION sur la résolution du spectromètre VMI sont présentés sous la forme de courbes $\Delta r/r$ (en %) en fonction de r . Il est également à noter que le spectromètre VMI utilisé dans cette thèse n'a pas été conçu dans l'optique d'avoir la meilleure résolution possible mais plutôt de détecter des électrons dans une large gamme d'énergies de 0,1 eV à 200 eV sans avoir à appliquer des tensions particulièrement élevées (en dessous de 10 kV).

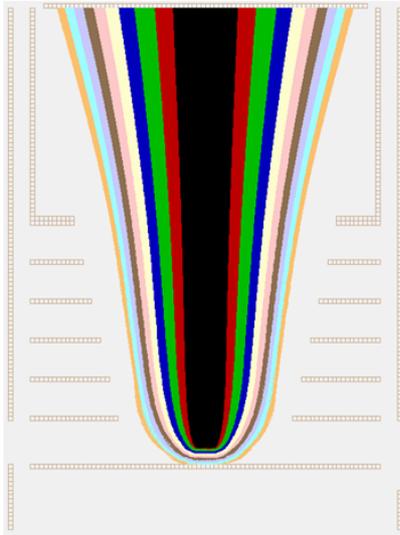
3.5.1 Étude SIMION : Facteurs affectant la résolution

Dans cette partie consacrée aux simulations SIMION, sont abordés tous les facteurs susceptibles d'affecter la résolution du détecteur. Il est question ici d'étudier indépendamment l'impact de chaque facteur sur la résolution :

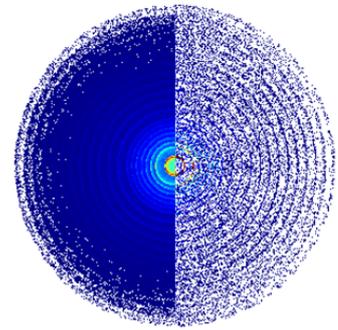
- la résolution de la caméra
- les dimensions de la zone d'interaction
- le champ magnétique terrestre
- l'écran phosphore
- l'effet de la différence de potentiel dV entre les électrodes V_0 et V_1

Afin d'obtenir la courbe $\Delta r/r$ en fonction du rayon des électrons sur l'image, la méthodologie suivante est utilisée: pour une tension d'extraction, plusieurs "paquets" d'électrons d'énergies fixes sont créés depuis une zone d'interaction qui peut être un point ou un cylindre au centre

du spectromètre VMI. Ils sont créés de manière à être régulièrement espacés sur le détecteur. Ils sont émis de manière isotrope (figure 3.35a). La statistique étant très importante dans l'étude de la résolution du spectromètre, $2 \cdot 10^6$ électrons sont simulés pour chaque énergie (à titre indicatif, pour toutes les autres études SIMION, quelques milliers de particules suffisent). Lorsque les électrons traversent le plan (x,y) du détecteur, leurs positions sont enregistrées et l'image reconstruite à partir de ces positions est pixelisée dans une matrice de taille 608x608 ou 1216x1216 correspondant à la taille des images brutes obtenues expérimentalement (figure 3.35b partie gauche).



(a)



(b)

Figure 3.35 – Figure 3.35a : Simulations d'électrons d'énergies comprises entre 0,15 eV et 40 eV émis de manière isotrope depuis une zone d'interaction de dimensions $r_{ZI} = 1$ mm et $l_{ZI} = 7$ mm pour $V_{ext} = 1$ kV. **Figure 3.35b :** Image brute (partie gauche) et transformée inverse d'Abel de l'image brute (partie droite).

Une transformée inverse d'Abel est ensuite appliquée sur l'image brute (figure 3.35a partie droite), cette nouvelle image est ensuite intégrée sur l'angle 2π rad afin d'en déduire la distribution radiale $f(r)$ visible sur la figure 3.36a. Finalement, pour chaque pic du profil correspondant à une énergie simulée et donc à un certain rayon, il est possible de mesurer sa largeur à mi-hauteur Δr et son rayon r . Ces paramètres permettent d'obtenir la courbe de la résolution du spectromètre en traçant $\Delta r/r$ en fonction du rayon.

La figure 3.36b montre que les électrons dont le rayon sur l'image après transformée inverse d'Abel est compris entre 15 mm et 28 mm sur le détecteur sont les mieux résolus ($\Delta r/r < 2\%$). Dans ce cas précis, pour une extraction $V_{ext} = 1000$ V, cela correspond à des électrons d'énergie comprise entre 8 eV et 28,2 eV. Il est important de noter que, quelle que soit la tension d'extraction, cette zone du détecteur correspondra toujours à la zone la mieux résolue, notamment en raison de la géométrie du spectromètre et des tensions appliquées aux électrodes. Ainsi, le rapport $\Delta r/r$ est indépendant de la tension d'extraction appliquée au spectromètre. Ce rapport est donc préféré au rapport $\Delta E/E$ pour l'étude de la résolution du spectromètre puisqu'un rayon peut correspondre à diverses énergies lorsqu'on change la tension d'extraction.

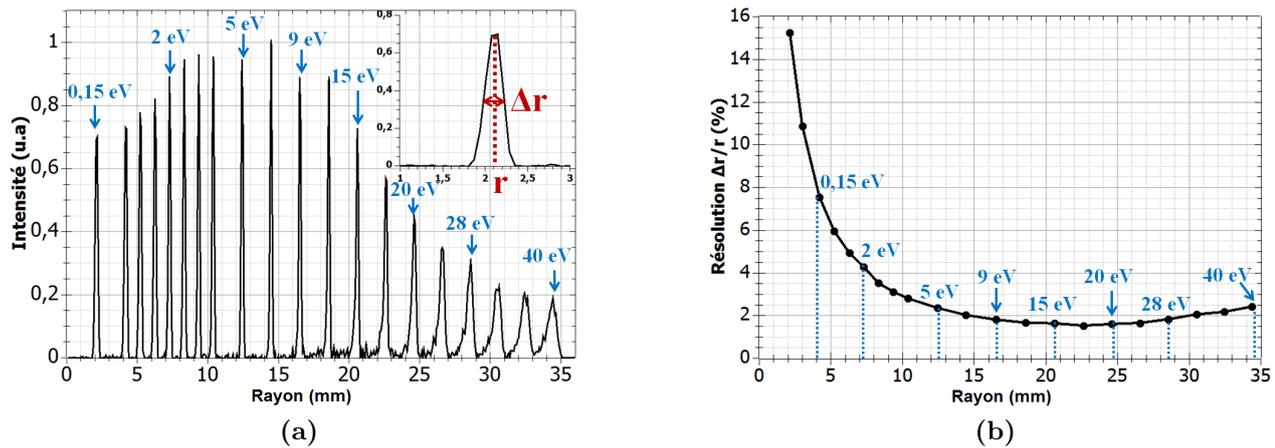


Figure 3.36 – Figure 3.36a : Distribution radiale $f(r)$ des électrons obtenue par intégration sur l’angle 2π de l’image de la transformée inverse d’Abel. **Figure 3.36b :** Courbe de la résolution du spectromètre VMI représentant $\Delta r/r$ (en %) en fonction du rayon.

3.5.1.1 Pixellisation de la caméra et géométrie du spectromètre

Le facteur principal déterminant la résolution est la pixellisation de l’image du détecteur par la caméra utilisée dans le dispositif. Elle est capable de fonctionner dans deux modes de résolution différents :

- 1216 x 1216 : les pixels sont comptés individuellement
- 608 x 608 : les pixels sont regroupés par 4 (2 horizontalement et 2 verticalement)

Dans la configuration actuelle du système de détection, un pixel de la caméra image un carré de $69 \mu\text{m}$ de côté soit $\Delta_{\text{pixel-1216}} = 0,098 \text{ mm}$ (diagonale d’un pixel) dans le mode 1216 x 1216. Dans le cas du regroupement de pixels, la résolution est donc doublée et vaut $\Delta_{\text{pixel-608}} = 0,196 \text{ mm}$. Afin de simuler l’effet de la pixellisation de la caméra sur la résolution du spectromètre VMI avec SIMION, des électrons de différentes énergies comprises entre 0,1 eV et 45 eV sont émis depuis un point au centre du spectromètre pour une tension d’extraction de 1000 V, en considérant que le champ magnétique est nul. La figure 3.37, représente la valeur de la résolution $\Delta r/r$ des pics issus de la distribution $f(r)$ des électrons.

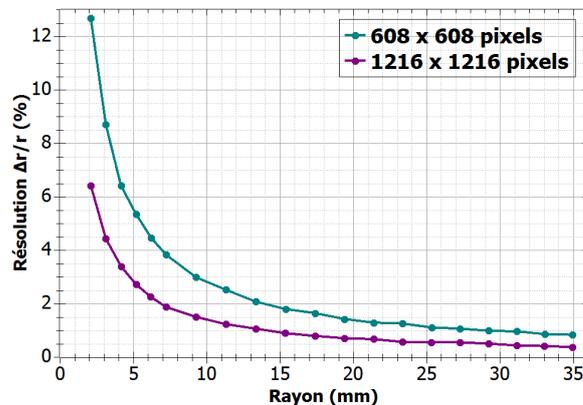


Figure 3.37 – Résolution $\Delta r/r$ du spectromètre VMI pour les deux modes de pixellisation de la caméra obtenue pour $V_{\text{ext}} = 1000 \text{ V}$, en simulant des électrons d’énergie comprises entre 0,1 eV et 45 eV depuis un point au centre du spectromètre VMI.

Il est ainsi possible de vérifier qu’ un facteur 2 sépare bien les deux configurations. Ces valeurs sont différentes des valeurs estimées en considérant uniquement l’effet de pixellisation de la

caméra car elles prennent également en compte la géométrie du spectromètre VMI et sa capacité à focaliser les électrons sur le plan du détecteur, ainsi que le traitement de l'image par la transformé inverse d'Abel.

Ces simulations ont été réalisées dans le cas où la zone d'interaction est ponctuelle. Cependant, comme cela a été montré dans la section 2.1, la zone d'interaction expérimentale est de forme cylindrique. Nous montrerons par la suite qu'en prenant en compte les différents paramètres affectant la résolution, comme notamment la forme de la zone d'interaction, le facteur 2 d'amélioration de la résolution selon le mode de pixellisation de la caméra n'est plus valable.

3.5.1.2 Dimensions de la zone d'interaction

Il est possible de modifier la section du faisceau projectile en ouvrant ou en fermant les fentes placées en amont du spectromètre VMI (section 2.2) afin de modifier le rayon de la zone d'interaction r_{ZI} . La taille du faisceau cible est aussi modifiable via des écorceurs de taille variable (entre 1 et 5 mm). Ces paramètres affectent directement les dimensions de la zone d'interaction (l_{ZI} et r_{ZI}) et il est nécessaire de quantifier leur influence sur la résolution $\Delta r/r$ du spectromètre. Afin de mener à bien cette étude, la tension d'extraction est fixée à 1000 V, les électrons simulés ont des énergies appartenant à la gamme [0,1 - 45]eV, la résolution de la caméra vaut 608x608 pixels, et le champ magnétique à l'intérieur du spectromètre VMI est toujours considéré nul. Dans ces conditions, les figures 3.38a et 3.38b montrent comment la longueur l_{ZI} de la zone d'interaction ainsi que son rayon r_{ZI} influent sur la résolution du spectromètre VMI. La courbe de la résolution dans le cas d'une zone d'interaction ponctuelle est également présente sur ces figures.

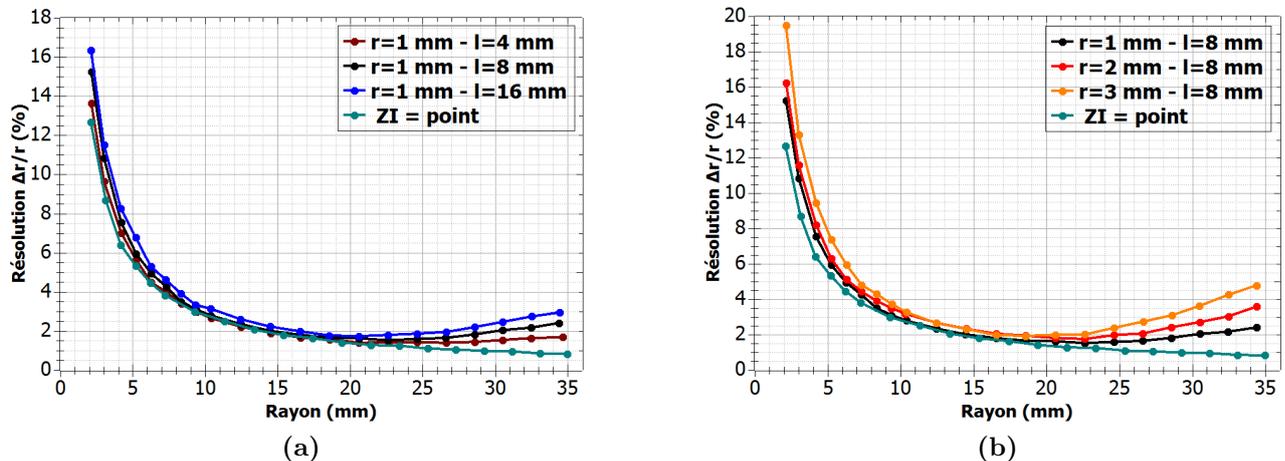


Figure 3.38 – Figure3.38a : Résolution du spectromètre VMI en fonction de la longueur l_{ZI} de la zone d'interaction pour $r_{ZI} = 1$ mm. **Figure3.38b :** Résolution du spectromètre VMI en fonction du rayon r_{ZI} de la zone d'interaction pour $l_{ZI} = 8$ mm. La résolution de la caméra est fixée à 608x608 pixels.

De manière générale, les figures 3.38a et 3.38b montrent que l'augmentation des dimensions de la zone d'interaction entraîne une dégradation de la résolution du spectromètre. Les zones du détecteur les plus sensibles à un agrandissement de r_{ZI} et l_{ZI} sont les petits rayons en dessous de 8 mm et les grands rayons au-dessus de 22 mm. La zone intermédiaire située entre 10 et 20 mm est moins sensible aux changements de dimensions de la zone d'interaction et la résolution du

spectromètre est quasi-indépendante des valeurs de r_{ZI} et l_{ZI} . Il est aussi intéressant de regarder à nouveau l'impact de la pixellisation de la caméra sur la résolution, mais cette fois-ci lorsque la zone d'interaction est un cylindre, toujours pour les mêmes conditions expérimentales (figure 3.39).

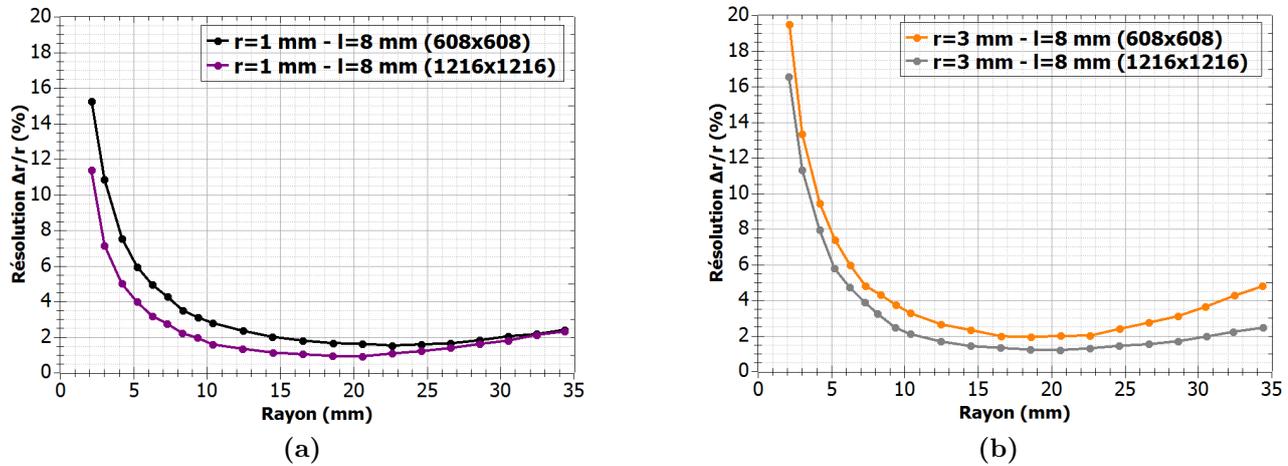


Figure 3.39 – Résolution du spectromètre VMI pour une zone d'interaction cylindrique de dimensions $r_{ZI} = 1$ mm, $l_{ZI} = 8$ mm (figure 3.39a) et $r_{ZI} = 3$ mm, $l_{ZI} = 8$ mm (figure 3.39b) pour les deux modes de pixellisation de la caméra 608x608 pixels et 1216x1216 pixels.

Lorsque la zone d'interaction est assimilée à un cylindre de dimensions $r_{ZI} = 1$ mm (figure 3.39a), on remarque que les courbes correspondantes aux deux modes de pixellisation (608x608 et 1216x1216) ne sont plus séparées d'un facteur 2 sur tout le détecteur. La pixellisation de la caméra en 1216x1216 pixels offre une meilleure résolution, excepté pour les rayons au-dessus d'environ 27 mm où la configuration de la caméra n'a plus d'influence car la résolution est alors dominée par la taille de la zone d'interaction. De même, en augmentant le volume de la zone d'interaction pour $r_{ZI} = 3$ mm et $l_{ZI} = 8$ mm (figure 3.39b), il est également possible de remarquer que la pixelisation de la caméra en 1216x1216 pixels ne permet plus d'améliorer la résolution au centre du spectromètre. Finalement, sachant que l'utilisation de la caméra dans le mode dit de haute résolution (1216x1216 pixels) augmente considérablement le temps d'acquisition des données, cela ne présente un intérêt, c'est-à-dire une amélioration de la résolution du spectromètre VMI, que si la zone d'interaction est suffisamment petite. Cette étude a également permis de montrer que les zones du détecteur sujettes à des changements de résolution se situent au centre (rayons $< 7-8$ mm) et sur les extrémités (rayons > 22 mm).

3.5.1.3 Champ magnétique B

Jusqu'à présent nous n'avons pas pris en compte la présence du champ magnétique terrestre qui peut affecter la trajectoire des électrons, en particulier celle des électrons de basses énergies, et donc la résolution du spectromètre. Afin de minimiser l'effet du champ magnétique terrestre, un blindage magnétique en μ -métal a été installé à l'intérieur et à l'extérieur de la chambre où se trouve le spectromètre VMI dans le but de réduire au maximum l'influence du champ magnétique terrestre sur la trajectoire des électrons. Cependant, ce blindage magnétique n'est pas parfaitement efficace et une partie du champ magnétique terrestre parvient à pénétrer dans le spectromètre modifiant leur trajectoire et donc leur position d'impact sur le détecteur. Afin d'étudier l'influence que peut avoir le champ magnétique présent dans le dispositif sur la

résolution du spectromètre, il est nécessaire, dans un premier temps de le caractériser expérimentalement. Des mesures avec une sonde de Hall ont été effectuées dans le plan xy de la zone d'interaction (x étant l'axe de propagation du faisceau projectile, y celui du faisceau cible) et le long du spectromètre VMI selon l'axe z . Le centre de la zone d'interaction correspond au point de coordonnées $(x,y,z) = (0,0,0)$.

Ainsi la mesure des composantes B_x , B_y et B_z du champ magnétique le long des axes x (faisceau projectile) et y (faisceau cible) dans le plan de la zone d'interaction ($z = 0$ mm) sont regroupées sur les figures 3.40a et 3.40b, respectivement. Par la suite, la composante B_y du champ magnétique selon l'axe x est considérée nulle.

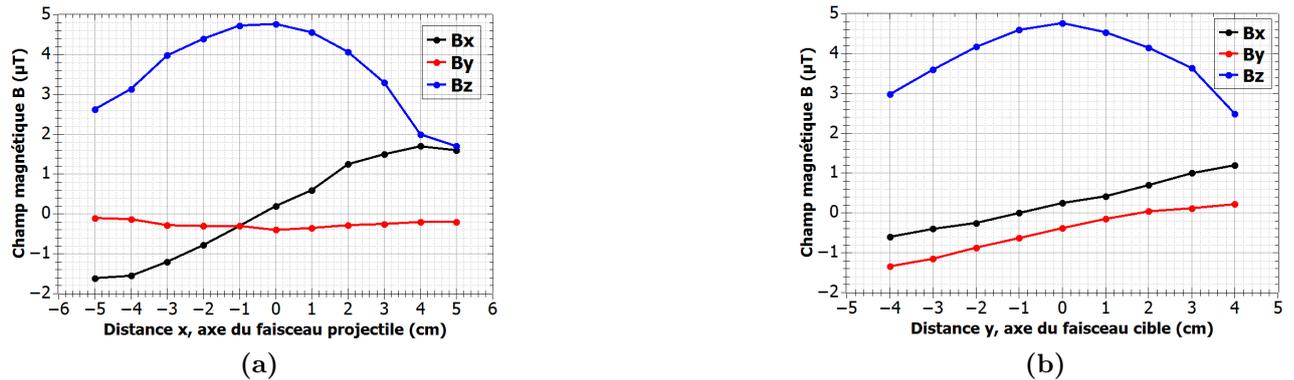


Figure 3.40 – Composantes B_x , B_y et B_z du champ magnétiques terrestre mesurées dans le plan de la zone d'interaction du spectromètre VMI le long des axes du faisceau projectile (figure 3.40a) et du faisceau cible (figure 3.40b).

La figure 3.40 montre que l'évolution des composantes B_x et B_y est plutôt linéaire tandis que l'évolution de B_z se fait de manière parabolique dû à l'absence de blindage au-dessus du spectromètre. Ne pouvant pas mesurer expérimentalement les composantes B_x , B_y et B_z sur toute la surface du plan xy , les valeurs mesurées sur les axes x et y sont extrapolés. Une carte de la composante B_z du champ magnétique dans le plan xy (avec $z = 0$ mm) est présentée sur la figure 3.41.

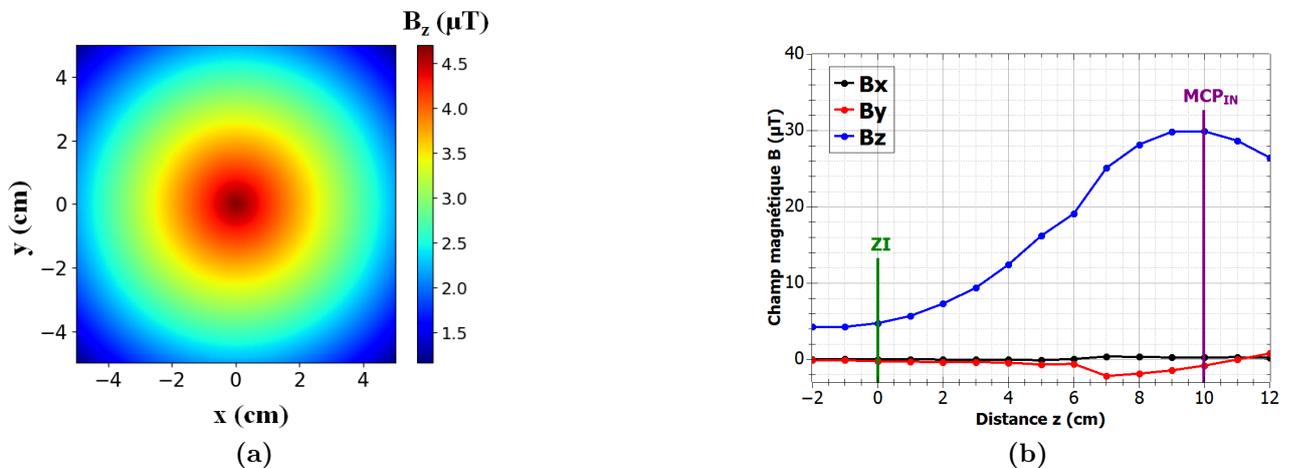


Figure 3.41 – **Figure 3.41a** : Cartographie de la composante B_z du champ magnétique dans le plan de la zone d'interaction pour $z = 0$ mm. **Figure 3.41b** : Composantes B_x , B_y et B_z du champ magnétique mesurées le long de l'axe z du spectromètre pour $x,y = (0,0)$.

La figure 3.41b montre, dans la continuité des figures 3.40a et 3.40b, l'évolution des trois composantes du champ magnétique le long de l'axe du spectromètre pour $x,y = (0,0)$ et pour les positions z variant de 0 mm (zone d'interaction) à 10 cm (position du détecteur). Alors que les valeurs de B_x et B_y restent constantes pour tout z , la composante B_z augmente sur toute la longueur du spectromètre VMI et atteint environ $30 \mu\text{T}$ au niveau du détecteur. Cette caractérisation expérimentale du champ magnétique présent dans le spectromètre permet ainsi une mise en équation de la valeur du champ magnétique qu'il est possible d'intégrer dans les simulations SIMION afin d'étudier l'évolution de la résolution du spectromètre en présence d'un champ magnétique de l'ordre de quelques μT . En première approximation, les valeurs des composantes B_x et B_y mesurées dans le plan de la zone d'interaction xy (pour $z = 0$ mm) sont propagées pour toute altitude z telles qu'elles apparaissent sur les figures 3.40a et 3.40b. La valeur centrale de B_z , lorsque $(x,y) = (0,0)$ et pour les différentes altitudes z , est directement celle indiquée par la figure 3.41b et les valeurs dans le plan xy sont ajustées par la valeur au centre du spectromètre $(x,y) = (0,0)$ en tenant compte de l'évolution de forme parabolique observée sur les figures 3.40a et 3.40b.

Afin d'étudier uniquement l'influence du champ magnétique sur la résolution du spectromètre, la zone d'interaction est, dans un premier temps, définie comme un point et la résolution de la caméra est 608×608 pixels. Pour cette étude sur l'effet du champ magnétique, nous ne pouvons plus dire que la courbe de résolution $\Delta r/r$ en fonction de r est équivalente quelle que soit la tension d'extraction V_{ext} . En effet la composante magnétique de la force de Lorentz $q \vec{v} \times \vec{B}$ fait intervenir la vitesse de l'électron et donc aussi son énergie. En d'autres termes, en présence d'un champ magnétique non négligeable, un électron de 1 eV extrait avec une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 100\text{V}$ n'aura pas la même trajectoire (et donc pas le même rayon d'impact sur le détecteur) qu'un électron de 10 eV extrait avec une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 1000\text{V}$. Ainsi la figure 3.42 montre la résolution du spectromètre pour deux tensions d'extraction $V_{\text{ext}} = 100\text{V}$ et 1000V en présence du champ magnétique caractérisé expérimentalement, ces deux courbes sont comparées au cas où le champ magnétique est considéré nul.

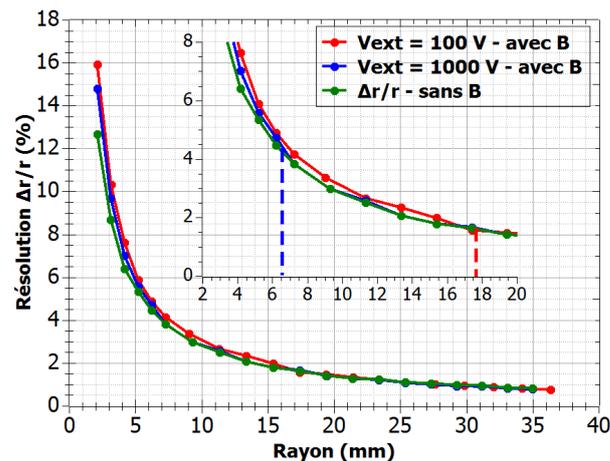


Figure 3.42 – Résolution du spectromètre VMI pour des électrons émis depuis un point, pour une pixellisation égale à 608×608 pixels pour $V_{\text{ext}} = 100\text{V}$ et 1000V en présence du champ magnétique caractérisé expérimentalement.

Les courbes présentes sur la figure 3.42 n'étant pas superposées, le champ magnétique affecte bien la résolution du spectromètre. Pour $V_{\text{ext}} = 100\text{V}$, le champ magnétique a une influence sur la résolution pour des électrons ayant un rayon inférieur à 17,5 mm soit environ 1,3 eV et

pour $V_{\text{ext}} = 1000$ V, le champ magnétique influe sur la résolution jusqu'à un rayon d'environ 6,5 mm, soit une énergie de 1,5 eV. Les deux tensions d'extraction utilisées pour cette étude confirment donc bien que le champ magnétique de quelques dizaines de μT dans le dispositif déforme légèrement la trajectoire des électrons d'énergie inférieure à 1,5 eV. Il est cependant important d'étudier l'influence du champ magnétique sur la résolution du spectromètre dans des conditions se rapprochant du réel, c'est-à-dire pour une zone d'interaction cylindrique de dimensions $r_{\text{ZI}} = 1$ mm et $l_{\text{ZI}} = 7$ mm.

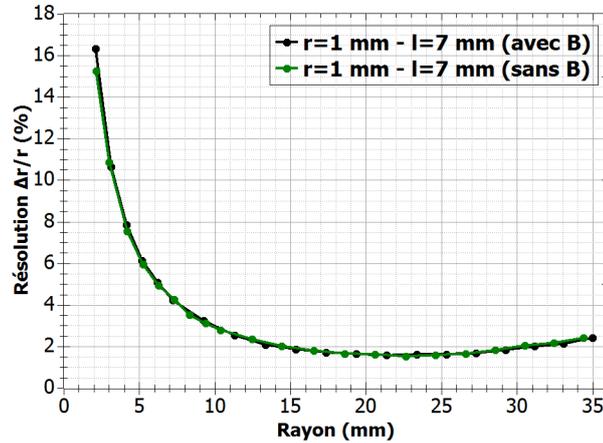


Figure 3.43 – Résolution du spectromètre VMI pour des électrons émis depuis un cylindre de dimensions $r_{\text{ZI}} = 1$ mm et $l_{\text{ZI}} = 7$ mm avec et sans champ magnétique.

Dans ce contexte, la figure 3.43 montre la résolution du spectromètre pour une zone d'interaction cylindrique lorsque le champ magnétique mesuré expérimentalement est présent dans le spectromètre (courbe verte) et lorsqu'il est nul (courbe noire). Aucune différence n'est observée entre les deux courbes, signifiant ainsi que la déviation des électrons par un champ magnétique de quelques dizaines de μT est négligeable devant l'élargissement du rayon des électrons induit par le volume de la zone d'interaction.

3.5.1.4 Taille des spots sur l'écran phosphore

Dans les simulations SIMION effectuées jusqu'à présent, après pixellisation, l'impact d'un électron sur le détecteur correspond à un unique pixel. Ceci ne représente que le cas où, expérimentalement, on choisit le centroïde du spot (Méthode 1, section 2.4.2). En revanche, lorsque la position d'impact des électrons sur le détecteur est déduite des images brutes en nuances de gris (Méthode 2, section 2.4.2), un même spot est visible sur plusieurs pixels. Simuler la taille des spots au plus proche de l'expérience s'avère complexe, seule une étude qualitative est effectuée. Ici, on considère en première approximation que chaque spot possède la même intensité et la même taille, à savoir un carré de 3 pixels (ce qui correspond à 420 μm dans le mode de pixellisation 608x608 de la caméra), le pixel central correspondant aux coordonnées de l'impact.

La figure 3.44 représente en % la résolution $\Delta r/r$ simulée à l'aide de SIMION, en fonction du rayon r pour une zone d'interaction de dimensions $r_{\text{ZI}} = 1$ mm et $l_{\text{ZI}} = 7$ mm avec le champ magnétique B et dans le mode de pixellisation 608x608, en prenant en compte ou non la taille des spots (carré de côté 3 pixels) sur l'écran phosphore. La résolution $\Delta r/r$ est, comme on pouvait s'y attendre, dégradée pour les faibles rayons où il y a peu de pixels.

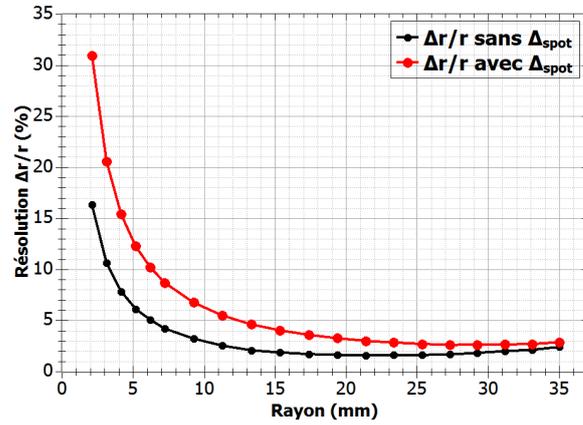


Figure 3.44 – Résolution du spectromètre VMI en prenant en compte ou non la taille des spots sur l’écran phosphore.

