

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

UNIVERSITE FERHAT ABBAS SETIF-1  
FACULTE DES SCIENCES  
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

# ***THESE***

Présentée pour l'obtention du diplôme de

**DOCTORAT D'UNIVERSITE**

**Spécialité : Physique**

*par*

***Khelladi Mohamed Fadil***

***Sujet***

**Etude de la double ionisation des bases de l'ADN par  
impact d'électrons**

*Soutenue publiquement le / 12/2016 devant la commission d'examen :*

Salim Houamer	Professeur U. Ferhat Abbas Sétif-1	Président
Abdelaziz Mansouri	Professeur U. Ferhat Abbas Sétif-1	Encadreur
Claude Dal Cappello	Professeur U. de Lorraine (France)	Co encadreur
Boghos Joulakian	Professeur U. de Lorraine (France)	Examineur
Kamel Bencheikh	Professeur U. Ferhat Abbas Sétif-1	Examineur
Jaques Langlois	Professeur émérite U. de Brest (France)	Examineur

# **REMERCIEMENTS**

*Ce travail a été effectué au sein du Laboratoire de Physique Quantique et Systèmes Dynamiques (LPQSD) de l'Université Ferhat Abbès de Sétif en collaboration avec le Laboratoire SRSMC de l'Université de Lorraine (France).*

*Je tiens tout d'abord à remercier vivement mon Directeur de thèse Monsieur Mansouri Abdelaziz, professeur à l'Université de Ferhat Abbès – Sétif1. Je le remercie de m'avoir proposé ce sujet de thèse et je lui exprime ma profonde gratitude pour m'avoir fait confiance, dirigé ce travail, encouragé, conseillé, le suivi et l'aide qu'il n'a cessé de m'apporter tout au long de ce travail de thèse de doctorat.*

*J'adresse mes plus vifs remerciements à mon Co-directeur de thèse, Monsieur Claude Dal Cappello, professeur à l'Université de Lorraine-France. Je le remercie pour l'hospitalité dont il a fait preuve envers moi lors des deux séjours que j'ai effectués dans son groupe, de m'avoir accueilli au sein de leur équipe, et j'ai eu le grand honneur de travailler avec lui.*

*Je voudrais aussi adresser mon respect et mes vifs remerciements à Monsieur le Professeur Houamer Salim qui a honoré ce travail en acceptant de présider le jury.*

*Mes remerciements vont également aux membres du jury Mr Boghos Joulakian professeur à l'Université de Lorraine (France), Mr Kamel Bencheikh professeur à l'Université de Ferhat Abbas (Sétif-1) et Mr Jacques Langlois professeur émérite à l'Université de Brest (France) qui m'ont fait l'honneur d'accepter d'être membres du jury.*

*Enfin, mes plus vifs remerciements sont aussi transmis à tous les membres des deux Laboratoires (LPQSD, SRSMC) et à tous ceux qui m'ont aidé à réaliser ce travail.*

# *DÉDICACES*

*Je dédie cette thèse à :*

*A ma très chère Mère*

*A la mémoire de mon cher Père*

*A ma très chère femme*

*A mes très chers enfants*

*A tous les membres de ma famille*

# **SOMMAIRE**

Introduction générale.....	1
Références.....	4

## **CHAPITRE I**

### Notions de base de la théorie des collisions

Introduction.....	6
I.1. Le processus d'ionisation.....	6
I.2. Diffusion par un potentiel.....	7
I.3. Etats stationnaires de diffusion.....	8
I.4. Calcul de la section efficace.....	9
I.5. Sections efficaces d'ionisation.....	10
I.5.1. Section efficace quintuplement différentielle.....	11
I.5.2. Section efficace quadruplement différentielle.....	12
I.5.3. Section efficace triplement différentielle.....	12
I.5.4. Section efficace doublement différentielle.....	12
I.5.5. Section efficace simplement différentielle.....	13
I.5.6. Section efficace totale.....	13
I.6. Equation intégrale de la diffusion : Fonction de Green.....	13
I.7. Approximation de Born.....	14
I.8. Conclusion.....	16
Références du chapitre I.....	17

## **CHAPITRE II**

### Mécanismes de la double ionisation

Introduction.....	18
II.1. Double ionisation (e, 3e).....	18
II.2. Section efficace quintuplement différentielle de (e, 3e).....	20
II.3. Mécanismes direct et indirect des expériences (e, 3e).....	21
II.3.1. Mécanismes directs.....	21
II.3.1.1. Mécanisme Shake off.....	24

II.3.1.2. Mécanisme à deux étapes "TS1".....	24
II.3.1.3. Mécanisme à deux étapes "TS2".....	25
II.3.2. Mécanismes indirects.....	26
(i) Excitation auto double ionisation.....	26
(ii) Excitation double auto ionisation.....	26
II.4. Conditions cinématiques et géométriques des réactions (e, 3e).....	26
II.4.1. Régime asymétrique.....	27
II.4.1.1. Géométrie coplanaire asymétrique.....	27
II.4.1.2. Géométrie non coplanaire asymétrique.....	27
II.4.2. Régime symétrique.....	28
II.4.2.1. Géométrie coplanaire symétrique.....	28
II.4.2.2. Géométrie non coplanaire symétrique.....	28
II.5. Modèles théoriques pour la double ionisation.....	28
II.5.1. La première approximation de Born "FBA".....	29
(i) Modèle des ondes planes.....	29
(ii) Modèle des ondes coulombiennes.....	29
(iii) Modèle BBK ou 3C.....	29
(iv) Modèle CCC "the Convergent Close Coupling approach".....	30
(v) Approximation de Born aux ondes distordues.....	30
II.5.2. Autres approximations.....	31
(i) Seconde approximation de Born "SBA".....	31
(ii) Modèle 6C.....	31
II.6. Conclusion.....	31
Références du chapitre II.....	33

## CHAPITRE III

Double ionisation des bases de l'ADN	
Introduction.....	36
III.1. Description de la molécule d'ADN.....	38
III.2. La double ionisation des bases de l'ADN : C, G, T et A.....	39
III.3. Description des états initial et final.....	42
III.4. Calcul de l'élément I «Les transformées de FOURIER-COULOMB».....	44
III.4.1. Calcul de $J(3d0)$ .....	44
III.4.2. Calcul de $J(11m0)$ .....	47
III.5. Conclusion.....	48
Références du chapitre III.....	50

## CHAPITRE IV

### Résultats et discussion

Introduction.....	53
Partie I : Double ionisation des bases de l'ADN à haute énergie.....	53
IV.1. Variation de la SEQD $\sigma^{(5)}(\theta_1, \theta_2)$ .....	53
IV.1.1. Variation de $\sigma^{(5)}(\theta_1, \theta_2)$ des bases de l'ADN.....	56
IV.1.2. Variation de la SEQD en fonction de $E_s$ et $\theta_d$ .....	65
Partie II : Double ionisation des bases de l'ADN à 500 eV.....	67
IV.2.1. Variation de $\sigma^{(5)}(\theta_1, \theta_2)$ des bases de l'ADN.....	67
IV.2.2. Variation de $\sigma^{(5)}(\theta_1, \theta_2)$ en fonction de $E_s$ et $\theta_d$ .....	75
IV.3. Conclusion.....	77
Références du chapitre IV.....	79
Conclusion générale.....	80

### Annexe A

# **Introduction générale**

## INTRODUCTION GENERALE

---

L'étude des processus d'ionisation représente un intérêt essentiel dans plusieurs domaines de la physique, tels que l'astrophysique (comprendre les différentes interactions et collisions qui interviennent lors de la formation des corps cosmologiques, dans les atmosphères planétaires et dans les milieux interstellaires) [1] ; en physique des plasmas, le processus fournit une interprétation des mécanismes de transfert d'énergie [2] et en biophysique, permet d'interpréter les processus de transfert de l'énergie d'irradiation aux tissus vivants [3]. Dans ce dernier domaine, l'étude de l'ionisation des molécules biologiques par impact électronique est une étape fondamentale pour comprendre les effets nocifs des radiations ionisantes sur les molécules biologiques et précisément sur les bases de l'ADN et l'ARN. Il est bien connu que les électrons de faible énergie (inférieure à 20 eV) résultant des réactions d'ionisations sont responsables des principaux dégâts causés par les radiations dans les systèmes biologiques [4, 5]. L'analyse des données numériques obtenues par cette étude, sous forme des sections efficaces différentielles, sont nécessaires pour la modélisation des processus d'ionisations des systèmes biologiques, en particulier pour le traitement du cancer [6].

Les premières expériences d'ionisation ont débuté par les travaux de Langmuir et Jones [7] et Rudberg [8]. Ces expériences ont été suivies par les travaux de Bethe [9] puis par ceux de Massey et Mohr [10] dans lesquels ils ont effectué les fondements des premiers calculs quantiques de la section efficace de diffusion dans le cadre de la première approximation de Born. Ainsi, deux types différents de modèles ont également contribué à l'évolution de la théorie, le premier type est basé sur la description asymptotique des électrons éjectés dans le continuum de l'ion résiduel (3C [11, 12], 6C [13] et C4FS [14]), alors que le second type prend en compte la description exacte d'interaction entre ces électrons pour les distances proches (CCC [15], le modèle de J-matrix [16]).

Dans les expériences d'ionisation (soit simple (e, 2e) ou double (e, 3e)) la détection des électrons émergents est faite en coïncidence, l'analyse des états finaux de ces électrons est effectuée en énergie et en direction. La grandeur physique mesurable dans cette étude est la section efficace différentielle qui contient des informations nécessaires et précises sur les mécanismes d'ionisation. Cependant, le taux de réaction détecté en coïncidence dans les expériences (e, 3e) reste toujours faible, de ce fait le groupe d'Orsay a proposé un nouveau type d'expériences nommé (e, 3-1e) où la détection en coïncidence est faite sur deux électrons parmi les trois. Les premières expériences (e, 3e) ont été réalisées sur des cibles de gaz rare par le groupe d'Orsay [17-25], grâce à ces expériences C. Dal Cappello et Le Rouzo [26] ont effectués les premiers calculs de la section efficace multi-différentielle dans le cadre de la première approximation de Born. Les différents mécanismes responsables de la double ionisation sont le mécanisme Shake-Off (SO) en une étape examiné par Byron et al. [27] et Tweed [28], et deux autres mécanismes en deux étapes nommés : Two-step 1 (TS1) peut contribuer dans le cas de la première



## INTRODUCTION GENERALE

---

approximation de Born [29], et Two-step 2 (TS2) qui ne peut apparaître que dans la seconde approximation de Born [30].

Notre objectif principal dans ce mémoire consiste en l'étude théorique de la double ionisation des bases de l'ADN par impact d'électron. Le choix de cette cible est dû à son importance dans la compréhension de l'interaction particule chargée-tissu vivant. Cette étude est basée sur l'évaluation des sections efficaces quintuplement et quadruplement différentielles, contenant les informations les plus complètes et précises sur le processus d'ionisation, en utilisant la première approximation de Born. Nous utilisons dans nos calculs, pour décrire la cible, les fonctions d'ondes moléculaires multicentriques obtenues à partir du programme Gaussian, ces dernières sont converties sous une forme d'un développement monocentrique ; et la fonction moléculaire est écrite à la fin sous forme de combinaisons linéaires des fonctions de type Slater [31-32].

Les électrons incident et diffusé sont représentés par une onde plane tandis que les électrons éjectés sont décrits par des fonctions d'onde de Coulomb. Un facteur de corrélation qui tient compte de l'interaction entre les deux électrons éjectés est inclus dans nos calculs. Jusqu'à présent, il n'y a pas de calcul et pas de données expérimentales pour les comparer à nos résultats, pour cette raison nous calculons les sections efficaces en utilisant les conditions expérimentales du groupe d'Orsay pour la double ionisation de petites molécules ( $e, 3e$ ) et ( $e, 3-1e$ ), pour des énergies voisines de 600 eV et 5000 eV de l'électron incident, et 12 eV et 37 eV pour les électrons éjectés et pour un angle de diffusion  $\theta_s = -6^\circ$ .

On trouve peu d'études sur la double ionisation des molécules, ceci est dû à la complexité de la description de l'état initial de la cible et des électrons émergents. Parmi ces rares études nous citons : les calculs de Motassim et Joulakian [35] en utilisant le modèle TCC dans le contexte de la première approximation de Born pour étudier la double ionisation de la molécule d'hydrogène, A. Mansouri et al. [36] ont utilisé un modèle à deux ondes coulombiennes et le facteur de Gamow (2CWG) dans le contexte de la seconde approximation de Born, et d'autres calculs récents sur la section efficace multiplement différentielle pour la double ionisation de molécules ont été effectués par [37] et [38].

Le présent travail se compose de quatre chapitres et est organisé comme suit :

Le premier chapitre est un rappel de quelques notions générales sur la théorie de la diffusion. Puis nous introduisons une description du processus de collision et des notions sur le calcul des sections efficaces multiplement différentielles. Nous présentons par la suite l'équation intégrale de la diffusion, la fonction de Green et l'approximation de Born.

Nous exposons dans le deuxième chapitre, une description du processus de double ionisation en présentant également les différentes sections efficaces multiplement différentielles associées. Puis, les différents mécanismes directs et indirects ainsi que les conditions cinématiques et géométriques de la

## INTRODUCTION GENERALE

---

réaction (e,3e). Nous rappelons par la suite les différents modèles théoriques utilisés pour l'étude de la double ionisation dans le contexte de l'approximation de Born.

Le troisième chapitre est consacré à l'application des modèles théoriques choisis dans cette étude (2CWWM et 2CWG) appliqués au processus de la double ionisation. Les sections efficaces quadruplement et quintuplement différentielles, et enfin, les fonctions d'ondes des deux états initial et final du système en réaction (e, 3e) sont présentées.

