
Stabilité d'agrégats multichargés : Application aux gouttelettes produites par électronébulisation et à l'étude de la forme de noyaux lourds

David Bonhommeau^{*†1} and Marie-Pierre Gaigeot²

¹Groupe de spectrométrie moléculaire et atmosphérique (GSMA) – Université de Reims - Champagne Ardenne, CNRS : UMR7331 – Campus Moulin de la Housse - BP 1039 51687 REIMS CEDEX 2, France

²Laboratoire Analyse et Modélisation pour la Biologie et l'Environnement (LAMBE - UMR 8587) – CEA, CNRS : UMR8587, Université d'Evry-Val d'Essonne – Bât. Mapertuis 1 étage bd François Mitterrand 91025 EVRY CEDEX, France

Résumé

L'ionisation par électronébulisation (ESI) est une technique largement répandue pour produire des gouttelettes chargées dans le cadre de l'étude de processus hétérogènes en physique atmosphérique et d'ensembles macromoléculaires en protéomique. Le cycle de vie de telles gouttelettes, de leur naissance au bout de la source ESI à leur fragmentation et à la détection finale des analytes par spectrométrie de masse, soulève plusieurs questions sur leur structure, condition de stabilité, et mécanisme de fragmentation. On se propose ici d'examiner ces questions au moyen de simulations de Monte Carlo et de dynamique moléculaire classiques réalisées à l'aide de programmes maison qui modélisent les gouttelettes comme des agrégats chargés dans une représentation gros grain. On discute d'abord la définition de la charge de Rayleigh, charge au-dessus de laquelle les gouttelettes deviennent instables, et on démontre sur de petits agrégats ($N \leq 1169$) que l'excès de charge peut être localisé à la surface de l'agrégat même si la plupart des particules chargées demeurent à l'intérieur de celui-ci. Les mécanismes de fragmentation de petits agrégats chargés ($N \leq 309$) mais aussi de plus gros agrégats ($N \sim 10\,000$) sont ensuite caractérisés au cours du temps par l'étude de paramètres de distorsion et des spectres de masse théoriques. Ces résultats sont reliés aux mécanismes de fragmentation postulés expérimentalement, à savoir succession de fissions (Charged Residue Model) ou désorptions ioniques (Ionic Evaporation Model). A côté des mécanismes de fragmentation, la déformation d'agrégats est aussi une question d'importance dans d'autres domaines de la physique tels que la physique nucléaire. Dans ce contexte, l'étude des distorsions de petits agrégats chargés ($208 \leq N \leq 234$) est utilisée pour étudier la forme des noyaux lourds correspondants et on montrera que des études en représentation gros grain peuvent ainsi s'avérer utiles pour retrouver simplement certains résultats de physique nucléaire.

Mots-Clés: agrégats chargés, Monte Carlo classique, dynamique moléculaire, ionisation par électronébulisation, distorsions

*Intervenant

†Auteur correspondant: david.bonhommeau@univ-reims.fr