3.5.1.5 Différence de potentiel dV entre les électrodes V_0 et V_1

Dans la partie 3.3.3, il a été montré que la présence d’une différence de tension dV entre les électrodes V_0 et V_1 (avec $V_1 < V_0$) permettait de réduire le bruit de fond en modifiant la trajectoire des électrons créés sur la trace du faisceau projectile par interaction avec le gaz cible (B_T) et le gaz résiduel (B_{res-IN}). La présence de la différence dV modifie également le champ électrique à l’intérieur du spectromètre VMI et donc la trajectoire des électrons.

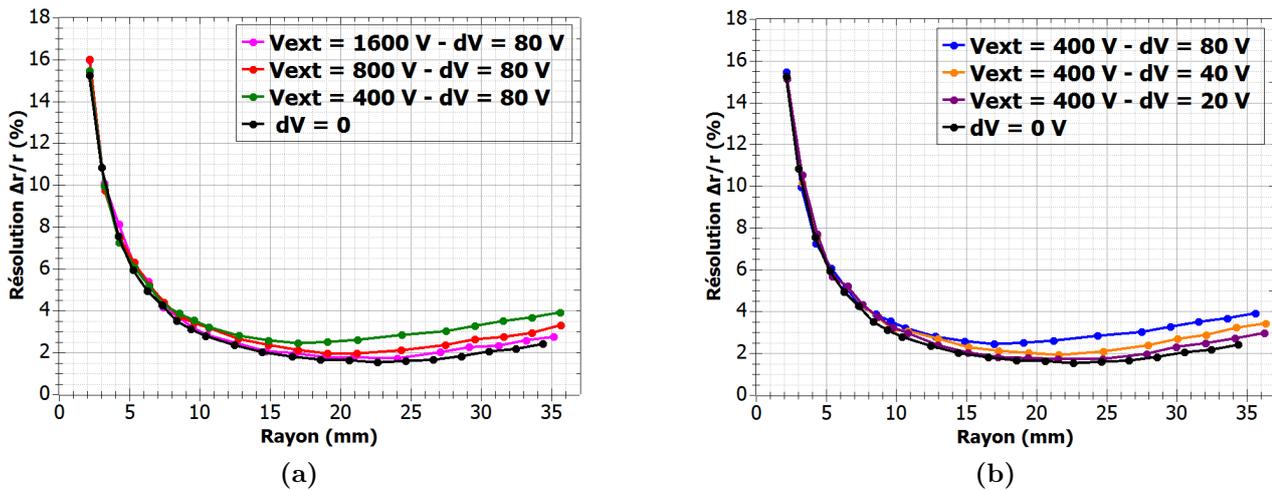


Figure 3.45 – Figure 3.45a : Résolution du spectromètre avec $dV = 80$ V et pour les tensions d’extraction $V_{ext} = 400$ V, 800 V et 1600 V. Figure 3.45b : Résolution du spectromètre avec $V_{ext} = 400$ V pour les valeurs de $dV = 20$ V, 40 V et 80 V. Sur les deux figures, la courbe noire montre le cas $dV = 0$ V.

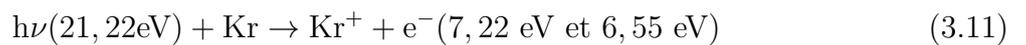
Dans la section 3.4.3, nous avons montré notamment comment cette différence de potentiel affectait la calibration du spectromètre et la nécessité de déterminer le paramètre de calibration α spécifique à chaque valeur de la tension d’extraction et de la différence de potentiel dV . De même, la résolution $\Delta r/r$ n’est plus identique d’une tension d’extraction à l’autre et chaque couple de paramètres (V_{ext}, dV) possède sa propre courbe de résolution $\Delta r/r$. Dans ce contexte, la figure 3.45 montre la résolution du spectromètre $\Delta r/r$ déterminée par des simulations SIMION pour une différence de potentiel fixe ($dV = 80$ V), différentes tensions d’extractions V_{ext} (figure 3.45a), ainsi que pour une tension d’extraction fixe $V_{ext} = 400$ V et différentes valeurs

de la différence de potentiel dV (figure 3.45b). Pour ces simulations, les dimensions de la zone d'interaction sont $r_{ZI} = 1$ mm et $l_{ZI} = 7$ mm et le champ magnétique est présent à l'intérieur du spectromètre.

L'application d'une différence de potentiel dV modifie l'allure de la résolution du spectromètre, en particulier elle tend à la détériorer pour les grand rayons. Ceci s'explique par le fait que le champ électrique est modifié, davantage sur les bords du spectromètre VMI (près des électrodes V_0 et V_1) qu'au centre, de sorte que les électrons de plus haute énergie dont la trajectoire est plus ample seront plus affectés (figure 3.30b). Cet effet est d'autant plus visible que la différence de potentiel dV est couplée à une faible tension d'extraction (figure 3.45a). Plus la tension d'extraction augmente et moins la différence de potentiel dV affectera la résolution comme le montre la courbe obtenue pour $V_{ext} = 1600$ V. La figure 3.45b présente le problème de façon différente mais les observations sont semblables: pour une faible tension d'extraction ($V_{ext} = 400$ V), la présence d'une différence de potentiel dV élevée dégrade la résolution du spectromètre pour les rayons élevés. Plus la valeur dV diminue et plus son impact sur la résolution diminue également. Dans cette thèse, la différence de potentiel dV n'a finalement pas été utilisée dans le cas des biomolécules puisque nous avons montré que la contribution du bruit B_T était relativement faible pour ce type de jet par rapport au jet supersonique d'argon (section 3.3.3, figure 3.24). En revanche, l'utilisation de la différence de potentiel dV sera probablement employée dans le futur lorsque le jet de nanoparticules sera étudié. En effet, le gaz porteur sera une source de bruit B_T importante (détails sur le fonctionnement de la source de nanoparticules dans le chapitre 5).

3.5.2 Détermination expérimentale de la résolution

La résolution expérimentale $\Delta r/r$ est déterminée en mesurant la largeur à mi-hauteur Δr du signal laissé par des électrons monoénergétiques (de rayon r) pour différentes tensions d'extraction (afin de faire varier le rayon d'impact des électrons). Le système suivant est utilisé :



Les électrons d'énergie 7,22 eV et 6,55 eV (krypton) proviennent de l'éclatement spin-orbite du photoélectron de la sous couche 4p [40]. Pour des mesures de résolution du spectromètre, les faisceaux projectiles de photons sont préférés aux ions. En effet, par photoionisation UV sont émis uniquement des électrons d'énergie bien définie sans un continuum d'électrons comme dans le cas des collisions avec les ions.

Les conditions expérimentales utilisées sont les suivantes : la résolution de la caméra est fixée à 608x608 pixels, la différence de potentiel entre V_0 et V_1 est nulle ($dV = 0$ V), et la taille de la zone d'interaction vaut environ $r_{ZI} = 1$ mm et $l_{ZI} = 7$ mm. La figure 3.46 montre la distribution radiale des photoélectrons émis par des atomes de krypton (figure 3.46a) et d'argon (figure 3.46b) après collision avec des photons d'énergie 21,22 eV pour une tension d'extraction $V_{ext} = 400$ V.

Comme le montre la distribution radiale des photoélectrons émis par le système $h\nu$ (21,22 eV) + Kr (figure 3.46a), la résolution du spectromètre est suffisante pour distinguer deux pics distants de 670 meV et il est possible d'effectuer un ajustement par la somme de deux

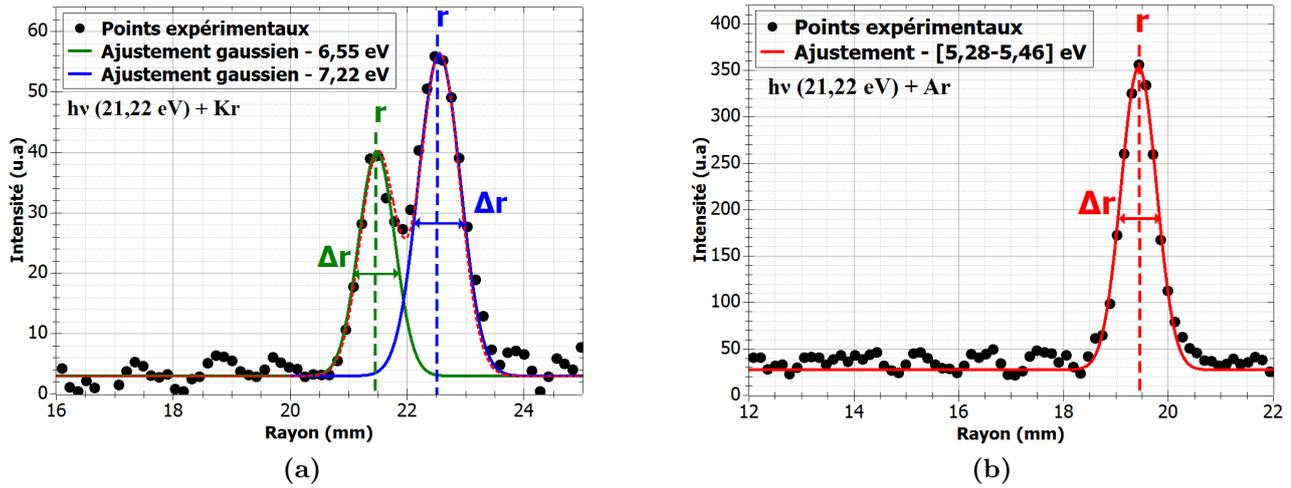


Figure 3.46 – Distributions radiales des photoélectrons émis par les systèmes de collision $h\nu$ (21,22 eV) + Kr (figure 3.46a) $h\nu$ (21,22 eV) + Ar (figure 3.46b) pour une tension d'extraction $V_{ext} = 400$ V et les conditions expérimentales citées dans la section 3.5.2.

fonctions gaussiennes. Dans le cas de la photoionisation de l'argon, également étudiée au cours de cette thèse, les photoélectrons émis d'énergie 5,28 eV et 5,46 eV provenant de l'éclatement orbital de la sous-couche 3p ne sont espacés que de 180 meV [40]. Il est impossible de résoudre correctement les deux pics avec notre spectromètre VMI (figure 3.46b). Le cas du krypton est donc privilégié pour cette étude.

Finalement, la courbe de la résolution expérimentale du spectromètre VMI est représentée sur la figure 3.47. Les valeurs $\Delta r/r$ obtenues avec les photoélectrons du krypton pour différentes tensions d'extraction entre 150 V et 3000 V y sont reportés ainsi qu'une courbe simulée SIMION pour les mêmes paramètres, c'est-à-dire : résolution de la caméra en 608x608 pixels, aucune différence de potentiel dV, avec champ magnétique et pour une zone d'interaction de dimensions $r_{ZI} = 1$ mm et $l_{ZI} = 7$ mm.

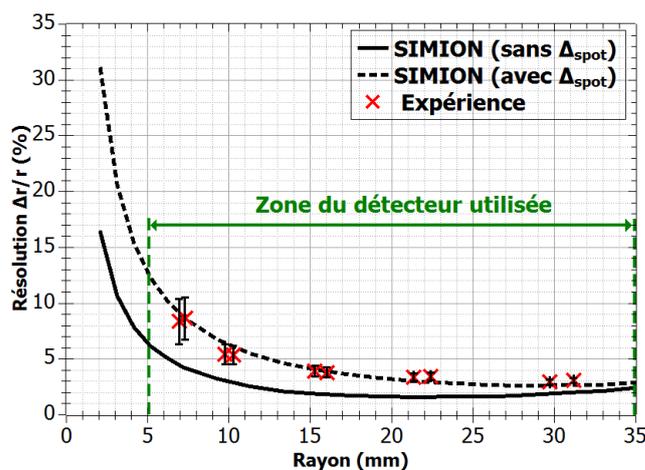


Figure 3.47 – Résolution du spectromètre VMI simulée avec SIMION et obtenue avec les deux photoélectrons du système de collision $h\nu$ (21,22 eV) + Kr pour différentes tensions d'extraction entre 150 V et 3000 V.

La courbe simulée (en trait plein) reproduit qualitativement les données expérimentales, mais pas quantitativement. Les résultats expérimentaux présentés ici sont effectués par analyse

des images brutes (méthode 2 présentée dans la section 2.4.2) et non pas après détermination du centroïde des spots sur l'écran phosphore (méthode 1 présentée dans la section 2.4.2). La taille des spots sur l'écran phosphore issue de la gerbe d'électrons provenant des galettes à micro-canaux doit être prise en compte. Afin de reproduire les résultats expérimentaux, il faut donc convoluer les résultats des simulations SIMION par la taille moyenne des spots sur l'image. La résolution Δr_{SIMION} , plutôt que de l'intégrer aux simulations SIMION comme dans la section 3.5.1.4, est ici directement corrigée par la largeur des spots Δ_{spot} ($\Delta r_{\text{corrigé}} = \sqrt{\Delta r_{\text{SIMION}}^2 + \Delta_{\text{spot}}^2}$). En prenant une largeur à mi-hauteur moyenne de spots égale à $\Delta_{\text{spot}} \simeq 500 \mu\text{m}$ (ce qui correspond à 4 pixels et qui est de l'ordre de grandeur des spots dans nos conditions expérimentales), les simulations (courbe en pointillés) reproduisent la résolution déterminée expérimentalement avec le système $h\nu(21,22 \text{ eV}) + \text{Kr}$.

Certains paramètres affectant la résolution peuvent également être étudiés expérimentalement, c'est le cas de la résolution de la caméra et de la différence de potentiel dV . L'influence de la taille de la zone d'interaction et plus particulièrement sa longueur l_{ZI} est plus difficile à étudier expérimentalement car elle nécessite le démontage des écorceurs du faisceau cible. Les figures 3.48a et 3.48b représentant respectivement l'impact expérimental de la pixellisation de la caméra et de la différence de potentiel dV sur la résolution du spectromètre pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 400 \text{ V}$. La pixellisation de la caméra n'a pas d'effet apparent sur la résolution expérimentale (figure 3.48a), aucune différence n'est observée entre le mode de pixellisation 608x608 et 1216x1216. En revanche, la différence de potentiel dV dégrade légèrement la résolution du spectromètre VMI (figure 3.48b), comme suggéré par les résultats de l'étude menée dans la section 3.5.1.5.

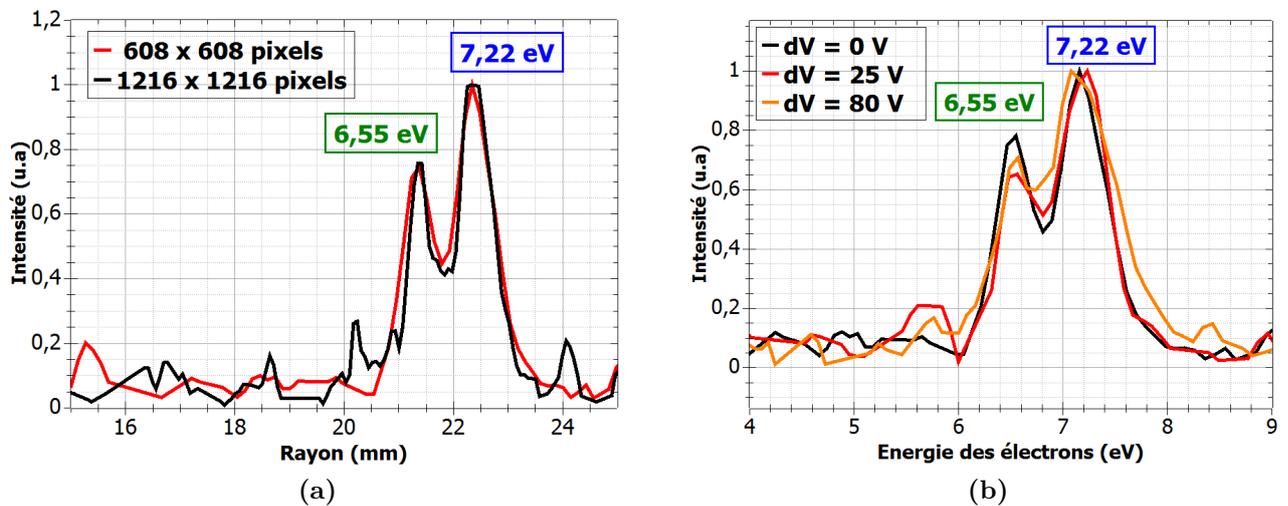


Figure 3.48 – Mise en évidence expérimentale de l'influence de la pixellisation de la caméra (figure 3.48a) ainsi que de la différence de potentiel dV (figure 3.48b) sur la résolution du spectromètre VMI. Le système de collision utilisé est $h\nu(21,22 \text{ eV}) + \text{Kr}$ pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 400 \text{ V}$.

Même si la résolution du spectromètre VMI ne rentre pas en compte dans le calcul des sections efficaces, il est intéressant, pour la caractérisation du dispositif expérimental, d'identifier les différents paramètres susceptibles de la modifier. Maîtriser la résolution du dispositif est important, en particulier pour les systèmes de collision où des électrons d'énergies bien définies sont émis suite à des processus d'auto-ionisation, comme c'est le cas pour le système $\text{He}^+(15\text{keV}) +$

Ar (figure 3.28). D'après les simulations, les facteurs qui limitent le plus la résolution sont la pixellisation de la caméra qui modifie la résolution au centre du détecteur et la taille de la zone d'interaction qui modifie la résolution sur les bords du détecteur. Pour des électrons de basse énergie qui impactent le détecteur au centre, il est préférable d'utiliser une tension d'extraction inférieure afin d'augmenter leur rayon d'impact et de les détecter avec une meilleure résolution.

Dans le chapitre 4, les différents spectres présentés montrent uniquement les électrons dont le rayon est supérieur à 5 mm, c'est à dire pour une résolution $\Delta r/r < 12\%$.

3.6 Système de détection des électrons émis N_{e^-} : galettes MCP, écran phosphore et caméra

Dans la section 2.5, les deux méthodes de comptage des électrons, soit par analyse des images du système écran phosphore/caméra, soit directement par mesure du signal sur la face arrière du détecteur MCP, ont été décrites. Dans cette partie, il sera question de discuter des avantages/inconvénients de ces deux méthodes de calcul du nombre d'électrons émis. Pour cela, une première partie sera consacrée aux caractéristiques des galettes à micro-canaux (MCP) utilisées dans le dispositif expérimental (section 3.6.2). Il sera ensuite question du système de détection écran phosphore/caméra, avec notamment les simulations effectuées permettant de reproduire et mettre en évidence les limites de ce système de comptage (section 3.6.2.2). La linéarité entre l'encodage en échelle de gris d'une image et la quantité de lumière qu'elle reçoit sera abordée en section 3.6.3. Enfin, les perspectives concernant l'évolution du système de détection seront également discutées (section 3.6.4).

3.6.1 Les galettes à micro-canaux (MCP)

Le rôle premier des galettes à micro-canaux explicité dans la section 2.4.2 est d'amplifier via des cascades électroniques le signal dû à l'impact d'un électron sur la face avant du détecteur. En sortie, chaque électron initial génère une gerbe d'électrons qui est accélérée vers un écran phosphore, la lumière émise par luminescence est ensuite captée par une caméra. La capacité des galettes à micro-canaux à amplifier le signal électronique dépend de caractéristiques intrinsèques au détecteur qui sont discutées ici, notamment la différence de potentiel Δ_{MCP} entre les faces avant et arrière des galettes à micro-canaux (section 3.6.1.1). L'efficacité de détection ϵ en fonction de l'énergie des électrons incidents est également discutée dans la section 3.6.1.2.

3.6.1.1 Différence de potentiel Δ_{MCP}

Il est question dans cette partie de discuter de l'influence de la différence de potentiel Δ_{MCP} (pour un seuil du discriminateur fixé) sur le taux de comptage mesuré des électrons.

La figure 3.49 montre le taux de comptage des électrons en fonction de la différence de potentiel Δ_{MCP} entre les galettes MCP_{IN} et MCP_{OUT} . Le seuil de quelques dizaines de mV a été fixé à une différence de potentiel Δ_{MCP} élevée, de manière à s'affranchir du bruit de fond électronique. La différence de potentiel Δ_{MCP} est ensuite progressivement abaissée. Il est important de faire la distinction entre les deux échelles présentes en abscisse. En effet, comme expliqué dans la section 2.4.2, l'ajout des résistances de $1\text{ M}\Omega$ en sortie des galettes MCP_{IN} et MCP_{OUT} entraîne

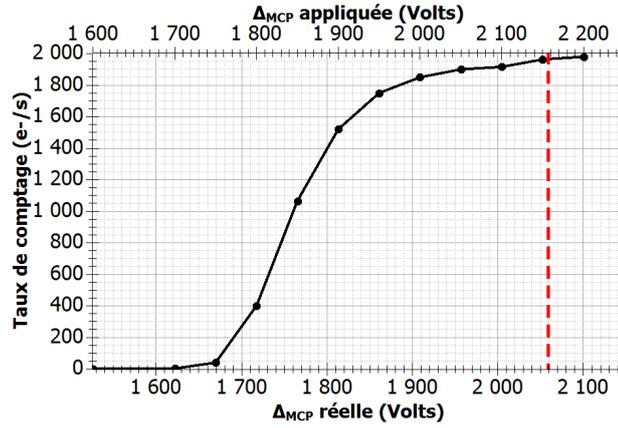


Figure 3.49 – Taux de comptage des électrons via les galettes à micro-canaux et la chaîne d’acquisition en fonction de la différence de tension ΔV_{MCP} entre les faces avant et arrière du détecteur ($\Delta V_{MCP} = V_{OUT} - V_{IN}$) pour un seuil donné.

une diminution de la différence ΔV_{MCP} . Cette diminution qui représente l’écart ΔV entre la différence de potentiel appliquée $\Delta V_{MCP-appliquée}$ et réelle $\Delta V_{MCP-réelle}$ n’est pas constante et d’après l’équation 3.12, elle vaut (avec $R = 1 \text{ M}\Omega$ et $R_{MCP} = 41,5 \text{ M}\Omega$) :

$$\Delta V = 1 - \frac{R_{MCP}}{2R + R_{MCP}} \cdot \Delta V_{MCP-appliquée} \quad (3.12)$$

Cet écart est de l’ordre de 70 V à 100 V pour la gamme de différences de tensions discutées. Par la suite, la courbe est décrite en fonction de la quantité $\Delta V_{MCP-réelle}$. Ainsi, en dessous d’une différence égale à 1600 V, aucun signal n’est observé car les électrons ne sont pas suffisamment accélérés entre les galettes MCP_{IN} et MCP_{OUT} , le gain est trop faible. Pour $1650 \text{ V} < \Delta V_{MCP-réelle} < 1900 \text{ V}$, l’effet de cascade augmente avant de former un "plateau" pour lequel le taux de comptage des électrons augmente très peu. Expérimentalement, il est intéressant de se placer sur ce plateau. Ainsi, une variation de quelques volts des tensions appliquées sur les faces avant et arrière du détecteur (V_{IN} et V_{OUT}) a peu d’influence sur le taux de comptage des électrons.

Finalement, la différence de tension $\Delta V_{MCP-réelle}$ utilisée pendant cette thèse est fixée à 2060 V. Cette valeur est choisie, d’une part parce qu’elle est sur le plateau et, d’autre part, cela correspond à un écart de 100V avec la valeur de différence de potentiel $\Delta V_{MCP-appliquée}$ à appliquer. Ainsi sont appliquées des offsets de -50V sur V_{IN} et +50V sur V_{OUT} via le programme de contrôle commande LabVIEW.

3.6.1.2 Efficacité de détection ϵ

L’efficacité de détection de galettes à micro-canaux correspond au rapport du nombre d’électrons générant une avalanche électronique sur le nombre total d’électrons incidents. Comme expliqué dans la section 2.4.2, elle dépend notamment de la surface que recouvrent les micro-canaux par rapport à la surface totale de la galette, ainsi que de l’angle et de l’énergie des électrons incidents. La courbe issue du manuel du constructeur (Hamamatsu) [88] présentant l’efficacité de détection des galettes à micro-canaux en fonction de l’énergie incidente des électrons est visible sur la figure 2.28. Cependant, ces galettes ne possèdent pas la même ouverture géométrique que celles utilisées sur notre dispositif expérimental. Ainsi, l’évolution de l’effi-

capacité de détection donnée par le constructeur est conservée mais normalisée à l'ouverture géométrique des galettes à micro-canaux réellement utilisées ($\epsilon_{\text{géo}} = 60 \%$).

Dans le dispositif expérimental, les électrons détectables ont une énergie initiale $E_{e-(\text{init})}$ de quelques dizaines voire quelques centaines d'électron-Volts et un angle d'incidence maximal de 20° par rapport à la normale du détecteur. Cependant, les électrons émis au niveau de la zone d'interaction sont accélérés par la tension d'extraction V_{ext} . Finalement, les électrons arrivant à la surface du détecteur possèdent une énergie cinétique $E_{e-(\text{MCP})}$ égale à :

$$E_{e-(\text{MCP})} = q(V_{\text{IN}} - V_{\text{ZI}}) + E_{e-(\text{init})} \quad (3.13)$$

où V_{IN} est la tension appliquée sur la face avant du détecteur, V_{ZI} le potentiel au niveau de la zone d'interaction qui est proche de la valeur de V_0 et $E_{e-(\text{init})}$ l'énergie de l'électron émis. En considérant l'énergie initiale de l'électron négligeable devant l'accélération et en considérant $V_{\text{ZI}} \simeq V_0$, l'équation 3.13 devient :

$$E_{e-(\text{MCP})} \simeq q(V_{\text{IN}} - V_{\text{ZI}}) = q \cdot V_{\text{ext}} \quad (3.14)$$

L'efficacité de détection étant différente pour chaque tension d'extraction, il est indispensable d'en tenir compte dans le calcul des sections efficaces absolues. La suite de cette section montre un exemple de l'utilisation de l'efficacité de détection dans l'analyse des distributions en énergie d'électrons émis par le système de collision $\text{He}^+(15\text{keV}) + \text{Ar}$ obtenues pour différentes tensions d'extraction. Afin de n'étudier que l'effet de l'efficacité de détection, toutes les courbes sont préalablement normalisées par rapport à l'intensité du faisceau d'ions projectile (I_{proj}). Ainsi, la figure 3.50a montre la distribution en énergie des électrons pour des tensions d'extraction comprises entre 400 V et 3200 V sans correction par l'efficacité de détection ϵ .

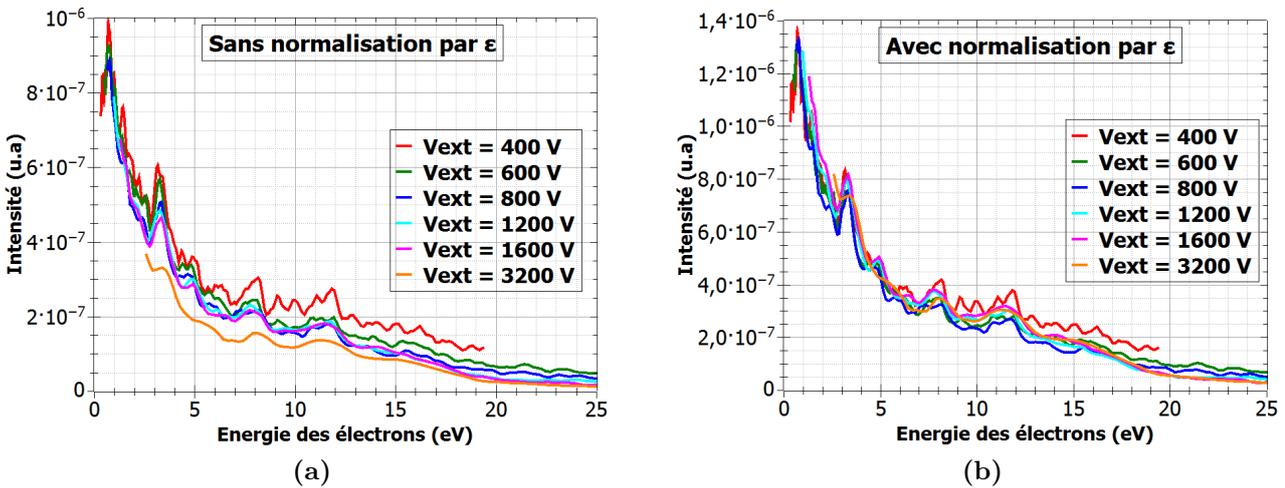


Figure 3.50 – Distribution en énergie des électrons émis par le système de collision $\text{He}^+(4\text{keV}) + \text{Ar}$ pour des tensions d'extraction comprises entre 400 V et 3200 V sans (figure 3.50a) et avec (figure 3.50b) normalisation par l'efficacité de détection ϵ . Toutes les distributions sont préalablement normalisées par l'intensité du faisceau projectile.

Il est possible de remarquer que les intensités des spectres obtenus pour $V_{\text{ext}} = 400$ V et 600 V sont les plus élevées. En effet, d'après la figure 2.28, l'efficacité de détection est maximale pour des énergies de l'ordre de 500 V. La distribution en énergie mesurée pour une tension

d'extraction $V_{\text{ext}} = 3200\text{V}$ est quant à elle bien moins intense que les autres, ce qui est également en accord avec la courbe d'efficacité de détection qui chute considérablement lorsque l'énergie des électrons augmente.

En comparaison, la figure 3.50b montre la distribution des électrons présente sur la figure 3.50a, mais cette fois-ci normalisée par l'efficacité de détection des galettes à micro canaux fournie par le constructeur (figure 2.28). Pour cette étude, nous faisons l'approximation que l'énergie de l'électron est égale à qV_{ext} (équation 3.14). Les différentes distributions se superposent mieux, même si la correction apportée n'est pas suffisante. Le fait que la superposition des courbes ne soit pas parfaite malgré la correction peut s'expliquer par le fait que cette courbe n'a pas été obtenue pour les mêmes galettes que celles utilisées sur le dispositif. D'autre part, il est possible que la réponse des galettes ne soit pas homogène sur toute la surface de détection. Or selon la tension d'extraction, les électrons issus de la collision $\text{He}^+ + \text{Ar}$ (en majorité des électrons avec des énergies inférieures à 10 eV) ne vont pas impacter la même région de la galette (essentiellement au centre pour les fortes tensions d'extraction et sur toute la galette pour les faibles tensions d'extraction), ce qui peut engendrer des erreurs supplémentaires si la réponse de la galette n'est pas homogène sur toute sa surface.

Malgré cela, dans le chapitre 4, l'efficacité de détection du constructeur normalisée par l'efficacité géométrique des galettes à micro-canaux est utilisée et une incertitude de 5 % est appliquée sur les valeurs de l'efficacité de détection.

3.6.2 Comptage des électrons par l'ensemble écran phosphore/caméra

Le système écran phosphore/caméra ayant déjà été décrit dans la section 3.6.2.2, il est question ici d'étudier les paramètres susceptibles d'influencer le taux de comptage déduit par l'analyse des images de l'écran phosphore prise par la caméra. En effet, la lumière créée par la gerbe d'électrons issus des galettes à micro-canaux suit une loi de décroissance dans le temps dont il faut tenir compte pour éviter de sous-estimer ou de surestimer le taux de comptage. En particulier, l'interdépendance de deux paramètres sera discutée dans la section 3.6.2.1:

- le seuil qui définit l'intensité minimale de lumière visible par la caméra à partir de laquelle un spot lumineux est discriminé, c'est-à-dire compté. La plage de réglage de ce seuil est comprise dans un intervalle entre 0 et 256 puisque l'échelle de gris de la caméra est codée en 8 bits.
- le temps d'exposition τ_{exp} de l'ordre de la ms qui représente le temps d'une acquisition de la caméra.

Des simulations C++ prenant en compte ces deux paramètres et permettant de reproduire l'ensemble écran phosphore/caméra seront également présentées dans la section 3.6.2.2. Finalement, une conclusion (section 3.6.2.3) fera état de l'efficacité d'un tel système de comptage dans le dispositif expérimental.

3.6.2.1 Seuil et temps d'exposition de la caméra

Le taux de comptage $N_{e^-/s}$ est déterminé par l'analyse des images $N_{e^-/img}$ prises par la caméra pendant le temps d'exposition τ_{exp} avec $N_{e^-/s} = N_{e^-/img}/\tau_{\text{exp}}$. Ramener un nombre de spots par image pour un temps d'exposition donné à un nombre d'électrons par seconde est faisable à condition de s'assurer que tous les évènements ayant lieu pendant ce temps

d'exposition —et seulement ceux-là— sont comptés. Or les spots lumineux créés par l'impact de la gerbe d'électrons issus du détecteur MCP sur l'écran phosphore possèdent une certaine période de décroissance dans le temps (environ 3 ms) indiquée dans le manuel du constructeur [88]. Par exemple, si le seuil est trop bas, des spots lumineux apparus avant l'ouverture de la fenêtre d'exposition de la caméra sont comptés, surestimant le taux de comptage final (figure 3.51). Un seuil trop haut, en revanche, risque d'éliminer des spots lumineux peu intenses mais étant apparus pendant la fenêtre d'exposition, sous-estimant ainsi le taux de comptage final.