Au quatrième chapitre nous présentons les résultats obtenus à partir des modèles théoriques utilisés et dans deux domaines d'énergie différents. Ce chapitre est réparti en deux parties, la double ionisation des bases de l'ADN à haute énergie et la double ionisation des bases de l'ADN à une énergie plus faible. Les sections efficaces quintuplement et quadruplement différentielles sont exposées et discutées. Les différents mécanismes réactionnels Shake-Off (SO) et le mécanisme en deux étapes (TS1) de la double ionisation sont identifiés et interprétés. Nous terminons par une conclusion contenant les résultats les plus importants obtenus dans notre travail.

# INTRODUCTION GENERALE

---

## Références

- [1] U Fano, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* 13, 1 (1963).
- [2] H. A. Bethe, *Ann. Phys.* 5, 325 (1930).
- [3] M Inokuti, *Rev. Mod. Phys.* 43, 297 (1971).
- [4] L. Sanche, *Eur. Phys. J. D* 35, 367 (2005).
- [5] F. Martin, P. D. Burrow, Z. Cai, P. Cloutier, D. Hinting, and L. Sanche, *Phys. Lett.* 93, 068101 (2004).
- [6] T Nakano, M Suzuki, A Abe, Y Suzuki, S Morita, J Mizoe, S Sato, T Miyamoto, T Kamada, H Kato and H Tsujii, *Cancer J. Sci. Am.* 5 (6) 369 (1999).
- [7] J. J. Langmuir and T. Jones, *Phys. Rev.* 31, 357 (1928).
- [8] E. Rudberg, *Proc. Roy. Soc. A* 129, 628 (1930).
- [9] H. A. Bethe, *Ann. Phys. Lpz* 5, 325 (1930).
- [10] H. S. W. Massey and C. B. O. Mohr, *Proc. Roy. Soc. A* 140, 613 (1933).
- [11] B Joulakian, C Dal Cappello et M Brauner, *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* 25 2863 (1992).
- [12] C Dal Cappello, H Hda et A C Roy, *Phys. Rev. A* 51, 3735(1995).
- [13] A W Malcherek, et J S Briggs, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 30, 4419 (1997).
- [14] J Berakdar, *Phys. Rev. A* 53, 2281(1996).
- [15] A Kheifets, I Bray, A Lahmam-Bennani, A Duguet et I Taouil, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 32, 5047 (1999).
- [16] S A Zaytsev, V A Knyr, Yu V Popov, *Phys. At. Nucl.* 70 676 (2007).
- [17] B. El Marji, C. Schröter, A. Duguet, A. Lahmam Bennani, M. Lecas and L. Spielberger, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 30, 3677 (1997).
- [18] A. Lahmam Bennani, C. Dupré and A. Duguet, *Phys. Rev. Lett.* 63, 1582 (1989).
- [19] A. Duguet, C. Dupré and A. Lahmam Bennani, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 24, 675 (1991).
- [20] C. C. Jia, A. Lahmam Bennani, A. Duguet, L. Avaldi, M. Lecas and C. Dal Cappello, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 35, 1103 (2002).
- [21] C. Schröter, B. El. Marji, A. Lahmam Bennani, A. Duguet, M. Lecas and L. Spielberger, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 31, 131 (1998).
- [22] A. Lahmam Bennani, A. Duguet, A. M. Grisogono and M. Lecas, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 25, 2873 (1992).
- [23] L. K. Jha, K. Santosh, O. P. Roy and P. Kumar, *Phys. Scr.* 77, 015304 (2008).
- [24] A. Lahmam Bennani, A. Duguet, M. N. Gaboriaud, I. Taouil, M. Lecas, A. Kheifets, J. Berakdar and C. Dal Cappello, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 34, 3073 (2001).

## INTRODUCTION GENERALE

---

- [25] A. Lahmam Bennani, A. Duguet, C. Dal Cappello, H. Nebdi and B. Piraux, *Phys. Rev. A* 67, 010701 (2003).
- [26] C Dal Cappello et H Le Rouzo, *Phys. Rev. A* 43, 1395 (1991).
- [27] F. W. Jr Byron and C. J Joachain, *Phys. Rev.* 164, 1 (1967).
- [28] R. J Tweed, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 6, 259 (1973).
- [29] J. A. Carlson and M. O. Krause, *Phys. Rev.* 140, 1057 (1965).
- [30] C Dal Cappello, R El Mkhantere, P.A Hervieux, *Phys Rev. A* 57, 693 (1998).
- [31] M. J. Frisch et al., *Gaussian 03, Revision B.05*, Gaussian, Inc., Wallingford CT,(2004).
- [32] H. Hafied, A. Eschenbrenner, C. Champion, M.F. Ruiz-Lopez, C. Dal Cappello, I. Charpentier and P.A. Hervieux, *Chem. Phys. Lett.* 439, 55 (2007).
- [33] K. Kaufmann, W. Baumeister and M. Jungen, *J. Phys. B* 22, 2223 (1989).
- [34] C Dal Cappello et al. *Phys. Rev. A.* 84 032711(2011).
- [35] A Motassim and B Joulakian, *Phys. Scripta* 60, 000 (1999).
- [36] A Mansouri, C Dal Cappello, S Houamer, I Charpentier et A Lahmam Bennani, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 36, 1203 (2004).
- [37] V Serov, V Derbov, B Joulakian et S Vinitzky, *Phys. Rev. A* 75, 012715 (2007).
- [38] O Chuluunbaatar, B Joulakian, IV Puzynin, Kh Tsookhuuet S I Vinitzky, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 41, 015204 (2008).

# **Chapitre I**

## **Notions de base de la théorie des collisions**

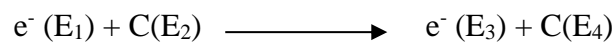
# CHAPITRE I

## Introduction

Ce premier chapitre est consacré à la présentation des notions fondamentales de la théorie des collisions et des outils mathématiques nécessaires pour notre étude dans les chapitres suivants. Après avoir rappelé ces notions, nous calculons la section efficace quintuplement différentielle, quantité fondamentale pour la description de la double ionisation. Nous évoquerons ensuite l'équation générale de la diffusion, ainsi que l'approximation de Born utile pour la description des mécanismes de la double ionisation. Dans la suite du manuscrit, le système d'unités atomiques sera toujours utilisé dans les expressions mathématiques.

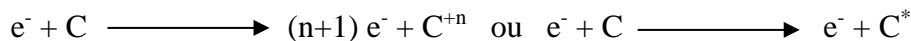
Nous étudions la collision d'un électron projectile avec une cible, atomique ou moléculaire, considérée au repos. Le processus de collision peut être :

(i) **Elastique** : l'état interne de la cible reste inchangé durant la collision. Dans ce cas, il y a conservation de l'énergie cinétique mais la répartition peut être modifiée sur les deux particules :



où  $(E_1, E_2)$  et  $(E_3, E_4)$  sont les énergies cinétiques de l'électron et de la cible, respectivement avant et après la collision.

(ii) **Inélastique** : l'état interne de la cible subit un changement après la collision, soit par excitation ou par ionisation. Dans ce type de collision, et contrairement à la collision élastique, il n'y a pas de conservation de l'énergie cinétique :



où  $e^{-}$  et  $C$  (cible) sont les particules dans la voie d'entrée,  $C^{+n}$  (ion) ou  $C^{*}$  (cible excitée) sont celles dans la voie de sortie.

La cible moléculaire dans cette étude de la double ionisation est considérée immobile et de masse  $M$  très grande devant celle du projectile  $m$ , de telle sorte que le centre de masse du système soit le centre diffuseur (la cible).

## I.1. Le processus d'ionisation

Le processus d'ionisation d'une cible par impact électronique est une transformation qui consiste à l'arrachement d'un ou de plusieurs électrons du cortège électronique de la cible considérée comme immobile (ionisation simple ou multiple). C'est un processus de collisions inélastiques, la structure interne de la cible subit un changement. L'ionisation nécessite une énergie suffisante transférée de l'électron incident à la cible pour arracher des électrons de cette dernière. On trouve différents types d'ionisations, qualitativement : selon le type de la cible soit atomique ou moléculaire, et suivant l'état des

# CHAPITRE I

---

électrons arrachés en couches internes ou externes, ou quantitativement : simple s'il y a extraction d'un seul électron de la cible ou multiple si on a extraction de plusieurs électrons.

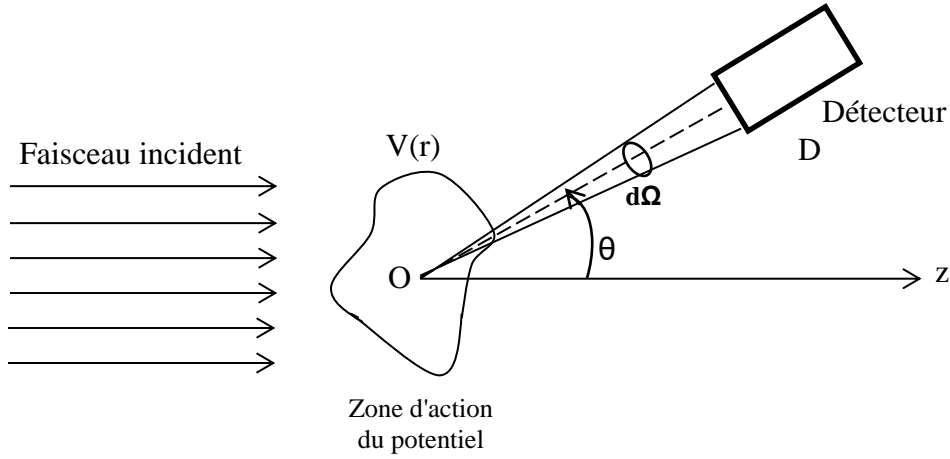
Dans les expériences d'ionisation par impact électronique, la détection des électrons dans la voie de sortie avec des valeurs prédéterminées de leurs angles et énergies est faite simultanément. Ce type de détection permet de mesurer les sections efficaces multiplement différentielles. L'étude théorique des processus d'ionisation par impact d'électrons est très compliquée car l'analyse de la dynamique des systèmes entrants en collision nécessite l'introduction de plusieurs paramètres liés au nombre de corps en interaction. En plus, les sections efficaces calculées sont obtenues à partir du comportement asymptotique de l'équation stationnaire de Schrödinger par l'intermédiaire de l'expression de l'amplitude de diffusion, d'où la difficulté de trouver des résultats exacts du phénomène.

## I.2. Diffusion par un potentiel

Nous étudions la diffusion d'un projectile par une cible de masses  $m$  et  $M$  respectivement, qui interagit avec un potentiel  $V(\vec{r})$ . En passant dans un référentiel du centre de masse, la diffusion est étudiée à travers une particule fictive de masse réduite  $\mu = \frac{mM}{m+M}$  et d'énergie  $E = \frac{p^2}{2\mu} = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu}$  par un

centre fixe. Le vecteur  $\vec{k}$  désigne le vecteur d'onde de la particule où  $|\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}$ ,  $\lambda$  étant sa longueur d'onde. Dans la suite de cette étude, on note par  $\vec{k}_i$ ,  $\vec{k}_d$ ,  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  respectivement les vecteurs d'ondes des particules incidente, diffusée et les deux particules éjectées.

Expérimentalement, l'analyse d'une réaction d'ionisation est effectuée par l'intermédiaire des détecteurs mobiles aux voies d'entrée et de sortie dans le but de compter et de détecter le nombre des particules incidentes et émergentes. Les particules incidentes sont soit des électrons ou des positrons d'énergies déterminées envoyées sur des cibles sous forme d'un gaz à faible pression d'atomes ou d'ions ou de molécules. Les particules émergentes sont éjectées et diffusées selon certains mécanismes qui dépendent de l'interaction projectile-cible.



**Figure I.1 :** Loin de la zone d'action du potentiel on dispose un détecteur  $D$  mesurant le nombre de particules diffusées  $dn$  par unité de temps dans l'angle solide  $d\Omega$ , centré autour de la direction d'angles polaires  $\theta$  et  $\varphi$ . La relation de proportionnalité entre le nombre des particule incidentes,  $dn$  et  $d\Omega$  s'exprime par l'intermédiaire de la section efficace de la diffusion  $\sigma(\theta, \varphi)$ .

### I.3. Etats stationnaires de diffusion

Lorsque le potentiel d'interaction est indépendant du temps,  $V(r,t) = V(r)$ , l'équation de Schrödinger décrivant l'évolution d'une particule dans ce potentiel admet des solutions d'énergies  $E$  bien définies (états stationnaires) :

$$\Psi(r,t) = \psi(\vec{k}, \vec{r}) e^{-iEt/\hbar} \quad (\text{I-1})$$

où  $\psi(\vec{k}, \vec{r})$  est solution de l'équation de Schrödinger indépendante du temps :

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2\mu} \Delta + V(r) \right] \psi(\vec{k}, \vec{r}) = E \psi(\vec{k}, \vec{r}) \quad (\text{I-2})$$

L'énergie  $E$  représente l'énergie cinétique de la particule incidente avant d'entrer dans la zone d'action du potentiel. Nous poserons :

$$V(r) = \frac{\hbar^2}{2\mu} U(r)$$

alors (I-2) s'écrit :

$$[\Delta + k^2 - U(r)] \psi(\vec{k}, \vec{r}) = 0 \quad (\text{I-3})$$

L'état stationnaire de diffusion  $\psi(\vec{k}, \vec{r})$  est par définition la solution de l'équation (I-3) dont le comportement asymptotique est une superposition de deux ondes donnée par la forme suivante [1] :

$$\psi(\vec{k}, \vec{r}) \approx_{r \rightarrow \infty} e^{ikz} + f_k(\theta, \varphi) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (\text{I-4})$$

tel que



# CHAPITRE I

$$\psi_d(\vec{k}, \vec{r}) = f_k(\theta, \varphi) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (\text{I-5})$$

est la fonction d'onde diffusée dans la direction  $(\theta, \varphi)$ . Le terme  $e^{ikz}$  représente la fonction d'une onde plane (pour des temps loin avant le moment de l'interaction, la particule est considérée comme libre). La fonction  $f_k(\theta, \varphi)$  est appelée amplitude de diffusion, grandeur dépendante de  $(\theta, \varphi)$  car la diffusion est non isotrope et dépend aussi du potentiel  $V(r)$ .