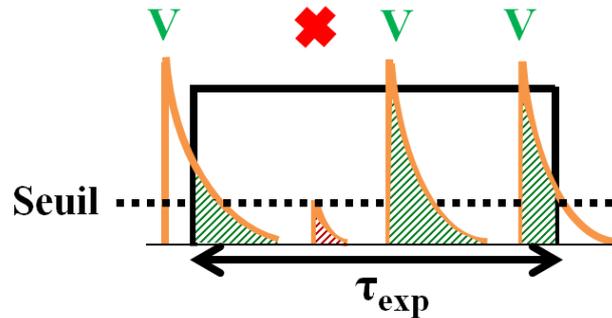


Figure 3.51 – Schéma de principe de discrimination des spots par application d'un seuil sur les images enregistrées par la caméra.

Pour illustrer ce phénomène et déterminer la valeur du seuil à utiliser selon le temps d'exposition de la caméra, le choix adopté est d'étudier la valeur du rapport entre le taux de comptage issu de l'analyse des images de la caméra (c'est-à-dire le nombre de spots par image divisé par le temps d'exposition de la caméra) et celui mesuré sur la face arrière du détecteur MCP (figure 3.52a), ce rapport est noté caméra/MCP par la suite. Le taux de comptage "MCP" est ici considéré comme le taux de comptage réel. Un rapport égal à 1 indique donc que la valeur du seuil de la caméra utilisé est correcte.

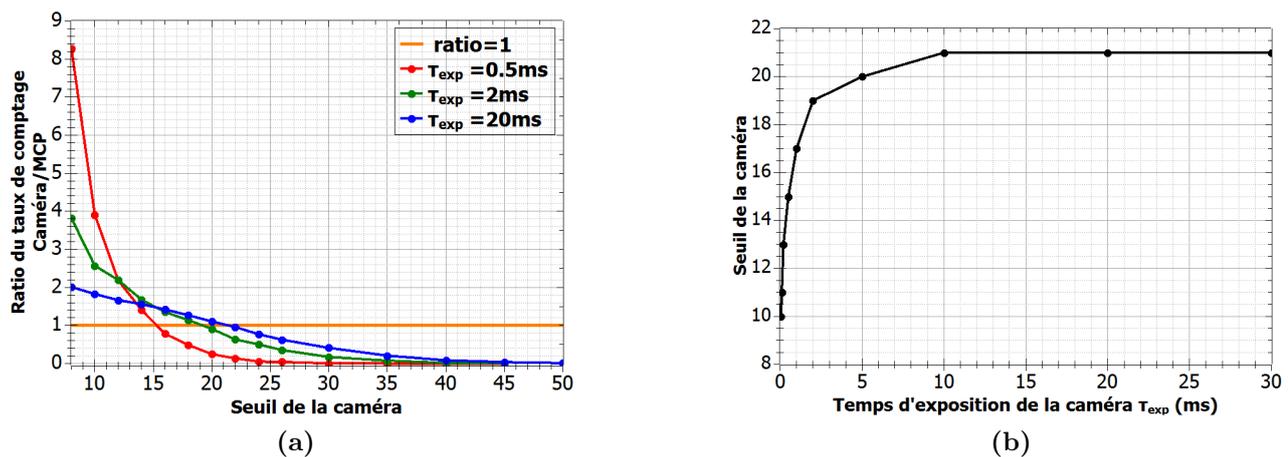


Figure 3.52 – **Figure 3.52a** : Ratio du taux de comptage issu de l'analyse des images de la caméra sur le taux de comptage du détecteur MCP en fonction du seuil. **Figure 3.52b** : Seuil à appliquer aux images afin que le taux de comptage de la caméra corresponde au taux de comptage du détecteur MCP pour différents temps d'exposition.

La figure 3.52a montre bien que si le seuil utilisé est trop bas, le nombre d'électrons comptés est surestimé (rapport caméra/MCP > 1). Des évènements apparaissant avant la fenêtre d'exposition sont comptés car le spot est encore suffisamment visible (à cause du temps de décroissance

de l'écran phosphore) pour être discriminé par ce seuil bas. Cet effet est particulièrement visible pour des temps d'exposition faibles, par exemple, pour un temps d'exposition $\tau_{\text{exp}} = 0,5$ ms, le taux de comptage est surestimé par un facteur 8 si le seuil est au plus bas. Inversement, si le seuil utilisé est trop haut, alors le nombre d'électrons est sous-estimé (rapport caméra/MCP < 1). Les électrons n'ayant pas déclenché de cascade électronique suffisamment intense dans le détecteur MCP et résultant dans un spot lumineux de faible intensité ne sont alors pas comptés. Finalement, il est nécessaire de choisir le seuil en fonction du temps d'exposition permettant d'avoir caméra/MCP = 1. Par exemple, pour $\tau_{\text{exp}} = 20$ ms, le seuil à utiliser vaut 21 environ (figure 3.52a). La valeur de seuil dépend également du gain des galettes à micro-canaux (i.e. de la différence de potentiel entre la face avant et arrière du détecteur MCP) et de la tension de polarisation de l'écran phosphore. Dans ce cas précis, Δ_{MCP} est égal à 2000V et $V_{\text{PS}} = \text{MCP}_{\text{OUT}} + 3000\text{V}$.

Il est possible d'estimer le seuil à utiliser pour chaque temps d'exposition de manière plus systématique en déterminant le seuil à appliquer sur les images pour que les taux de comptages "MCP" et "caméra" soient identiques. En d'autres termes, la courbe visible sur la figure 3.52b représente donc les différents couples de paramètres (τ_{exp} , seuil) pour avoir caméra/MCP = 1. Finalement, la comparaison des figures 3.52a et 3.52b montre qu'il est préférable de choisir un temps d'exposition $\tau_{\text{exp}} > 10$ ms pour que le seuil appliqué aux images reste constant. En effet, pour les petits temps d'exposition en dessous de 3 ms, une petite différence sur la valeur du seuil faussera le taux de comptage des électrons. Cependant, en pratique, utiliser un temps d'exposition élevé peut s'avérer problématique : si le nombre d'électrons par image devient trop important, il devient difficile d'analyser correctement les images, les spots lumineux étant alors trop proches les uns des autres. La figure 3.53 montre les variations entre le taux de comptage du système écran phosphore/caméra et du détecteur MCP pour un seuil et un temps d'exposition fixés. Le seuil est fixé de sorte que le taux de comptage caméra soit égal au taux de comptage MCP à faible taux de comptage. La courbe noire en pointillés correspond à la droite lorsque le nombre d'électrons comptés par la caméra est égal au nombre d'électrons comptés par les galettes à micro-canaux.

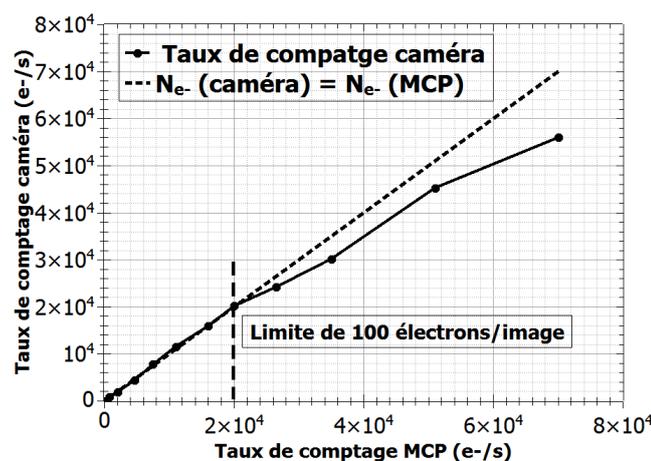


Figure 3.53 – Comparaison des taux de comptages du système écran/phosphore caméra et du détecteur MCP pour un seuil et temps d'exposition fixés.

Ainsi, à partir d'un certain taux de comptage (environ 100 électrons par image), la figure 3.53 montre qu'effectivement, l'analyse de l'image de la caméra ne dénombre pas autant de points que le détecteur MCP. Afin de rester en dessous de la limite des 100 électrons par image,

les deux possibilités sont de diminuer le temps d'exposition de la caméra et/ou de réduire le courant du faisceau d'ions projectiles afin de diminuer le nombre d'interactions au niveau de la zone d'interaction. Si le choix est fait de travailler avec des temps d'exposition bas (de l'ordre de quelques ms), il faut s'assurer du bon choix du seuil. Afin de comprendre en détail l'influence du seuil et du temps d'exposition de la caméra sur le taux de comptage des électrons, la section suivante présente des simulations du système de détection écran phosphore/caméra.

3.6.2.2 Modélisation du système de détection écran phosphore/caméra

Le but des simulations détaillées dans cette partie est de reproduire le comportement du système de détection écran phosphore/caméra en prenant en compte le seuil et le temps d'exposition de la caméra, ainsi que la décroissance exponentielle de l'intensité de la lumière émise par l'écran phosphore (figure 3.54) après l'impact d'une gerbe d'électrons provenant des galettes à micro-canaux. L'équation permettant d'ajuster la courbe théorique de la décroissance de l'écran phosphore est également présentée sur le graphe.

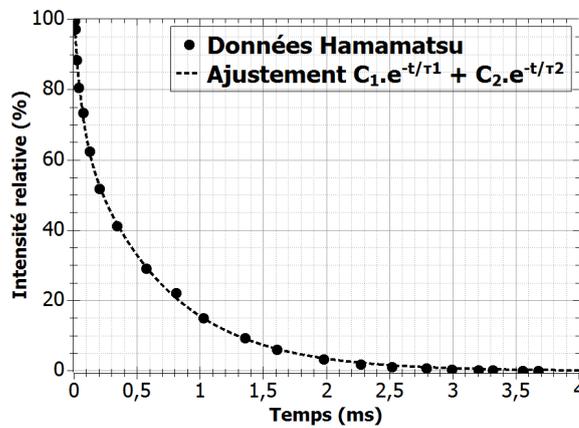


Figure 3.54 – Décroissance de l'écran phosphore issu du manuel du constructeur [88]. Les données expérimentales sont ajustées par l'équation $C_1e^{-t/\tau_1} + C_2e^{-t/\tau_2}$ avec $C_1 = 69$; $C_2 = 31$; $\tau_1 = 0,7$ ms et $\tau_2 = 0,06$ ms.

Principe des simulations

L'intensité lumineuse d'un spot pendant une durée T est donc décrite par la formule:

$$A \cdot \int_0^T I(t) dt \quad \text{avec} \quad \int_0^\infty I(t) dt = 1 \quad (3.15)$$

où $I(t)$ est la décroissance exponentielle de l'intensité lumineuse et A l'amplitude maximale à $t = 0$ ms. La valeur A peut être assimilée à une simple valeur sur l'échelle des gris (entre 0 et 256), ce qui signifierait que tous les spots lumineux ont exactement la même intensité. Cependant, pour se rapprocher des conditions expérimentales, il est plus réaliste que la valeur de l'intensité lumineuse A suive une distribution gaussienne.

En fonction de l'instant d'arrivée T_0 (choisi aléatoirement) du spot lumineux sur la caméra et de la position temporelle de la fenêtre d'exposition τ_{exp} de la caméra (les début et fin de la fenêtre d'exposition sont notés T_A et T_B par la suite, avec $\tau_{exp} = T_B - T_A$), trois possibilités sont à envisager :

- $T_0 > T_B$: le spot est arrivé après la fenêtre d'exposition de la caméra, aucun évènement ne peut être compté.
- $T_A < T_0 < T_B$: le spot est arrivé pendant l'ouverture de la fenêtre d'exposition de la caméra et l'évènement est donc considéré comme "vrai". L'intensité lumineuse mesurée et correspondant à l'intégrale de la courbe de décroissance lumineuse de l'écran phosphore entre le temps d'arrivée du point T_0 et la fermeture de la fenêtre d'exposition T_B est alors déterminée. Cette intensité lumineuse correspond soit à un certain pourcentage de A (figure 3.55a), soit à A si le spot lumineux apparaît et disparaît pendant une même fenêtre d'exposition. Si l'intensité est inférieure au seuil, l'évènement ne sera pas compté bien que "vrai".
- $T_0 < T_A$: le spot est apparu juste avant la fenêtre d'exposition de la caméra et l'évènement est donc considéré comme "faux". Néanmoins, il est susceptible d'être compté en raison du temps de décroissance de la luminosité de l'écran phosphore. L'intensité lumineuse captée par la caméra correspond à l'intégrale de la décroissance de la luminosité entre les instants $T_A - T_0$ et $T_B - T_0$. Si la valeur est supérieure au seuil, l'évènement est compté, bien que "faux".



Figure 3.55 – Représentation de la valeur de l'intensité lumineuse calculée par les simulations des évènements apparaissant dans la fenêtre d'exposition de la caméra lorsqu'une partie ou toute l'intensité lumineuse est enregistrée (figure 3.55a) ou lorsque des évènements apparaissant en dehors de la fenêtre d'exposition de la caméra (figure 3.55b)

Ces simulations permettent de récupérer des informations utiles :

- La distribution de l'intensité lumineuse mesurée par la caméra pour un temps d'exposition donné sous forme d'histogramme, avec la possibilité de séparer les distributions lumineuses d'évènements "vrais" ($T_A < T_0 < T_B$) et "faux" ($T_0 < T_A$).
- La valeur du seuil, comprise entre 0 et 256, à utiliser, de manière à s'affranchir des évènements "faux" sans discriminer les évènements "vrais". Ces valeurs de seuil peuvent être déterminées pour chaque temps d'exposition afin de tracer une courbe similaire à la courbe expérimentale de la figure 3.52b.

Histogramme de la distribution de l'intensité lumineuse mesurée

Les figures 3.56a et 3.56b montrent, pour deux temps d'exposition différents ($\tau_{\text{exp}} = 1$ ms et $\tau_{\text{exp}} = 10$ ms), les histogrammes de la distribution lumineuse mesurée par la caméra fictive avec distinction des évènements "vrai" ($T_A < T_0 < T_B$) et "faux" ($T_0 < T_A$). Pour ces simulations, l'intensité lumineuse initiale A suit une distribution gaussienne de centre $\mu = 100$ et d'écart-type $\sigma = 30$ choisie arbitrairement. La décroissance lumineuse suit l'équation de la figure 3.54.

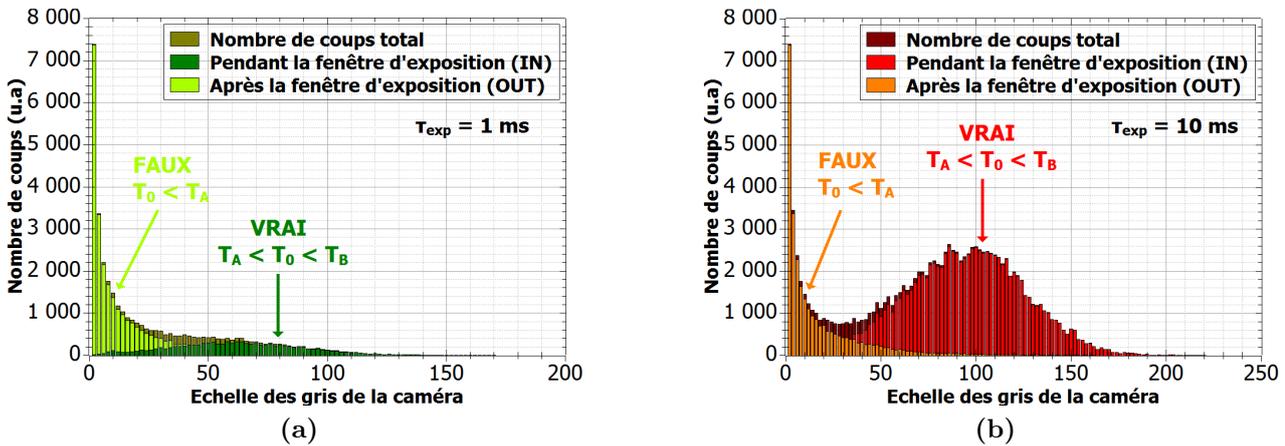


Figure 3.56 – Histogrammes de l'intensité lumineuse résultant des simulations du système écran phosphore/caméra et montrant, pour une distribution de lumière initiale gaussienne (centre $\mu = 100$ et écart-type $\sigma = 30$), la proportion d'évènements "vrai" et "faux" pour les temps d'exposition $\tau_{\text{exp}} = 1$ ms (figure 3.56a) et $\tau_{\text{exp}} = 10$ ms (figure 3.56b).

Quel que soit le temps d'exposition, la distribution de l'intensité lumineuse des évènements "faux" est sensiblement la même et il en résulte des spots de faible intensité (< 50) puisqu'il s'agit d'intégrer la fin de la courbe de décroissance (figure 3.55b). Pour les évènements dits "vrais", il y a bien un facteur 10 entre le nombre de spots lumineux mesurés pour ces deux temps d'exposition, ce qui correspond bien au rapport des deux valeurs τ_{exp} utilisées. De plus, la valeur moyenne de l'intensité est plus faible (de l'ordre de 60 sur l'échelle des gris) pour un temps d'exposition $\tau_{\text{exp}} = 1$ ms (figure 3.56a) puisque seulement une petite partie de la courbe de décroissance de la luminosité est intégrée. Pour un temps d'exposition $\tau_{\text{exp}} = 10$ ms (figure 3.56b), supérieur au temps de décroissance de l'écran phosphore, la valeur moyenne est proche de 100, c'est-à-dire la valeur centrale de la distribution gaussienne utilisée pour décrire l'intensité lumineuse des spots. Ces deux observations montrent que pour des temps d'exposition longs la différence entre les deux types d'évènements ("vrai" et "faux") apparaît plus clairement. Il sera donc plus facile de trouver un seuil permettant ainsi de bien les distinguer. Cette séparation dépend également de la valeur moyenne de l'intensité lumineuse initiale générée par la gerbe d'électrons venant du détecteur MCP et de la polarisation de l'écran phosphore. Afin de se rapprocher au mieux des conditions expérimentales, les histogrammes expérimentaux ont été mesurés. En effet, expérimentalement, en enregistrant pendant une durée suffisamment longue (pour avoir une statistique correcte) l'intensité lumineuse de chaque spot des images prises par la caméra, il est possible de reproduire l'historgramme total de la distribution lumineuse des spots. Il n'est en revanche pas possible de séparer les histogrammes liés aux évènements "vrai" et "faux". Cette étude a été menée pour différents temps d'exposition entre 0,5 ms et 30 ms.

Les différents histogrammes expérimentaux représentés sur la figure 3.57 montrent que, de manière analogue aux simulations, les fenêtres d'exposition trop courtes ne permettent pas de faire la différence entre les événements arrivés pendant ou entre deux fenêtres d'exposition. De même, plus le temps d'exposition de la caméra augmente et plus la différence entre ces deux types d'évènements est remarquable. Le décalage des histogrammes le long de l'axe des abscisses (offset de 8 sur l'échelle des gris) est dû aux propriétés intrinsèques de la caméra.

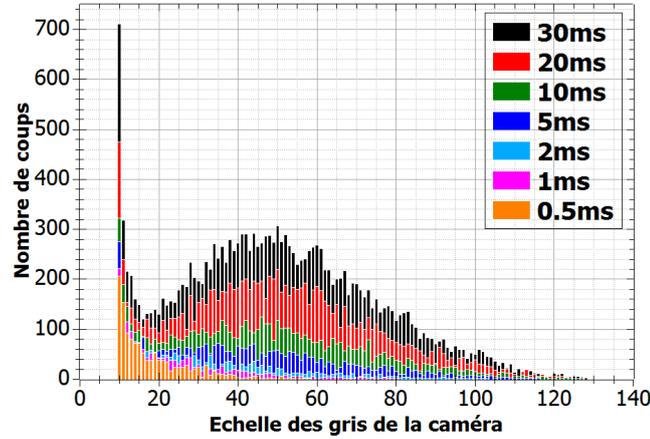


Figure 3.57 – Histogrammes expérimentaux montrant la distribution de l'intensité lumineuse enregistrée par la caméra pour différents temps d'exposition τ_{exp} .

Outre ces observations, les histogrammes expérimentaux obtenus pour des grands temps d'expositions permettent également de déterminer la distribution initiale exacte de lumière à utiliser dans le cadre de la modélisation du système écran phosphore/caméra. Ainsi, en ajustant l'histogramme obtenu pour $\tau_{\text{exp}} = 30$ ms par une fonction gaussienne, il est possible d'en déduire la distribution à utiliser dans les simulations au lieu de la distribution gaussienne de centre $\mu = 100$ et d'écart-type $\sigma = 30$ choisie initialement. La figure 3.58a montre les deux tentatives d'ajustement des données expérimentales ($\tau_{\text{exp}} = 30$ ms) avec :

- Une fonction gaussienne décalée (pour prendre en compte l'offset de la caméra), ajustement des données expérimentales :

$$A \cdot e^{-(x-\mu)^2/2\sigma^2} + B \quad \text{avec } \mu = 40, \sigma = 25 \text{ et } B = 8 \quad (3.16)$$

- Une fonction gaussienne décalée et asymétrique :

$$\text{Pour } x > \mu \quad A_1 \cdot e^{-(x-\mu)^2/2\sigma_1^2} + B \quad \text{avec } \mu = 40, \sigma_1 = 25 \text{ et } B = 8 \quad (3.17)$$

$$\text{Pour } x < \mu \quad A_2 \cdot e^{-(x-\mu)^2/2\sigma_2^2} + B \quad \text{avec } \mu = 40, \sigma_2 = 15 \text{ et } B = 8 \quad (3.18)$$

Ces distributions gaussiennes sont alors utilisées dans les simulations pour générer l'intensité lumineuse A afin de reproduire l'histogramme expérimental (figure 3.58b). Aucun de ces deux ajustements ne parvient à reproduire les données expérimentales, en particulier à la jonction des contributions des événements vrais et faux. L'un surestime (ajustement gaussien), l'autre sous-estime (ajustement gaussien asymétrique). Nous montrerons par la suite la nécessité d'ajuster également le temps de décroissance de l'écran phosphore afin de reproduire les données expérimentales. Pour la suite de cette étude, en particulier pour le calcul du seuil de la caméra à utiliser, nous utiliserons l'ajustement par la fonction gaussienne asymétrique.

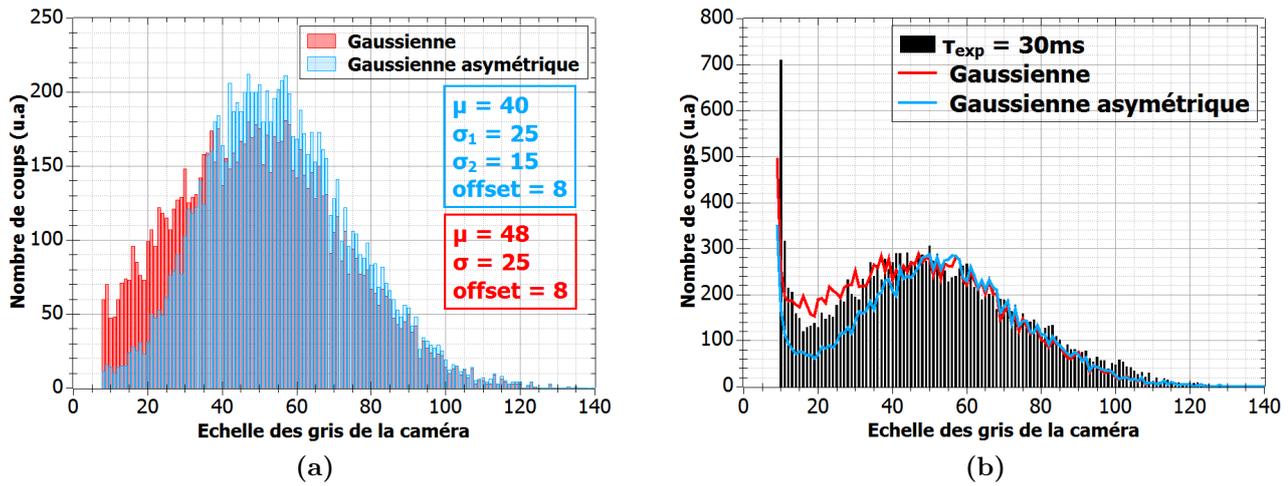


Figure 3.58 – Figure 3.58a :Distributions gaussiennes utilisées pour décrire la distribution de l'intensité lumineuse des spots sur l'écran phosphore par la gerbe d'électrons des galettes.

Figure 3.58b : Histogramme expérimental de la distribution lumineuse des spots obtenu pour $\tau_{exp} = 30ms$. Il est comparé aux histogrammes simulés de la figure 3.58a.

Détermination du seuil de la caméra

Comme expliqué précédemment, chaque valeur d'intensité calculée lors des simulations, qu'il s'agisse d'un évènement "vrai" ou "faux", est comparée à une valeur de seuil afin de déterminer si cet évènement va être compté ou non. Il est donc possible de déterminer la valeur du seuil à appliquer dans les simulations pour que le nombre de coups de l'histogramme des évènements "vrai" soit égal au taux de comptage théorique (variable d'entrée dans les simulations). D'après les histogrammes expérimentaux et simulés précédemment montrés, il est évident qu'aucune valeur de seuil ne permet réellement de discriminer les "vrais" évènements des "faux" puisqu'ils se recouvrent. En revanche, le choix du seuil est fait de telle sorte que les évènements "vrais" non discriminés, car d'intensité trop faible, soient compensés par des évènements "faux" de plus forte intensité. La figure 3.59a montre la valeur de seuil à appliquer dans les simulations pour différents temps d'exposition. Ces résultats étant basés sur une distribution de lumière réelle (ajustement par la fonction gaussienne asymétrique, figure 3.58a), ils sont directement comparés aux résultats expérimentaux visibles sur la figure 3.52b. Les valeurs de seuil déterminées n'étant pas rigoureusement identiques entre simulation et expérience, les courbes sont ici normalisées et seule l'allure des courbes est discutée par la suite. En effet, la valeur du seuil expérimental est déterminée par rapport au taux de comptage du détecteur MCP (section 3.6.2.1), donc un mauvais ajustement du seuil du discriminateur dans la chaîne d'acquisition peut fausser cette valeur.

En dessous de $\tau_{exp} = 10 ms$, les simulations montrent que le seuil évolue très rapidement en comparaison des expériences. Cette différence dans l'évolution du seuil entre les expériences et les simulations peut s'expliquer en étudiant le temps de décroissance de l'écran phosphore. En effet, comme le montre la figure 3.59a, en multipliant par 3 le temps de décroissance de l'écran phosphore représenté sur la figure 3.54, l'évolution du seuil simulé et expérimental en fonction du temps d'exposition est à peu près similaire.

La figure 3.59b montre aussi une meilleure correspondance entre l'histogramme expérimental et l'histogramme issu de la modélisation du système de détection où l'intensité lumineuse des

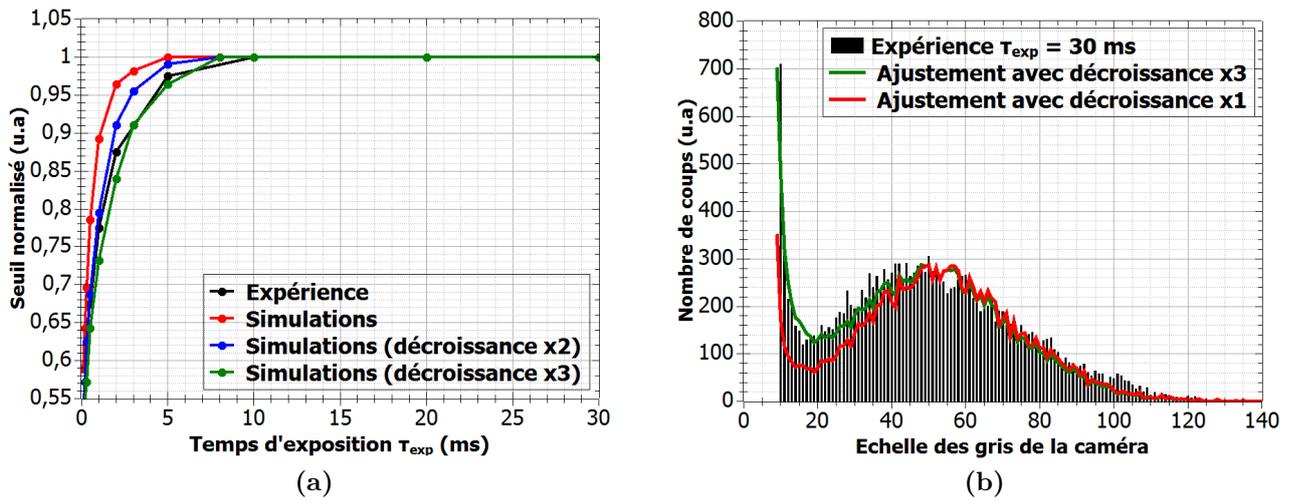


Figure 3.59 – Figure 3.59a : Comparaison expérience/simulations montrant la valeur du seuil à appliquer à aux images afin d'égaliser le taux de comptage réel pour différents temps de décroissance de l'écran phosphore. **Figure 3.58a :** Ajustement de la distribution totale d'évènements obtenue expérimentalement par des simulations utilisant une fonction gaussienne asymétrique pour décrire la distribution de l'intensité lumineuse des spots et différents temps de décroissance de l'écran phosphore.

spots suit une distribution gaussienne asymétrique (équations 3.17 et 3.18) et où le temps de décroissance de l'écran phosphore est multiplié par 3.

En conclusion, les simulations parviennent à reproduire de manière raisonnable les observations expérimentales et nous ont permis de mieux comprendre l'interdépendance des valeurs de seuil, de temps d'exposition de la caméra et du temps de décroissance de l'écran phosphore. De plus, de manière indirecte, cette modélisation nous a permis d'observer que le temps de décroissance de l'écran phosphore semble être sous-estimé par le constructeur d'un facteur 3.

3.6.2.3 Conclusion sur le comptage des électrons par l'ensemble du système écran phosphore/caméra

Les histogrammes (expérimentaux et simulés) de distribution de l'intensité lumineuse mesurée par la caméra pour différents temps d'exposition montrent l'impossibilité d'utiliser un seuil permettant de réellement discriminer uniquement les évènements ayant eu lieu pendant la fenêtre d'exposition à cause du temps de décroissance de l'écran phosphore et de la large distribution d'intensité lumineuse des spots créés par les gerbes d'électrons. La valeur de seuil à appliquer aux images en fonction du temps d'exposition est choisie de sorte de se rapprocher de la valeur théorique du taux de comptage, c'est-à-dire du taux de comptage du détecteur MCP dans le cas expérimental ou de la variable d'entrée dans le cas des simulations. Une erreur dans la valeur du seuil peut rapidement entraîner une erreur sur le taux de comptage des électrons par le système écran phosphore/caméra, en particulier pour les temps d'exposition en dessous de 10 ms (figure 3.52b). Cette méthode de comptage est donc potentiellement une source d'erreur importante pour la détermination des sections efficaces absolues.

En conclusion, en tenant compte des différentes contraintes de ce système de détection ainsi que d'un temps d'acquisition relativement long pour l'analyse des images, le comptage des

électrons par le système écran phosphore/caméra est abandonné au profit du taux de comptage par le détecteur MCP. Pour rappel, cette méthode de comptage consiste à enregistrer les images brutes de la caméra en échelle de gris afin d'obtenir la distribution spatiale des impacts d'électrons et de normaliser l'image finale par le taux de comptage du détecteur MCP. Cette méthode présente aussi des contraintes qui seront discutées dans la partie suivante.

3.6.3 Linéarité de l'encodage d'une image en l'échelle de gris

La normalisation de l'image finale de la caméra en échelle de gris par le taux de comptage du détecteur MCP ne fonctionne que si la réponse de la caméra est proportionnelle au taux de comptage du détecteur MCP. Ainsi, la figure 3.60 représente l'évolution de l'intensité lumineuse d'une image de la caméra (somme de chaque pixel de l'image) en fonction du taux de comptage du détecteur MCP pour différents temps d'exposition de la caméra.

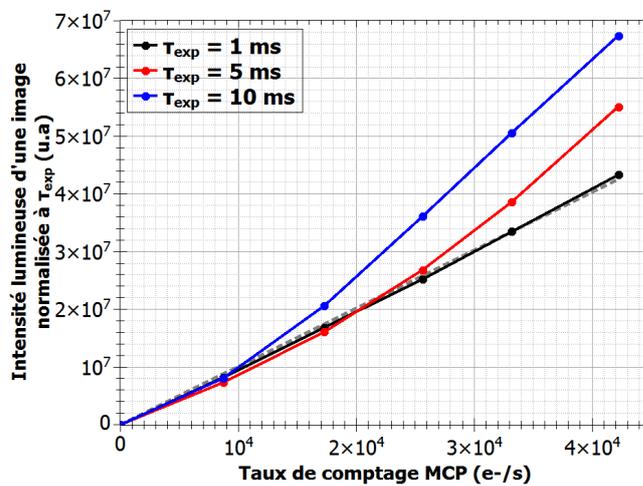


Figure 3.60 – Évolution de l'intensité lumineuse d'une image de la caméra normalisée au temps d'exposition en fonction du taux de comptage du détecteur MCP pour différents temps d'exposition τ_{exp} .

L'intensité lumineuse d'une image est proportionnelle au taux de comptage du détecteur MCP uniquement pour des petits temps d'exposition (figure 3.60). Si un temps d'exposition trop grand et/ou un taux de comptage trop élevé sont utilisés, l'image enregistrée par la caméra se retrouve déformée et, par propagation, la distribution en énergie des électrons obtenue après transformée inverse d'Abel est également déformée. Par exemple, la figure 3.61 montre la distribution en énergie des électrons émis par le système de collision He^+ (4 keV) + Ar pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 1000$ V pour un faisceau d'ions d'intensité 55 pA (figure 3.61a) et 275 pA (figure 3.61b) pour différents temps d'exposition de la caméra.

Ainsi, sur la figure 3.61a obtenue pour un faisceau d'ions He^+ d'intensité 55 pA, les distributions en énergie des électrons pour les temps d'exposition $\tau_{\text{exp}} = 1$ ms, 5 ms et 10 ms se superposent, signifiant que pour une telle intensité de faisceau, la réponse de la caméra est linéaire avec le taux de comptage du détecteur MCP. Dans cette configuration, le taux de comptage du détecteur MCP vaut environ 5000 électrons/seconde. En revanche, lorsque l'intensité du faisceau d'ions est cinq fois plus élevée (figure 3.61b), le nombre d'électrons émis

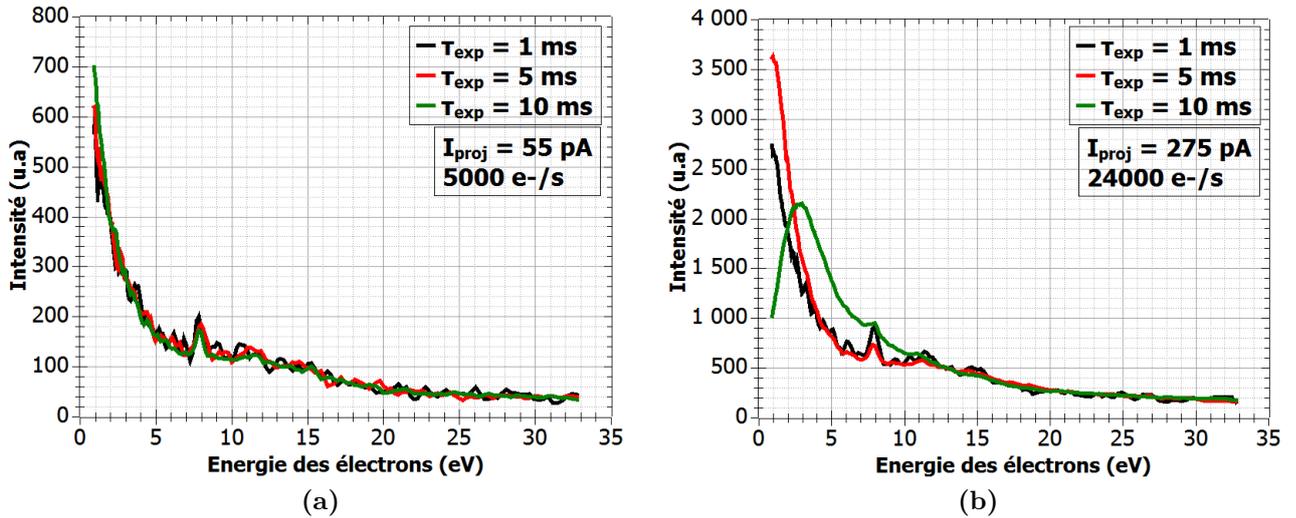


Figure 3.61 – Distribution en énergie des électrons émis par le système de collision He^+ (4 keV) + Ar pour $V_{ext} = 1000$ V pour un faisceau d’hélium d’intensité 55 pA (figure 3.61a) et 275 pA (figure 3.61b).

est lui aussi multiplié par cinq et les distributions obtenues pour les différents temps d’exposition ne correspondent pas. Lorsque le taux de comptage est trop élevé, la caméra semble déformer l’image en ajustant probablement les niveaux de gris. Cette déformation est particulièrement visible au centre du détecteur où sont concentrés la majorité des électrons émis ($E_{e^-} < 10$ eV). Une autre manière d’observer la déformation de l’image de la caméra est de mesurer la distribution d’électrons pour différentes tensions d’extraction V_{ext} . En effet, si la déformation est due à une trop grande concentration de spot lumineux au centre du détecteur, cette déformation devrait être d’autant plus visible que la tension d’extraction est élevée. Le système de collision est toujours He^+ (15 keV) + Ar et l’étude a été menée pour différents taux de comptage et temps d’exposition de la caméra. Ne sera présenté ici que le cas extrême: un taux de comptage élevé couplé à un temps d’exposition élevé. Ainsi, la figure 3.62 montre pour différentes tensions d’extraction la distribution en énergie des électrons pour un taux de comptage élevé (34000 électrons/seconde) avec $I_{proj} = 300$ pA et un temps d’exposition $\tau_{exp} = 5$ ms. Les courbes présentes sur ces figures sont corrigées par l’efficacité de détection ϵ et l’intensité du faisceau projectile I_{proj} . L’image est de plus en plus déformée à mesure que la tension d’extraction augmente. En effet, les fortes tensions d’extraction attirent un plus grand nombre d’électrons sur le détecteur (gamme d’énergies acceptable par le détecteur plus grande) et les électrons de basse énergie sont de plus en plus concentrés au centre du détecteur.

Finalement, afin que cette méthode de comptage des électrons via la normalisation de l’image brute de la caméra par le taux de comptage du détecteur MCP soit correcte, il est nécessaire que la réponse de la caméra soit linéaire avec le taux de comptage du détecteur MCP. Ceci n’est vrai que pour un nombre de spots par image limité. Au delà, la caméra commence à déformer l’image, probablement à cause des problèmes de saturation des pixels de la caméra et de la non-linéarité de leur réponse. Ne sachant pas comment corriger ces images pour rétablir la linéarité de l’encodage en échelle de gris, nous optons pour travailler avec des faibles nombres de spots par image. Cela consiste, soit à utiliser des temps d’exposition faibles (< 2 ms), soit à réduire l’intensité du faisceau d’ions projectiles à quelques dizaines de pA pour limiter le taux de comptage. En pratique l’intensité du faisceau d’ions projectiles est fixée à quelques dizaines

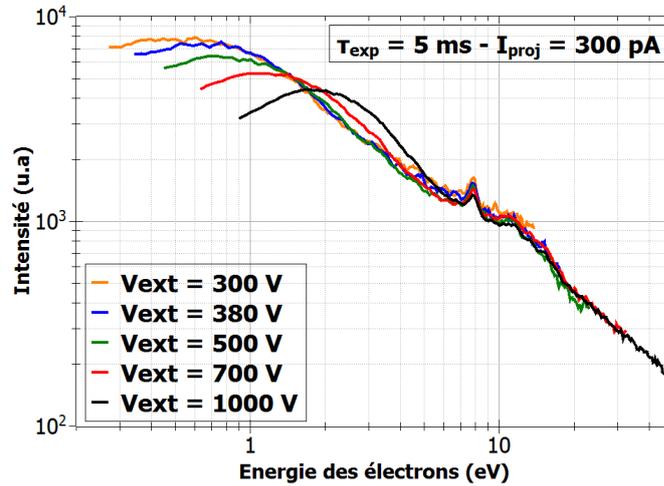


Figure 3.62 – Distribution en énergie des électrons émis par le système de collision He^+ (4 keV) + Ar pour différentes tensions d'extraction avec $I_{\text{proj}} = 300 \text{ pA}$ et $\tau_{\text{exp}} = 5 \text{ ms}$.

de pA et le temps d'exposition est augmenté tant qu'aucune déformation n'est observée sur les distributions en énergie des électrons. Utiliser un temps d'exposition plus élevé permet de réduire le temps d'acquisition de données.

3.6.4 Conclusions et perspectives sur le système de détection

Les deux méthodes de comptage décrites dans la section 2.4.2 et caractérisées dans cette section ne sont pas idéales, mais elles fonctionnent si certaines précautions sont prises. Dans le cas du comptage par analyse des images (section 3.6.2), le temps de décroissance de l'écran phosphore peut induire des erreurs dans la détermination du taux de comptage et le seuil à appliquer aux images doit être choisi de sorte à discriminer uniquement (dans la mesure du possible) les événements apparaissant pendant la fenêtre d'exposition. De plus, si les spots lumineux sont trop proches (en particulier au centre du détecteur), il devient difficile de les distinguer et le taux de comptage peut être sous-estimé. Dans le cas de la normalisation de l'image brute de la caméra par le taux de comptage du détecteur MCP (section 3.6.3), le taux de comptage et/ou le temps d'exposition doivent rester faibles afin d'éviter la déformation de l'image par la caméra. Au cours de cette thèse, la normalisation de l'image de la caméra par le taux de comptage du détecteur MCP reste privilégiée par rapport au comptage par analyse des images, en raison notamment du gain de temps lors de l'acquisition des données. L'énorme contrainte de ces deux méthodes reste tout de même la nécessité d'un taux de comptage faible forçant des acquisitions de données longues.

Ce choix de système de détection n'est finalement pas très adapté aux besoins du projet IMAGERI. En effet, afin de mesurer les section efficaces absolues simplement différentielles ($d\sigma/dE$), il est nécessaire de connaître avec précision le nombre d'électrons émis par seconde et leur position d'impact. Les incertitudes amenées par l'ensemble écran phosphore et caméra rend la tâche difficile et contraignante. Une première initiative serait d'utiliser une caméra plus performante que celle actuellement en place dans le dispositif expérimental, qui posséderait notamment une réponse linéaire des pixels et également un écran phosphore possédant un temps de décroissance plus faible. Il existe des types d'écrans phosphores possédant un temps de décroissance inférieur à 1 ms (modèles P46 ou P47, figure 2.29).

Une autre approche serait de remplacer le système écran phosphore/caméra par une anode à ligne de retard. Ce détecteur, également couplé aux galettes à micro-canaux, est constitué de deux plans de fils conducteurs et orientés de façon orthogonale l'un par rapport à l'autre, comme illustré sur la figure 3.63. Il permet de mesurer la position d'impact de la gerbe d'électrons émise par les galettes à micro-canaux dans les directions horizontale et verticale.

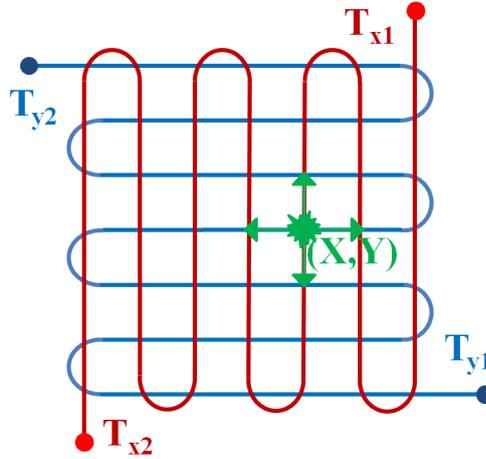


Figure 3.63 – Illustration d’une anode à ligne de retard et plus particulièrement des deux plans de fils conducteurs permettant de reconstruire la position d’impact (X, Y) d’un électron.

Lorsque les électrons atteignent les fils de l’anode, ils créent une impulsion électrique qui se propage le long des fils jusqu’à chaque extrémité où il est possible de mesurer les temps d’arrivée (T_{x1} , T_{x2} , T_{y1} , T_{y2}) de l’impulsion. Le temps de référence correspond à l’instant où l’électron incident impacte les galettes à micro-canaux et les différences de temps $T_{x2} - T_{x1}$ et $T_{y2} - T_{y1}$ renseignent sur la différence de longueur de fil parcourue par l’impulsion permettant de remonter à la position d’impact exacte (X, Y) de la gerbe d’électrons sur l’anode. L’efficacité de détection d’un tel système reste conditionnée par l’efficacité de détection des galettes à micro-canaux déjà discutée dans la section 3.6.1.2. Le taux de comptage est quant à lui limité par le choix de l’acquisition pour la reconstruction des images. Il est de l’ordre de $10^4 - 10^5$ coups/s, c’est-à-dire du même ordre de grandeur que le système actuel. La résolution spatiale, quant à elle, est comprise entre 0,1 et 0,4 mm ce qui est relativement similaire aux valeurs de la caméra utilisée (0,2 mm dans le mode de résolution 608x608 pixels). L’inconvénient majeur reste la complexité et le coût de l’électronique associée à ce type de détecteur, mais son utilisation pourrait s’avérer bénéfique pour ce projet puisque la détermination du nombre et de la position d’impact des électrons sur le détecteur serait mieux maîtrisée. Le choix sur l’évolution du système de détection pour le projet IMAGERI sera décidé dans un futur proche.

3.7 Conclusions sur la caractérisation du dispositif expérimental IMAGERI

Ce chapitre a eu pour but de présenter la caractérisation complète du dispositif expérimental dans le but de déterminer les sections efficaces absolues d’émission d’électrons de l’adénine et de l’uracile par impact d’ions qui seront présentées dans le chapitre suivant. En particulier, dans ce chapitre a été présentée la détermination des différents paramètres nécessaires à l’estimation des sections efficaces absolues, à savoir le nombre d’électrons émis $N_{e-/s}$ et leur distribution

en énergie $g(E)$, l'efficacité de détection ϵ , le nombre d'ions projectiles N_{proj} , la longueur de la zone d'interaction l_{ZI} et la densité de la cible ρ_{cible} .

- Le nombre d'électrons émis par seconde $N_{e-/s}$ peut être estimé soit par l'analyse des spots (méthode 1), soit par la mesure du signal sur la face arrière des galettes MCP (méthode 2). La section 3.6.2 a permis de montrer que la méthode 1, initialement envisagée, présentait certaines faiblesses à cause de la difficulté à déterminer le bon seuil du fait de la décroissance de la luminescence de l'écran phosphore. Finalement, il a été décidé d'utiliser la seconde méthode: la caméra enregistre les images dans un régime où elle ne déforme pas l'image en nuances de gris (τ_{exp} et/ou taux de comptage faible) afin de déterminer la position d'impact des électrons sur le détecteur. Cette image est ensuite normalisée par le taux de comptage donné par les galettes à micro-canaux. Afin d'obtenir la distribution en énergie $g(E)$ des électrons, il a été question dans la section 3.4 d'expliquer la calibration en énergie du spectromètre VMI. Pour cela, le système de collision $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$ a été utilisé car il présente des résonances permettant une calibration précise. Ainsi, l'équation de calibration en énergie utilisée est $E_{e-}/V_{\text{ext}} = \alpha.r^2 + \beta.r^4$ avec $\alpha = 0,03415 \text{ eV.kV}^{-1}.\text{mm}^{-2}$ et $\beta = 4,45.10^{-6} \text{ eV.kV}^{-1}.\text{mm}^{-2}$.
- L'efficacité de détection des galettes MCP utilisée pour la normalisation du taux de comptage dépend de l'énergie cinétique (proportionnelle à la quantité qV_{ext}) des électrons. Dans la section 3.6.1.2, il a été montré que la dépendance en énergie issue du manuel Hamamatsu donne des résultats satisfaisants pour nos résultats expérimentaux (superposition des distributions en énergie $g(E)$ mesurées pour différentes tensions d'extraction). C'est donc cette efficacité de détection qui sera utilisée après normalisation à l'efficacité géométrique des galettes pour la détermination des sections efficaces absolues. L'erreur associée à la valeur ϵ est difficile à estimer, elle est fixée ici à 5 %.
- Le nombre d'ions projectiles N_{proj} est déterminé à partir du courant I_{proj} mesuré à l'aide de la cage de Faraday. Le profileur XY est utilisé pour déterminer les fluctuations de cette valeur au cours d'une acquisition. Le courant typique utilisé lors des mesures est de l'ordre de 100 pA, l'erreur associée variant typiquement entre 10 % et 15 %.
- La longueur de la zone d'interaction l_{ZI} a été estimée à $(5,4 \pm 1) \text{ mm}$ dans le cas des biomolécules (section 3.2.1) à l'aide des diaphragmes situés devant la micro-balance à quartz. Cette longueur est légèrement inférieure à la longueur estimée par un calcul géométrique ($l_{\text{ZI}}(\text{géom}) = 6 \text{ mm}$) en tenant compte des différentes distances et écorceurs du dispositif. Dans le cas du jet supersonique, la longueur l_{ZI} est estimée en imageant la zone d'interaction par extraction homogène des ions issus de la collision (section 3.2.1).
- La densité des biomolécules ρ_{cible} a été mesurée via la micro-balance à quartz. La section 3.2.2.3 présente les différents calculs menant à ce résultat, en plus de l'évolution de cette densité avec la température du four. Les densités typiques utilisées au cours de cette thèse sont de l'ordre de $2.10^8 \text{ molécules.cm}^{-3}$, l'erreur associée variant entre 10 % et 20 %.

Au delà des paramètres discutés ci-dessus, ce chapitre a présenté également d'autres études de caractérisation et de fonctionnement du dispositif expérimental IMAGERI.

- La section 3.5 a mis en évidence le fait que la résolution du spectromètre dépendait de différents facteurs comme la pixélisation de la caméra, la longueur l_{ZI} et le rayon r_{ZI} de la zone d'interaction, ou encore la présence de la différence de potentiel dV . Finalement, l'étude du système de collision $h\nu(21,22 \text{ eV}) + \text{Kr}$ a permis d'estimer la résolution du

- spectromètre VMI. La résolution radiale $\Delta r/r$ est comprise dans la gamme [3 % ; 20 %].
- Les différentes sources de bruit de fond ont été déterminées dans la section 3.3.1. Afin de réduire la quantité de bruit de fond sur l'image finale, deux solutions ont été proposées: un écrantage électrostatique via un écran autour du spectromètre et l'application d'une différence de potentiel dV entre les électrodes V_0 et V_1 . Même si la différence dV permet de s'affranchir d'une petite partie du bruit de fond, son utilisation modifie considérablement le champ électrique à l'intérieur du spectromètre, ce qui complique grandement l'analyse des données. Le choix a donc été fait de ne pas utiliser la différence de potentiel dV et de conserver les électrodes V_0 et V_1 au même potentiel dans le cas des biomolécules.
 - Sur le dispositif, les sections efficaces absolues peuvent être mesurées pour des électrons compris dans une gamme d'énergies comprises entre 0,1 et 200 eV. Ceci est rendu possible par l'utilisation de différentes tensions d'extraction V_{ext} . Cependant, si le faisceau d'ions projectiles est de basse énergie (de l'ordre du keV), il est dévié dans le spectromètre par V_{ext} . Dans ce contexte, la section 3.1 a présenté l'étude menée afin de déterminer la tension à appliquer sur le déflecteur vertical placé en amont du spectromètre pour que la zone de recouvrement soit optimale entre les deux faisceaux, quelle que soit la tension d'extraction utilisée.
 - Il a également été important de caractériser le phénomène de fragmentation des biomolécules sous l'effet de la chaleur générée par le four afin de s'assurer que les espèces créées correspondent bien à l'adénine et à l'uracile en phase gazeuse et non à des fragments de ces deux espèces. Ainsi, l'étude présentée dans la section 3.2.2.1 a permis d'établir que les températures maximales utilisables sans endommager les biomolécules sont $T_{\text{EC}} = 140$ °C et $T_{\text{HL}} = 260$ °C pour l'adénine et $T_{\text{EC}} = 140$ °C et $T_{\text{HL}} = 240$ °C pour l'uracile.

Dans le chapitre suivant, les premières sections efficaces absolues d'émission d'électrons de l'adénine et de l'uracile mesurées avec le dispositif expérimental IMAGERI vont être présentées. Elles sont mesurées à l'aide de toutes les techniques et résultats présentés au cours des chapitres précédents.

Chapitre 4

Premiers résultats expérimentaux

Sommaire

4.1 Émission d'électrons par l'adénine et l'uracile par impact d'ions : état de l'art	127
4.2 Émission d'électrons par le système de collision C^{4+} (11,76 MeV) + adénine/uracile	129
4.2.1 Section efficace absolue totale	129
4.2.2 Section efficace simplement différentielle en énergie	130
4.2.3 Comparaison des résultats à des études théoriques et expérimentales	132
4.2.4 Dépendance angulaire de l'émission électronique	135
4.3 Analyse de l'émission d'électrons par le système de collision N^{4+} (60 keV) + uracile	138
4.4 Conclusion et perspectives	140

Dans ce chapitre sont présentés les premiers résultats expérimentaux obtenus à l'aide du dispositif IMAGERI. Plus particulièrement, il est question de présenter les premières mesures de sections efficaces absolues totales et différentielles d'émission d'électrons par des molécules d'adénine et d'uracile soumises à l'impact d'ions C^{4+} (11,76 MeV) produits sur la ligne IRRSUD (section 4.2) et N^{4+} (60 keV) produits sur la plateforme ARIBE (section 4.3). Les résultats seront comparés lorsque c'est possible à des études expérimentales et théoriques existantes.

4.1 Émission d'électrons par l'adénine et l'uracile par impact d'ions : état de l'art

Ces dernières décennies, l'étude des processus d'ionisation et de fragmentation de la matière biologique a suscité un intérêt particulier en raison des applications en radiobiologie et plus particulièrement en hadronthérapie (voir section 1.1). En effet, modéliser la perte d'énergie d'ions dans un milieu biologique nécessite la connaissance des sections efficaces associées à ces processus physiques, notamment dans la région du pic de Bragg. Les différents types d'interactions pouvant avoir lieu lors des interaction ions/atomes sont détaillées dans la section 1.2. Les premières études concernant la mesure de sections efficaces absolues d'ionisation totales, simplement différentielles (selon l'énergie d'émission des électrons) et doublement différentielles (en fonction de l'énergie et de l'angle d'émission des électrons) de molécules d'intérêt biologique ont été menées à la fin des années 1980 sur des molécules d'eau, de méthane et d'ammoniac par

impact de protons d'énergie comprise entre 7 keV et 4 MeV [121, 122, 123]. Cet intérêt pour les sections efficaces d'ionisation, principalement obtenues pour le système proton + $\text{H}_2\text{O}_{(\text{gaz})}$, a persisté jusqu'à la fin des années 2000 [124, 125]; des études théoriques ont également été menées [126, 127, 128, 129]. Dans ces publications, il est question de déterminer les sections efficaces d'émission d'électrons par des molécules d'eau soumises à l'impact de protons d'énergie comprise entre 30 keV et 1,5 MeV. Les différents modèles théoriques utilisés sont également comparés aux résultats expérimentaux afin d'en comprendre les limites.

À partir des années 2010, les sections efficaces absolues totales et différentielles d'émission électronique ont été mesurées pour des petites biomolécules comme des acides aminés [29] et les 5 bases azotées constituant l'ADN et l'ARN : adénine, thymine, cytosine, guanine et uracile [31, 32, 130, 131, 132, 133]. Les expériences sont principalement menées avec des ions nus comme H^+ [114, 134], He^{2+} [135, 136], C^{6+} [30, 137, 138], ou O^{8+} [139, 140] possédant une énergie cinétique allant de quelques centaines de keV à quelques dizaines de MeV. Les sections efficaces absolues sont généralement mesurées en utilisant des analyseurs électrostatiques à plaques parallèles ou hémisphériques (qui permettent une sélection en énergie des électrons) montés sur une plateforme tournante afin de mesurer l'émission des électrons pour différents angles d'émission. La mise à l'échelle absolue s'obtient par une normalisation à d'autres processus de collisions (pour lesquels les sections efficaces sont connues) comme la diffusion du projectile [34, 32] ou l'émission d'électrons Auger KLL [30]. Ces méthodes de normalisation ont été discutées dans la section 1.3. Pour les molécules d'adénine et d'uracile, les sections efficaces absolues totales d'émission d'électrons déterminées expérimentalement sont de l'ordre de quelques 10^{-15} cm^2 [30, 33]. Les projectiles les plus utilisés sont les protons et les ions carbone C^{4+} et C^{6+} pour des énergies variant entre 1,2 MeV et 42 MeV pour le carbone [137] et entre 100 keV et 2 MeV pour les protons [131]. Les valeurs théoriques correspondantes oscillent autour de 10^{-14} cm^2 [131, 138]. Les distributions en énergie des électrons émis par les biomolécules montrent que les spectres sont dominés par les électrons possédant une énergie cinétique inférieure à 10 eV. Au delà de 100 eV, la valeur des sections efficaces d'émission d'électrons est divisée par environ deux ordres de grandeur.

En complément de la mesure de sections efficaces d'ionisation des biomolécules par impact d'ions, des études concernant la fragmentation de ces molécules ont également été menées [114, 141, 142], toujours dans le but de comprendre les phénomènes fondamentaux liés aux interactions entre les ions et l'ADN pour des applications médicales. Le principal résultat montre notamment que les différentes voies de fragmentation de l'uracile par impact de protons sont équivalentes à celles résultant de l'impact d'électrons.

Comme il n'est pas possible de produire des protons dans une large gamme d'énergies sur les plateformes du GANIL, les ions N^{4+} d'énergie 60 keV et C^{4+} d'énergie 11,76 MeV ont été utilisés au cours de cette thèse afin de valider le fonctionnement du dispositif IMAGERI en mesurant les sections efficaces absolues d'ionisation de l'adénine et de l'uracile. La suite de ce chapitre présente les sections efficaces absolues différentielles et totales obtenues avec ces différents systèmes. Elles seront comparées aux différents résultats expérimentaux et théoriques présentés dans ce paragraphe d'introduction.

4.2 Émission d'électrons par le système de collision C^{4+} (11,76 MeV) + adénine/uracile

Les expériences menées sur la ligne IRRSUD ont permis de déterminer les sections efficaces d'émission d'électrons par des molécules d'adénine et d'uracile en phase gazeuse après impact d'ions C^{4+} d'énergie 11,76 MeV. Différentes tensions d'extraction V_{ext} entre 50 V et 4000 V ont été utilisées afin de détecter des électrons dont l'énergie se situe dans la gamme 0,1 eV - 200 eV. Cependant, lors de ces expériences, le temps d'exposition τ_{exp} de la caméra était trop long pour les tensions d'extraction les plus faibles, et de ce fait, il a induit une déformation des images enregistrées (cf. discussion de la section 3.6). Ainsi, pour l'adénine, les images obtenues pour des tensions d'extraction en dessous de 500 V sont inexploitable. Pour l'uracile, seules les images obtenues pour des tensions d'extraction entre 1000 V et 4000 V sont exploitables. Les sections efficaces simplement différentielles en énergie sont donc déterminées dans les gammes en énergie [0,5-200]eV pour l'adénine et [1-200]eV pour l'uracile.

Les différents paramètres utilisés lors de ces expériences sont les suivants :

- La longueur l_{ZI} de la zone d'interaction est estimée à $(5,4 \pm 1)$ mm (en suivant les conclusions de la section 3.2.2.2)
- Le nombre d'ions projectiles N_{proj} est de l'ordre de $2,4 \cdot 10^8$ ions/seconde pour un faisceau d'intensité moyenne $I_{\text{proj}} = (120 \pm 15)$ pA.
- La densité moyenne du faisceau d'adénine vaut $\rho_{\text{cible}} = (1,9 \pm 0,4) \cdot 10^9$ molécules. cm^{-3} . Pour l'uracile, la densité moyenne vaut $\rho_{\text{cible}} = (2,7 \pm 0,5) \cdot 10^9$ molécules. cm^{-3} .

Dans la suite de cette section, il sera question de présenter et d'interpréter les sections efficaces absolues totales et différentielles d'émission d'électrons des molécules d'adénine et d'uracile lors des collisions C^{4+} (11,76 MeV) + adénine/uracile.

4.2.1 Section efficace absolue totale

La section efficace totale absolue d'émission d'électrons s'obtient simplement via la formule détaillée dans la section 2.6 :

$$\sigma = \frac{N_{e^-}}{\epsilon \cdot l_{\text{ZI}} \cdot N_{\text{proj}} \cdot \rho_{\text{cible}}} \quad (4.1)$$

Ici, les sections efficaces totales d'émission d'électrons ont été déterminées pour les molécules d'adénine et d'uracile en mesurant le nombre d'électrons N_{e^-} impactant le détecteur (taux de comptage en face arrière des galettes MCP) à une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 4000$ V, qui permet de focaliser et détecter les électrons dont l'énergie est comprise dans la gamme [0-200] eV. Elles valent :

- $\sigma_{0-200 \text{ eV}}(\text{Adénine}) = (1,13 \pm 0,33) \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$
- $\sigma_{0-200 \text{ eV}}(\text{Uracile}) = (1,03 \pm 0,28) \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$

Les incertitudes, qui sont de l'ordre de 30 %, sont calculées par propagation des erreurs des différentes grandeurs présentes dans l'équation 4.1. Selon la formule 2.39, elles sont largement dominées par les erreurs associées à la détermination des grandeurs l_{ZI} et ρ_{cible} .

Un premier modèle capable de modéliser l'émission d'électrons par des molécules larges a été proposé par Toburen et al. au milieu des années 1970 [123, 143, 144]. Dans ces articles, il est montré qu'il existe une loi d'échelle entre les sections efficaces d'émission d'électrons de molécules plus ou moins larges et le nombre d'électrons impliqués (électrons actifs) dans les

collisions entre l'ion projectile et la cible. Pour des ions projectiles dont l'énergie est comprise entre 0,25 et 5 MeV/u, les électrons actifs sont les électrons faiblement liés aux noyaux des différents atomes. La validité de cette loi d'échelle mise en évidence par Toburen et al. est basée sur le fait que la vitesse des électrons faiblement liés des atomes C,N,O,H est petite devant la vitesse des ions projectiles et que les sections efficaces d'émission d'électrons par ces atomes est indépendante des molécules dans lesquelles ils sont impliqués. Les projectiles dont l'énergie est supérieure à la limite de 5 MeV/u sont susceptibles d'interagir avec les électrons présent sur la couche K, il est donc nécessaire de déterminer plus précisément le nombre d'électrons actifs dans ce cas. L'énergie délivrée par la ligne IRRSUD dans le cadre de ces expérience étant 0,98 MeV/u. Il est alors possible d'utiliser la loi d'échelle de Toburen et al. [143, 144]. Plus particulièrement, pour les atomes H, C, N, et O, les électrons faiblement liés impliqués dans les collisions sont tous les électrons exceptés ceux appartenant à la couche K. Le tableau 4.1 résume le nombre d'électrons impliqués dans les collisions pour les principaux atomes constituant les molécules d'adénine et d'uracile, sachant qu'aux énergies de projectiles utilisés dans cette thèse, ce nombre s'apparente au nombre n_v d'électrons de valence au sein de ces atomes.

Atome	Électrons de valence (n_v)
H	1
C	4
N	5
O	6

Table 4.1 – Nombre d'électrons de valence n_v des principaux atomes impliqués dans les collisions entre un ion incident et des molécules d'adénine et d'uracile [131].

Pour l'adénine, de formule chimique $C_5H_5N_5$, le nombre d'électrons de valence à considérer est $n_v = 50$. Pour l'uracile, de formule chimique $C_4H_4N_2O_2$, il vaut $n_v = 42$. Le rapport de ces deux valeurs donne $\frac{n_v(\text{Adénine})}{n_v(\text{Uracile})} = 1,19$. Le rapport des sections efficaces totales d'émission d'électrons de l'adénine et de l'uracile déterminées expérimentalement dans cette thèse donne quant à lui $\frac{\sigma(\text{Adénine})}{\sigma(\text{Uracile})} = 1,1 \pm 0,5$. En prenant en compte l'incertitude de mesure, la valeur du rapport des sections efficaces $\frac{\sigma(\text{Adénine})}{\sigma(\text{Uracile})}$ déterminées expérimentalement correspond bien à la valeur du rapport du nombre d'électrons de valence $\frac{n_v(\text{Adénine})}{n_v(\text{Uracile})}$. Cependant, les incertitudes expérimentales sur $\sigma(\text{Adénine})$ et $\sigma(\text{Uracile})$ étant de l'ordre de 30 %, la bonne concordance entre ces deux rapports est à prendre avec précaution.