## I.4. Calcul de la section efficace

Considérons un courant incident de particules mono-énergétiques  $J_i$  sur une cible, ce courant représente le nombre de particules par unité de temps et par unité de surface normale à la direction d'incidence. L'expression de la densité de courant  $J(r)$  associée à une fonction d'onde  $\varphi(r)$  est définie par :

$$|J(r)| = \frac{-i\hbar}{2\mu} [\varphi^*(r) \nabla \varphi(r) - \varphi(r) \nabla \varphi^*(r)] \quad (\text{I-6})$$

Pour les particules incidentes (décrites par des ondes planes  $e^{ikz}$ ), la densité de courant est donnée par :

$$|J_i| = \frac{\hbar k}{\mu} \quad (\text{I-7})$$

et pour les particules diffusées ( $\psi_d$ ) la densité de courant s'écrit :

$$|J_d|_r = \frac{-i\hbar}{2\mu} [\psi_d^* \nabla \psi_d - \psi_d \nabla \psi_d^*] = \frac{\hbar k |f_k(\theta, \varphi)|^2}{\mu r^2} \quad (\text{I-8})$$

$$|J_d|_\theta = \frac{\hbar}{\mu r^3} \text{Re} \left[ \frac{1}{i} f_k^*(\theta, \varphi) \frac{\partial}{\partial \theta} f_k(\theta, \varphi) \right] \quad (\text{I-9})$$

$$|J_d|_\varphi = \frac{\hbar}{\mu r^3 \sin \theta} \text{Re} \left[ \frac{1}{i} f_k^*(\theta, \varphi) \frac{\partial}{\partial \varphi} f_k(\theta, \varphi) \right] \quad (\text{I-10})$$

Comme  $r$  est grand,  $|J_d|_\theta$  et  $|J_d|_\varphi$  sont négligeables devant  $|J_d|_r$ , et le courant diffusé est pratiquement radial.

Une particule projectile de nature quantique envoyée sur une cible n'a qu'une certaine probabilité d'interagir avec les électrons de cette cible. Soit  $dn$  le nombre de particules diffusées dans la direction  $(\theta, \varphi)$  par unité de temps, ce nombre est proportionnel au flux  $F_i$  de particules incidentes et à  $d\Omega$  l'angle solide de détection.

$$\text{Le rapport : } \sigma(\theta, \varphi) = dn / (F_i d\Omega) \quad (\text{I-11})$$

appelée section efficace différentielle de diffusion dans la direction  $(\theta, \varphi)$ , est une surface imaginaire. En intégrant sur tout l'espace on trouve la section efficace totale de diffusion  $\sigma_{tot}$  :

# CHAPITRE I

$$\sigma_{tot} = \int \sigma(\theta, \varphi) d\Omega = \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \sigma(\theta, \varphi) \sin \theta d\theta d\varphi \quad (I-12)$$

Le flux  $F_i$  est le nombre de particules incidentes par unité de surface et par unité de temps. Ce nombre est proportionnel au flux du vecteur  $J_i$  à travers cette surface,

$$F_i = |J_i| = \frac{\hbar k_i}{\mu} \quad (I-13)$$

Le nombre  $dn$ , défini ci-dessus, est proportionnel au flux du vecteur  $J_d$  à travers la surface  $r^2 d\Omega$ , alors :

$$dn = J_d r^2 d\Omega = \frac{\hbar k |f_k(\theta, \varphi)|^2}{\mu} d\Omega \quad (I-14)$$

En reportant les équations (I-13) et (I-14) dans la formule (I-11) on obtient :

$$\sigma(\theta, \varphi) = |f_k(\theta, \varphi)|^2 \quad (I-15)$$

Donc, pour un processus de collision élastique la section efficace différentielle est définie par le carré du module de l'amplitude de diffusion. Ainsi, pour la collision inélastique  $\sigma(\theta, \varphi)$  s'écrit sous la forme [2] :

$$\sigma(\theta, \varphi) = \frac{k_d}{k_i} |f_k(\theta, \varphi)|^2 \quad (I-16)$$

où  $k_i, k_d$  sont les moments de la particule incident et diffusée.

## I.5. Sections efficaces d'ionisation

Le calcul des sections efficaces de double ionisation par impact d'électron peut être évalué en fonction du carré de l'amplitude de transition  $T_{fi}$  définie par :

$$T_{fi} = \frac{1}{2\pi} \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \varphi(\vec{k}_d, \vec{r}_0) | V | \varphi(\vec{k}_i, \vec{r}_0) \psi_i(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N) \rangle \quad (I-17)$$

L'amplitude  $T_{fi}$  contient à la fois les fonctions d'ondes de la voie d'entrée et de la voie de sortie lors de la diffusion par le potentiel d'interaction  $V$  défini par :

$$V = \frac{-z}{r_0} + \sum_{i=1}^N \frac{1}{|\vec{r}_{0i}|} ; \quad \vec{r}_{0i} = \vec{r}_0 - \vec{r}_i, \quad i = 1, \dots, N \quad (I-18)$$

La formule reliant le taux de transition et la section efficace différentielle de diffusion est donnée par :

$$d\sigma = \frac{(2\pi)^4}{k_i} \delta(E_i - E_f) |T_{fi}|^2 d\vec{k}_1 d\vec{k}_2 d\vec{k}_d \quad (I-19)$$

Le système en collision ionisante, étudié dans les chapitres suivants, est décrit dans son état initial par le produit des fonctions d'onde de l'électron incident et de la cible  $\varphi(\vec{k}_i, \vec{r}_0)$  et  $\psi_i(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)$  respectivement,

# CHAPITRE I

alors que l'état final est représenté par le produit de la fonction d'onde de l'électron diffusé  $\varphi(\vec{k}_d, \vec{r}_0)$  et celles des électrons éjectés  $\psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2)$ .

La section efficace totale d'ionisation est obtenue en intégrant sur toutes les variables énergétique et angulaires intervenant dans la section efficace différentielle.

Dans un processus de double ionisation connu par les réactions (e, 3e), l'électron incident est diffusé après collision avec la cible avec un moment  $\vec{k}_d$  et une énergie  $E_d$  dans une direction définie par les angles  $(\theta_d, \varphi_d)$ . Cette diffusion est accompagnée de l'éjection de deux électrons de la cible si l'énergie transférée à la cible est supérieure au potentiel d'ionisation. Ces deux électrons émergents ont des moments  $\vec{k}_1, \vec{k}_2$  et des énergies  $E_1$  et  $E_2$  dans des directions  $\vec{r}_1, \vec{r}_2$  déterminés par les angles  $(\theta_1, \varphi_1), (\theta_2, \varphi_2)$  respectivement. Le processus (e, 3e) est dit coplanaire, si les moments des électrons dans les voies d'entrée et de sortie sont dans le même plan.

Pour l'ionisation d'une cible à plusieurs électrons, une approximation dite de cœur gelé (frozen core approximation) est utilisée [3]. Cette approche consiste à ne retenir que les électrons de la cible qui seront éjectés, appelés actifs et comme si l'électron incident ne verra sur son chemin de collision que ces électrons actifs et le noyau. Alors, selon cette approximation, l'expression (I-18) du potentiel d'interaction se réduit à :

$$V = \frac{-2}{r_0} + \sum_{i=1}^2 \frac{1}{|\vec{r}_{0i}|} \quad (\text{I-20})$$

et la fonction d'onde de la cible initiale devient :

$$|\psi_i(\vec{r}_i, \dots, \vec{r}_N)\rangle = |\psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\rangle \quad (\text{I-21})$$

## I.5.1. Section efficace quintuplement différentielle

Le processus (e, 3e) se réfère principalement aux expériences dans lesquelles trois électrons sont détectés en coïncidence dans l'état final [4] (un électron diffusé, deux électrons éjectés). Cette détection en coïncidence conduit à la mesure de la section quintuplement différentielle  $\sigma^{(5)}$  définie par :

$$S.E.Q.D = \sigma^{(5)} = \frac{d^5 \sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} \mu^2 k_d k_1 k_2 |T_{fi}|^2 \quad (\text{I-22})$$

La masse du centre de masse du système cible-projectile  $\mu$  est défini par :  $\mu = m_p m_c / (m_p + m_c)$ . Dans ce cas la masse  $m_p = m_e \ll m_c$ , et en utilisant le système d'unité atomique,  $\mu = 1$ .

La grandeur physique  $\sigma^{(5)}$  contient toute l'information nécessaire pour la description précise du processus de la double ionisation. Mais l'obtention et la mesure de cette quantité importante reste difficile à effectuer. Du coté expérimental, la technique de détection en triple coïncidence [4-6] a deux difficultés

# CHAPITRE I

---

principales : les très faibles valeurs de sections efficaces différentielles d'ordre 5, et le mauvais rapport signal sur bruit qui est dû aux interférences qui proviennent du processus de simple ionisation.

## I.5.2. Section efficace quadruplement différentielle

L'intégration de la section efficace quintuplement différentielle  $\sigma^{(5)}$  sur soit l'un des angles solides ou sur l'une des énergies des deux électrons éjectés permet d'obtenir la section efficace quatre fois différentielle **S.E.Q<sub>d</sub>.D** qui correspond à une expérience de collision dite (*e, 3-1e*). Dans ces expériences la détection en coïncidence est arbitraire de l'une de ces trois paires : (*e<sub>d</sub>, e<sub>1</sub>*), (*e<sub>d</sub>, e<sub>2</sub>*), (*e<sub>1</sub>, e<sub>2</sub>*) où l'un des électrons n'est pas détecté dans l'état final (*e<sub>1</sub>*, *e<sub>2</sub>* et *e<sub>d</sub>* désignent les électrons émergents : premier et deuxième électron éjecté et l'électron diffusé respectivement). Ce type d'expériences (*e, 3-1e*) est intermédiaire entre les expériences (*e, 2e*) et (*e, 3e*) et fournit plus d'événements que dans le cas des (*e, 3e*).

Si le détecteur dans une expérience de (*e, 3-1e*) est réglé sur une valeur fixe de *E<sub>1</sub>* (énergie du premier électron éjecté), on peut donc obtenir des informations sur la **S.E.Q<sub>d</sub>.D** donnée théoriquement par la relation suivante :

$$S.E.Q_d.D = \frac{d^4 \sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1} = \frac{(2\pi)^4 k_1}{k_i} \int k_d dE_d k_2 dE_2 |T_{fi}|^2 \quad (I-23)$$

## I.5.3. Section efficace triplement différentielle

La section efficace triplement différentielle **S.E.T.D** est l'intégration sur l'un de dix paramètres possibles de la **S.E.Q<sub>d</sub>.D** (eq.I-23). On peut par exemple calculer la **S.E.T.D** dans la direction d'éjection des deux électrons  $d\Omega_1(\theta_1, \varphi_1)$  et  $d\Omega_2(\theta_2, \varphi_2)$  à l'état final utilisant la relation suivante :

$$S.E.T.D = \frac{d^3 \sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} \int k_d dE_d k_1 dE_1 k_2 dE_2 |T_{fi}|^2 \quad (I-24)$$

## I.5.4. Section efficace doublement différentielle

La section efficace doublement différentielle **S.E.D.D** est mesurée par différentes manières, en utilisant des paramètres cinématiques connus préalablement. On peut par exemple calculer la **S.E.D.D** en fonction de la distribution en énergie et en angle des électrons émergents, elle sera donnée par :

$$\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE}$$

# CHAPITRE I

---

## I.5.5. Section efficace simplement différentielle

La section efficace simplement différentielle *S.E.D.S* peut être déduite par intégration de la *S.E.D.D*. On peut par exemple calculer la *S.E.D.S* qui correspond à la détection de l'électron diffusé d'impulsion  $\vec{k}_d$  et dans la direction  $d\Omega_d$  en utilisant la relation suivante :  $S.E.D.S = d\sigma / d\Omega_d$ . On peut également calculer la *S.E.D.S* en énergie pour explorer l'influence de la distribution énergétique de l'un des deux électrons éjectés. Dans le cas où par exemple le premier électron éjecté d'énergie  $E_1$  est détecté, alors on a :  $S.E.D.S = d\sigma / dE_1$ .

## I.5.6. Section efficace totale

La section efficace totale *S.E.T* est calculée en intégrant sur tous les paramètres cinématiques qui caractérisent ce phénomène d'ionisation, et on la note :  $SET = \sigma_T$ . Les sections efficaces différentielles donnent plus d'informations que la section totale, elles sont indépendantes des paramètres cinématiques : énergie et /ou en direction.

## I.6. Equation intégrale de la diffusion : Fonction de Green

On définit la fonction de Green  $G(\vec{r})$  par la solution de l'équation différentielle suivante :

$$[\Delta + k^2]G(\vec{r}) = \delta(\vec{r}) \quad (I-25)$$

$\delta(\vec{r})$  est la fonction de Dirac. Alors, toute fonction  $\psi(\vec{r})$  qui vérifie [7] :

$$\psi(\vec{r}) = \psi_0(\vec{r}) + \int d^3r' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') \psi(\vec{r}') \quad (I-26)$$

où  $\psi_0(\vec{r})$  satisfait à l'équation différentielle (I-3) et vérifie l'équation suivante :

$$[\Delta + k^2]\psi_0(\vec{r}) = 0 \quad (I-27)$$

L'application de l'opérateur  $(\Delta + k^2)$  sur les deux membres de (I-26), compte tenu de (I-27), donne :

$$(\Delta + k^2)\psi(\vec{r}) = (\Delta + k^2) \int d^3r' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') \psi(\vec{r}') \quad (I-28)$$

et en utilisant (I-25) on obtient :

$$(\Delta + k^2)\psi(\vec{r}) = \int d^3r' \delta(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') \psi(\vec{r}') = U(\vec{r}) \psi(\vec{r}) \quad (I-29)$$

La solution de l'équation (I-25) s'écrit :

$$G_{\pm}(\vec{r}) = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{\pm i\vec{k} \cdot \vec{r}}}{|\vec{r}|} \quad (I-30)$$

car

# CHAPITRE I

$$\Delta G_{\pm}(\vec{r}) = e^{\pm i\vec{k}\cdot\vec{r}} \Delta\left(-\frac{1}{4\pi r}\right) - \frac{1}{4\pi r} \Delta\left(e^{\pm i\vec{k}\cdot\vec{r}}\right) + 2\left[\nabla\left(-\frac{1}{4\pi r}\right)\right] \cdot \left[\nabla e^{\pm i\vec{k}\cdot\vec{r}}\right] \quad (\text{I-31})$$

Après simplification on retrouve :

$$\Delta G_{\pm}(\vec{r}) = -k^2 G_{\pm}(\vec{r}) + \delta(\vec{r}) \quad (\text{I-32})$$

$G_+$  et  $G_-$  sont appelées respectivement fonction de Green sortante et entrante.

Ces calculs sont effectués pour des grandes distances  $r$  du centre diffuseur. Les distances finies  $r'$  sont de l'ordre de la portée du potentiel  $U$  et sont très petites devant  $r$  ( $r' \ll r$ ). On peut donc développer la quantité suivante :

$$|\vec{r} - \vec{r}'| = \sqrt{r^2 + r'^2 - 2\vec{r}\cdot\vec{r}'} = r\sqrt{1 + \frac{r'^2}{r^2} - 2\frac{\vec{r}\cdot\vec{r}'}{r^2}} \approx r - \vec{u}\cdot\vec{r}' + O(1/r)$$

$\vec{u}$  étant le vecteur unitaire suivant  $\vec{r}$ . Avec cette approximation (I-30) devient :

$$G_{\pm}(\vec{r} - \vec{r}') = -\frac{1}{4\pi} \frac{e^{\pm ikr}}{r} e^{\mp i\vec{k}_d\cdot\vec{r}'} \quad (\text{I-33})$$

ce qui conduit à une formule asymptotique de  $\psi(\vec{k}, \vec{r})$  similaire à l'équation (I-4). Alors, on peut choisir  $\psi_0(\vec{r})$  comme une onde plane incidente  $e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$  et  $G(r)$  doit être une fonction de Green sortante  $G_+(\vec{r})$ . Ainsi, en utilisant l'équation (I-26) on obtient la fonction d'onde exacte à grande distance, c'est l'équation intégrale de diffusion :

$$\psi(\vec{k}, \vec{r}) \approx_{r \rightarrow \infty} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} - \frac{1}{4\pi} \frac{e^{ikr}}{r} \int d\vec{r}' e^{-i\vec{k}_d\cdot\vec{r}'} U(\vec{r}') \psi(\vec{k}, \vec{r}') \quad (\text{I-34})$$

En utilisant (I-4), on peut donc écrire l'amplitude de diffusion sous la forme suivante :

$$f_k(\theta, \varphi) = -\frac{1}{4\pi} \int d\vec{r}' e^{-i\vec{k}_d\cdot\vec{r}'} U(\vec{r}') \psi(\vec{k}, \vec{r}') \quad (\text{I-35})$$

La section efficace différentielle de diffusion est aisément obtenue à partir de cette dernière expression et de (I-16) :

$$\sigma(\theta, \varphi) = \frac{\mu^2 k_d}{4\pi \hbar^2 k_i} \left| \int d\vec{r}' e^{-i\vec{k}_d\cdot\vec{r}'} V(\vec{r}') \psi(\vec{k}, \vec{r}') \right|^2 \quad (\text{I-36})$$

## I.7. Approximation de Born

L'approximation de Born [8,9] est l'une des approximations les plus utilisées pour le calcul des sections efficaces. Cette approximation consiste à chercher la solution de l'équation intégrale de la diffusion par itération, en supposant que le potentiel diffuseur est traité comme une perturbation, pour faire apparaître la série de Born. On peut donc réécrire l'équation intégrale de la diffusion comme :

## CHAPITRE I

$$\psi(\vec{r}) = \psi_0(\vec{r}) + \int d^3r' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') \psi(\vec{r}') \quad (\text{I-37})$$

En effectuant les substitutions de variables d'intégration :  $\vec{r} \rightarrow \vec{r}'$ ;  $\vec{r}' \rightarrow \vec{r}''$ , donc on peut écrire :

$$\begin{aligned} \psi(\vec{r}) = & \psi_0(\vec{r}) - \left( \frac{1}{4\pi} \right) \int d\vec{r}' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') \psi_0(\vec{r}') + \\ & \left( \frac{1}{4\pi} \right)^2 \iint d\vec{r}' d\vec{r}'' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') G(\vec{r}' - \vec{r}'') U(\vec{r}'') \psi(\vec{r}'') \end{aligned} \quad (\text{I-38})$$

En itérant l'équation intégrale (I-37) par changement de variables  $\vec{r} \rightarrow \vec{r}''$ ;  $\vec{r}' \rightarrow \vec{r}'''$ , ce qui donne  $\psi(\vec{r}''')$  que l'on introduit à nouveau dans l'équation (I-38); on trouve donc :

$$\begin{aligned} \psi(\vec{r}) = & \psi_0(\vec{r}) - \left( \frac{1}{4\pi} \right) \int d\vec{r}' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') \psi_0(\vec{r}') + \\ & \left( \frac{1}{4\pi} \right)^2 \iint d\vec{r}' d\vec{r}'' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') G(\vec{r}' - \vec{r}'') U(\vec{r}'') \psi_0(\vec{r}') + \\ & \left( \frac{1}{4\pi} \right)^3 \iiint d\vec{r}' d\vec{r}'' d\vec{r}''' G(\vec{r} - \vec{r}') U(\vec{r}') G(\vec{r}' - \vec{r}'') U(\vec{r}'') G(\vec{r}'' - \vec{r}''') U(\vec{r}''') \psi(\vec{r}''') \end{aligned} \quad (\text{I-39})$$

De proche en proche nous engendrons le développement de Born de la fonction d'onde de diffusion. Si le potentiel  $U$  est faible, l'approximation de Born consiste à ne conserver que les premiers termes et on néglige les autres termes. En utilisant ce développement de  $\psi(\vec{r})$  dans la formule de l'amplitude (I-35) on obtient :

$$\begin{aligned} f_k(\theta, \varphi) = & - \frac{1}{4\pi} \int d\vec{r}' e^{-i\vec{k}_d \cdot \vec{r}'} U(\vec{r}') e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}} \\ & - \frac{1}{4\pi} \int d\vec{r}' e^{-i\vec{k}_d \cdot \vec{r}'} U(\vec{r}') \int d\vec{r}'' G(\vec{r}' - \vec{r}'') U(\vec{r}'') e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}''} \\ & - \frac{1}{4\pi} \iiint d\vec{r}' d\vec{r}'' d\vec{r}''' e^{-i\vec{k}_d \cdot \vec{r}'} U(\vec{r}') G(\vec{r}' - \vec{r}'') U(\vec{r}'') G(\vec{r}'' - \vec{r}''') U(\vec{r}''') e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}'''} \end{aligned} \quad (\text{I-40})$$

Chaque terme de la série de Born représente un passage, sous l'action de potentiel, de la particule incidente d'un état initial vers un état final passant par  $n$  états intermédiaires  $\psi_{\text{int}}(\vec{K}, \vec{r})$  (différents états excités de la cible). L'ordre de cette série dépend de nombre d'interaction particule incidente-cible. Le premier terme de Born  $f_{b1}$  représente l'action de  $U$  pour faire passer la particule incidente de l'état initial  $\psi_i(\vec{k}_i, \vec{r})$  vers l'état final  $\psi_f(\vec{k}_d, \vec{r})$ . Ce premier terme s'écrit :

$$f_{b1} = - \frac{1}{4\pi} \langle \psi_f(\vec{k}_d, \vec{r}) | V(\vec{r}) | \psi_{\text{inc}}(\vec{k}_i, \vec{r}) \rangle = - \frac{1}{4\pi} \int d\vec{r}' e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}'} V(\vec{r}') \quad (\text{I-41})$$

où  $\vec{K} = \vec{k}_i - \vec{k}_d$  est le vecteur d'onde transféré dans la direction  $(\theta, \varphi)$ .

Et le deuxième terme de l'approximation de Born s'écrit sous forme :

## CHAPITRE I

---

$$f_{b2} = -\frac{1}{32 \pi^2} \sum_n \frac{1}{k_i^2 - K^2 + i\eta} \langle \psi_f(\vec{k}_d, \vec{r}) | V(\vec{r}) | \psi_{\text{int}}(\vec{K}, \vec{r}) \rangle \langle \psi_{\text{int}}(\vec{K}, \vec{r}') | V(\vec{r}') | \psi_i(\vec{k}_i, \vec{r}') \rangle d\vec{K} \quad (\text{I-42})$$

où  $\eta$  est un paramètre très petit.

### I.8. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons rappelé des notions de base nécessaires à l'étude théorique du processus de collision et particulièrement les expressions des sections efficaces multiplement différentielles utilisées dans la description de la double ionisation. Ensuite, nous avons présenté une approche pour la détermination des éléments de la matrice de transition par l'introduction de l'approximation de Born.



# CHAPITRE I

---

## Références

- [1] A Messiah, Quantum Mechanics (North Holland, Amsterdam) Vol2 (1961).
- [2] P Atkins et R Friedman, Molecular Quantum Mechanics, Oxford University Press 4Ed.
- [3] H Hda, C Dal Cappello et J Langlois, Z. Phys. D **29**, 25 (1994).
- [4] A Lahmam-Bennani, H Ehrhardt, C Dupré et A Duguet, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **24**, 3645 (1991).
- [5] A Lahmam-Bennani, A Duguet, et S Roussin, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **35**, L59-L63 (1992).
- [6] B El Marji, A Duguet, A Lahmam-Bennani, M Lecas et H F Wellenstein, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **28**, L733-L737 (1995).
- [7] A. M. L Messiah et O. W Greenberg, Phys. Rev. B **136**, 248 (1964).
- [8] C. C. Tanoudji, B Diu. et F. Laloë, Mécanique Quantique Tome 2. Ed. Hermann, Paris (1973).
- [9] A. Messiah, Mécanique Quantique Tome 1, Ed. Dunod, Paris (1972).

**Chapitre II**  
**Mécanismes de**  
**la double ionisation**

### Introduction

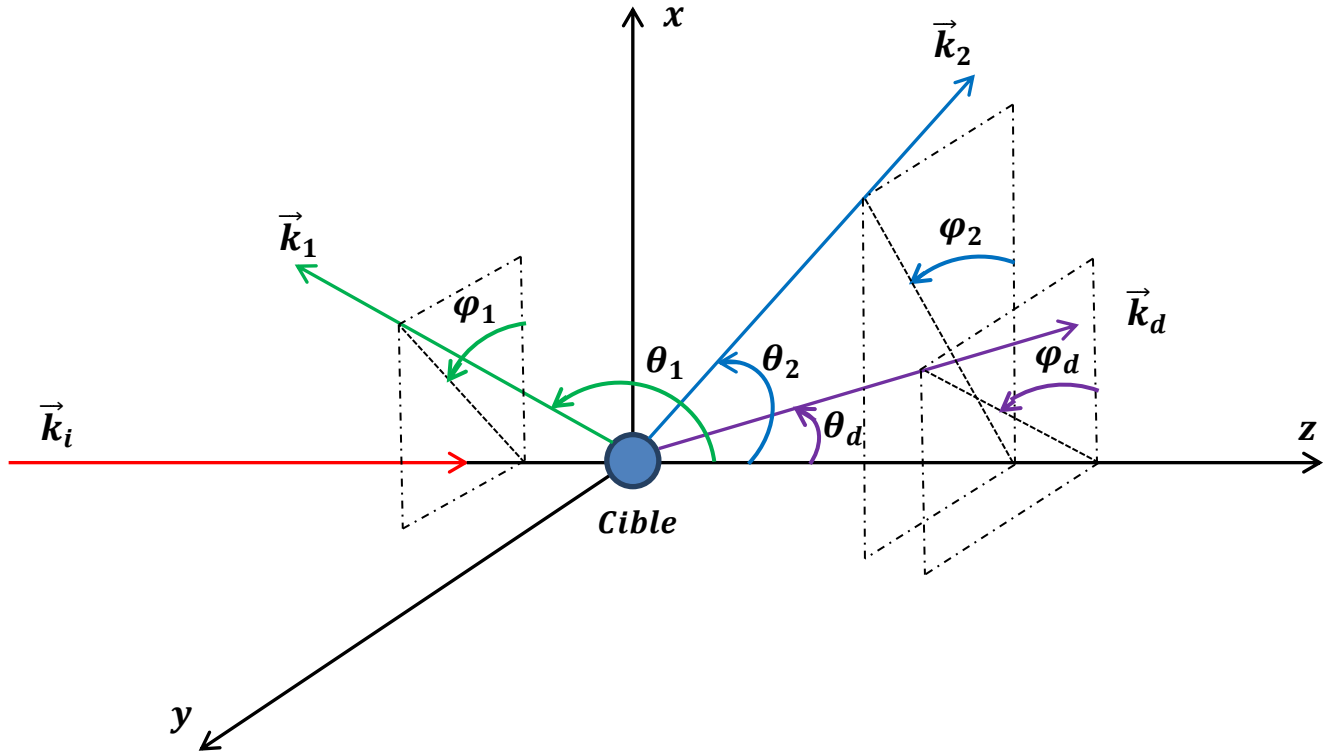
Nous présentons dans ce qui suit les différents mécanismes (directs et indirects) responsables de la double ionisation, et qui sont nécessaires pour une description précise du processus. La première voie de double ionisation directe est le mécanisme de la cible secouée : Shake-off [1,2], les deux autres mécanismes directs sont des mécanismes à deux étapes consécutives, et sont nommés Two-Step 1(TS1) et Two-Step 2 (TS2) [3,4]. Les mécanismes indirects sont classifiés en deux types d'excitation : excitation auto double ionisation et excitation double auto ionisation. Dans notre étude, où on applique la première approximation de Born, seuls les deux mécanismes SO et TS1 peuvent intervenir lors du processus de double ionisation. Dans la deuxième partie de ce chapitre nous énumérons les situations cinématiques et géométriques utilisées dans les expériences d'ionisation. A la fin, nous rappellerons les différents modèles théoriques utilisés dans l'étude du processus de double ionisation, classifiés en deux catégories perturbatifs et non perturbatifs.