4.2.2 Section efficace simplement différentielle en énergie

Dans cette section sont présentées les sections efficaces absolues d'émission d'électrons simplement différentielles en énergie $\frac{d\sigma(E)}{dE}$ qui, pour rappel, s'expriment par l'équation :

$$\frac{d\sigma(E)}{dE} = \frac{g(E)}{\epsilon \cdot N_{\text{proj}} \cdot l_{\text{ZI}} \cdot \rho_{\text{cible}}} \quad (4.2)$$

avec $g(E)$ la distribution en énergie des électrons déterminée à partir de l'intégration angulaire de la transformée inverse d'Abel de l'image du détecteur (section 2.6). Les distributions sont

obtenues pour différentes tensions d'extraction de 500 V à 4000 V pour l'adénine et de 1000 V à 4000 V pour l'uracile, afin de recouvrir une gamme en énergie la plus large possible. À cause de la mauvaise résolution du spectromètre au centre du détecteur, seuls les électrons possédant un rayon d'impact supérieur à 5 mm sont analysés. La gamme d'énergie des électrons est donc [0,5-200]eV pour l'adénine et [1-200]eV pour l'uracile. Une courbe moyenne peut alors être calculée d'après les différentes tensions d'extraction. La figure 4.1 représente les sections efficaces absolue d'émission d'électrons (simplement différentielle en énergie) de l'adénine (figure 4.1a) et de l'uracile (figure 4.1b) par impact d'ions C^{4+} (11,76 MeV) pour différentes tensions d'extraction. La courbe moyenne est également représentée sur chaque figure.

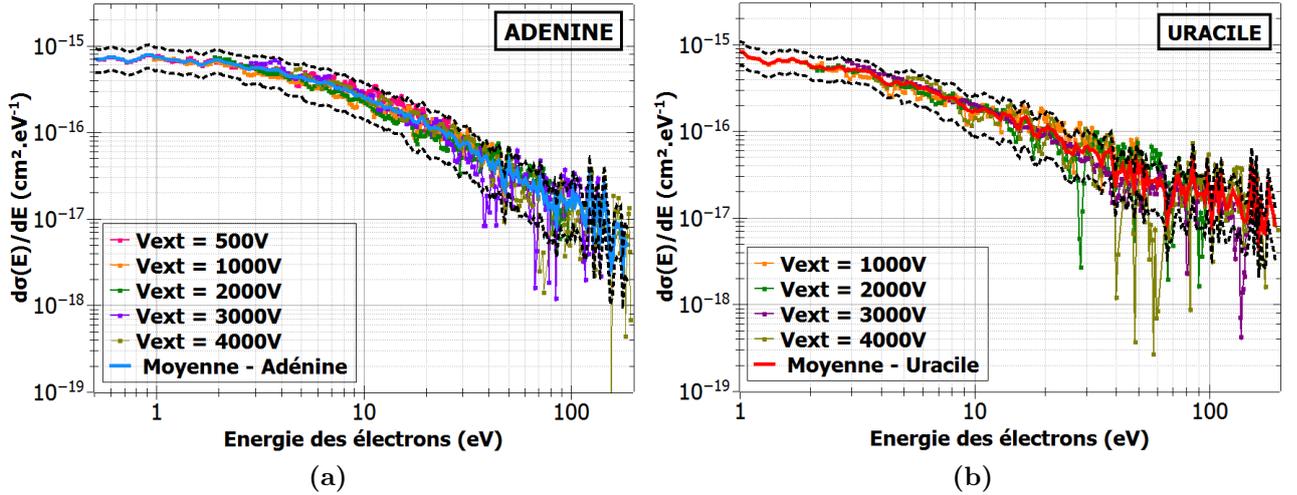


Figure 4.1 – Section efficace absolue d'émission d'électrons (simplement différentielle en énergie) de l'adénine (figure 4.1a) et de l'uracile (figure 4.1b) par impact d'ions C^{4+} (11,76 MeV) pour différentes tensions d'extractions. Les courbes en pointillés noirs rendent compte du domaine d'incertitudes expérimentales.

Les valeurs de sections efficaces diminuent rapidement avec l'énergie d'émission: entre 1 eV et 100 eV, les sections efficaces diminuent d'un facteur 50. Au delà de 90-100 eV, la statistique n'est pas suffisante, des acquisitions plus longues sont nécessaires. L'allure monotone des courbes présentes sur les figures 4.1a et 4.1b est similaire avec la dépendance en énergie trouvée par L.Tribedi et al. [30, 33] qui étudient l'émission d'électrons par des molécules d'adénine et d'uracile après impact d'ions C^{6+} d'une énergie de 42 MeV. Les résultats expérimentaux de A.Itoh et al. [131], qui étudient l'émission d'électrons par des molécules d'uracile après impact de protons d'énergie de 0,5 MeV et 1 MeV, montrent que la distribution en énergie des électrons présente un maximum vers 10 eV. En revanche les résultats théoriques présents dans cette même étude et obtenus avec le modèle CB1 (première approximation de Born ; une brève description de ce modèle est présente dans la section suivante) montrent une dépendance en énergie similaire à celle des courbes expérimentales obtenues pendant ces travaux de thèse et à celle de L.Tribedi et al. [30]. Pour ces deux études auxquelles sont comparés nos résultats expérimentaux, les sections efficaces d'émission d'électrons diminuent d'un facteur 50 environ entre 1 eV et 100 eV.

Les incertitudes sur les sections efficaces simplement différentielles en énergie sont évaluées par propagation des erreurs sur les différents termes présents dans l'équation 2.38. En raison de la statique limitée sur les bords du détecteur (c'est-à-dire pour les électrons de hautes énergies),

et notamment des incertitudes de mesure sur l'efficacité du détecteur ϵ et la densité du faisceau cible ρ_{cible} , les erreurs sont comprises entre 30% et 50% sur toute la gamme d'énergie étudiée. Sur les figures 4.1a et 4.1b, les incertitudes ont été calculées pour les courbes moyennes et sont représentées par deux courbes extrémales en pointillés noirs. En plus de ces erreurs importantes, l'allure des courbes peut être également déformée en raison du système de détection écran phosphore/caméra qui n'était pas totalement maîtrisé pendant les expériences, en particulier au centre du détecteur où un nombre très important d'électrons de très basses énergies impactent le détecteur.

La figure 4.2 représente sur le même graphe les sections efficaces moyennes absolues d'émission d'électrons simplement différentielles en énergie pour les molécules d'adénine et d'uracile divisées par le nombre d'électrons actifs précédemment calculés ($n_v(\text{Adénine}) = 50$ et $n_v(\text{Uracile}) = 42$). Les courbes pour l'adénine et l'uracile se superposent, montrant la proportionnalité des sections efficaces d'émission d'électrons au nombre d'électrons actifs. Cela tend également à suggérer que les incertitudes associées, bien qu'importantes, sont communes aux deux mesures et se compensent. Au dessus de 80-90 eV, les électrons interagissent près des bords du détecteur et une meilleure statistique serait donc nécessaire pour pouvoir observer les effets de la normalisation par le nombre d'électrons actifs.

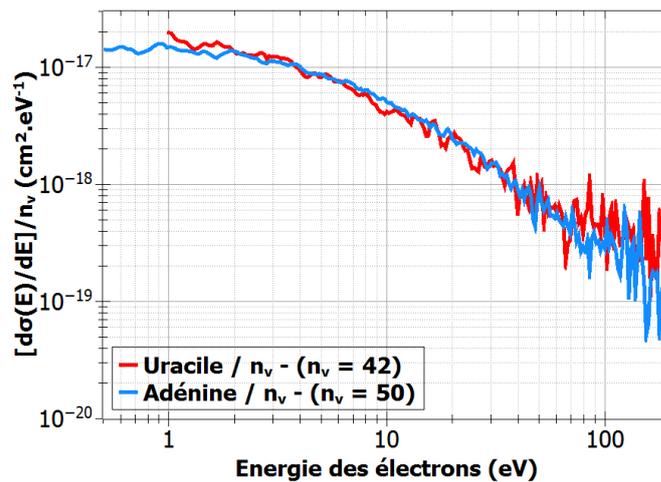


Figure 4.2 – Sections efficaces absolues d'émission d'électrons (normalisées par le nombre n_v) de l'adénine et de l'uracile par impact d'ions C^{4+} (11,76 MeV) dans la gamme en énergie [1-200] eV.

4.2.3 Comparaison des résultats à des études théoriques et expérimentales

Les courbes de sections efficaces différentielles d'émission d'électrons présentes dans les différentes études (section 4.1) ne représentent pas les électrons dont l'énergie cinétique est en dessous de 1 eV. Ainsi, afin de comparer les résultats expérimentaux exposés dans ce chapitre aux différentes études existantes, il convient de déterminer les sections efficaces totales à partir des graphes représentant les sections efficaces simplement différentielles en intégrant seulement dans la gamme 1 eV - 200 eV. Pour l'adénine et l'uracile il vient:

$$\begin{aligned}
 - \sigma_{1-200 \text{ eV}}(\text{Adénine}) &= \int_{1 \text{ eV}}^{200 \text{ eV}} \frac{d\sigma}{dE} dE = (9,7 \pm 2,5) \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2 \\
 - \sigma_{1-200 \text{ eV}}(\text{Uracile}) &= \int_{1 \text{ eV}}^{200 \text{ eV}} \frac{d\sigma}{dE} dE = (8,9 \pm 2,3) \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2
 \end{aligned}$$

Ces valeurs sont légèrement inférieures aux valeurs de sections efficaces totales déterminées dans la section 4.2.1, puisqu'elles ne tiennent pas compte des électrons d'énergies inférieures à 1 eV. Les travaux théoriques et expérimentaux de Agnihotri et al. [137] fournissent les sections efficaces totales d'émission d'électrons de l'uracile par impact d'ions C^{4+} d'énergie comprise entre 10 keV/u et 10 MeV/u. Notre valeur $\sigma_{1-200\text{eV}}(\text{Uracile})$ et leurs résultats sont représentés sur la figure 4.3.

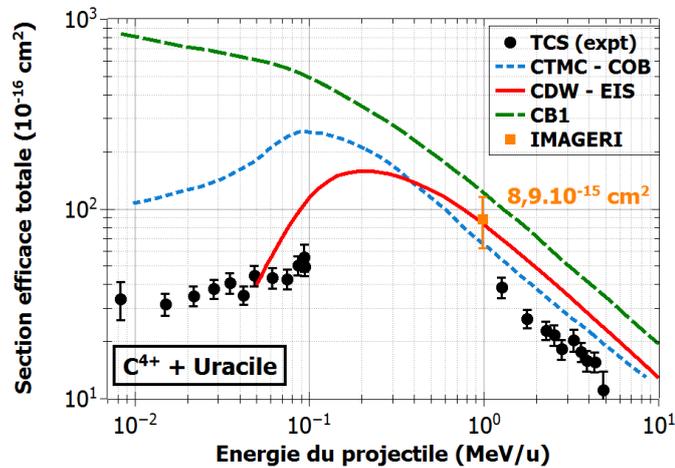


Figure 4.3 – Sections efficaces totales absolues d'émission d'électrons de l'uracile par impact d'ions C^{4+} . Les points expérimentaux (ronds noirs) et les différents modèles théoriques sont issus de la publication [137].

Les différents modèles théoriques utilisés sont les suivants :

- CB1 (première approximation de Born) [138, 145] : Les fonctions d'ondes utilisées pour décrire les ondes incidentes, cibles et diffusées sont des fonctions d'ondes à un centre, c'est-à-dire qui ne dépendent que du potentiel créé par la cible. Ce modèle n'est valable que pour des centres faiblement diffuseurs, c'est-à-dire dans le cas où le potentiel des molécules cibles n'influe pas sur la trajectoire de l'ion incident.
- CDW-EIS (Continuum Distorted Waves - Ekonal Initial State) [138, 146] : Des fonctions d'ondes à deux centres sont utilisées. Elles tiennent compte des potentiels du projectile et de la cible. Ce modèle fait l'hypothèse que les potentiels du projectile et de la cible ont une influence égale sur l'électron éjecté. Il a tendance à surestimer les sections efficaces pour les énergies de collision faibles et intermédiaires (c'est-à-dire lorsque la vitesse du projectile est du même ordre de grandeur que la vitesse de l'électron lié).
- CTMC-COB (Classical Trajectory Monte Carlo - Classical Over-the-Barrier) [138, 147, 148] : Dans cette approche classique, le projectile et l'électron éjecté sont décrits par les lois de Newton (la cible est considérée au repos). L'approximation COB prédit les différents échanges de charges entre le projectile et la cible pendant les collisions. Contrairement aux modèles quantiques où elles étaient décrites par des fonctions d'ondes, dans ce modèle classique, les biomolécules cibles sont simplement décrites par les énergies des orbitales moléculaires.

Les valeurs expérimentales ont été déterminées avec un analyseur électrostatique. En extrapolant les valeurs déterminées par Agnihotri et al. dans la gamme [1,2 - 5] MeV/u pour une énergie égale à 0,98 MeV/u, il semblerait que notre valeur soit supérieure d'un facteur 2 environ. Le modèle CB1 surestime légèrement notre valeur expérimentale, ce qui pourrait s'expliquer par

le fort champ électrostatique créé par les ions projectiles multichargés C^{4+} . En comparaison, Galassi et al. [149] ont montré que pour des ions projectiles faiblement chargés H^+ , le modèle CB1 montre une bonne correspondance avec l'expérience [131]. Concernant le modèle CDW-EIS, dans la gamme d'énergie du projectile ($\sim 1\text{MeV/u}$), on pourrait s'attendre à ce que ce modèle surestime également notre valeur expérimentale, mais les deux valeurs correspondent. Cette observation pourrait provenir d'une sous-estimation de certains paramètres (ρ_{cible} , ϵ , l_{ZI}) dans la détermination des sections efficaces absolues expérimentales.

En raison de la multiplicité des systèmes de collision et plus particulièrement de la charge et de la nature des ions projectiles, il est difficile de comparer les résultats de ces travaux de thèse aux sections efficaces différentielles existantes. Cependant, lorsque la vitesse du projectile est très grande devant celle des électrons de la cible, les sections efficaces d'émission d'électrons sont proportionnelles à q^2 où q est l'état de charge du projectile [140]. Cette approximation est valide uniquement pour des ions d'énergie supérieures à 5 MeV/u . Au dessous, il a été montré que la dépendance est plutôt en q^α avec $\alpha < 2$. Dans le cadre de cette thèse, le faisceau projectile C^{4+} d'énergie $0,98\text{ MeV/u}$ utilisé ne permet pas, à priori, d'utiliser cette approximation.

Cependant, afin de comparer nos résultats à une plus large gamme d'études, les sections efficaces totales absolues sont normalisées par q^2 , avec q la charge de l'ion projectile. Cette méthode est notamment utilisée par Mendez et al [140] et permet de s'affranchir de la nature de l'ion projectile. Ainsi, une courbe correspond à un état de charge donné, quel que soit l'ion projectile.

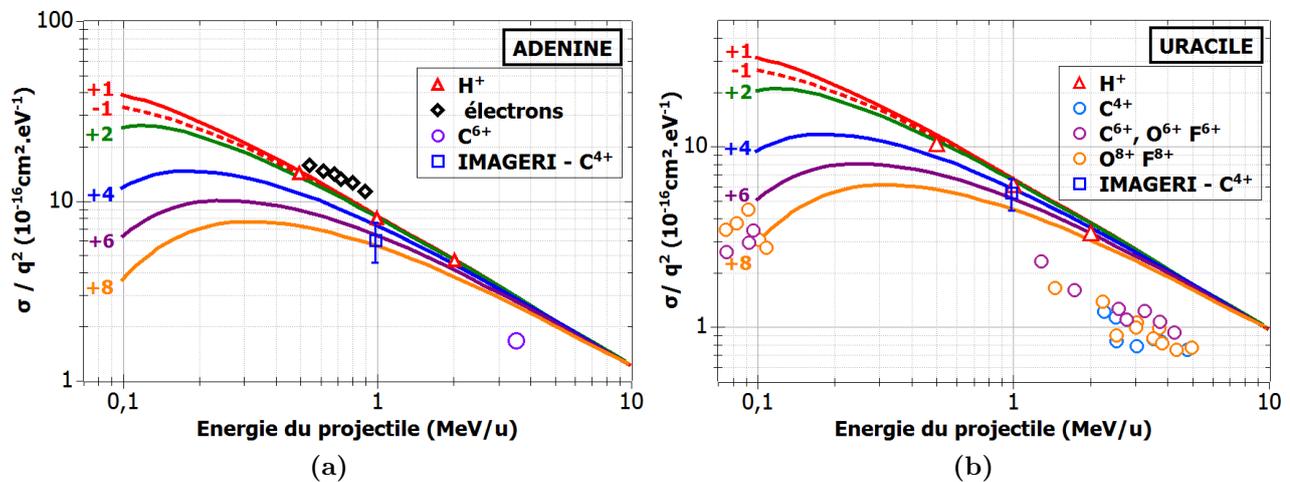


Figure 4.4 – Section efficace totale absolue d'émission d'électrons de l'adénine (figure 4.4a) et de l'uracile (figure 4.4b) normalisée par q^2 . Les courbes théoriques sont issues de l'article [140]. Sur la figure 4.4a (adénine) les points expérimentaux sont issus des publications de M.A Rahman [150] (électrons), de Y.Irki [31] (protons) et de S. Bhattacharjee et al [33] (C^{6+}). Sur la figure 4.4b (uracile), les points expérimentaux sont issus des publications de A.Itoh [131] (protons) et de A.N Agnihotri et al [137, 139] (C^{4+} , C^{6+} , O^{6+} , F^{6+} , O^{8+} , F^{8+}).

Sur la figure 4.4, nos résultats pour l'adénine et l'uracile sont comparés à d'autres systèmes étudiés expérimentalement et utilisant d'autres ions projectiles. Les sections efficaces totales d'émission d'électrons par l'adénine et l'uracile calculées par Mendez et al. pour différents projectiles et états de charge sont également présentées. Ces résultats ont été obtenus via le modèle théorique CDW discuté plus haut dans cette section. De plus, sur la figure 4.4, on remarque

qu'au dessus d'une énergie de 5 MeV/amu, toutes les sections efficaces sont proportionnelles à q^2 . En dessous de cette énergie, la dépendance en q^2 n'est plus valable et chaque état de charge correspond à une courbe. Les points expérimentaux résultant des expériences menées sur la ligne IRRSUD sont représentés avec des carrés bleus. Nos résultats expérimentaux coïncident plutôt bien avec le modèle théorique de Mendez et al. et avec les expériences par impact de proton [131]. En revanche, comme dans le cas de la comparaison de la section efficace totale de l'uracile pour l'ion projectile C^{4+} (figure 4.3), nos résultats sont supérieurs d'un facteur 2 environ par rapport aux résultats expérimentaux de A.N Agnihotri et al. pour les différents projectiles étudiés.

Ces résultats préliminaires, par leur bonne concordance avec différentes études expérimentales et théoriques, sont plutôt encourageants et montrent une bonne maîtrise des paramètres entrant en jeu dans la détermination des sections efficaces absolues. Cependant, il reste certaines améliorations à prévoir sur le dispositif, notamment en ce qui concerne la détermination de la densité ρ_{cible} du faisceau de biomolécules et l'efficacité du système de détection des électrons.

4.2.4 Dépendance angulaire de l'émission électronique

Après l'analyse de la dépendance énergétique de l'émission d'électrons par l'adénine et l'uracile, il est également intéressant d'étudier la dépendance angulaire. Cette étude est présentée plus en détail dans le cas de l'adénine.

Adénine

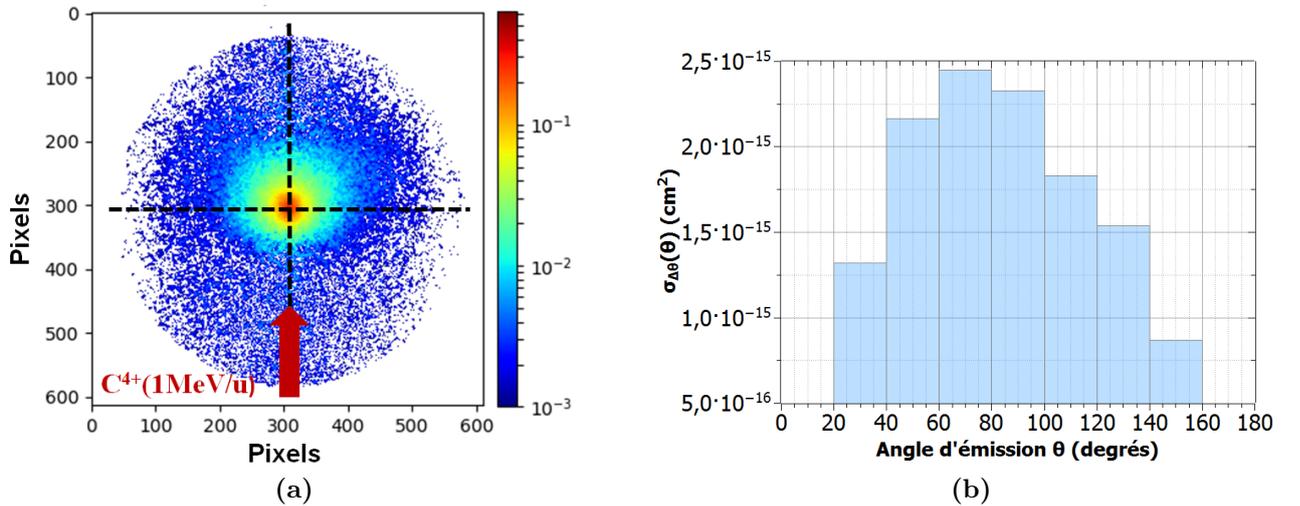


Figure 4.5 – Figure 4.5a : Image brute du détecteur (avant transformée inverse d'Abel) montrant la répartition des électrons émis par le système de collision C^{4+} + Adénine pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 4000$ V. **Figure 4.5b :** Sections efficaces $\sigma_{\Delta\theta}$ intégrées sur différents intervalles d'angles d'émission montrant la dépendance angulaire des électrons émis par le système de collision C^{4+} + adénine.

La figure 4.5a représente une image du détecteur montrant les électrons émis par le système de collision C^{4+} + Adénine pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 4000$ V. Pour une telle tension d'extraction, la gamme d'énergies scannée est la plus large et les électrons détectés possèdent une énergie cinétique maximale de 200 eV. Sur l'image brute du détecteur (avant transformée

inverse d'Abel), il est déjà visible que, pour un tel système de collision, les électrons sont préférentiellement émis vers l'avant, dans l'axe du faisceau d'ions projectiles.

La qualité statistique de nos données expérimentales n'est pas suffisante pour en extraire les sections efficaces doublement différentielles en angle solide et en énergie d'émission. Aussi, pour une étude quantitative de la distribution en angle d'émission θ des électrons émis, nous présentons ici les sections efficaces $\sigma_{\Delta\theta}(\theta)$ d'émission d'électrons intégrées sur différents intervalles d'angles $[\theta - \Delta\theta/2; \theta + \Delta\theta/2]$ de largeur $\Delta\theta$, définies par la relation:

$$\sigma_{\Delta\theta}(\theta) = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \int_0^{2\pi} \int_{\theta-\Delta\theta/2}^{\theta+\Delta\theta/2} \frac{d\sigma(E, \theta)}{dE d\Omega} \sin(\theta) d\theta d\varphi dE = 2\pi \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \int_{\theta-\Delta\theta/2}^{\theta+\Delta\theta/2} \frac{d\sigma(E, \theta)}{dE d\Omega} \sin(\theta) d\theta dE \quad (4.3)$$

avec φ l'angle azimutal (défini dans un plan perpendiculaire à l'axe du faisceau projectile), $\Delta\theta = 20^\circ$ et θ les angles de 30° à 150° par pas de 20° , $E_{\min} = 0,5$ eV et $E_{\max} = 200$ eV. Ainsi, la figure 4.5b qui représente la distribution angulaire des électrons d'énergie comprise entre 0,5 eV et 200 eV, obtenue en moyennant les distributions angulaires pour toutes les tensions d'extraction V_{ext} entre 500 V et 4000 V, montre qu'ils sont préférentiellement émis vers l'avant et plus particulièrement à un angle $\theta = 70^\circ$. Les intervalles $0^\circ - 20^\circ$ et $160^\circ - 180^\circ$ ne sont pas représentés car la trace des électrons émis par interaction entre les ions projectiles et le gaz résiduel est présente dans ces deux gammes d'angles, ce qui fausse les résultats.

Afin de mettre en évidence la corrélation entre angle d'émission et énergie d'émission, notamment pour identifier les différents processus d'émission d'électrons (section 1.2.2), il est utile de tracer pour différents domaines angulaires $\Delta\theta$, la distribution en énergie des électrons émis. Sur la figure 4.6a, sont tracées les sections efficaces absolues simplement différentielles d'émission d'électrons de l'adénine pour trois intervalles d'angles d'émission θ : $[40^\circ - 60^\circ]$, $[80^\circ - 100^\circ]$ et $[120^\circ - 140^\circ]$.

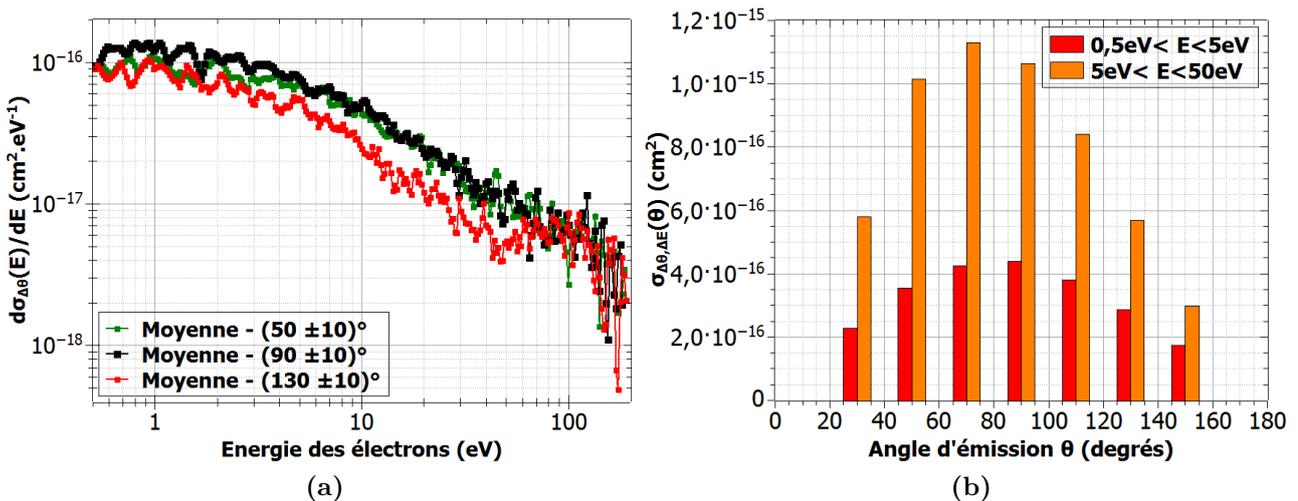


Figure 4.6 – Figure 4.6a : Sections efficaces absolues simplement différentielles $d\sigma_{\Delta\theta}(E)/dE$ d'émission d'électrons par le système $\text{C}^{4+} + \text{adénine}$. **Figure 4.6b :** Sections efficaces $\sigma_{\Delta\theta, \Delta E}$ en cm^2 montrant la répartition angulaire des électrons émis par le système $\text{C}^{4+} + \text{adénine}$ pour différentes gammes en énergie.

Dans la gamme $[5 - 50]\text{eV}$, les sections efficaces d'émission électronique dans les intervalles $[40^\circ - 60^\circ]$ et $[80^\circ - 100^\circ]$ sont comparables et supérieures à celle observée dans l'intervalle

[120° – 140°], ce qui est caractéristique d'une émission vers l'avant. À basse énergie (< 5 eV), en revanche, la section efficace des électrons émis dans l'intervalle [80° – 100°] est légèrement supérieure, tandis qu'elle est pratiquement la même dans les domaines [40° – 60°] et [120° – 140°]. Cette observation suggère une émission (quasi-) symétrique par rapport à 90° dans le cas des électrons d'énergies inférieures à 5 eV.

Finalement, en intégrant ces sections efficaces simplement différentielles sur un certain intervalle d'énergie ΔE plutôt que sur l'ensemble de la gamme étudiée, il est possible de tracer la répartition angulaire des électrons émis par l'adénine pour différentes gammes d'énergies $\sigma_{\Delta\theta,\Delta E}$ (figure 4.6b). On distingue deux gammes en énergie: $0,5 < E < 5$ eV et $5 \text{ eV} < E < 50$ eV. Au delà de 50 eV, la statistique devient insuffisante pour une telle représentation des résultats. Cette représentation révèle que les sections efficaces totales partielles d'émission d'électrons dont l'énergie est inférieure à 5 eV sont (quasi-) symétriques par rapport à l'angle $\theta \simeq 90^\circ$. De plus, d'après l'équation 4.3, le fait que les sections efficaces $\sigma_{\Delta\theta,\Delta E}$ obtenues à 30° et 150° soient chacune un facteur 2 inférieures à celle obtenue à 90° suggère que la section efficace doublement différentielle $\frac{d^2\sigma(E, \theta)}{dE d\Omega}$ (ou du moins la section efficace simplement différentielle $\int_{0, \text{eV}}^{50 \text{ eV}} \frac{d^2\sigma(E, \theta)}{dE d\Omega} dE$) dépend faiblement de l'angle d'émission θ et que l'émission des électrons d'énergie inférieure à 5 eV est quasi-isotrope. Ceci correspond à des collisions douces (émission à 1 centre) pour lesquelles l'électron éjecté ressent faiblement le potentiel de l'ion projectile, de sorte que l'émission électronique s'effectue de façon quasi-isotrope [17]. Pour la gamme d'énergies $5 \text{ eV} < E < 50$ eV, la section efficace maximale se situe vers 70°. Cette rupture de symétrie par rapport à $\theta = 90^\circ$ en faveur des angles d'émission vers l'avant est caractéristique d'une émission à deux centres : l'électron éjecté est attiré vers l'avant par le champ coulombien de l'ion incident [18].

Dans la publication [33] qui présente les sections efficaces absolues doublement différentielles d'émission d'électrons d'une molécule d'adénine par impact d'ions C^{6+} d'énergie 42,6 MeV (expérience et théorie), la dépendance angulaire de l'émission d'électrons est étudiée dans un domaine d'énergies des électrons comprises entre 1 eV et 180 eV (par la détermination des sections efficaces doublement différentielles). Ainsi, Bhattacharjee et al. montrent deux résultats en accord avec les observations expérimentales du système C^{4+} (11,76 MeV) + Adénine étudié dans cette thèse. D'une part, ils montrent qu'en dessous d'une dizaine d'électron-Volts, les électrons sont émis de manière quasi-isotrope. D'autre part, ils montrent que, lorsque l'énergie des électrons augmente, une résonance apparaît pour un angle d'émission entre 70° et 80°, caractéristique d'une émission vers l'avant gouvernée par un processus à deux centres, où non seulement le champ électrique créé par la cible, mais aussi celui de l'ion projectile, agissent significativement sur la trajectoire des électrons émis.

Uracile

Une analyse similaire a été menée pour le système de collision C^{4+} (11,76 MeV) + uracile. Elle conduit à des conclusions assez comparables à celles de l'adénine. La figure 4.7 montre la dépendance angulaire des électrons émis par le système C^{4+} + uracile pour les deux gammes en énergie $1 \text{ eV} < E < 5$ eV et $5 \text{ eV} < E < 50$ eV.

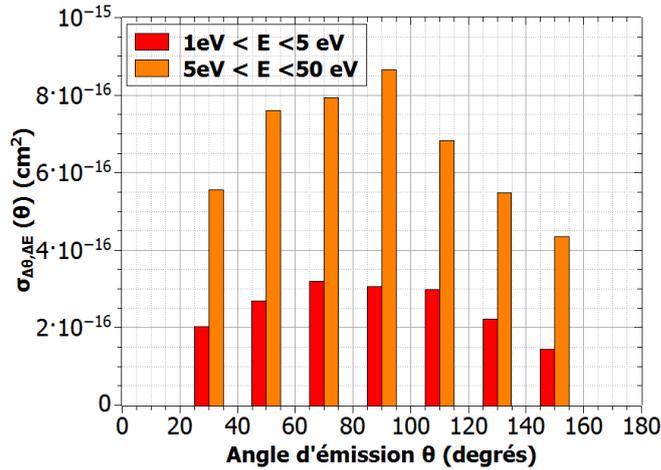


Figure 4.7 – Sections efficaces $\sigma_{\Delta\theta, \Delta E}$ en cm^2 montrant la répartition angulaire des électrons émis par le système C^{4+} + uracile pour différentes gammes en énergie.