### II.1. Double ionisation (e, 3e)

Le processus (e, 3e) veut juste dire collision inélastique conduisant à la double ionisation d'une cible X atomique ou moléculaire par impact d'électrons. L'état initial de cette cible est représenté par une fonction d'onde :  $|\psi_{ci}\rangle$ . Le faisceau d'électrons projectiles est de moment  $\vec{k}_0$  et d'énergie  $E_0$  entre en collision avec la cible, supposée au repos, pour donner dans la voie de sortie (après collision), trois électrons émergents : un électron rapide diffusé  $e_d^-$  et deux électrons lents éjectés de la cible  $e_1^-$  et  $e_2^-$  (électrons actifs de la cible) et un ion résiduel  $X^{+2}$ . On peut schématiser ce processus par la réaction suivante :



Les deux électrons éjectés de la cible sont caractérisés par les ensembles :  $(\vec{k}_1, E_1, \theta_1, \varphi_1)$  et  $(\vec{k}_2, E_2, \theta_2, \varphi_2)$  indiquant les moments, les énergies et les angles polaires et azimutaux respectivement. L'électron incident puis diffusé est caractérisé par :  $(\vec{k}_i, E_i, \theta_i, \varphi_i)$  et  $(\vec{k}_d, E_d, \theta_d, \varphi_d)$  (Figure II.1). L'ion résiduel sera juste un ion chargé, immobile à l'origine du repère.



**Figure II.1** : Schéma du processus de la double ionisation (e, 3e) (géométrie coplanaire). ( $\vec{k}$ ,  $\theta$  et  $\varphi$ ) désignent respectivement les vecteurs d'onde, les angles polaires et les angles azimutaux. Les indices (i, d, 1, 2) désignent les électrons/ incident, diffusé, éjecté1 et éjecté2.

Dans une réaction (e, 3e) les relations de conservation de l'énergie et de l'impulsion s'écrivent :

$$E_i + E_{ic} = E_d + E_1 + E_2 + E_{ion} + E_{fc} \quad (\text{II-2})$$

$$\vec{k}_i = \vec{k}_d + \vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{q} \quad (\text{II-3})$$

$E_{ic}$  et  $E_{fc}$  sont les énergies initiale et finale de la cible. Le vecteur  $\vec{q}$  est associé au moment de recul de l'ion résiduel,  $E_{ion}$  représente l'énergie de la double ionisation correspondant à l'extraction successive de deux électrons d'une ou de deux orbitales de la cible. Le moment de transfert  $\vec{K}$  est défini par la relation:

$$\vec{K} = \vec{k}_i - \vec{k}_d = \vec{q} + (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \quad (\text{II-4})$$

Lorsque le module  $|\vec{K}|$  est faible, on note l'existence de deux directions d'éjections préférentielles, d'où l'apparition de deux pic dans l'allure de la section efficace, un dans la direction du transfert  $\vec{K}$  et l'autre dans la direction opposé  $-\vec{K}$  (le pic de recul dû au noyau).

## CHAPITRE II

### II.2. Section efficace quintuplement différentielle de (e, 3e)

Dans une collision (e, 3e), on détecte en coïncidence trois électrons [5]. La section efficace est la mesure de la probabilité qu'une réaction se produise. Expérimentalement on mesure seulement une fraction des particules émises par la détection limitée à un élément d'angle solide  $d\Omega$  et un intervalle d'énergie  $dE$ . Donc, les sections efficaces mesurées sont différentielles en angle et/ou en énergie. Théoriquement, la section efficace est définie comme le rapport entre le taux de transition d'un état initial préparé vers un état final bien défini caractérisé par une densité d'états  $d^3k_1 d^3k_2 d^3k_d$  et la densité du flux incident qui s'exprime en termes de l'élément de matrice de transition  $T_{fi}$  par la relation [6] :

$$d\sigma(k_d, k_1, k_2; k_0, \psi_i) = \frac{(2\pi)^4}{k_0} \delta(E_i - E_f) |T_{fi}|^2 d^3k_1 d^3k_2 d^3k_d \quad (\text{II-5})$$

Où l'amplitude de transition  $T_{fi}$  est donnée dans l'approximation de Born par :

$$T_{fi} = \frac{1}{2\pi} \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \phi(\vec{k}_d, \vec{r}_0) | V | \phi(\vec{k}_i, \vec{r}_0) \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (\text{II-6})$$

où

$$V = \frac{-z}{r_0} + \sum_{i=1}^N \frac{1}{|\vec{r}_{0i}|} \quad (\text{II-7})$$

$\psi_i(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)$  et  $\psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2)$  étant respectivement les fonctions d'onde de la cible et des électrons éjectés dans le champ de l'ion résiduel. La section efficace totale est calculée en intégrant sur toutes les variables possibles intervenant dans l'expression de la section efficace multipliement différentielle.

L'étude du processus d'ionisation simple ou multiple revient à la résolution d'un problème à N corps qui est théoriquement difficile à traiter surtout dans le cas des cibles atomiques à plusieurs électrons ou moléculaires. La situation devient plus simple en faisant appel à l'approximation du cœur gelé où on assimile la cible atomique ou moléculaire à un atome de deux électrons (atome d'hélium). Dans le cadre de cette approximation seuls deux électrons de la cible, appelés actifs, participent à la collision et sont donc arrachés à la fin.

Dans ce cas, la fonction initiale et le potentiel d'interaction s'écrivent sous les formes :

$$|\psi_i(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)\rangle = |\psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\rangle \quad (\text{II-8})$$

et

$$V = \frac{-2}{r_0} + \sum_{i=1}^2 \frac{1}{|\vec{r}_{0i}|} \quad (\text{II-9})$$

où  $\vec{r}_1, \vec{r}_2$  sont les vecteurs position des deux électrons actifs (1 et 2) émergents de la cible.

Dans le cas d'une détection en coïncidence des trois électrons émergents, les deux électrons éjectés et l'électron diffusé, la section efficace est quintuplement différentielle SEQD est donnée par :

## CHAPITRE II

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{(2\pi)^4}{k_i} k_d k_1 k_2 |T_{fi}|^2 \quad (\text{II-10})$$

Cette section efficace différentielle quintuple comprend le plus grand nombre de variables énergétiques et directionnelles d'une réaction (e, 3e).

Dans ces expériences on fixe l'énergie d'incidence, selon un choix précis, alors que celles des électrons éjectés sont choisies pour un maximum de la section efficace. On peut donc déduire l'énergie de l'électron diffusé, sachant que l'énergie de double ionisation  $E_{i0}$  est donnée par la loi de conservation de l'énergie :

$$E_d = E_i - E_1 - E_2 - E_{i0} \quad (\text{II-11})$$

La section efficace quintuplement différentielle est la grandeur physique mesurée qui contient l'information la plus complète et la plus détaillée sur le processus d'ionisation.

### II.3. Mécanismes direct et indirect des expériences (e, 3e)

#### II.3.1. Mécanismes directs

On distingue deux types de mécanismes de la réaction (e, 3e), directe [7,8] ou indirects. Ces mécanismes sont soit de l'ordre 1 ou 2 au sens de la série de Born.

(i) Le mécanisme Shake off : Souvent noté SO c'est un mécanisme du premier ordre de l'interaction projectile-cible où l'électron incident interagit avec un électron de la cible, et l'éjecte directement (première ionisation). Tandis que la seconde éjection (deuxième ionisation) résulte de la relaxation électronique due à la variation brutale du potentiel vue par le deuxième électron.

(ii) Le mécanisme dit two-step1, TS1 est effectué en deux étapes : la première étape est similaire à la simple ionisation, l'électron éjecté de la cible lui-même interagit avec un second électron de la même cible et l'éjecte.

(iii) Le troisième mécanisme dit two-step2, TS2 est un processus aussi à deux étapes : l'électron projectile entre en collisions successives avec deux électrons actifs de la cible.

Ces trois mécanismes SO, TS1 et TS2 sont inclus dans le calcul de la section efficace par l'intermédiaire des deux premiers termes de la série de Born  $f_{b1}$  et  $f_{b2}$ .

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{k_d k_1 k_2}{k_i} |f_{b1} + f_{b2}|^2 \quad (\text{II-12})$$

où  $d\Omega_d$ ,  $d\Omega_1$  et  $d\Omega_2$  sont les éléments d'angles solides des électrons diffusé et des deux éjectés.  $dE_1$  et  $dE_2$  sont les intervalles d'énergies des électrons éjectés. Le premier terme du développement de Born est donné par :

$$f_{b1} = -\frac{1}{2\pi} \left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d \cdot \vec{r}_0} \left| V \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (\text{II-13})$$

## CHAPITRE II

$\psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  et  $\psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2)$  sont les états de la cible et de l'ion résiduel. Le potentiel d'interaction entre l'électron projectile et les deux électrons de la cible (2 électrons à cause de l'approximation du cœur gelé ; seuls les électrons actifs sont pris en compte [9, 10]) s'écrit :

$$V = -\frac{2}{r_0} + \frac{1}{r_{01}} + \frac{1}{r_{02}} \quad (\text{II-14})$$

avec  $r_{0i} = |\vec{r}_0 - \vec{r}_i|$  et  $\vec{r}_0, \vec{r}_1, \vec{r}_2$  sont les vecteurs position du projectile, électrons actifs 1 et 2 par rapport au centre diffuseur du système. Ce potentiel  $V$  comprend les interactions : électron-électron plus celle de l'électron projectile avec le noyau de la cible.

En utilisant la transformation de Bethe

$$\int \frac{e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}}{|\vec{r} - \vec{r}_i|} d\vec{r} = \frac{4\pi}{k^2} e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}_i} \quad (\text{II-15})$$

on peut intégrer sur les coordonnées  $\vec{r}_0$  du projectile. Donc, le premier terme de Born  $f_{b1}$  se simplifie et devient :

$$f_{b1} = \frac{1}{2\pi^2 K^2} \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) | -2 + e^{i\vec{K}\cdot\vec{r}_1} + e^{i\vec{K}\cdot\vec{r}_2} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (\text{II-16})$$

En termes des éléments de matrice de transition  $T_{fi}$ ,  $f_{b1}$  peut être réécrit comme suit :

$$f_{b1} = T_{e1} + T_{e2} + T_N \quad (\text{II-17})$$

avec :

$$T_{e1} = \frac{1}{2\pi^2 K^2} \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i\vec{K}\cdot\vec{r}_1} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (\text{II-18})$$

$$T_{e2} = \frac{1}{2\pi^2 K^2} \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) | e^{i\vec{K}\cdot\vec{r}_2} | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (\text{II-19})$$

$$T_N = \frac{-2}{2\pi^2 K^2} \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) | \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (\text{II-20})$$

Les éléments  $T_{e1}$ ,  $T_{e2}$  et  $T_N$  représentent la diffusion directe du projectile par les deux électrons actifs (1 et 2) et par le noyau, respectivement.

La première approximation de Born PAB est à la base de plusieurs calculs théoriques [9-12]. Cette méthode ne tient compte que de l'interaction projectile-cible du premier ordre. Dans le cas où l'expérience montre une insuffisance par rapport au traitement incluant la PAB (PAB à basse énergie comme à haute énergie d'incidence), il faut considérer les transitions des électrons actifs de la cible vers les états excités, avant de sortir dans le continuum.

## CHAPITRE II

Pour pouvoir expliquer les résultats des expériences réalisées à basse énergie, l'élaboration de modèles théoriques qui tiennent compte de l'interaction projectile-cible de façon dynamique devient nécessaire [13, 14].

La seconde approximation de Born est une extension de l'interaction projectile-cible aux ordres supérieurs. Cette approximation fait introduire la contribution des mécanismes à deux étapes TS2 dans le processus(e, 3e).

L'amplitude de diffusion correspondant est donnée par la relation :

$$f_{b2} = \frac{1}{8\pi^4} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_n}{k_i^2 - k_n^2 - 2|I_n| + i\varepsilon} \left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d \cdot \vec{r}_0} \middle| V \middle| \psi_n(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_n \cdot \vec{r}_0} \right\rangle \times \left\langle e^{i\vec{k}_n \cdot \vec{r}_0} \psi_n(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \middle| V \middle| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (\text{II-21})$$

où  $I_n$  est la différence d'énergie entre l'état initial et l'état intermédiaire de moment  $\vec{k}_n$  représenté par la fonction d'état  $\psi_n(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$ . L'électron diffusé-intermédiaire est représenté par une onde plane. Cet électron interagit avec la cible ionisée avec ou sans excitation simultanée. Ce processus représente le mécanisme TS2 qui est responsable de la brisure de la symétrie autour du moment de transfert. Le calcul du terme  $f_{b2}$  est très délicat et nécessite beaucoup d'attention, car il s'appuie sur la sommation sur tous les états intermédiaires possibles de la cible. En utilisons l'approximation de la relation de fermeture [15] :

$$\sum_n |\psi_n\rangle \langle \psi_n| = 1 \quad (\text{II-22})$$

le terme  $f_{b2}$  s'écrit :

$$f_{b2} = \frac{1}{8\pi^4} \int \frac{d\vec{k}}{k_i^2 - k^2 - 2I} \left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{K}_2 \cdot \vec{r}_0} \middle| V(r_0, r_1, r_2) \times V(r_0, r_1, r_2) \middle| e^{i\vec{K}_1 \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (\text{II-23})$$

$I_n$  est considéré ici comme un paramètre  $I$ , et  $\vec{k}$  est l'impulsion de l'électron diffusé intermédiaire. L'intégration sur les coordonnées du projectile  $\vec{r}_0$  (en utilisant l'intégrale de Bethe) l'expression de  $f_{b2}$  devient :

$$f_{b2} = \frac{2}{\pi^2} \int \frac{d\vec{k}}{K_1^2 K_2^2 (k_i^2 - k^2 - 2I)} \left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \middle| (-2 + e^{i\vec{K}_1 \cdot \vec{r}_1} + e^{i\vec{K}_2 \cdot \vec{r}_2}) \right\rangle \times \left\langle (-2 + e^{i\vec{K}_1 \cdot \vec{r}_1} + e^{i\vec{K}_2 \cdot \vec{r}_2}) \middle| \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (\text{II-24})$$

où :

$$\vec{K}_1 = \vec{k}_i - \vec{k}, \quad \vec{K}_2 = \vec{k} - \vec{k}_d \quad \text{et} \quad \vec{K} = \vec{K}_1 + \vec{K}_2 \quad (\text{II-25})$$

La section efficace SEQD peut être écrite en termes d'amplitudes  $M_{SO}$ ,  $M_{TS1}$  et  $M_{TS2}$  correspondant respectivement aux trois mécanismes SO, TS1 et TS2 [7], [14] :

$$\frac{d^5\sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{k_d k_1 k_2}{k_i} |M_{SO} + M_{TS1} + M_{TS2}|^2 \quad (\text{II-26})$$



## CHAPITRE II

### II.3.1.1. Mécanisme Shake off

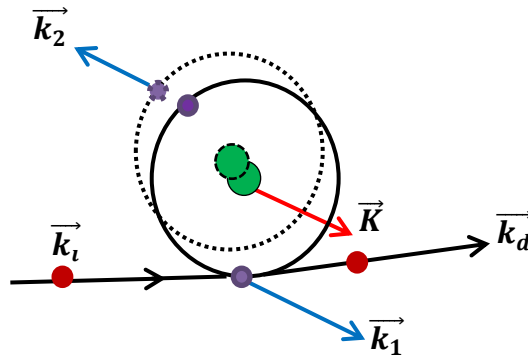
C'est un mécanisme du premier ordre décrit par la première approximation de Born [7] :

$$f_{b1} = T_{e1} + T_{e2} + T_N \quad (\text{II-27})$$

L'amplitude de transition est exprimée par la relation :

$$M_{SO} = \frac{-1}{2\pi} \left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d \cdot \vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (\text{II-28})$$

Le mécanisme Shake off correspond à une simple ionisation due à l'interaction de l'électron incident avec l'un des deux électrons actifs (terme  $T_{e1}$  ou  $T_{e2}$ ) en l'éjectant, suivie d'une relaxation de la cible responsable de l'éjection du deuxième électron en raison du changement brusque du potentiel auquel il est soumis (Figure II-2). Un autre cas dit double Shake off, est dû à l'interaction directe du projectile avec la cible en l'excitant, et selon un nouveau réarrangement du potentiel de la cible excitée, deux électrons sont éjectés simultanément. Le processus SO est considéré comme étant le mécanisme le plus probable lors de la réaction (e, 3e) et particulièrement où l'énergie de l'électron incident est de l'ordre du keV [16, 17].



**Figure II.2** : Schémas du mécanisme Shake off "SO".

### II.3.1.2. Mécanisme à deux étapes "TS1"

Ce mécanisme est du premier ordre car l'électron projectile interagit une seule fois avec la cible (Figure II-3). L'amplitude de diffusion de ce mécanisme est représentée par le deuxième terme de Born sous la forme de produit de deux amplitudes de transition partielle, une pour la simple ionisation et l'autre pour l'interaction entre l'électron arraché et un second électron actif de la cible :

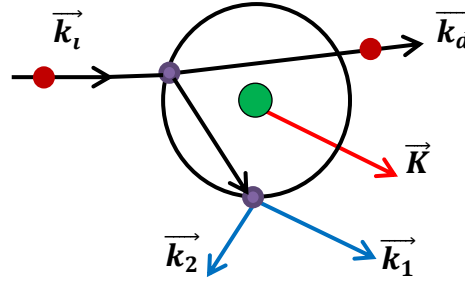
$$M_{TS1} = \frac{-1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_a}{(2\pi)^3 (k_i^2 - k_a^2 - k_d^2 - 2I_n)} \left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \left| \frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right| \psi_n^{(+)}(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \times \left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d \cdot \vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \quad (\text{II-29})$$

$\Sigma_n$  désigne la sommation sur tous les états intermédiaires possibles (états d'excitation), et  $I_n$  c'est l'énergie d'ionisation.

## CHAPITRE II

Le terme :  $\left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_a \cdot \vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle$  désigne que l'électron incident est diffusé après sa collision avec l'un des deux électrons actifs en laissant la cible simplement ionisée  $X^+$  dans son état  $\psi_n^{(-)}(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2)$ . Ces deux électrons projectile et diffusé sont représentés par des ondes planes.

Alors que le deuxième terme :  $\left\langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \left| \frac{1}{|\vec{r}_{12}|} \right| \psi_n^{(+)}(\vec{k}_a; \vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle$  décrit l'interaction du premier électron éjecté de moment intermédiaire  $\vec{k}_a$  avec le deuxième électron actif, qui est éjecté à son tour [18].



**Figure II.3** : Mécanisme à deux étapes "TS1".

### II.3.1.3. Mécanisme à deux étapes "TS2"

Ce mécanisme nécessite l'application de la deuxième approximation de Born car l'électron projectile interagit deux fois successivement avec la cible (Figure II.4). L'amplitude de transition correspondante s'écrit [14] :

$$\begin{aligned}
 M_{TS2} = & \frac{-1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_b}{(2\pi)^3 (k_i^2 - k_b^2 - k_1^2 - 2I_n)} \left\langle \psi_f^{(-)}(\vec{k}_2, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_a \cdot \vec{r}_0} \left| \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_0} \psi_n(\vec{r}_2) \right\rangle \\
 & \times \left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_1; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle \\
 & \frac{-1}{\pi} \sum_n \int \frac{d\vec{k}_b}{(2\pi)^3 (k_i^2 - k_b^2 - k_2^2 - 2I_n)} \left\langle \psi_f^{(-)}(\vec{k}_1, \vec{r}_1) e^{i\vec{k}_a \cdot \vec{r}_0} \left| \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} \right| e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_0} \psi_n(\vec{r}_1) \right\rangle \\
 & \times \left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_2; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle
 \end{aligned} \tag{II-30}$$

Dans l'expression de  $M_{TS2}$ , on a les termes :

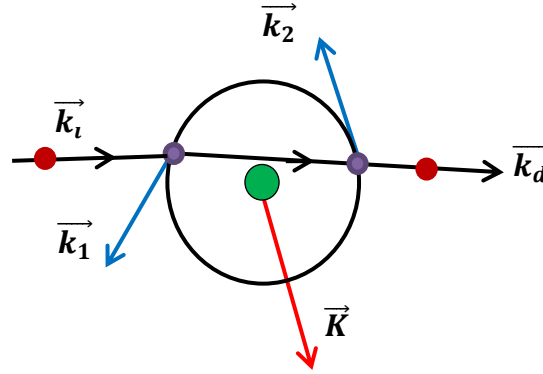
$\left\langle \psi_n^{(-)}(\vec{k}_j; \vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_0} \left| \frac{-2}{r_0} + \frac{1}{|\vec{r}_{01}|} + \frac{1}{|\vec{r}_{02}|} \right| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \right\rangle$  avec  $j = 1$  ou  $2$ , représentant les interactions successives entre l'électron incident et la cible. En deuxième étape, l'électron diffusé intermédiaire, décrit par une onde plane  $e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_0}$ , subit une autre collision avec le deuxième électron de la cible et l'éjecte selon le terme :

## CHAPITRE II

$$\left\langle \psi_f^{(-)}(\vec{k}_j, \vec{r}_j) e^{i\vec{k}_d \cdot \vec{r}_0} \left| \frac{1}{|\vec{r}_0|} \right| e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_0} \psi_n(\vec{r}_j) \right\rangle \text{ avec } j = 1 \text{ ou } 2.$$

L'amplitude du mécanisme TS2 est la somme sur tous les états intermédiaires des amplitudes de chaque état ionique lié à la première ionisation.

L'orthogonalité entre les deux fonctions d'onde : coulombienne  $\psi_n^{(-)}$  et  $\varphi_n$  de l'état fondamental ou excité de l'ion  $X^+$  pour  $Z=2$  impose que la contribution du noyau ( $\frac{-2}{r_0}$ ) est nulle [19] :  $\langle \psi_n^{(-)} | \varphi_n \rangle = 0$ .

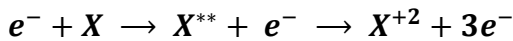


**Figure II.4** : Mécanisme à deux étapes "TS2".

### II.3.2. Mécanismes indirects

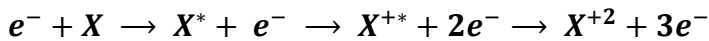
Il y a deux types de processus indirects de la double ionisation :

#### (i) Excitation auto double ionisation



L'électron incident peut faire passer la cible  $X$  par un état doublement excité d'énergie supérieure à son deuxième potentiel d'ionisation suivi par une émission simultanée de deux électrons.

#### (ii) Excitation double auto ionisation



Ce processus est effectué en deux auto-ionisation successives. Dans ces deux mécanismes les notations :  $X^*$  et  $X^{+*}$  désignent respectivement l'état auto-ionisant et ionique.

### II.4. Conditions cinématiques et géométriques des réactions (e, 3e)

Dans cette partie, nous citons les différentes conditions cinématiques et géométriques des réactions (e, 3e). Ces conditions sont déterminées en fonction des énergies mises en jeu ou du moment de transfert. En terme géométrique, ces mêmes conditions sont classifiées en deux catégories de géométrie coplanaire et non coplanaire et respectivement symétrique ou non symétrique.

## CHAPITRE II

### II.4.1. Régime asymétrique

Dans ce cas, les deux électrons éjectés sont détectés dans des directions asymétriques par rapport à la direction d'incidence et avec des énergies très faibles par rapport à l'énergie de l'électron diffusé. Ce dernier est détecté généralement sous des angles  $\theta_d < 1^\circ.5$ , alors que les valeurs des angles azimutaux déterminent la nature coplanaire ou non coplanaire de la géométrie.

#### II.4.1.1. Géométrie coplanaire asymétrique

Dans cette géométrie les différents vecteurs d'impulsion  $\vec{k}_i$ ,  $\vec{k}_d$ ,  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  se trouvent dans le même plan de collision. Dans l'expérience on distingue trois modes d'angles d'éjections  $\theta_1$  et  $\theta_2$ .

- (i) Le premier mode sert à fixer l'un des deux angles polaires d'éjection et varier l'autre entre 0 et  $2\pi$  dans le sens trigonométrique (Figure II.5(a)) [11], [20].
- (ii) Le deuxième mode utilise la variation des deux angles d'éjection  $\theta_1$  et  $\theta_2$  de telle sorte que l'angle relatif  $\theta_{12} = |\theta_1 - \theta_2|$  reste constant. Les angles azimutaux  $\varphi_1$  et  $\varphi_2$  prennent les valeurs 0 ou  $\pi$  (Figure II.5(b)). Cette condition géométrique a été utilisé pour la mesure des plusieurs SEQD [21-24].
- (iii) Ce dernier mode consiste à l'intégration de la SEQD sur tous les angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  de 0 à  $\pi$  en fixant l'angle relatif entre ces deux angles d'éjection.

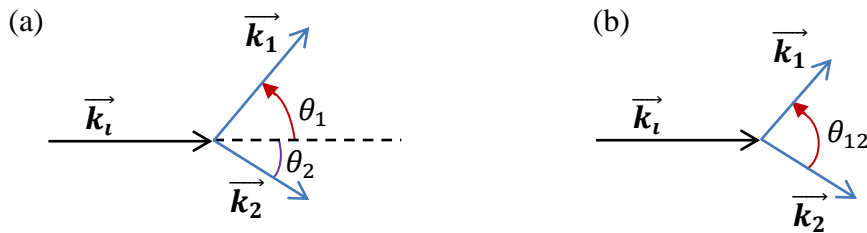


Figure II.5 : (a) Mode de l'angle individuel fixé ( $\theta_2$  est fixé), (b) Mode de l'angle relatif constant.

#### II.4.1.2. Géométrie non coplanaire asymétrique

Cette géométrie, en plus de la condition  $E_{1,2} \ll E_d$ , est caractérisée par la détection des électrons éjectés en dehors du plan de collision (Figure II.6).