Contrairement au cas de l'adénine, en dessous de 5 eV, l'émission électronique par l'uracile présente une légère dissymétrie par rapport à $\theta = 90^\circ$ en faveur des angles vers l'avant (cependant, les incertitudes expérimentales de l'ordre de 30 % ne permettent pas de conclusion définitive quant à cette observation). Cette dissymétrie s'accroît aux énergies supérieures à 5 eV, de sorte que les électrons sont préférentiellement émis vers l'avant ($\theta < 90^\circ$). Ce phénomène est également observé par Tribedi et al. [130] qui étudient la dépendance en angle et en énergie des sections efficaces d'émission d'électrons de l'uracile par impact d'ions C^{6+} de 3,5 MeV/u.

Tous les résultats présentés dans cette section concernant les premières expériences menées avec le dispositif IMAGERI sur la ligne IRRSUD sont donc encourageants puisqu'ils sont en accord avec différentes études théoriques et expérimentales. Ils peuvent cependant être affinés, notamment en déterminant avec plus de précision les différents termes intervenant dans l'évaluation des sections efficaces totales et différentielles et en améliorant la statistique pour les électrons d'énergie supérieure à 50 eV.

4.3 Analyse de l'émission d'électrons par le système de collision N^{4+} (60 keV) + uracile

Les expériences menées sur la plateforme ARIBE ont permis de déterminer les sections efficaces absolues d'émission d'électrons de l'uracile par impact d'ions N^{4+} d'énergie 60 keV (initialement, un faisceau d'ions C^{4+} était souhaité, mais, au moment des expériences, il a été impossible d'obtenir un tel faisceau). Des tensions d'extraction allant de 200 V à 3200 V ont été utilisées. Ainsi, les électrons analysés possèdent des énergies comprises entre 0,2 eV et 155 eV. Pendant les acquisitions, l'intensité du faisceau projectile était de l'ordre de la centaine de pA pour un nombre d'ions projectile estimé à $N_{\text{proj}} = (1,48 \pm 0,15) \cdot 10^8$ ions/seconde. La densité moyenne du faisceau d'uracile était quant à elle $\rho_{\text{cible}} = (1,77 \pm 0,3) \cdot 10^9$ molécules/ cm^{-3} . Pour l'analyse des données, la longueur de la zone d'interaction a également été fixée à $(5,4 \pm 1)$ mm.

Avec ces paramètres, la section efficace totale d'émission d'électrons par une molécule d'uracile après impact d'ions N^{4+} mesurée pour une tension d'extraction $V_{\text{ext}} = 3200$ V, donc entre 0 eV et 155 eV, vaut $\sigma_{0-155\text{ eV}} = (9,63 \pm 2,9) \cdot 10^{-15}$ cm^2 .

Les sections efficaces absolues simplement différentielles en énergie d'émission des électrons de l'uracile pour des tensions d'extraction entre 200 V et 3200 V sont représentées sur la figure 4.8. La section efficace moyenne est également représentée. Il est possible de remarquer que la dépendance en énergie de ces sections efficaces est très similaire aux résultats obtenus avec un ion projectile de plus grande énergie (C^{4+} d'énergie 11,76 MeV).

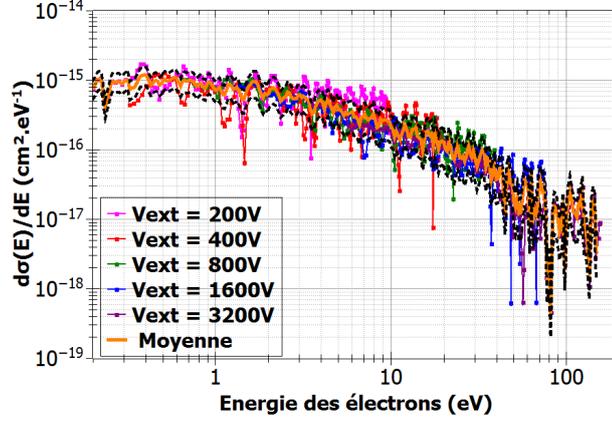


Figure 4.8 – Sections efficaces absolues simplement différentielles en énergie d'émission des électrons de l'uracile par impact d'ions N^{4+} d'énergie 60 keV. Les tensions d'extraction utilisées sont 200 V, 400 V, 800 V, 1600 V, 3200 V.

Comme dans la section 4.2.3, en intégrant la courbe moyenne de section efficace simplement différentielle en énergie (figure 4.8) entre $E_{\min} = 1$ eV et $E_{\max} = 155$ eV, afin de pouvoir comparer la valeur trouvée à celles d'autres études, il vient :

$$\sigma_{1-155 \text{ eV}}(\text{Uracile}) = \int_{1 \text{ eV}}^{155 \text{ eV}} \frac{d\sigma(E)}{dE} dE = (8,7 \pm 2,5) \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2 \quad (4.4)$$

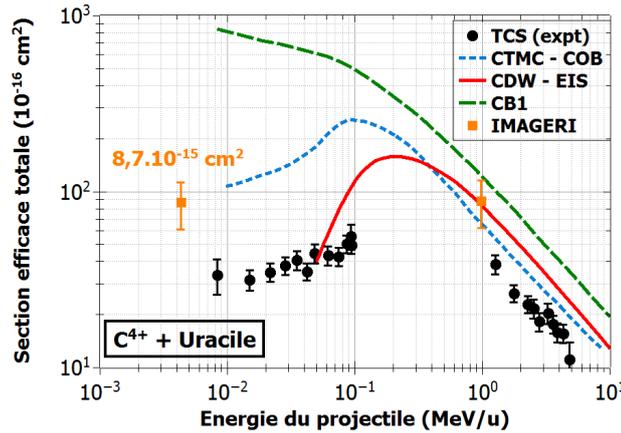


Figure 4.9 – Sections efficaces totales absolues d'émission d'électrons de l'uracile d'ions C^{4+} . Les points expérimentaux et les différents modèles théoriques sont issus de la publication [137]. Les sections efficaces totales déterminées avec le dispositif IMAGERI pour des ions C^{4+} (11,76 MeV) et N^{4+} (60 keV) sont représentées par des carrés oranges.

À notre connaissance, il n'existe pas d'étude similaire avec laquelle comparer directement ce résultat. Des études existent pour des protons d'énergies inférieures à 100 keV [32]. Ces projectiles sont cependant trop différents de l'azote (nature et état de charge). À ces vitesses,

l'approximation $\sigma \sim q^2$ (avec q la charge de l'ion projectile) n'est pas valide. Nos résultats expérimentaux sont comparés au système de collision ($C^{4+} + \text{uracile}$) étudié expérimentalement et modélisé théoriquement (par Tribedi et al. [137]) en raison de l'état de charge similaire des ions C^{4+} et des ions N^{4+} . La figure 4.9 est la même que la figure 4.3, mais la valeur de la section efficace absolue totale d'émission d'électrons de l'uracile par impact d'ions N^{4+} à 60 keV (carré orange) a été rajoutée.

En extrapolant vers les énergies plus basses les points expérimentaux et les résultats théoriques (modèle CMTC) obtenus par Tribedi et al. (figure 4.9), la section efficace obtenue expérimentalement sur la plateforme ARIBE lors de ces travaux de thèse apparaît plus grande d'un facteur 2 environ par rapport aux résultats de Tribedi et al. Elle semble cependant suivre une tendance proche du modèle théorique CTMC-COB.

La dépendance angulaire de l'émission d'électrons par l'uracile après impact d'ions N^{4+} d'énergie 60 keV a également été étudiée. Les sections efficaces d'émission d'électrons sont déterminées pour certains intervalles $[\theta - \Delta\theta/2; \theta + \Delta\theta/2]$ d'angles d'émission, avec $\Delta\theta = 20^\circ$ et θ les angles entre 30° et 150° par pas de 20° . Les résultats sont visibles sur la figure 4.10. Pour des électrons de basse énergie, ces résultats montrent une dépendance angulaire analogue à celle observée dans le cas de la collision $C^{4+}(11,76 \text{ MeV}) + \text{uracile}$, ce qui suggère une émission d'électrons légèrement anisotrope (en faveur des angles vers l'avant) en dessous de 5 eV. Le fait que cette anisotropie soit faiblement marquée implique que le processus à un centre est prépondérant dans le cas de l'émission électronique aux énergies inférieures à 5 eV. En revanche, pour des énergies d'émission supérieures à 5 eV, les sections efficaces reportées sur la figure 4.10 dépendent faiblement de l'angle θ et suggèrent, d'après la relation 4.3, que la section efficace différentielle $\frac{d^2\sigma}{dE d\Omega}$ présente un minimum d'émission à $\theta = 90^\circ$. Pour s'assurer que ce résultat inattendu ne soit pas un artéfact expérimental, l'expérience devra être répétée. Par la même occasion, il conviendra d'obtenir des données avec une meilleure statistique.

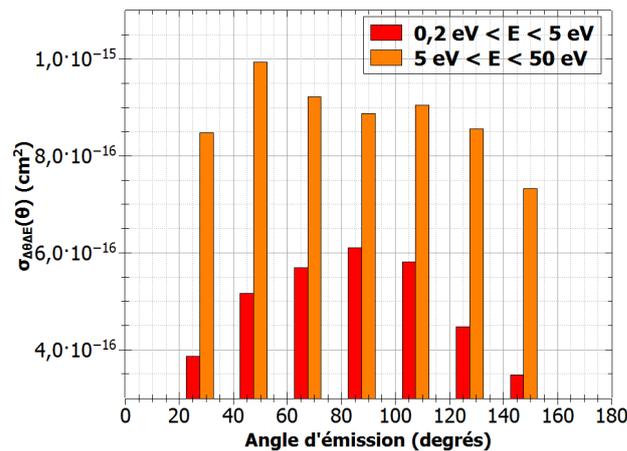


Figure 4.10 – Sections efficaces $\sigma_{\Delta\theta, \Delta E}$ en cm^2 montrant les électrons émis par l'uracile après impact d'ions N^{4+} d'énergie 60 keV.

4.4 Conclusion et perspectives

Les résultats présentés dans ce chapitre sont des résultats préliminaires : il s'agit des premières valeurs de sections efficaces absolues déterminées avec le dispositif expérimental IMAGERI. L'objet de ces premières mesures est de valider ce nouveau dispositif. Même s'il subsiste

des incertitudes non négligeables sur les différentes grandeurs permettant de déterminer les sections efficaces absolues, les valeurs obtenues dans le cadre de cette thèse sont du même ordre de grandeur (à un facteur 2 près) que les valeurs expérimentales obtenues par Tribedi et al. et sont en bon accord avec les résultats théoriques obtenus au moyen de différents modèles. Ainsi, les premières valeurs de sections efficaces déterminées dans cette thèse sont prometteuses. Cependant, des améliorations sont à envisager, notamment en ce qui concerne le système de détection, la détermination de la densité de la cible ρ_{cible} et de l'efficacité de détection ϵ , afin de réduire les incertitudes liées à la détermination des sections efficaces absolues.

Dans le futur, il sera nécessaire, dans un premier temps, de refaire des expériences sur la ligne IRRSUD afin d'investiguer l'émission d'électrons par des biomolécules à des énergies inférieures à 1 eV¹. En effet, les résultats présentés dans ce chapitre montrent que les sections efficaces d'émission d'électrons sont dominées par les électrons de très basses énergies inférieures à 1 eV. Cette tendance est confirmée par l'image du détecteur présentée sur la figure 4.5a qui montre une haute densité d'électrons dans les quelques pixels autour du centre du détecteur. Pour investiguer la gamme en énergie en dessous de 1 eV, il sera nécessaire d'utiliser des tensions d'extractions très faibles, de l'ordre de quelques dizaines de Volts.

Pour les applications en hadronthérapie, les énergies délivrées sur la ligne IRRSUD s'avèrent particulièrement pertinentes puisqu'elles permettent de se placer dans une gamme où l'énergie déposée dans le pic de Bragg est maximale (figure 4.11). Les plateformes ARIBE et SME (~ 10 MeV/u), bien que moins utiles pour des applications pratiques, permettent d'étudier les aspects plus fondamentaux des processus de collision entre les ions projectiles et les molécules (ou les atomes ou les nanoparticules). Ainsi, la ligne SME pourrait être utilisée afin de déterminer les sections efficaces d'émission d'électrons par impact d'ions possédant une énergie de l'ordre de la centaine de MeV.

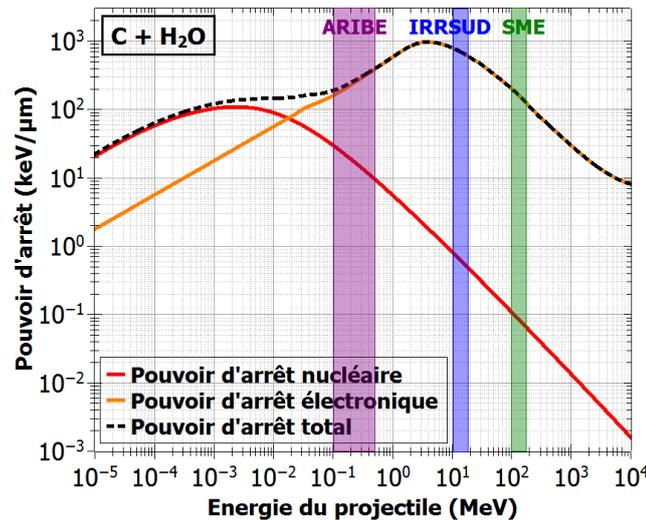


Figure 4.11 – Pouvoir d'arrêt électronique, nucléaire et total d'ions carbone dans de l'eau pour des énergies incidentes comprises entre 10 eV et 10 GeV. Les courbes ont été obtenues par des simulations sur le logiciel SRIM.

Les travaux de Mendez et al. [140] ont montré que, pour des énergies d'ions projectiles en dessous de 5 MeV, les sections efficaces d'émission d'électrons ne sont pas proportionnelles à q^2

1. Ces expériences étaient prévues mais n'ont pas pu être menées à cause du COVID19

(figure 4.4) . L'influence de l'état de charge q de l'ion projectile devra également être investiguée pour des faibles énergies d'impact. Ainsi, la plateforme ARIBE, qui délivre des ions d'énergies comprises entre 10 keV et 500 keV, s'avère adéquate pour étudier cette dépendance pour les basses énergies. Des études en fonction de la nature de l'ion projectile peuvent également être envisagées.

Chapitre 5

Conclusions et perspectives

Sommaire

5.1 Développement du dispositif expérimental IMAGERI : caractérisation et validation	143
5.2 Développement de la source de nanoparticules métalliques	144
5.2.1 Description de la source de nanoparticules métalliques	145
5.2.2 Études préliminaires menées avec la source de nanoparticules	147

La compréhension des interactions des rayonnements avec la matière biologique est un enjeu majeur en physique fondamentale car elle permet de mettre en lumière les processus et mécanismes d'interaction. Une des applications de l'étude de ces interactions est la médecine et plus particulièrement l'hadronthérapie, qui permet, via l'irradiation de cellules tumorales par un faisceau d'ions, de cibler précisément la tumeur et d'y déposer une forte dose afin de la détruire. Des études préliminaires ont montré que l'utilisation de radiosensibilisants directement fixés sur la tumeur comme des nanoparticules métalliques peuvent être utilisées afin d'augmenter le dépôt de dose via l'émission d'électrons secondaires par les nanoparticules. Le dispositif expérimental associé au projet IMAGERI est développé depuis 2016 au CIMAP, dans l'optique de quantifier l'émission d'électrons par des nanoparticules métalliques via la détermination des sections efficaces absolues d'émission d'électrons et d'identifier les processus physiques responsables de l'augmentation du dépôt de dose par les radiosensibilisants.

Le travail réalisé pendant cette thèse a été, dans sa quasi-totalité, centré autour de la caractérisation et de la validation du dispositif expérimental IMAGERI. Pour cela, des faisceaux cibles atomiques simples (jet supersonique d'argon et de krypton) ainsi qu'un faisceau de biomolécules ont été utilisés. Ainsi, ce chapitre est articulé en deux sections: la première fait le point sur la caractérisation et la validation du dispositif via les premiers résultats obtenus lors des campagnes d'expériences. La deuxième section présente l'avancement des travaux effectués avec la source de nanoparticules métalliques.

5.1 Développement du dispositif expérimental IMAGERI : caractérisation et validation

Le dispositif IMAGERI a été conçu afin de permettre la mesure des sections efficaces absolues d'émission d'électrons par des cibles atomiques ou moléculaires (ou par des nanoparticules)

bombardées par des ions. Dans ce travail, les électrons sont émis suite aux collisions entre un faisceau d'ions projectiles et un faisceau cible atomique ou moléculaire. Les faisceaux sont produits de manière continue et se croisent orthogonalement au niveau de la zone d'interaction. Le spectromètre VMI permet alors d'extraire et de focaliser sur le détecteur tous les électrons possédant des énergies pouvant aller jusqu'à 200 eV et émis dans un angle solide de 4π stéradians via des tensions spécifiques appliquées sur les différentes électrodes. L'image du détecteur enregistrée par la caméra est ensuite normalisée par le taux de comptage en sortie des galettes à micro-canaux. La transformée inverse d'Abel de cette image permet ensuite de déterminer la distribution en énergie des électrons à partir de leur distribution spatiale sur le plan en deux dimensions du détecteur. A partir de cette distribution, et en connaissant les paramètres suivants:

- ϵ : l'efficacité de détection du détecteur,
- N_{proj} : le nombre d'ions projectiles par seconde déterminé à partir de l'intensité I_{proj} ,
- l_{ZI} : la longueur de la zone d'interaction,
- ρ_{cible} : la densité du faisceau de biomolécules cible,

il est possible de mesurer les sections efficaces absolues totales et différentielles (en énergie et en angle) d'émission des électrons. La caractérisation du dispositif, détaillée dans le chapitre 3, a eu pour principal objectif l'évaluation de ces paramètres et leur incertitude associée. Des améliorations sur le dispositif sont à prévoir afin de déterminer précisément l'efficacité de détection ϵ et la densité du faisceau cible ρ_{cible} , qui sont actuellement les deux paramètres les plus critiques. Cependant, les valeurs de sections efficaces d'émission d'électrons présentées dans ce manuscrit ont montré que la valeur de ces paramètres était acceptable. En effet, les expériences menées sur la ligne IRRSUD avec le faisceau projectile d'ions carbone C^{4+} d'énergie de 11,76 MeV ont permis de mesurer les premières valeurs de sections efficaces absolues d'émission d'électrons pour des molécules d'adénine et d'uracile. Ces résultats préliminaires présentés dans ces travaux de thèse sont satisfaisants puisqu'ils sont du même ordre de grandeur que la plupart des modèles théoriques et des résultats expérimentaux.

Initialement, l'étude de l'émission d'électrons par les biomolécules était prévue uniquement afin de valider le dispositif expérimental. Dans le cadre du projet IMAGERI, l'objectif principal est l'étude des nanoparticules métalliques et notamment le développement de la source de nanoparticules métalliques qui fait l'objet de la section suivante. Cependant, le travail avec les molécules d'intérêt biologique n'est pas terminé. En effet, l'étude détaillée de l'émission d'électrons de très basses énergies, inférieures à 1 eV s'avère nécessaire du fait qu'ils représentent une fraction significative des électrons émis. De plus, l'étude de l'influence de l'énergie et de la charge du faisceau projectile sur les sections efficaces d'émission d'électrons est également d'un intérêt fondamental. En dehors de ces aspects fondamentaux qui renseignent sur les processus d'émission des électrons par des molécules, l'uracile et l'adénine peuvent être utilisées afin d'améliorer la précision des mesures sur le dispositif en comparant les valeurs de sections efficaces avec celles obtenues dans le cadre de travaux similaires.

5.2 Développement de la source de nanoparticules métalliques

Pour l'application à l'hadronthérapie, il serait utile de produire des faisceaux de nanoparticules de tailles comprises entre 1 nm et 5 nm. En effet, pour ces tailles, les nanoparticules

peuvent interagir facilement avec des molécules d'intérêt biologique comme des enzymes, des récepteurs ou encore des anticorps et plus généralement des structures cellulaires. En revanche, la mise en phase gazeuse de nanoparticules de diamètres inférieurs à 10 nm est très difficile. Dans un premier temps seront étudiées des nanoparticules de l'ordre de quelques dizaines de nm puisque le but du projet IMAGERI est également de comprendre les mécanismes fondamentaux impliqués dans l'émission d'électrons par des nanoparticules métalliques suite à l'impact d'ions. La source de nanoparticules décrite dans la partie suivante a donc été conçue pour une transmission optimale de particules entre 60 nm et 100 nm, mais elle sera modifiable dans le futur pour produire un faisceau de nanoparticules de plus petite taille.

5.2.1 Description de la source de nanoparticules métalliques

Afin de produire un faisceau de nanoparticules métalliques, un jet d'aérosol produit par un nébuliseur couplé à un système de lentilles aérodynamiques a été développé pendant cette thèse. Le nébuliseur, également appelé atomiseur, est un flacon dans lequel les nanoparticules sont diluées avec un solvant de type alcool ou aqueux [151, 152]. Dans différentes expériences utilisant des nanoparticules métalliques comme l'or ou l'argent, les nanoparticules sont diluées avec le solvant pour atteindre des concentrations massiques de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de $\mu\text{g/L}$ [152, 153] pour une densité particulaire de l'ordre de quelques 10^6 particules/cm³ [154] (en comparaison, la densité particulaire d'un jet effusif atomique se situe autour de 10^{10} particules/cm³). Un gaz porteur est ensuite injecté dans le nébuliseur pour que la solution contenant les nanoparticules soit aspirée vers le dispositif via le différentiel de pression ainsi créé entre le nébuliseur et l'entrée du système de lentilles aérodynamiques. Les gaz porteurs les plus communément utilisés sont l'air, le diazote ou des gaz rares [154]. La solution est ainsi extraite du nébuliseur sous forme de micro-gouttelettes de solvant contenant les nanoparticules vers un dessiccateur constitué de deux cylindres. Les micro-gouttelettes circulent dans le cylindre interne, le cylindre externe étant quant à lui rempli de billes de gel de silice dont le rôle est d'absorber l'humidité, c'est-à-dire de débarrasser les nanoparticules de leur solvant aqueux. Les nanoparticules métalliques sont ensuite poussées par le gaz porteur jusqu'au système de lentilles aérodynamiques. L'objectif d'un tel système est d'arriver à collimater les nanoparticules le long de l'axe de propagation du faisceau. Pour cela, il est composé de trois parties: une buse d'injection, une série de lentilles de focalisation et une buse accélératrice. Plus précisément, le diamètre de la buse d'injection fixe le flux de masse capable de traverser le système. Les lentilles focalisantes sont une série de diaphragmes de diamètres de plus en plus petits séparés par des cellules de longueur variable (mais de diamètre identique en général). Les paramètres géométriques de cette structure (nombre et diamètre des diaphragmes et nombre et longueur des cellules séparatrices) permettent de séparer les nanoparticules du gaz porteur et d'ajuster les propriétés du jet de nanoparticules afin qu'il soit collimaté à sa sortie [155, 156]. La buse accélératrice sert simplement à réaccélérer les nanoparticules en sortie.

Sur le dispositif expérimental, les différents éléments constituant la source de nanoparticules métalliques, à savoir, le nébuliseur (constant output nebulizer, model 3076 [157]), le dessiccateur (diffusion dryer [158]) et le système de lentilles aérodynamiques (conçu au laboratoire) sont raccordés entre eux comme indiqué sur la figure 5.1. Le système de lentilles aérodynamiques est raccordé au dispositif à la place du jet supersonique ou du four.

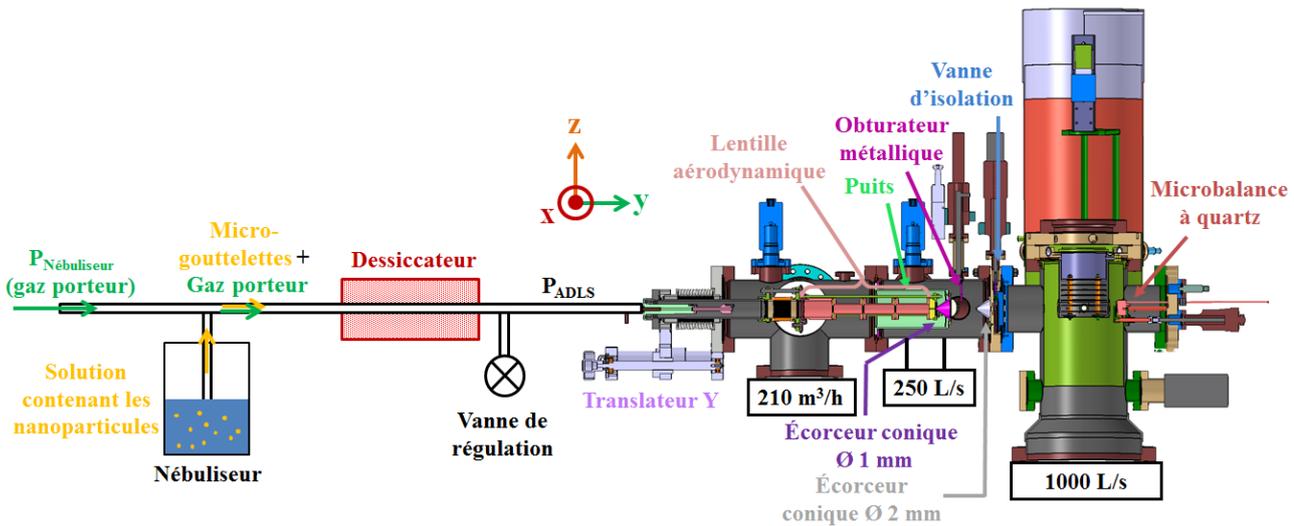


Figure 5.1 – Schéma de la partie cible du dispositif expérimental IMAGERI lorsque le système de lentilles aérodynamiques est raccordé au dispositif.

Afin d'aspirer les micro-gouttelettes de solvant contenant les nanoparticules, un gaz porteur d'hélium à une pression $P_{\text{Nébuliseur}}$ située entre 1,7 bar et 2,4 bar est utilisé. Une différence de pression $\Delta P = P_{\text{Nébuliseur}} - P_{\text{ADLS}}$ entre le nébuliseur et le système de lentilles d'au moins 0,6 bar est nécessaire pour que l'aérosol parvienne jusqu'au dispositif. Le système de lentilles aérodynamiques a été conçu pour une pression d'entrée P_{ADLS} de l'ordre du bar. Une vanne micro-fuite est utilisée pour réguler le flux de gaz. La première chambre, dans laquelle se trouve le système de lentilles est, pour le moment, pompée par une pompe ROOTS de capacité $210 \text{ m}^3/\text{h}$ couplée à une pompe primaire (Leybold Scrollvac $30 \text{ m}^3/\text{h}$). La pression est de l'ordre de $3 \cdot 10^{-1} \text{ mbar}$ pour $P_{\text{ADLS}} = 1,1 \text{ bar}$. Comme dans le cas du four ou du jet supersonique, la chambre suivante est reliée à une pompe turbomoléculaire Leybold 250 L/s . La pression dans la première chambre varie entre $6 \cdot 10^{-4} \text{ mbar}$ et $1 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$ selon la distance entre la buse d'accélération du système de lentilles et le premier écorceur (écorceur hyperbolique de diamètre 1 mm). Cette distance est ajustable à l'aide du translateur sur lequel est monté le système de lentilles et elle permet d'optimiser le flux de nanoparticules (section 5.2.2). Les dimensions du système de lentilles aérodynamiques et plus particulièrement le nombre et le diamètre de chaque diaphragme ainsi que la longueur des différentes cellules ont été déterminées grâce à un simulateur développé par X. Wang et P.H. McMurry [159, 160]. En renseignant certaines informations sur le gaz porteur (masse, libre parcours moyen, viscosité), les nanoparticules utilisées (densité, taille minimale et maximale) et le système de lentilles (pression avant et après le système, température, nombre de diaphragmes souhaité), le simulateur est capable de déterminer, entre autres, le diamètre des diaphragmes, la longueur des cellules, la capacité de pompage, la vitesse du jet, le coefficient de transmission entre chaque diaphragme, et la taille du jet à la sortie du système de lentilles. Ainsi, la géométrie du système de lentilles retenue pour le projet IMAGERI est représentée sur la figure 5.2. D'après les calculs de X. Wang et P.H. McMurry, un faisceau de nanoparticules de diamètres compris entre 60 nm et 100 nm possède une transmission dans le système de lentilles proche de 100 % et un diamètre théorique au niveau de la zone d'interaction d'à peine 1 mm. Pour les nanoparticules plus petites (10 nm - 30 nm), la transmission reste correcte (supérieure à 90 %) mais la capacité du système de lentilles aérodynamiques à collimater le faisceau est moindre et, par exemple, un faisceau de nanoparticules de 10 nm aurait un diamètre de 5 mm au niveau de la zone d'interaction (sans

considérer les deux écorceurs du dispositif IMAGERI).

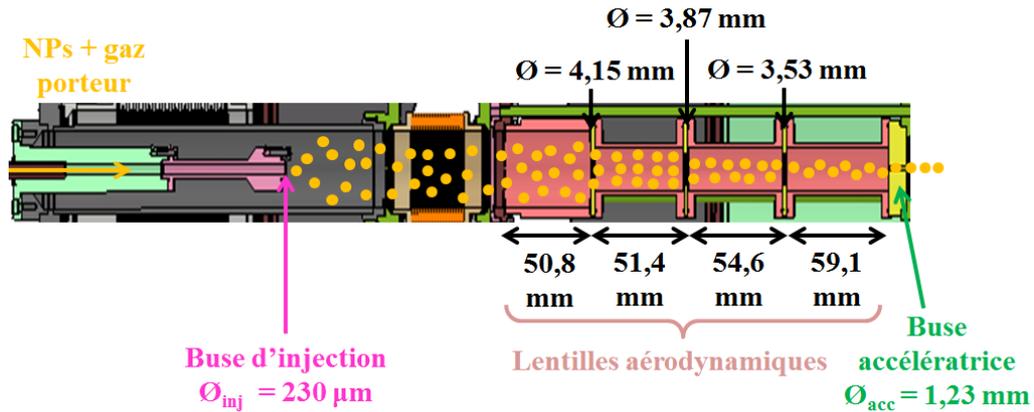


Figure 5.2 – Schéma du système de lentilles aérodynamiques utilisé sur le dispositif IMAGERI.

5.2.2 Études préliminaires menées avec la source de nanoparticules

Des études préliminaires ont pu être entreprises avec la source de nanoparticules à la fin de cette thèse. Dans un premier temps, pour caractériser la source, il a été décidé d'utiliser une solution aqueuse contenant de l'uracile dilué dans de l'eau ultra-pure de concentration massique égale à 1 g/L. Le spectromètre de masse a été installé sur le dispositif à la place de la micro-balance afin de pouvoir suivre l'évolution simultanée du signal de l'uracile et du gaz porteur. Il est important de noter que le spectromètre de masse n'est pas capable de détecter les nanoparticules métalliques car elles possèdent une masse trop élevée pour être analysées. C'est pour cette raison que l'étude préliminaire a été faite avec une solution d'uracile. La figure 5.3 représente l'évolution des quantités d'uracile et de gaz porteur (hélium) en fonction du temps lorsque l'aérosol est injecté à travers le système de lentilles aérodynamiques.

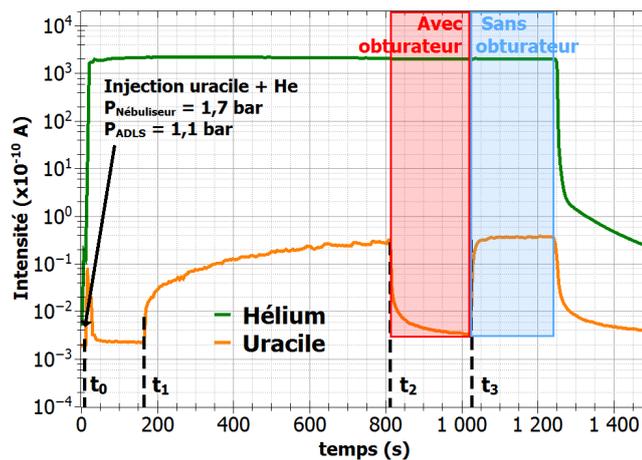


Figure 5.3 – Évolution des différentes quantités du gaz porteur d'hélium et d'uracile en fonction du temps en utilisant la source de nanoparticules.