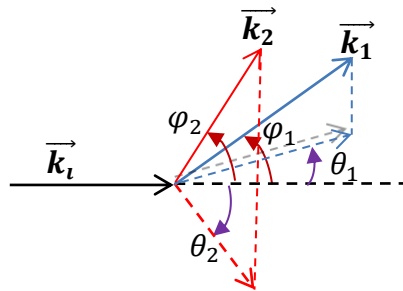


Figure II.6 : Géométrie non coplanaire asymétrique ( $\theta_1 \neq \theta_2$ ).

## CHAPITRE II

### II.4.2. Régime symétrique

Dans ce régime, les deux électrons éjectés sont détectés dans des directions symétriques par rapport à la direction d'incidence, avec des énergies égales et avec la condition  $E_1 = E_2 \ll E_d$ .

#### II.4.2.1. Géométrie coplanaire symétrique

Dans ce cas, les angles de diffusion et d'éjection sont contenus dans un même plan, et les deux électrons éjectés sont détectés symétriquement  $\theta_1 = 2\pi - \theta_2$  par rapport à direction d'incidence. L'angle azimutal relatif  $\phi = |\varphi_1 - \varphi_2|$  prend les valeurs 0 ou  $\pi$  (Figure II.7). Cette géométrie a été utilisée dans les mesures de la SEQD [20], [22], [25,26].

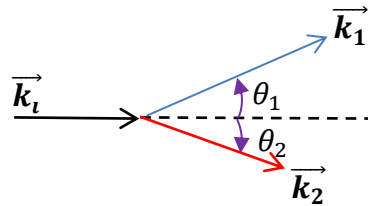


Figure II.7 : Géométrie coplanaire symétrique.

#### II.4.2.2. Géométrie non coplanaire symétrique

Cette géométrie est caractérisée par la détection des deux électrons éjectés dans toutes les directions azimutales possibles de l'espace  $\phi = |\varphi_1 - \varphi_2 - \pi|$  et avec des angles polaires égaux  $\theta_1 = \theta_2$  (Figure II.8). Cet arrangement a été largement utilisé par le groupe de Takahashi réalisant des expériences de simple et de double ionisation ( $e, 2e$ ) et ( $e, 3-1e$ ) sur des cibles atomique et moléculaire [27-30].

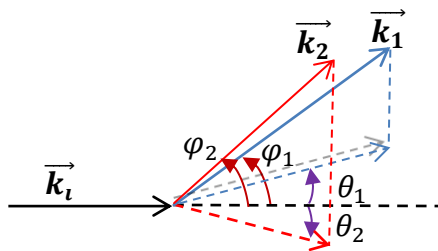


Figure II.8 : Géométrie symétrique non coplanaire ( $\theta_1 = \theta_2$ ).

### II.5. Modèles théoriques pour la double ionisation

Diverses méthodes théoriques ont été élaborées pour comprendre les mécanismes de double ionisation d'un système atomique ou moléculaire par impact d'électrons rapides ou lents. Dans les problèmes de diffusion la difficulté réside dans la complexité de calcul des sections efficaces, qui contiennent des états initial et final à plusieurs corps, et dans la description des corrélations entre les électrons dans les états initial et final et leurs interactions avec la cible ionisée. Le choix d'un modèle

## CHAPITRE II

---

plutôt qu'un autre est basé d'une part sur la simplicité et la rapidité du calcul et d'autre part sur la qualité des résultats obtenus.

### II.5.1. La première approximation de Born "FBA"

Cette approximation donne généralement de bons résultats dans la limite des grandes énergies d'impact devant celle des électrons liés à la cible et des petites valeurs du moment de transfert. Ainsi, le traitement de l'interaction projectile-cible est réduit à l'étude d'un problème à trois corps et l'interaction projectile-cible ne se produit qu'une seule fois ; c'est le cas donc des processus du premier ordre tels que SO et TS1. Plusieurs modèles basés sur cette approximation seront cités par la suite.

#### (i) Modèle des ondes planes

Dans ce modèle tous les électrons participant à l'interaction ( $e$ ,  $3e$ ) (incident, diffusé et les deux éjectés) sont décrits par des ondes planes [8], [31]. Ce modèle, dans le cadre de la théorie de perturbation au premier ordre, n'est fiable que dans le cas de hautes énergies d'éjection comparées à celle de l'électron actif de la cible, et l'interaction Coulombienne entre chacun des électrons éjectés et l'ion résiduel (très faible devant l'énergie d'éjection).

#### (ii) Modèle des ondes Coulombiennes

Byron et Joachain [32] ont introduit ce modèle dans l'étude de la section efficace totale de ( $e$ ,  $3e$ ) de l'hélium où les électrons éjectés sont représentés par deux ondes Coulombiennes non corrélées. Cette méthode néglige complètement la corrélation entre ces électrons dans la voie finale. C. Dal Cappello et Le Rouzo [33], ont amélioré le modèle des ondes Coulombiennes à charges effectives fixes par un modèle qui prend en compte la variation des charges effectives en fonction des angles d'éjections. Ce modèle amélioré a corrigé le modèle proposé par Byron et Joachain, où la corrélation est partielle dans l'état final. En plus, dans ce dernier modèle amélioré, la fonction d'onde de la cible dans la voie finale doit être orthogonale à la fonction d'onde dans la voie initiale puisqu'elles sont solutions du même Hamiltonien, d'où vient la dénomination de ce modèle par le "Modèle des ondes Coulombiennes orthogonalisées".

#### (iii) Modèle BBK ou 3C

Ce modèle a été développé par Brauner, Briggs et Klar [34] pour l'étude de l'ionisation simple de l'atome d'hydrogène par impact d'un électron ou d'un positron. Les auteurs prennent en compte les interactions mutuelles électron-électron et électron-noyau dans la voie de sortie. Pour ceci, ils ont utilisé une description asymptotique exacte de la fonction d'onde de l'état final. Cette fonction d'onde est

## CHAPITRE II

---

considérée comme le produit de trois fonctions Coulombiennes qui décrit l'interaction Coulombienne des électrons éjectés entre eux et avec la cible ionisée. Une autre solution pour modéliser ces interactions dans la description de l'état final est d'introduire un facteur nommé 'facteur de Gamow' qui décrit la répulsion entre les électrons éjectés en remplaçant la troisième fonction Coulombienne par l'unité. Ces modèles appliqués dans le cadre de la première approximation de Born ont améliorés considérablement les modèles utilisant des ondes Coulombiennes avec charges variables [10], [12], [35].

Ce modèle a permis de décrire de manière précise plusieurs expériences tel que : les expériences de double photo ionisation de l'hélium [33], ainsi que l'ionisation par impact électronique des gaz rares He à Kr [8], et la double ionisation de l'hélium [12] et [36].

C. Dal Cappello et ses collaborateurs [37] ont développé un modèle BBK approximé appelé "2C", il contient deux fonctions d'ondes Coulombiennes et l'électron diffusé, rapide, est considéré comme une onde plane. Ce modèle donne un bon accord avec les expériences (e, 2e) et (e, 3e), réalisées par l'équipe d'Orsay [38-40] sur les gaz rares.

### (iv) **Modèle CCC "the Convergent Close Coupling approach"**

Ce modèle a été proposé par Massey et Mohr [41] et est basé essentiellement sur le développement de la fonction d'onde totale du système en termes de somme de produits des états propres de l'hamiltonien et pour décrire le mouvement du projectile, ils génèrent des fonctions dont les coefficients de développement sont déterminés en résolvant un ensemble d'équations intégrales couplées. Kheifets et al [11], dans une étude de sections efficaces totales d'excitation et d'ionisation de He, ils utilisent dans cette approche le premier terme de l'approximation de Born. Les auteurs ont présenté une étude théorique et expérimentale, les résultats étaient très concluants.

### (v) **Approximation de Born aux ondes distordues**

Cette approximation, nommé **DWBA** (Distorted Wave Born Approximation), est de premier ordre puisqu'elle ne tient compte que d'une seule interaction du projectile avec la cible. Lorsque l'énergie de l'électron projectile est faible, la charge vue par l'électron en interaction avec la cible (dans la voie d'entrée ou de sortie), n'est plus constante, le potentiel d'interaction crée une distorsion dans les fonctions d'ondes des électrons [9], ces effets disparaissent à partir d'une certaine distance. Ces fonctions d'onde distordues utilisées dans cette approximation sont détaillées dans [9], [42,43].

Si les énergies des électrons projectile et diffusé sont très grandes, l'effet de distorsion est négligeable et donc le remplacement des fonctions d'ondes distordues de ces électrons par de ondes planes est justifié. Ce modèle est appelé "plane wave Born approximation" (PWBA).

## CHAPITRE II

---

Signalons qu'il y a une grande difficulté dans le calcul de la matrice de diffusion si on prend en compte les interactions mutuelles entre les électrons, pour ceci, Kheifets et al [11], [44,45] ont décrit les corrélations dans la voie de sortie dans le modèle DWBA à travers le facteur de Gamow.

### II.5.2. Autres approximations

Dans l'expérience, tous les processus d'interactions projectile-cible sont probables. Donc, l'étude de ces processus nécessite l'utilisation des approximations qui prendront en compte les termes d'ordres supérieurs des interactions multiples. La seconde approximation de Born par exemple est un développement en termes d'ordre supérieur, elle prend en compte les collisions successives entre l'électron incident et les autres électrons de la cible.

#### (i) Seconde approximation de Born "SBA"

Cette approximation prend en compte les interactions successives projectile-cible d'ordre supérieur à un [13, 14], [46]. L'introduction de cette seconde approximation est justifié par le fait qu'en faible énergie d'incidence, la première approximation de Born est insuffisante pour interpréter la réaction (e, 3e), c'est le cas lorsque apparaissent des processus à deux étapes "TS2" où on observe une brisure de symétrie autour de la direction du moment de transfert. L'application de cette approximation dans l'étude de la réaction (e, 3e) nécessite cependant un temps de calcul très long, plusieurs études appliquées aux cibles atomiques [13-15] ou moléculaires [47] ont été réalisées dans ce cadre. Pour les grandes énergies d'incidence, les résultats obtenus ne diffèrent pas de ceux obtenus par la "FBA".

#### (ii) Modèle 6C

Ce modèle utilise un produit de six fonctions d'onde Coulombiennes dans l'état final. L'approximation a été appliquée avec succès dans le cas de la double ionisation comme une extension du modèle 3C (BBK). Ce modèle prend en compte toutes les interactions possibles entre les différentes particules résultantes dans la voie de sortie. Les résultats de ce modèle théorique sont en bon accord avec l'expérience [48], [49], [50], [51], le temps de calcul nécessaire pour l'évaluation des neuf intégrales numériques est très long.

### II.6. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons rappelé quelques aspects théoriques nécessaires pour l'étude du processus de la double ionisation. Nous avons mentionné aussi diverses études théoriques utilisées dans l'interprétation des résultats numériques de la réaction (e, 3e). Nous avons rappelé aussi les différents



## CHAPITRE II

---

mécanismes (SO, TS1 et TS2) et les conditions cinématiques et géométriques possibles choisies par les expérimentateurs pour réaliser les expériences.

## CHAPITRE II

---

### Références

- [1] R. J Tweed, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **6**, 259 (1973).
- [2] F. W. Jr Byron et C. J Joachain, Phys. Rev. **164**, 1 (1967).
- [3] J. A. Carlson et M. O. Krause, Phys. Rev. **140**, 1057 (1965).
- [4] C Dal Cappello, R El Mkhater et P A Hervieux, Phys. Rev. A **57**, 693 (1998).
- [5] J Berakdar, A Lahmam-Bennani et C Dal Cappello, Phys. Rep. **374**, 91(2003).
- [6] M. L Goldberger et K.M Watson “Collision Theory, 3<sup>rd</sup> edition” John wiley and Sons New York (1967).
- [7] R J Tweed, Z. Phys. D **23** 309 (1992).
- [8] YU V Popov, C Dal Cappello, B Joulakian et N M Kuzmina, J. Phys. B: At.Mol. Opt. Phys. **27**, 1599 (1994).
- [9] J W Cooper et R W Van Boeyen, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **37**, L77 (2004).
- [10] H Hda, C Dal Cappello et J Langlois, Z. Phys. D **29**, 25 (1994).
- [11] A Kheifets, I Bray, A Lahmam-Bennani, A Duguet et I Taouil, J. Phys. B: At.Mol. Opt. Phys. **32**, 5047 (1999).
- [12] B Joulakian, C Dal Cappello et M Brauner, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **25** 2863 (1992).
- [13] C Dal Cappello, H Hda et A C Roy, Phys. Rev. A **51**, 3735(1995).
- [14] C Dal Cappello, R El Mkhater et P A Hervieux, Phys. Rev. A **57**, 693 (1998).
- [15] M Grin, C Dal Cappello, R EL Mkhater et J Rasch, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **33**, 131 (2000).
- [16] J H MC Guire, Phys. Rev. Lett. **49**, 1153 (1982).
- [17] R El Mkhater, C Dal Cappello, A Lahmam-Bennani and Y Popov, J. Phys. B, At. Mol. Opt. Phys. **29** 1101 (1996).
- [18] H Nebdi, G K Lagmago et B Piraux, J. Physique IV **9**,105 (1999).
- [19] R El Mkhater et C Dal Cappello J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **31**, 301 (1998).
- [20] A Lahmam-Bennani, I Taouil, A Duguet, M Lecas, L Avaldi et J Berakdar, Phys. Rev. A **59** 3548 (1999).
- [21] B El Marji, C Schröter, A Duguet, A Lahmam-Bennani et M Lecas, J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, 3677 (1997).
- [22] C Schröter, B El Marji, A Lahmam-Bennani, A Duguet, M Lecas et L Spielberger, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **31**, 131 (1998).
- [23] A Dorn, R Moshammer, C Schröter, T J M Zouros, W Schmitt, H Kollmus, R Mann et J Ullrich, Phys. Rev. Lett **82**, 2496 (1999).
- [24] R Choubisa, G Porohit et K K Sud, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **36**, 1731 (2003).