Ainsi, à l'instant t_0 , l'uracile est injectée dans le dispositif avec le gaz porteur d'hélium. Le signal d'hélium augmente instantanément d'un facteur 10^5 et reste stable, tandis que le signal d'uracile n'apparaît qu'à l'instant t_1 (temps nécessaire pour que les molécules d'uraciles soient aspirées du nébuliseur et traversent tout le système) et environ 10 minutes sont nécessaires

pour que le signal se stabilise dans le temps. À l'instant t_2 , l'obturateur présent entre les deux écorceurs (figure 5.1) est mis sur l'axe de propagation du faisceau d'uracile: le signal d'hélium reste constant tandis que le signal d'uracile diminue d'un facteur 10 en quelques secondes. Il faut en revanche attendre deux à trois minutes pour une diminution d'un facteur 100. Lorsque l'obturateur métallique est retiré à l'instant t_3 , le signal d'uracile revient quasiment instantanément à sa valeur initiale avant la mise en place de l'obturateur. Cette inertie existante lors de la mise en place de l'obturateur doit être prise en compte lors d'acquisitions où les signaux d'électrons avec et sans cible sont mesurés en alternance.

Comme dans le cas du jet supersonique, il est utile de déterminer la distance optimale entre la sortie du système de lentilles et le premier écorceur. Ainsi, la figure 5.4a représente le signal d'uracile enregistré par le spectromètre de masse pour $\Delta P = 0,6$ bar avec $P_{\text{Nébuliseur}} = 1,7$ bar et $P_{\text{ADLS}} = 1,1$ bar. Il a été trouvé que la distance optimale est égale à 7,5 mm.

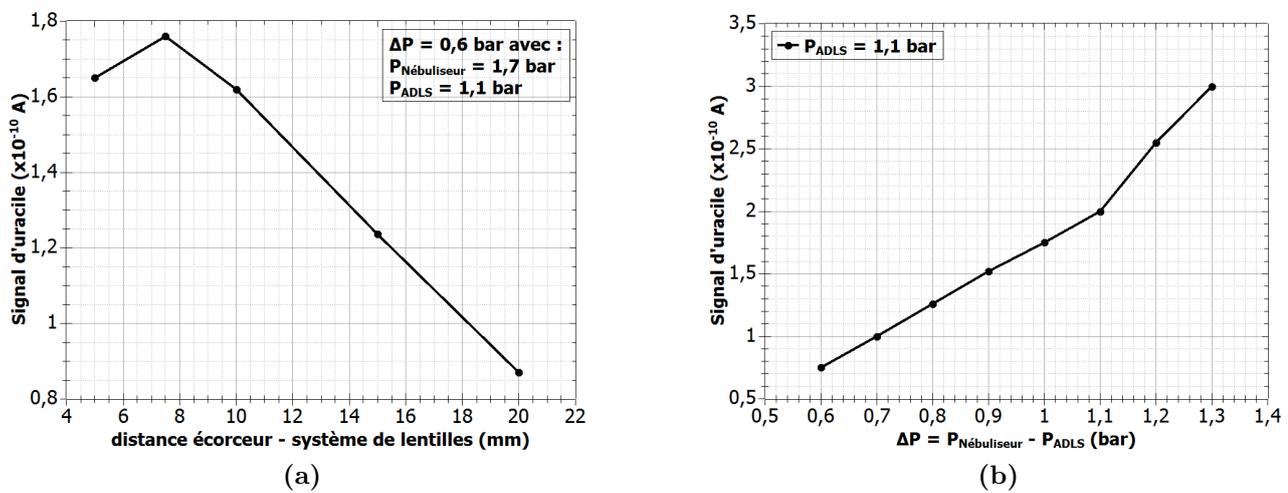


Figure 5.4 – Évolution du signal d'uracile (simplement ionisé) mesuré par le spectromètre de masse en fonction de la distance entre le système de lentilles aérodynamiques et le premier écorceur (figure 5.4a) et de la différence de pression $\Delta P = P_{\text{Nébuliseur}} - P_{\text{ADLS}}$ entre le nébuliseur et le système de lentilles (figure 5.4b).

Dans la description de la source de nanoparticules, l'existence d'une différence de pression minimale ΔP entre le nébuliseur et le système de lentilles aérodynamiques égale à 0,6 bar pour que la solution contenue dans le nébuliseur soit poussée vers le dispositif a déjà été évoquée. La figure 5.4b représente l'évolution du signal d'uracile enregistré par le spectromètre de masse en fonction de ΔP en gardant $P_{\text{ADLS}} = 1,1$ bar et une distance entre le système de lentilles et le premier écorceur fixée à 10 mm. Ainsi, lorsque le différentiel de pression augmente, le signal d'uracile sur le spectromètre de masse augmente également : il est multiplié par un facteur 4 entre $\Delta P = 0,6$ et $\Delta P = 1,3$. D'une façon plus générale, cette figure montre qu'une différence de pression ΔP élevée entre le nébuliseur et le système de lentilles aérodynamiques permet de transporter plus de micro-gouttelettes et donc d'augmenter le signal dans le dispositif expérimental.

Ces premiers tests ont permis de se familiariser avec la source de nanoparticules et de déterminer notamment les pressions optimales permettant d'amener la solution contenue dans le nébuliseur jusqu'au système de lentilles aérodynamiques. Les biomolécules n'ont pas vocation à être utilisées avec cette source, d'autant plus que le signal d'uracile sur le spectromètre de

masse (entre 1.10^{-10} A et 2.10^{-10} A) est similaire au signal obtenu avec le four (figure 3.13a), mais est pollué par la présence de la grande quantité de gaz porteur (supérieure d'un facteur 10^5). La caractérisation de la source de nanoparticules va se poursuivre au-delà de cette thèse. Dans un premier temps, la lampe UV ou le canon à ions sera raccordé au dispositif afin de mesurer les électrons émis par l'uracile produits par l'ensemble nébuliseur/système de lentilles aérodynamiques et de les comparer aux résultats obtenus avec le jet effusif produit par le four. L'avantage d'utiliser la lampe UV pour caractériser la source et optimiser le signal est que le gaz porteur sera «transparent» puisque que l'énergie des photons produits par excitation ($E_\varphi = 21,22\text{eV}$) est inférieure au seuil d'ionisation de l'hélium (24,6 eV). En effet, le problème principal sera la gestion du signal issu du gaz porteur. L'étude préliminaire (figure 5.3) montre que le signal de gaz porteur (hélium) mesuré par le spectromètre de masse avec et sans l'obturateur sur la trajectoire du faisceau de nanoparticules est constant. Il sera donc possible de soustraire cette composante en s'assurant que le signal d'électrons créés par interactions entre le faisceau d'ions projectiles et le gaz porteur dans le spectromètre ne sature pas le détecteur. Si tel est le cas, il faudrait prévoir un système de pompage plus performant ou trouver un moyen de réduire la quantité de gaz porteur à injecter dans le dispositif.

Dans un second temps, des tests avec une solution de nanoparticules métalliques pourront être effectués. Il sera question de trouver une concentration de la solution contenue dans le nébuliseur permettant d'observer un signal sur la micro-balance et de déterminer les différents paramètres propres au faisceau de nanoparticules métalliques nécessaires à l'évaluation des sections efficaces (ρ_{cible} et l_{ZI}). La géométrie du système de lentilles aérodynamiques pourra également être ajustée. Une fois la source de nanoparticules maîtrisée, des campagnes de mesures de sections efficaces d'émission d'électrons par des nanoparticules métalliques sont prévues. Différents matériaux employés pour certaines applications médicales, comme Au, Ag, Pt et Gd, pourront être utilisés. Il est également prévu de mener des études avec des nanoparticules de différentes tailles, dans la limite de fonctionnement du système de lentilles. Pour les nanoparticules, il a été évoqué dans le chapitre 1 que l'émission des électrons pouvait être provoquée par des résonances plasmon et des résonances atomiques géantes. Il est envisagé de comparer les distributions en énergie d'électrons émis par les nanoparticules à celles obtenues pour des atomes métalliques. En effet, le four, qui peut atteindre des températures autour de 1500°C , a été initialement acheté dans l'optique de sublimer des atomes métalliques. Ainsi, les processus d'émission entre les atomes et nanoparticules métalliques pourront être comparés.

Annexes

Annexe A

Détails du calcul géométrique du rayon du jet de biomolécules en phase gazeuse

Cette annexe a pour but de comparer les différentes hypothèses géométriques utilisables afin de calculer le diamètre du faisceau de biomolécules au niveau de la zone d'interaction et de la micro-balance et ainsi de vérifier laquelle se rapproche le plus de la mesure expérimentale du rayon du faisceau sur la micro-balance estimé à $(5,4 \pm 1)$ mm. Même si actuellement le nombre d'écorceurs sur la trajectoire du faisceau cible ne permet pas de considérer la source comme ponctuelle, ce cas est tout de même évoqué, il fait office de référence.

Source ponctuelle

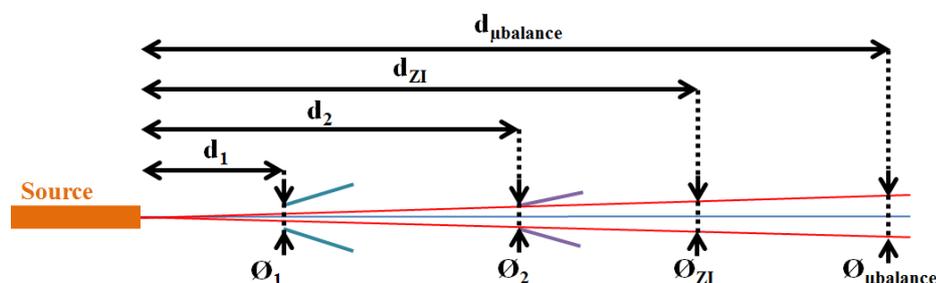


Figure A.1 – Schéma de la partie cible du dispositif expérimental montrant la trajectoire du faisceau de biomolécules si le four est assimilé à une source ponctuelle

Une source ponctuelle implique que, malgré le diaphragme de diamètre 3 mm à la sortie du four, toutes les biomolécules sortent du four depuis un point situé au centre de ce diaphragme (figure A.1). Dans la configuration actuelle du dispositif expérimental, l'écorceur 1 (le plus proche du four) possède un diamètre $\varnothing_1 = 3$ mm, tandis que le diamètre de l'écorceur 2 (le plus éloigné du four) vaut $\varnothing_2 = 2$ mm. Dans ces conditions, l'écorceur 2 délimite la taille du faisceau au niveau de la zone d'interaction et sur la micro-balance à quartz qui peut être calculée:

$$\varnothing_{ZI} = \varnothing_2 \frac{d_{ZI}}{d_2} \quad (\text{A.1})$$

$$\varnothing_{\mu balance} = \varnothing_2 \frac{d_{\mu balance}}{d_2} \quad (\text{A.2})$$

Après calcul, il est possible de trouver $\varnothing_{ZI} = 5,88$ mm et $\varnothing_{\mu balance} = 7,33$ mm.

Source étendue

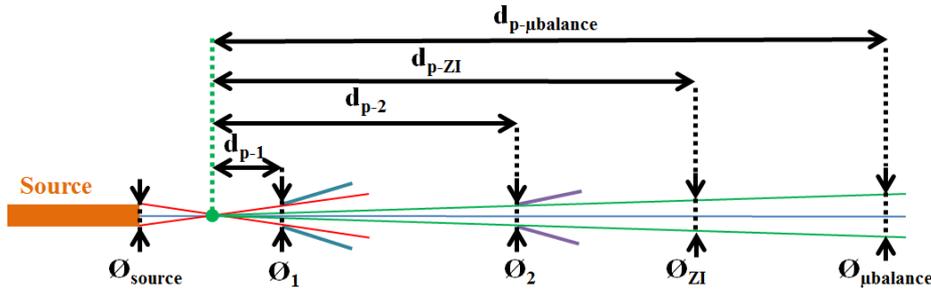


Figure A.2 – Schéma de la partie cible du dispositif expérimental montrant la trajectoire du faisceau de biomolécules si le four est assimilé à une source étendue

Si le four est assimilé à une source étendue, les biomolécules peuvent en sortir depuis n'importe quelle position comprise dans le plan du diaphragme de diamètre $\varnothing_{\text{source}} = 3 \text{ mm}$ comme l'illustre la figure A.2. Si le vecteur vitesse de toutes les biomolécules est parallèle à l'axe de propagation horizontal du faisceau, son diamètre sera toujours égal à 3 mm quel que soit l'endroit de la mesure. La trajectoire de certaines biomolécules possède un angle avec l'axe de propagation : elles sont responsables de l'agrandissement du diamètre du faisceau. Les trajectoires extrêmes de deux biomolécules émises depuis deux points opposés sur le diaphragme du four sont représentées en rouge sur la figure A.2. Le point vert, correspondant à l'intersection de ces deux trajectoires limites, représente donc la position "virtuelle" depuis laquelle vont pouvoir être émises des biomolécules avec le plus grand angle d'émission en regard de l'écorceur 2 (leur trajectoire est représentée en vert). Pour ces biomolécules possédant une trajectoire limite à la sortie du four, le premier écorceur joue le rôle de filtre car il empêche que des biomolécules avec un angle d'émission trop élevé par rapport à l'axe de propagation horizontal du faisceau traversent le dispositif et contribuent à un agrandissement excessif de la zone d'interaction. Concernant le calcul du diamètre du faisceau de biomolécules, les formules à utiliser deviennent :

$$\varnothing_{\text{ZI}} = \varnothing_2 \frac{d_{\text{p-ZI}}}{d_{\text{p-2}}} \quad (\text{A.3})$$

$$\varnothing_{\mu\text{balance}} = \varnothing_2 \frac{d_{\text{p-}\mu\text{balance}}}{d_{\text{p-2}}} \quad (\text{A.4})$$

Il est finalement possible de passer de la valeur du diamètre au niveau de la micro-balance au diamètre au niveau de la zone d'interaction via l'équation :

$$\varnothing_{\text{ZI}} = \varnothing_{\mu\text{balance}} \cdot \frac{d_{\text{p-ZI}}}{d_{\text{p-}\mu\text{balance}}} \quad (\text{A.5})$$

Pour calculer le diamètre du faisceau de biomolécules au niveau de la zone d'interaction et de la micro-balance, il est nécessaire de décomposer la distance $d_{\text{p-2}}$ selon l'équation A.6 :

$$d_{\text{p-2}} = d_{\text{p-1}} + (d_2 - d_1) \quad (\text{A.6})$$

avec $d_2 - d_1 = 75 \text{ mm}$ la distance entre les deux écorceurs. La distance $d_{\text{p-1}}$ est définie par l'équation A.7 :

$$d_{\text{p-1}} = \frac{d_1}{\frac{\varnothing_{\text{source}}}{\varnothing_1} + 1} \quad (\text{A.7})$$

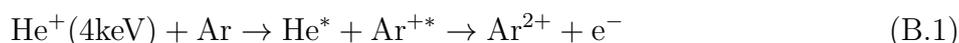
avec $d_1 = 38$ mm la distance entre le diaphragme du four et l'écorceur 1, ainsi que $\varnothing_{\text{écorceur}} = 3$ mm le diamètre de l'écorceur 1. Il est possible de remonter aux quantités \varnothing_{ZI} et $\varnothing_{\mu\text{balance}}$ dans le cas d'une source étendue. Après calculs, il vient $\varnothing_{\text{ZI}} = 6,05$ mm et $\varnothing_{\mu\text{balance}} = 7,7$ mm.

Annexe B

Calibration en énergie avec les systèmes $\text{He}^+(4 \text{ keV}) + \text{Ar}$ et $h\nu(21,22 \text{ eV}) + \text{Kr}$

Système de collision $\text{He}^+(4 \text{ keV}) + \text{Ar}$

Les processus physiques intervenant dans ces collisions sont les mêmes que pour le système $\text{He}^+(15 \text{ keV}) + \text{Ar}$. Les électrons émis proviennent de l'autoionisation de l'ion Ar^{+*} créé par capture d'un électron de la sous-couche 3s d'un atome d'argon par un ion He^+ selon la réaction :



Les résultats expérimentaux sont comparés à un système proche $\text{He}^+ (5 \text{ keV}) + \text{Ar}$ [118] dont le spectre d'émission des électrons Auger est visible sur la figure B.1a. En comparant ce spectre avec la figure 3.25 (spectre d'émission des électrons Auger du système $\text{He}^+ (15 \text{ keV}) + \text{Ar}$), il est possible de remarquer la présence des mêmes résonances aux énergies de 3,3 eV, 4,8 eV, 7,95 eV et 11,7 eV.

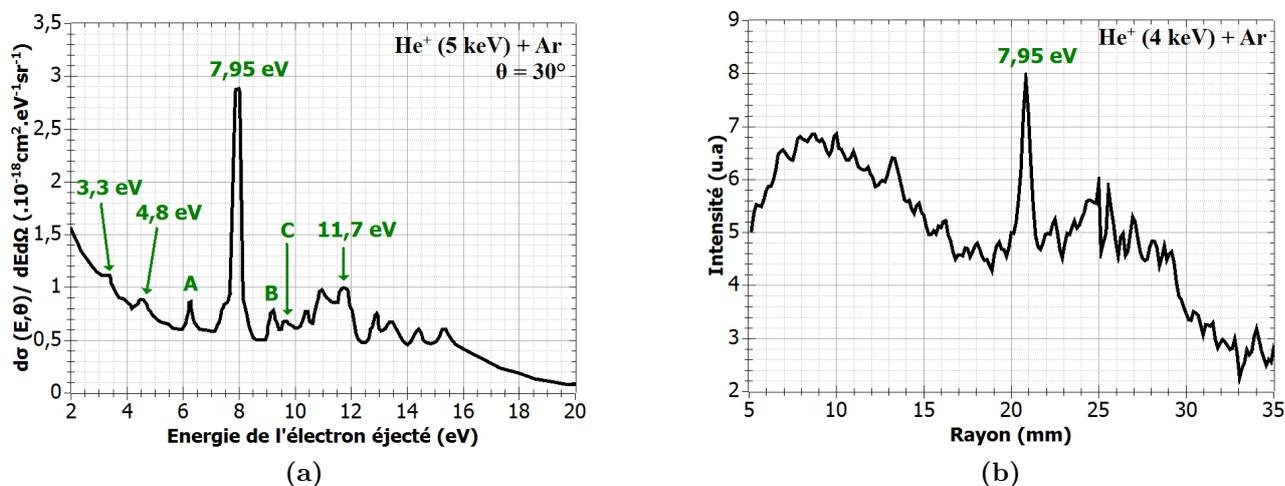


Figure B.1 – Figure B.1a : Spectre d'émission des électrons Auger du système $\text{He}^+ (5 \text{ keV}) + \text{Ar}$ (numérisation de la publication [118]). **Figure B.1b :** Courbe expérimentale de la distribution radiale après transformée inverse d'Abel des électrons Auger du système $\text{He}^+ (4 \text{ keV}) + \text{Ar}$ sur le détecteur pour $V_{\text{ext}} = 500 \text{ V}$.

Une baisse relative de l'intensité des pics d'énergie de 3,3 eV, 4,8 eV et 7,95 eV eV est également notable, faisant apparaître d'autres résonances notées A, B et C. Les transitions associées sont répertoriées dans la table B.1 :

Légende du pic	Transition électronique	Énergie de l'électron Auger
A	$3s3p^5(^1P)4s(^2S) \rightarrow 3s^2 3p^4(^1S)$	6,2 eV
B	$3s3p^5(^1P)4s(^2D) \rightarrow 3s^2 3p^4(^3P)$	9,22 eV
C	$3s3p^5(^1P)4p(^2P) \rightarrow 3s^2 3p^4(^3P)$	9,69 eV

Table B.1 – Transitions électroniques possibles entre les états Ar^{+*} et Ar^{2+} avec l'énergie de l'électron Auger associé pour le système de collision $\text{He}^+(4 \text{ keV}) + \text{Ar}$.

La distribution radiale des électrons Auger émis par le système $\text{He}^+ (4 \text{ keV}) + \text{Ar}$ obtenue après transformée inverse d'Abel et intégration sur l'angle 2π du détecteur est visible sur la figure B.1b. Elle montre également la présence d'une résonance intense qui correspond à des électrons d'énergie de 7,95 eV. Pour ce système, la calibration est toutefois moins précise. En effet pour chaque tension d'extraction une seule position d'impact est relevée contre quatre pour le système $\text{He}^+ (15 \text{ keV}) + \text{Ar}$.

Système de collision $h\nu + \text{Kr}$

Couplée avec un gaz porteur d'hélium, la lampe UV est capable de produire des photons dans la gamme de l'Ultra-Violet de longueur d'onde $\lambda = 58,43 \text{ nm}$ et donc d'énergie $h\nu = 21,22 \text{ eV}$ (section 2.2.4). Le mode d'interaction dominant de ces photons avec la matière est l'effet photoélectrique [161, 162]. Ces photons transfèrent donc la totalité de leur énergie à un électron du gaz cible. Les premières énergies de liaison des électrons d'un atome de krypton étant 14 eV et 24,36eV, les photons de 21,22 eV ne permettent qu'une simple ionisation de l'atome d'argon avec photo-émission d'un électron de valence de la sous-couche 4p dont l'énergie correspond à la différence entre l'énergie du photon et son énergie de liaison égale à 7,22 eV. Le mécanisme de réaction du système $h\nu + \text{Kr}$ est donc le suivant :

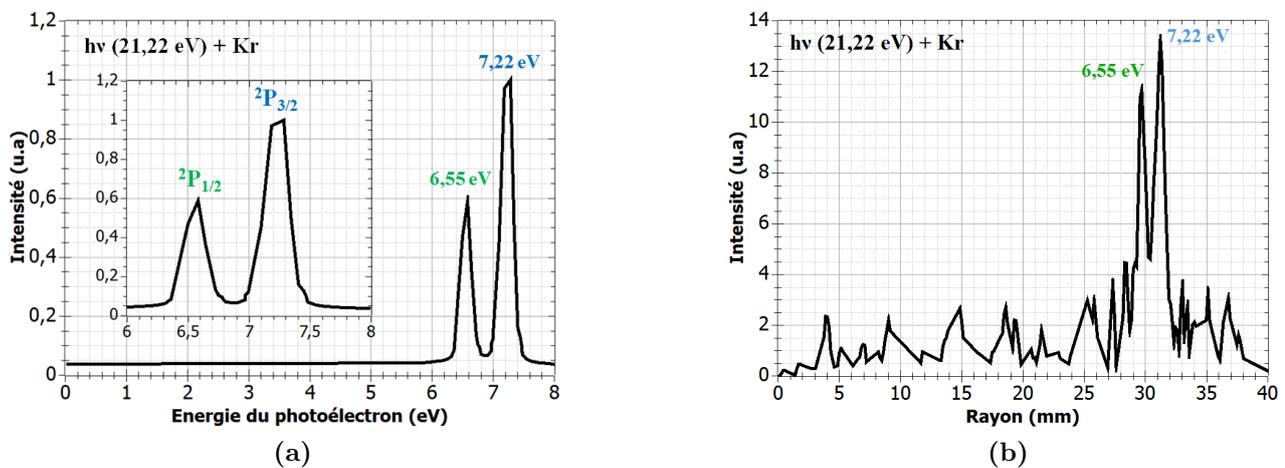
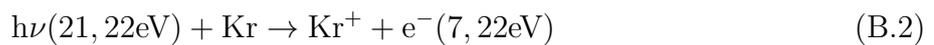


Figure B.2 – **Figure B.2a** : Spectre en énergie des photoélectrons émis par le système $h\nu (21,22 \text{ eV}) + \text{Kr}$ (numérisation de la publication [40]). **Figure B.2b** : Spectre radial des photoélectrons émis par le système $h\nu (21,22 \text{ eV}) + \text{Kr}$ expérimental pour $V_{\text{ext}} = 200 \text{ V}$.

Sur le spectre en énergie des photoélectrons de la figure B.2a issue de la publication [40], en plus des électrons de 7,22 eV, une autre résonance apparaît à une énergie de 6,55 eV et correspond à l'éclatement spin-orbite de la sous-couche 4p du krypton. Les états impliqués sont également indiqués sur la figure. Sur le spectre expérimental (figure B.2b) montrant la distribution radiale des photoélectrons pour une tension d'extraction égale à 200 V, les deux résonances correspondant aux électrons d'énergie 6,55 eV et 7,22 eV sont également observables.

Cependant, pour ce système de collision, la calibration en énergie du spectromètre s'effectue uniquement avec le pic d'énergie 7,22 eV. En effet, comme l'a montré l'étude du système He^+ (15 keV) + Ar, la largeur des pics dont l'énergie avoisine 10 eV augmente avec la tension d'extraction et, pour $V_{\text{ext}} > 1000$ V, il n'est plus possible de séparer les deux pics distants de 670 meV. À l'image du système He^+ (4 keV) + Ar, l'utilisation des photons pour la calibration en énergie ne permet d'obtenir qu'un seul rayon par tension d'extraction, impliquant une précision limitée.

Bibliographie

- [1] E. Lamanna, A. Gallo, F. Russo, R. Brancaccio, A. Soriani, and L. Strigari. Intra-operative radiotherapy with electron beam. *Modern Practices in Radiation Therapy*, pages 146–168, 1989.
- [2] J.M. Fontbonne. Contrôle faisceau en radiothérapie et hadronthérapie. *Manuscrit HDR*, 2013. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00805126>.
- [3] E. Porcel, O. Tillement, F. Lux, P. Mowat, N. Usami, K. Kobayashi, and Y. Furusawa. Gadolinium-based nanoparticles to improve the hadrontherapy performances. *Nanomedicine: nanotechnology, Biology, and Medicine*, 10(8) :1601–1608, 2014.
- [4] C. Sicard-roselli, E. Brun, M. Gilles, G. Baldacchino, C. Kelsey, H. Mcquaid, C. Polin, N. Wardlow, and F. Currell. A new mechanism for hydroxyl radical production in irradiated nanoparticle solutions. *Small*, 10(16) :3338–3346, 2014.
- [5] B. Boudaiffa, P. Cloutier, D. Hunting, M.A. Huels, and L. Sanche. Resonant formation of DNA strand breaks by low-energy (3 to 20 eV) electrons. *Science*, 287(5458) :1658–1660, 2000.
- [6] D. Hunting, P. Cloutier, M.A Huels, L. Sanche, and B. Boudai. Induction of single and double-strand breaks in plasmid DNA by 100 – 1500 eV electrons. *International Journal of Radiation Biology*, 76(9) :1209–1221, 2000.
- [7] H. Abdoul-Carime, S. Gohlke, and E. Illenberger. Site-specific dissociation of DNA bases by slow electrons at early stages of irradiation. *Physical Review Letters*, 92(16) :168103(1–4), 2004.
- [8] S. Deniff, S. Ptasinska, M. Cingel, S. Matejcik, and P. Scheier. Electron attachment to the DNA bases thymine and cytosine. *Chemical Physics Letters*, 377(1-2) :74–80, 2003.
- [9] A.V. Verkhovtsev, A.V. Korol, and A.V. Solov'yov. Electron production by sensitizing gold nanoparticles irradiated by fast ions. *Journal of Physical Chemistry C*, 119(13) :11000–11013, 2015.
- [10] A.V. Verkhovtsev, A.V. Korol, and A.V. Solov'Yov. Revealing the mechanism of the low-energy electron yield enhancement from sensitizing nanoparticles. *Physical Review Letters*, 114(6) :063401(1–6), 2015.
- [11] D. Vemhet, J.P. Rozet, K. Wohrer, L. Adoui, C. Stiphan, A. Cassimi, and J.M. Ramillon. Excitation in swift heavy ion-atom collisions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 107(1-4) :71–78, 1996.
- [12] N. Stolterfoht, R.D. DuBois, and R.D. Rivarola. Electron emission in heavy ion-atoms collisions. *Springer Series on Atoms and Plasmas*, 1997. ISBN: 978-3-662-03480-4.
- [13] M.E. Rudd, Y.K. Kim, T. Märk, J. Schou, N. Stolterfoht, and L.H. Toburen. Secondary electron emission spectra from charged particle interactions. *International Commission on Radiation Units and Measurements*, Report 55 :1–114, 1996.

- [14] N. Stolterfoht, D. Schneider, J. Tanis, H. Altevogt, A. Salin, P.D. Fainstein, R.D. Rivaola, J.P. Grandin, J.N. Scheurer, S. Andriamonje, D. Bertault, and J.F. Chemin. Evidence for two-center effects in the electron emission from 25 MeV/u Mo⁴⁰⁺ + He collisions: theory and experiment. *Europhysics Letters*, 4(8) :899–904, 1987.
- [15] M. Gryznski. Classic theory of electronic and ionic inelastic collisions. *Physical Review*, 115(2) :374–383, 1959.
- [16] L. Vriens. Angular correlation of scattered and ejected electrons in ionizing collisions. *Physica*, 45(3) :400–406, 1970.
- [17] S.T. Manson, L.H. Toburen, D.H. Madison, and N. Stolterfoht. Energy and angular distribution of electrons ejected from helium by fast protons and electrons: theory and experiment. *Physical Review A*, 12(1) :60–79, 1975.
- [18] M.E. Rudd, C.A. Sautter, and C.L. Bailey. Energy and angular distributions of electrons ejected from hydrogen and helium by 100 to 300 keV protons. *Physical Review*, 151(1) :20–27, 1966.
- [19] P.M. Hillenbrand, S. Hagmann, and J.M. Monti. Electron-capture-to-continuum cusp in U⁸⁸⁺ + N₂ collisions. *Physical Review A*, 90(4) :042713(1–10), 2015.
- [20] G.B. Crooks and M.E. Rudd. Experimental evidence for the mechanism of charge transfer into continuum states. *Physical Review Letters*, 25(23) :1599–1601, 1970.
- [21] R. Dörner, H. Khemliche, M.H. Prior, C.L. Cocke, J.A. Gary, R.E. Olson, V. Mergel, and J. Ullrich. Imaging of saddle point electron emission in slow p-He collisions. *Physical Review Letters*, 77(22) :4520–4523, 1996.
- [22] W. Meckbach, P.J. Focke, A.R. Goni, and S. Suarez. Effects of the Wannier Ridge on secondary-electron spectra in proton-helium collisions. *Physical Review Letters*, 57(13) :1587–1590, 1986.
- [23] M. Yavor. Optics of charged particles analysers. *Advances in Imaging and Electron Physics*, 157 :213–258, 2009.
- [24] C. Tusche, Y.J. Chen, C.M. Schneider, and J. Kirschner. Imaging properties of hemispherical electrostatic energy analyzers for high resolution momentum microscopy. *Ultramicroscopy*, 206 :1–9, 2019.
- [25] G.J. Tallents. The operation of a 45° parallel-plate electrostatic analyser in laser-produced plasma studies. *Journal of Physics E: Scientific Instruments*, 11 :769–772, 1978.
- [26] A. Ranjan, V.M. Donnelly, and D.J. Economou. Energy distribution and flux of fast neutrals and residual ions extracted from a neutral beam source. *Journal of Vacuum Science and Technology A*, 24(5) :1839–1846, 2014.
- [27] E. Lattouf, Z. Juhász, J.Y. Chesnel, S. Kovács, E. Bene, P. Herczku, B. Huber, A. Méry, J.C. Pouilly, J. Rangama, and B. Sulik. Formation of anions and cations via a binary-encounter process in OH⁺ + Ar collisions: the role of dissociative excitation and statistical aspects. *Physical Review A*, 89(6) :062721(1–7), 2014.
- [28] S. Kovács, P. Herczku, Z. Juhász, L. Sarkadi, L. Gulyás, and B. Sulik. Ionization of small molecules induced by H⁺, He⁺, and N⁺ projectiles: comparison of experiment with quantum and classical calculations. *Physical Review A*, 94(1) :012704(1–13), 2016.
-

-
- [29] S. Sato, Z. He, M. Kaneda, M. Imai, H. Tsuchida, and A. Itoh. Electron energy spectra from various amino acids bombarded by 2,0 MeV He⁺ ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 256(1) :506–509, 2007.
- [30] A.N. Agnihotri, S. Nandi, S. Kasthurirangan, A. Kumar, M.E. Galassi, R.D. Rivarola, C. Champion, and L.C. Tribedi. Doubly differential distribution of electron emission in ionization of uracil in collisions with 3,5 MeV/u bare C ions. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 87(3) :032716(1–7), 2013.
- [31] Y. Iriki, Y. Kikuchi, M. Imai, and A. Itoh. Proton-impact ionization cross sections of adenine measured at 0,5 and 2,0 MeV. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 84(5) :052719(1–4), 2011.
- [32] P. Moretto-capelle and A. Le Padellec. Electron spectroscopy in proton collisions with dry gas-phase uracil base. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 74(6) :062705(1–5), 2006.
- [33] S. Bhattacharjee, C. Bagdia, M.R. Chowdhury, A. Mandal, J.M. Monti, R.D. Rivarola, and L.C. Tribedi. Bare-carbon-ion-impact electron emission from adenine molecules: Differential and total cross-section measurements. *Physical Review A*, 100(1) :012703(1–10), 2019.
- [34] Y. Iriki, Y. Kikuchi, M. Imai, and A. Itoh. Absolute doubly differential cross sections for ionization of adenine by 1,0 MeV protons. *Physical Review A*, 84(3) :032704(1–7), 2011.
- [35] D.W. Chandler and P.L. Houston. Two-dimensional imaging of state-selected photodissociation products detected by multiphoton ionization . *Review of Scientific Instruments*, 87(2) :1445–1447, 1987.
- [36] H. Helm, N. Bjerre, M.J. Dyer, D.L. Huestis, and M. Saeed. Images of photoelectrons formed in intense laser fields. *Physical Review Letters*, 70(21) :3221–3224, 1993.
- [37] A.T.J.B. Eppink and D.H. Parker. Velocity Map Imaging of ions and electrons using electrostatic lenses: application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen. *Review of Scientific Instruments*, 68(9) :3477–348, 1997.
- [38] M. Brouard, D.H. Parker, and S.Y.T. Van de Meerakker. Taming molecular collisions using electric and magnetic fields. *Chemical Society Review*, 43(21) :7279–7294, 2014.
- [39] H.H. Telle and A. Gonzalez-Urena. Laser Spectroscopy and Laser Imaging: An Introduction. *CRC Press Inc*, 2019. ISBN: 978-1466588226.
- [40] S.Y. Liu, K. Alnama, J. Matsumoto, K. Nishizawa, H. Kohguchi, Y.P. Lee, and T. Suzuki. He I ultraviolet photoelectron spectroscopy of benzene and pyridine in supersonic molecular beams using photoelectron imaging. *Journal of Physical Chemistry A*, 115(14) :2953–2965, 2011.
- [41] C.E. Rallis, T.G. Burwitz, P.R. Andrews, M. Zohrabi, R. Averin, B. Bergues, B. Jochim, A.V. Voznyuk, N. Gregerson, B. Gaire, I. Znakovskaya, J. Mckenna, K.D. Carnes, M.F. Kling, and E. Wells. Incorporating real time velocity map image reconstruction into closed-loop coherent control. *Review of Scientific Instruments*, 85(11) :113105(1–10), 2014.
- [42] D.H. Parker and A.T.J.B. Eppink. Photoelectron and photofragment Velocity Map Imaging of state-selected molecular oxygen dissociation/ionization dynamics. *Journal of Chemical Physics*, 107(7) :2357–2362, 1997.
-

- [43] B. Whitaker. *Imaging in Molecular Dynamics: Technology and Applications*. Cambridge University Press, 2003. ISBN: 9780511535437.
- [44] M.J.J. Vrakking. An iterative procedure for the inversion of two-dimensional ion/photoelectron imaging experiments. *Review of Scientific Instruments*, 72(11) :4084–4089, 2009.
- [45] C. Bordas and F. Paulig. Photoelectron imaging spectrometry: principle and inversion method. *Review of Scientific Instruments*, 67(6) :2257–2268, 1996.
- [46] F. Renth, J. Riedel, and F. Temps. Inversion of velocity map ion images using iterative regularization and cross validation. *Review of Scientific Instruments*, 77(3) :033103(1–12), 2006.
- [47] B. Dick. Inverting ion images without Abel inversion : maximum entropy reconstruction of velocity maps. *Physical Chemistry, Chemical Physics*, 16(2) :570–580, 2013.
- [48] PREVAC. Ion source IS40E1 with IS40E-PS. *Manuel constructeur*.
- [49] D. Hitz, A. Girard, K. Serebrennikov, G. Melin, D. Cormier, J.M. Mathonnet, J. Chartier, L. Sun, J.P. Briand, and M. Benhachoum. Production of highly charged ion beams with the Grenoble test electron cyclotron resonance ion source. *Review of Scientific Instruments*, 75(5) :1403–1406, 2014.
- [50] R. Geller. *Electron cyclotron resonance ion sources and ECR plasmas*. 1996. ISBN: 978-0750301077.
- [51] R. Geller. ECRIS: The Electron Cyclotron Resonance Ion Sources. *Annual Review of Nuclear and Particle Science*, 40 :15–43, 1990.
- [52] V. Toivanen, C. Barué, C. Feierstein, P. Jardin, F. Lemagnen, L. Maunoury, F. Noury, and P. Rousseau. Upgrade of the GTS electron cyclotron resonance ion source at GANIL. *AIP Conference Proceedings*, 2011(1) :040008(1–3), 2018.
- [53] L. Maunoury, R. Leroy, T. Been, G. Gaubert, L. Guillaume, D. Leclerc, A. Lepoutre, V. Mouton, J.Y. Pacquet, J.M. Ramillon, and R. Vicquelin. LIMBE: a new facility for low energy beams. *Review of Scientific Instruments*, 73(2) :561–563, 2002.
- [54] F. Loyer. *Projet IRRSUD - Rapport de fin de projet* HAL Id: in2p3-00012518. 2002. in2p3-00012518.
- [55] Resonance Ltd. EUV-X-L Flow Lamp data sheet. *Manuel constructeur*.
- [56] NIST Database. Energy levels of neutral helium (He I). 2009. <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Handbook/Tables/heliumtable5.htm>.
- [57] W.C. Martin. Energy levels and spectrum of neutral helium (^4He I). *Journal of Research of the National Bureau of Standards A: Physics and Chemistry*, 64(1) :19–28, 1960.
- [58] S.S. Hodgman, R.G. Dall, L.J. Byron, K.G.H. Baldwin, S.J. Buckman, and A.G. Truscott. Metastable helium: a new determination of the longest atomic excited-state lifetime. *Physical Review Letters*, 103(5) :053002(1–4), 2009.
- [59] F. Gao, L.W. Campbell, R. Devanathan, Y.L. Xie, Z. Zhang, A.J. Peurrung, and W.J. Weber. Gamma-ray interaction in Ge: a Monte Carlo simulation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 255(1) :286–290, 2007.
- [60] A. Lechner. Particle interactions with matter. *Proceedings of the CAS–CERN Accelerator School: Beam Injection, Extraction and Transfer*, 5 :47–68, 2018.

-
- [61] A. Becker, F. Hensel, and E. Marceca. Valved molecular beam skimmer. *Review of Scientific Instruments*, 68(8) :3258–3259, 1997.
- [62] J. Küpper, F. Filsinger, G. Meijer, and H. Stapelfeldt. Manipulating the motion of complex molecules: deflection, focusing, and deceleration of molecular beams for quantum-state and conformer selection. *Methods in Physical Chemistry - Chapter 1: Gas phase*, pages 1–28, 2012. ISBN: 9783527636839.
- [63] J. Xie, M.K. Borg, L. Gibelli, and O. Henrich. Effective mean free path and viscosity of confined gases. *Physics of Fluids*, 31(7) :072002(1–10), 2019.
- [64] A.K. Saha, D. Das, R. Srivastava, P.K. Panigrahi, and K. Muralidhar. Fluid Mechanics and Fluid Power – Contemporary Research. *Proceedings of the 5th international and 41st national conference on FMFP*, 2016. ISBN: 978-81-322-2743-4.
- [65] R. Campargue. Progress in overexpanded supersonic jets and skimmed molecular beams in free-jet zones of silence . *Journal of Physical Chemistry*, 88(20) :4466–4474, 1984.
- [66] M. Barr, K.M.O. Donnell, A. Fahy, W. Allison, and P.C. Dastoor. A desktop supersonic free-jet beam source for a scanning helium microscope (SHeM). *Measurement Science and Technology*, 23(10) :1–7, 2012.
- [67] H. Zhang, V. Tzoganis, A. Jeff, and C.P. Welsch. Development of a supersonic gas jet beam projectile monitor. *Proceedings of IBIC 2015*, pages 530–534, 2015.
- [68] M. Putignano. Supersonic gas-jet based beam profile monitor. *Manuscrit de thèse*, 2012.
- [69] S.Y.T. Van de Meerakker, H.L. Bethlem, and G. Meijer. Taming molecular beams. *Nature Physics*, 4(8) :595–602, 2008.
- [70] E. Mejia-Ospino, I. Alvarez, and C. Cisneros. Opo-time of flight system for multiphoton ionization and dissociation studies. *Revista Mexicana de Fisica*, 50(2) :170–178, 2004.
- [71] Q. Wei, I. Lyuksyutov, and D. Herschbach. Merged-beams for slow molecular collision experiments. *The Journal of Chemical Physics*, 137(5) :054202(1–9), 2012.
- [72] W. Dudley. Ultrasonic studies and thermodynamic properties of fluids. *Methods in Experimental Physics*, 3 :681–708, 1961. ISBN: 9783527636839.
- [73] H.V. Tafreshi, G. Benedek, P. Piseri, S. Vinati, E. Barborini, and P. Milani. A simple nozzle configuration for the production of low divergence supersonic cluster beam by aerodynamic focusing . *Aerosol Science and Technology*, 36(5) :593–606, 2010.
- [74] F. Favela, L. Acosta, E. Andrade, V. Araujo, A. Huerta, O.G. de Lucio, G. Murillo, M.E. Ortiz, R. Policroniades, P.S. Rita, A. Varela, and E. Chávez. New supersonic gas jet target for low energy nuclear reaction studies. *Physical Review Special Topics - Accelerators and Beams*, 18(12) :123502(1–10), 2015.
- [75] C.M. Heyl, S.B. Schoun, G. Porat, H. Green, and J. Ye. A nozzle for high-density supersonic gas jets at elevated temperatures. *Review of Scientific Instruments*, 89(11) :113114(1–5), 2018.
- [76] CREATEC Engineering Science. Dual Filament Cell (DFC). *Manuel constructeur*.
- [77] CREATEC Engineering Science. Alimentation électrique CREATEC PS-800. *Manuel constructeur*.
- [78] INFICON. Front load single and dual sensors - PN 074-156N. *Manuel constructeur*.
- [79] INFICON. STM-2 Rate/Thickness Monitor - PN 074-613-P1D. *Manuel constructeur*.
-

- [80] D.A. Buttry and M.D. Ward. Measurement of interfacial processes at electrode surfaces with the electrochemical quartz crystal microbalance. *Chemical Reviews*, 92(6) :1355–1379, 1992.
- [81] N. Shpigel, M.D. Levi, S. Sigalov, L. Daikhin, and D. Aurbach. In situ real-time mechanical and morphological characterization of electrodes for electrochemical energy storage and conversion by electrochemical quartz crystal microbalance with dissipation monitoring. *Accounts of Chemical Research*, 51(1) :69–79, 2018.
- [82] Balzers Prisma. Quadrupole Mass Spectrometer (QMS). *Manuel constructeur*.
- [83] L. Sadr-Arani, P. Mignon, H. Carime, B. Farizon, M. Farizon, and H. Chermette. DFT study of the fragmentation mechanism of uracil RNA base. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 14(28) :9855–9870, 2012.
- [84] C. Zhou, S. Matsika, M. Kotur, and T.C. Weinacht. Fragmentation pathways in the uracil radical cation. *The Journal of Physical Chemistry A*, 116(37) :9217–9227, 2012.
- [85] P.J.M. Van Der Burgt, S. Finnegan, and S. Eden. Electron impact fragmentation of adenine : partial ionization cross sections for positive fragments. *European Physical Journal*, 69(173) :1–8, 2015.
- [86] P. Moz. Cross sections for electron scattering from selected components of DNA and RNA. *Radiation Physics and Chemistry*, 73(2) :77–84, 2005.
- [87] G. Bolbach. La détection des ions en spectrométrie de masse. *XXI^{èmes} rencontres club jeune de spectrométrie de masse - école de printemps de la société française de spectrométrie de masse*, pages 1–72, 2016.
- [88] Hamamatsu Photonics. Microchannel Plates (MCP) F1942-04 - Phosphor Screen P43. *Manuel constructeur*.
- [89] J.W. Fraser. Ion detection efficiency in SIMS: dependencies on energy, mass and composition for microchannel plates used in mass spectrometry. *International Journal of Mass Spectrometry*, 202(1-3) :217–229, 2000.
- [90] PHOTEK. Triple output digital high voltage power supply - DPS3 2P5P10P. *Manuel constructeur*.
- [91] I.S. Gilmore and M.P. Seah. The ion detection efficiency of microchannel plates. *International Journal of Mass Spectrometry*, 215(1-3) :13–30, 2002.
- [92] J. Oberheide, P. Wilhelms, and M. Zimmer. New results on the absolute ion detection efficiencies of a microchannel plate. *Measurement Science and Technology*, 8(4) :351–354, 1997.
- [93] JAI. Caméra GO-2400M-USB. *Manuel constructeur*.
- [94] L. Zhang, Y. Jin, L. Lin, and Y. Du. The comparaison of CCD and CMOS image sensors. *International Conference on Optical Instruments and Technology: Advanced Sensor Technologies and Applications*, 7157 :1–5, 2008.
- [95] PyAbel team Revision. Documentation du progiciel PyAbel. <https://pyabel.readthedocs.io/en/latest/>, 2016.
- [96] V. Dribinski, A. Ossadtchi, V.A. Mandelstam, and H. Reisler. Reconstruction of Abel-transformable images: the gaussian basis-set expansion Abel transform method. *Review of Scientific Instruments*, 73(7) :2634–2642, 2002.
-

-
- [97] G.A. Garcia, L. Nahon, and I. Powis. Two-dimensional charged particle image inversion using a polar basis function expansion. *Review of Scientific Instruments*, 75(11) :4989–4996, 2004.
- [98] M. Ryazanov. Development and implementation of methods for sliced velocity map imaging. Studies of overtone-induced dissociation and isomerization dynamics of hydroxymethyl radical (CH_2OH and CD_2OH). *Manuscrit de thèse*, 2012.
- [99] E.W. Hansen. Fast Hankel transform algorithm. *Institute of Electrical and Electronics Engineers*, 33(3) :666–671, 1985.
- [100] E.W. Hansen and P.L. Law. Recursive methods for computing the Abel transform and its inverse. *Journal of the Optical Society of America A*, 2(4) :510–520, 1985.
- [101] C.J. Dasch. One-dimensional tomography: a comparison of Abel, onion-peeling, and filtered backprojection methods. *Applied Optics*, 31(8) :1146–1152, 1992.
- [102] D.D. Hickstein, S.T. Gibson, R. Yurchak, D.D. Das, and M. Ryazanov. A direct comparison of high-speed methods for the numerical Abel transform. *Review of Scientific Instruments*, 90(6) :065115(1–9), 2019.
- [103] Keithley’s. Picoampèremètre Keithley’s 6485 . *Manuel constructeur*.
- [104] B.F. Minaev, M.I. Shafranyosh, Y.Y. Svida, M.I. Sukhoviya, I.I. Shafranyosh, and G.V. Baryshnikov. Fragmentation of the adenine and guanine molecules induced by electron collisions. *The Journal of Chemical Physics*, 140(17) :154–160, 2014.
- [105] A. Ostroverkh, A. Zavilopulo, and O. Shpenik. Ionization of guanine , adenine and thymine molecules by electron impact. *The European physical journal D*, 73(38) :1–11, 2019.
- [106] L. Sadr-Arani, P. Mignon, and H. Chermette. Fragmentation mechanisms of cytosine, adenine and guanine ionized bases. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 17(17) :1–27, 2015.
- [107] J.M. Rice and G.O. Dudek. Mass spectra of nucleic acid derivatives: guanine, adenine, and related compounds. *Journal of the American Chemical Society*, 89(11) :2719–2725, 1967.
- [108] H.W. Jochims, M. Schwell, H. Baumgertel, and S. Leach. Photoion mass spectroscopy of adenine thymine and racil in the 6-22 eV photon energy range. *Journal of Chemical Physics*, 314(1-3) :254–263, 2005.
- [109] M. Imhoff, Z. Deng, and M.A. Huels. Ionizing fragmentation of uracil and 5-bromouracil by electron impact in gas phase and hyperthermal Ar^+ ion irradiation in condensed phase. *International Journal of Mass Spectrometry*, 262(1-2) :154–160, 2007.
- [110] S. Feil, K. Gluch, S. Matt-Leubner, P. Scheier, J. Limtrakul, M. Probst, H. Deutsch, K. Becker, A. Stamatovic, and T.D. Märk. Partial cross sections for positive and negative ion formation following electron impact on uracil. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 37(15) :3013–3020, 2004.
- [111] D. Almeida, R. Antunes, G. Martins, S. Eden, F. Ferreira, and Y. Nunes. Electron transfer-induced fragmentation of thymine and uracil in atom–molecule collisions. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 13(34) :15657–15665, 2011.
- [112] S. Denifl, B. Sonnweber, G. Hanel, and P. Scheier. Threshold electron impact ionization studies of uracil. *International Journal of Mass Spectrometry*, 238(1) :47–53, 2004.
-

- [113] J. Tabet. Irradiation de molécules biologiques (bases de l'ADN et de l'ARN) par impact de protons dans le domaine de vitesse du pic de Bragg (20-150 keV/uma) . *Manuscrit de thèse*, 2008. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00341551>.
- [114] J. Tabet, S. Eden, S. Feil, B. Farizon, M. Farizon, and T.D. Märk. Mass spectrometry (fragmentation ratios) of DNA base molecules following 80 keV proton impact with separation of direct ionization and electron capture processes. *International Journal of Mass Spectrometry*, 292(1-3) :53–63, 2010.
- [115] R. Brédy, J. Bernard, L. Chen, G. Montagne, B. Li, and S. Martin. Fragmentation of adenine under energy control. *The Journal of Chemical Physics*, 130(11) :114305(1–11), 2014.
- [116] L. Chen, R. Brédy, J. Bernard, G. Montagne, A.R. Allouche, and S. Martin. Fragmentation of singly charged adenine induced by neutral fluorine beam impact at 3 keV. *The Journal of Chemical Physics*, 135(11) :114309(1–10), 2011.
- [117] K. Jorgensen, N. Andersen, and J. Ostgaard-Olsen. Autoionising levels in argon excited by low-energy heavy-ion impact. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 11(23) :3951–3968, 1978.
- [118] M. Sataka, J. Urakawa, and N. Oda. Measurements of double differential cross sections for electrons ejected by 5-20 keV H^+ , H_2^+ and He^+ impacts on argon. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 12(23) :729–734, 1979.
- [119] J. Fryar and J.W. McConkey. Analysis of the ejected-electron spectra of Ar following controlled electron impact. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 9(4) :619–629, 1976.
- [120] G.N. Ogurtsov, I.P. Flaks, and S.V. Avakyan. Auto-ionization states in argon. *Soviet Physics JETP*, 30(1) :16–21, 1969.
- [121] M.A. Bolorizadeh and M.E. Rudd. Angular and energy dependence of cross sections for ejection of electrons from water vapor, 15-150 keV proton impact. *Physical Review A*, 32(2) :888–892, 1986.
- [122] M.E. Rudd, T.V. Goffe, R.D. Dubois, and L.H. Toburen. Cross Sections for ionization of water vapor by 7-4000 keV protons. *Research Papers in Physics and Astronomy*, 31(1) :492–494, 1985.
- [123] L.H. Toburen and W.E. Wilson. Energy and angular distributions of electrons ejected from water vapor by 0,3–1,5 MeV protons . *Journal of Chemical Physics*, 66(11) :5202–5213, 1977.
- [124] F. Gobet, S. Eden, B. Coupier, J. Tabet, B. Farizon, M. Farizon, M.J. Gaillard, S. Ouas-kit, M. Carré, and T.D. Märk. Electron-loss and target ionization cross sections for water vapor by 20–150 keV neutral atomic hydrogen impact. *Chemical Physics Letters*, 421(1-3) :68–71, 2006.
- [125] H. Luna, A.L.F. De Barros, J.A. Wyer, S.W.J. Scully, J. Lecointre, P.M.Y. Garcia, G.M. Sigaud, A.C.F Santos, V. Senthil, M.B. Shah, C.J. Latimer, and E.C. Montenegro. Water molecule dissociation by proton and hydrogen impact. *Physical Review A*, 75(4) :042711(1–11), 2007.
- [126] L.F. Errea, C. Illescas, and I. Rabadan. Ionization of water molecules by proton impact: Two nonperturbative studies of the electron-emission spectra. *Physical Review A*, 87(3) :032709(1–7), 2013.

-
- [127] C. Champion. Water molecule ionization by charged particles: a short review. *Journal of Physics: Conference Series*, 101(1) :1–10, 2008.
- [128] P.D. Fainstein, G.H. Olivera, and R.D. Rivarola. Theoretical calculations of the stopping power for protons traversing H , He and simple molecular targets. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 107(1-4) :19–26, 1996.
- [129] O. Boudrioua, C. Champion, C. Dal Cappello, and Y.V. Popov. Ab initio calculation of differential and total cross sections for the ionization of water vapor by protons. *Physical Review A*, 75(2) :022720(1–9), 2007.
- [130] L.C. Tribedi, C. Champion, R.D. Rivarola, M.E. Galassi, and A.N. Agnihotri. Ionization of uracil in collisions with fast bare ions. *The European Physical Journal D*, 66(303) :1–5, 2012.
- [131] A. Itoh, Y. Iriki, M. Imai, C. Champion, and R.D. Rivarola. Cross sections for ionization of uracil by MeV energy proton impact. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 88(5) :052711(1–6), 2013.
- [132] C. Champion, M.E. Galassi, P.F. Weck, S. Incerti, R.D. Rivarola, O. Fojón, J. Hanssen, Y. Iriki, and A. Itoh. Proton-induced ionization of isolated uracil molecules: a theory/experiment confrontation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 314(1) :66–70, 2013.
- [133] C. Champion, M.E. Galassi, P.F. Weck, C. Abdallah, Z. Francis, M.A. Quinto, O. Fojón, R.D. Rivarola, J. Hanssen, and Y. Iriki. Ionization induced by protons on isolated molecules of adenine: theory , modelling and experiment. *Journal of Physics: Conferences Series*, 488 :1–9, 2014.
- [134] H. Lekadir, I. Abbas, C. Champion, and J. Hanssen. Total cross sections for ionizing processes induced by proton impact on molecules of biological interest : a classical trajectory Monte Carlo approach. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B*, 267(6) :1011–1014, 2009.
- [135] H. Lekadir, I. Abbas, C. Champion, R.D. Rivarola, O. Fojón, and J. Hanssen. Single-electron-loss cross sections of DNA and RNA bases impacted by energetic multicharged ions: A classical Monte Carlo approximation. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 79(6) :062710(1–6), 2009.
- [136] C. Champion, H. Lekadir, M.E. Galassi, O. Fojón, R.D. Rivarola, and J. Hanssen. Theoretical predictions for ionization cross sections of DNA nucleobases impacted by light ions. *Physics in Medicine and Biology*, 55(20) :6053–6067, 2010.
- [137] A.N. Agnihotri, S. Kasthurirangan, S. Nandi, A. Kumar, C. Champion, H. Lekadir, J. Hanssen, P.F. Weck, M.E. Galassi, R.D. Rivarola, O. Fojón, and L.C. Tribedi. Ionization of uracil in collisions with highly charged carbon and oxygen ions of energy 100 keV to 78 MeV. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 85(3) :032711(1–5), 2012.
- [138] C. Champion, M.E. Galassi, O. Fojón, H. Lekadir, J. Hanssen, R.D. Rivarola, P.F. Weck, A.N. Agnohotri, S. Nandi, and L.C Tribedi. Ionization of RNA-uracil by highly charged carbon ions. *Journall of Physics: Conferences Series*, 373 :1–8, 2012.
- [139] A.N. Agnihotri, S. Kasthurirangan, S. Nandi, A. Kumar, C. Champion, H. Lekadir, J. Hanssen, P.F. Weck, M.E. Galassi, R.D. Rivarola, O. Fojón, and L.C. Tribedi. Absolute total ionization cross sections of uracil ($C_4H_4N_2O_2$) in collisions with MeV energy highly
-

- charged carbon, oxygen and fluorine ions. *Journal of Physics B - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 46(18) :1–8, 2013.
- [140] A.M.P. Mendez, C.C. Montanari, and J.E. Miraglia. Ionization of biological molecules by multicharged ions using the stoichiometric model. *Journal of Physics B - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 53 :1–10, 2019.
- [141] B. Barc, M. Ryszka, J. Spurrell, M. Dampc, R. Parajuli, N.J. Mason, and S. Eden. Multi-photon ionization and fragmentation of uracil: neutral excited-state ring opening and hydration effects . *The journal of Chemical Physics*, 139(24) :244311(1–10), 2013.
- [142] A. Le Padellec, P. Moretto-Capelle, M. Richard-Viard, J.P. Champeaux, and P. Cafareli. Ionization and fragmentation of DNA, RNA bases induced by proton impact. *Journal of Physics: Conferences Series*, 101(1) :1–6, 2008.
- [143] W.E. Wilson and L.H. Toburen. Electron emission from proton-hydrocarbon-molecule collisions at 0,3-2 MeV. *Physical Review A*, 11(4) :1303–1308, 1975.
- [144] D.J. Lynch, L.H. Toburen, and W.E. Wilson. Electron emission from methane, ammonia, monomethylamine, and dimethylamine by 0,25 to 2,0 MeV protons . *Journal of Chemical Physics*, 64(6) :2616–1976, 1976.
- [145] D. Belkic. The first Born approximation for ionization and charge transfer in energetic collisions of multiply charged ions with water. *Advances in Quantum Chemistry: Theory of Heavy Ion Collision Physics in Hadron Therapy*, 65 :279,313, 2013. ISBN: 9780123964557.
- [146] R.D. Rivarola, P.D. Fainstein, and V.H. Ponce. The CDW-EIS method. *AIP Conference Proceedings*, 362(1) :147–162, 1996.
- [147] L. Sarkadi and L. Gulyás. Classical trajectory Monte Carlo model calculations for the antiproton-induced ionization of atomic hydrogen at low impact energy. *Physical Review A*, 90(2) :(022702(1–8)), 2015.
- [148] L. Sarkadi and L. Gulyás. Extended classical models for multiple charge exchange. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 23(1-2) :17–22, 1987.
- [149] M.E. Galassi, C. Champion, P.F. Weck, R.D. Rivarola, O. Fojón, and J. Hanssen. Quantum-mechanical predictions of DNA and RNA ionization by energetic proton beams. *Physics in Medicine and Biology*, 57(7) :2081–2099, 2012.
- [150] M.A. Rahman and E. Krishnakumar. Electron ionization of DNA bases. *Journal of Chemical Physics*, 114(16) :161102(1–5), 2016.
- [151] M. Tang, S.C. Chen, and D.Y.H. Pui. An improved atomizer with high output of nanoparticles. *Journal of Aerosol Science*, 124 :10–16, 2018.
- [152] I. Benešová, K. Dlabková, F. Zelenák, T. Vaculovič, V. Kanický, and J. Preisler. Direct analysis of gold nanoparticles from dried droplets using substrate-assisted laser desorption single particle-ICPMS. *Analytical chemistry*, 88(5) :2576—2582, 2016.
- [153] C.P. Kalyana, A.R. David, and D. Shuguang. Silver nanoparticles from ultrasonic spray pyrolysis of aqueous silver nitrate. *Aerosol Science and Technology*, 39(10) :1010–1014, 2005.
- [154] F.A. Barreda, C. Nicolas, J.B. Sirven, F. Ouf, J.L. Lacour, E. Robert, B. Safia, J. Yon, C. Miron, and O. Sublemontier. In-situ characterization of nanoparticle beams focused with an aerodynamic lens by laser-induced breakdown detection. *Nature - Scientific reports*, 5(15696), 2015.
-

-
- [155] X. Wang, F.E. Kruijs, and Peter H. McMurry. Aerodynamic focusing of nanoparticles: guidelines for designing aerodynamic lenses for nanoparticles. *Aerosol Science and Technology*, 39(7) :611–623, 2005.
- [156] O. Sublumontier, Y. Rousseau, Y. Leconte, C. Petit, E. Monsifrot, F. Perry, J.P. Gaston, P. Chapon, M. Stchakovsky, P. Briois, A. Billard, and F. Torrent. Des jets d'aérosols pour la synthèse de nanocomposites sur de grandes surfaces. *Congrès Français sur les Aérosols*, 2018.
- [157] TSI. Constant output atomizer, model 3076. *Manuel constructeur*.
- [158] TSI. Diffusion Dryer, model 3062-NC. *Manuel constructeur*.
- [159] X. Wang and P.H. McMurry. A design tool for aerodynamic lens systems. *Aerosol Science and Technology*, 40(5) :320–334, 2017.
- [160] X. Wang and P.H. McMurry. Instruction manual for the aerodynamic lens calculator. *Aerosol Science and Technology*, 40(5) :1–10, 2006.
- [161] M. Sharifzadeh, H. Afarideh, H. Khala, and R. Gholipour. A Matlab-based Monte Carlo algorithm for transport of gamma-rays in matter. *Monte Carlo Methods and Applications*, 21(1) :77–90, 2015.
- [162] W. Abdel-Rahman and E.B. Podgorsak. Energy transfer and energy absorption in photon interactions with matter revisited: a step-by-step illustrated approach. *Radiation Physics and Chemistry*, 79(5) :552–566, 2010.

Développement d'une méthode de type "velocity map imaging" pour la mesure de sections efficaces d'émission d'électrons par des molécules d'intérêt biologique en collision avec des ions

Ces dernières décennies, l'étude des collisions entre des ions et des molécules d'intérêt biologique a reçu un intérêt croissant en raison des applications en radiobiologie. L'objet de cette thèse est le développement d'un dispositif expérimental en faisceaux croisés spécialement dédié à la mesure de sections efficaces absolues totales, simplement et doublement différentielles (en énergie et/ou en angle) d'émission d'électrons par des molécules d'intérêt biologique. Les électrons émis dans un angle solide de 4π stéradians, suite à la collision entre l'ion projectile et la molécule cible, sont extraits et analysés en énergie et en angle par un spectromètre de type Velocity Map Imaging (VMI). Les sections efficaces absolues d'émission d'électrons sont déduites de la mesure de la densité du faisceau cible, de l'intensité du faisceau projectile et du recouvrement géométrique des deux faisceaux à l'aide d'une microbalance à cristal de quartz et d'un profileur de faisceau d'ions. Dans ce manuscrit, la description du dispositif expérimental, la méthode de détermination des sections efficaces ainsi que la caractérisation complète du dispositif sont détaillées. Les premières valeurs de sections efficaces absolues d'émission d'électrons par des molécules d'adénine et d'uracile en collision avec des ions C^{4+} (11,76 MeV) et N^{4+} (60 keV) obtenues avec ce nouveau dispositif sont également présentées et interprétées. La bonne concordance entre ces valeurs et les données expérimentales et théoriques existantes confirme le bon fonctionnement du dispositif expérimental.

Mots-clefs : Velocity Map Imaging (VMI), sections efficaces absolues d'émission d'électrons, interactions ions/molécules, biomolécules, rayonnements ionisants

Development of a velocity map imaging method to measure cross sections for ion-induced electron emission from biologically relevant molecules

In the last decades, ion collision with biologically relevant molecules has received increasing interest due to applications in radiation biology. The aim of this PhD is the development of a new crossed-beam experimental set-up dedicated to the measurement of absolute total, single and double differential (in angle and/or in energy) cross sections for electron emission from biologically relevant molecules. The electrons emitted in the 4π steradian solid angle after the collision between the projectile ion and the target molecule are extracted and analyzed by a Velocity Map Imaging (VMI) spectrometer. The cross sections are derived from measurements of the target beam density, the projectile beam intensity, and the beam overlap by means of a quartz crystal microbalance and an ion profiler. In this thesis, the experimental set-up description, the method used to determine the absolute cross sections and the complete characterization of the set-up are detailed. The first absolute cross sections for electron emission from adenine and uracil molecules upon collision with C^{4+} (11,76 MeV) and N^{4+} (60 keV) ions measured with this new set-up are also shown and discussed. The good agreement between these results and previous experimental and theoretical data confirms the correct functioning of the experimental set-up.

Keywords : Velocity Map Imaging (VMI), absolute electron emission cross sections, ion/molecule interactions, biologically relevant molecules, ionizing radiation

Laboratoire

Centre de recherche sur les Ions, les MATériaux et la Photonique, CIMAP-GANIL
Boulevard Henry Becquerel, BP 5133 14070 CAEN Cedex 5, France