## CHAPITRE II

---

- [25] C Schröter, B El Marji, A Lahmam-Benani, A Duguet, M Lecas and L Spielberger, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **31**, 131 (1998).
- [26] A Lahmam-Bennani, I Taouil, A Duguet, M Lecas, L Avaldi and J Berakdar, *Phys. Rev. A* **59**, 3548 (1999).
- [27] M Takahashi, Y Khajuria et Y Udagawa, *Phys. Rev. A* **68**,042710 (2003).
- [28] M Takahashi, N Watanabe, Y Khajuria, K Nakayama, Y Udagawa, et J H D Eland, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **141**, 83 (2004).
- [29] N Watanabe, Y Khajuria, M Takahashi, Y Udagawa, P S Vinitsky, Yu v Popov, O Chuluunbaatar et K A Kouzakov, *Phys. Rev. A* **72**, 032705 (2005).
- [30] N Watanabe, K A Kouzakov, Yu V Popov et M Takahashi, *Phys. Rev. A* **77**, 032725 (2008).
- [31] Yu F Smirnov, A V Pavlitchenkov, V G Levin et V G Neudatchin, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **11** 3587(1978).
- [32] F W Jr Byron et C J Joachain, *Phys. Rev. Lett.* **157**, 1 (1967).
- [33] C Dal Cappello et H Le Rouzo, *Phys. Rev. A* **43**, 1395 (1991).
- [34] M Brauner, J S Briggs et H Klar, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **22**, 2265 (1989).
- [35] B Joulakian, C Dal Cappello *Phys. Rev. A* **21**, 572 (1993).
- [36] P Lamy, C Dal Cappello, B Joulakian et C Lesech, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27**, 3559 (1994).
- [37] C Dal Cappello, B Joulakian et J Langlois, *Journal de Physique IV*, **03**, 125 (1993).
- [38] F Catoire, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud (2006).
- [39] A Lahmam-Bennani, C Dupré et A Duguet *Phys. Rev. Lett.* **63** 1582 (1989).
- [40] A Lahmam-Bennani, A Duguet, A M Grisogono et M Lecas, *J. Phys. B: At.Mol. Opt. Phys.* **25**, 2873 (1992).
- [41] H S W Massey et C B O Mohr, *Proc. R. Soc. A* **140** 613(1933).
- [42] C C Jia, A Lahmam-Bennani, A Duguet, L Avaldi, M Lecas et C Dal Cappello, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35**, 1113(2002).
- [43] C C Jia, A Lahmam-Bennani, C Dal Cappello, A Duguet et L Avaldi, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36**, L17-L24 (2003).
- [44] A Kheifets, I Bray, J Berakdar et C Dal Cappello, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35**, 21 (2001).
- [45] A Kheifets, I Bray, *Phys. Rev. A* **69**, 050701 (2004).
- [46] F W Jr Byron, C J Joachain et B Piraux, *Phys. Rev. Lett.* **9**, 427 (1983).
- [47] A Mansouri, C Dal Cappello, S Houamer, I Charpentier et A Lahmam Bennani, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36**, 1203 (2004).
- [48] A W Malcherek, et J S Briggs, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30**, 4419 (1997).
- [49] J R Götz, M Walter et J S Briggs *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36**, L777 (2003).

## CHAPITRE II

---

[50] S Jones et D H Madison, Phys. Rev. Lett. **91** 073201 (2003).

[51] S El Azzouzi, C Dal Cappello, A Lahmam-Bennani et F Catoire, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **38**, 1391 (2005).

**Chapitre III**

**Double ionisation**

**des bases de l'ADN**

### Introduction

Dans ce chapitre nous présentons la méthode théorique du calcul des sections efficaces de la double ionisation des bases moléculaires de l'ADN (Cytosine, Guanine, Thymine et Adénine) par impact d'électrons dans le cadre de l'approximation de Born au premier ordre (Born I).

L'ionisation des molécules biologiques par impact d'électrons est une étape essentielle pour comprendre les effets des rayonnements ionisants sur ces molécules et précisément sur les bases de l'ADN et de l'ARN [1,2]. Il est bien connu maintenant que les électrons secondaires de faible énergie sont responsables de la plupart des dommages à l'ADN dans les tissus vivants [2-3]. Par conséquent, la compréhension de la double ionisation des bases de l'ADN est fondamentale pour la science de la vie. Récemment, Bellm et al. [4] ont mesuré les sections efficaces triplement différentielles de l'ionisation simple ( $e$ ,  $2e$ ) de la thymine par la détection en coïncidence des électrons diffusé et éjecté. L'expérience a été réalisée dans une symétrie coplanaire avec une énergie de 250 eV pour les électrons incidents. Dans cet article [4], le modèle théorique a été élaboré dans le cadre de la première approximation de Born, et donne des résultats en bon accord avec l'expérience.

Parmi les premières expériences de la double ionisation ( $e$ ,  $3e$ ) on peut citer les expériences du groupe d'Orsay : les premières expériences ( $e$ ,  $3e$ ) de Lahmam-Bennani et al. [5] sur l'argon et le krypton [6], ainsi que la première expérience de Taouil et al. [7] et Lahmam-Bennani et al. [8] sur l'hélium à haute énergie d'incidence (5,5 keV). Le groupe de Freiburg (Dorn et al. [9-11]) a également réalisé des expériences ( $e$ ,  $3e$ ) sur l'hélium en utilisant la spectroscopie de mouvement de recul de l'ion froid (COLTRIMS). Les expériences citées ci-dessus impliquent des électrons incidents rapides (de 1 keV à 5,5 keV) et des électrons éjectés de faible énergie. D'autres expériences ( $e$ ,  $3e$ ) ont été réalisées à plus basse énergie incidente (1099 eV et 601 eV) par le groupe d'Orsay [12-13] sur l'hélium, puis sur l'argon [14] à 556,3 eV, à 561,4 eV [15-16] et à 953 eV [17].

A ce jour, il n'y a qu'une seule expérience ( $e$ ,  $3e$ ) sur une molécule, à savoir celle de  $N_2$  par le groupe d'Orsay [18]. Les expériences ( $e$ ,  $3-1e$ ) sont beaucoup plus simples à réaliser, la plus récente est l'expérience réalisée sur le néon et le méthane [19].

Sur le plan théorique, quelques modèles existent et la plupart d'entre eux ont été appliqués au cas le plus simple de la double ionisation de l'hélium. La première contribution importante a été le modèle bien connu BBK qui a donné une bonne description de l'ionisation simple de l'hydrogène par des électrons et des positrons [20]. Dans ce modèle perturbatif de Born du premier ordre, la fonction d'onde BBK de l'état final satisfait aux conditions aux limites de Coulomb dans le domaine asymptotique, en représentant chaque électron éjecté par une onde Coulombienne et la répulsion mutuelle entre les deux électrons éjectés est représentée par une troisième onde Coulombienne. Plusieurs auteurs ont utilisé le

## CHAPITRE III

---

modèle de Born I pour décrire les expériences (e, 3e) sur l'hélium [21-23]. Cependant, certains désaccords concernant l'amplitude et la forme de la section efficace restent inexplicables dans le cas des expériences (e, 3e) [7-8] effectuées à une énergie incidente élevée (5,5 keV). Kheifets et al. [24-25] ont appliqué le modèle non perturbatif (CCC) [24], pour étudier les expériences (e, 3e) sur l'hélium. Ils ont obtenu des résultats différents de ceux donnés par le modèle BBK et l'accord avec les expériences n'a pas été bon, car un facteur de trois est nécessaire pour reproduire l'amplitude donnée par les expériences. Le modèle (l'évolution du paquet d'ondes) de Serov et al. [26] donne des résultats très proches de ceux du modèle CCC. Très récemment, un modèle utilisant la fonction Sturmienne généralisée [27] a donné des résultats proches de ceux du modèle CCC pour les énergies d'émission (10 + 10) eV et (4 + 4) eV, mais en désaccord en amplitude avec l'expérience.

Parmi les modèles qui ont donné un meilleur accord avec l'expérience, nous citons trois travaux : Jones et Madison [28] ont appliqué le modèle BBK avec une fonction d'onde plus simple pour l'état fondamental de l'hélium (une approximation de Pluinage [29]) et ont obtenu un très bon accord à la fois de l'amplitude et de l'allure avec les mesures. Mais cet accord était fortuit comme indiqué par Ancarani et al. [30-31] et par Kheifets et Bray [32]. Le second travail est celui de Berakdar [33], il a utilisé une approche de type Fadeev où l'état final de quatre corps est réduit à une somme de quatre états finaux de trois corps. Le troisième modèle est celui de la matrice-J de Zaytsev et al. [34] qui donne des résultats proches (en amplitude) à ceux trouvés dans l'ensemble des expériences (10 + 10) eV. Cependant, les formes sont différentes de celles des autres théories [24-28]. Une première conclusion pour ce puzzle est qu'un accord est maintenant observé entre trois modèles différents (CCC, la méthode de paquet d'ondes et GSF) et on pourrait penser que le désaccord sur l'amplitude pourrait être dû à l'absence de la contribution de la seconde approximation de Born. Néanmoins, Grin et al. [35] et Kheifets [36] ont trouvé une contribution très faible de cette seconde approximation de Born pour une énergie incidente de 5,5 keV. De même, Jones et Madison [28] ont appliqué le modèle 6C [37-38] où la fonction d'onde de l'état final tient compte de toutes les six interactions Coulombiennes à deux corps, les auteurs n'ont observé aucune différence significative entre les résultats du modèle BBK et le modèle 6C. Ces résultats montrent que la contribution de la seconde approximation de Born pourrait être négligée pour les énergies incidentes élevées. La situation est changée lorsque de faibles énergies incidentes sont considérées [13,36] puisque la contribution due à la seconde approximation de Born augmente lorsque l'énergie incidente diminue. Une deuxième conclusion est que des mesures sont nécessaires pour vérifier soigneusement toutes les théories.

D'une manière générale, ces modèles ne peuvent pas prédire l'amplitude, mais sont souvent capables de prédire la forme des résultats expérimentaux. Dans le cas de la double ionisation de l'hydrogène moléculaire, Mansouri et al. [39] ont appliqué la seconde approximation de Born avec le

## CHAPITRE III

---

modèle A3C afin d'expliquer les changements observés dans les expériences (e, 3-1e) [40]. Chuluunbaatar et al. [41] ont utilisé une fonction d'onde du continuum modifiée à deux centres pour l'état final (dans la première approximation de Born), Chuluunbaatar et al. [42] ont aussi appliqué un double continuum à deux centres corrélés pour la double ionisation de  $H_2$  et  $N_2$ . Dans tous ces cas, la théorie n'a jamais été capable de donner un accord complet avec les expériences. La double ionisation de l'eau a fait récemment l'objet de plusieurs études théoriques (jusqu'à présent, il n'y a pas d'expériences), cette molécule joue un rôle important dans la science de la vie. Kada et al. [43] ont effectué un calcul sur la molécule d'eau avec le modèle BBK. Puis Mansouri et al. [44] ont étudié la double ionisation (e, 3e) et (e, 3-1e) des différentes couches de cette molécule en utilisant le modèle A3C. Champion et al. [45] et Oubaziz et al. [46-48] ont publié des articles sur la double ionisation d'une molécule d'eau orientée en utilisant la première approximation de Born (dans le modèle A3C). Dal Cappello et al. [49-50] a ajouté la contribution de la seconde approximation de Born pour la section efficace différentielle d'une molécule d'eau orientée avec le modèle A3C. Récemment El Mir et al. [51] ont étudié la double ionisation du méthane en utilisant le modèle de 2CWWM où la fonction d'onde de l'état final est un produit de deux ondes Coulombiennes multiplié par un facteur de correction appelé Ward-Macek [52] à la place du facteur Gamow (2CWG) pour prendre en compte la répulsion entre les deux électrons éjectés.

Le but de ce travail est de calculer les sections efficaces quintuplement différentielles et de mettre en évidence les mécanismes responsables sur la réaction de double ionisation des bases de l'ADN. La cinématique choisie dans cette étude est la même utilisée par le groupe Orsay : l'électron diffusé a une énergie de 5500 eV ou 500 eV, les deux électrons éjectés seront détectés avec des énergies de 12 eV et 37 eV.

### III.1. Description de la molécule d'ADN

Les quatre bases azotées de l'ADN sont : Cytosine 'C', Guanine 'G', Thymine 'T' et Adénine 'A'. Ces bases se ressemblent deux à deux formant deux familles : C et T sont des pyrimidines, A et G sont des purines. La combinaison de ces quatre bases élémentaires forme un brin, la liaison entre deux brins donne l'acide désoxyribonucléique ; c'est l'ADN [53]. Ces bases azotées existent dans tous les systèmes biologiques et donc jouent un rôle significatif dans la transmission et le stockage d'énergie et d'information.

La structure chimique hétérocycles des bases azotées, composés organiques comportant un cycle d'atomes d'au moins deux éléments différents, donne des propriétés particulières à ces bases : elles sont susceptibles d'être ionisées, et ont une structure moléculaire fortement stabilisée dans une configuration plane. Ces bases existent sous formes tautomères et possèdent des propriétés optiques ; absorbent



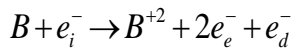
## CHAPITRE III

---

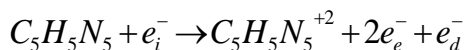
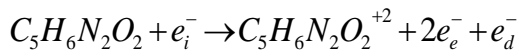
facilement la lumière UV (250nm-288nm) du fait de la présence de double liaison conjuguée dans leurs structures. L'irradiation UV ouvre les liaisons de deux bases superposées et les radiations ionisantes, rayons X ou gamma, ouvrent les cycles et les cassent.

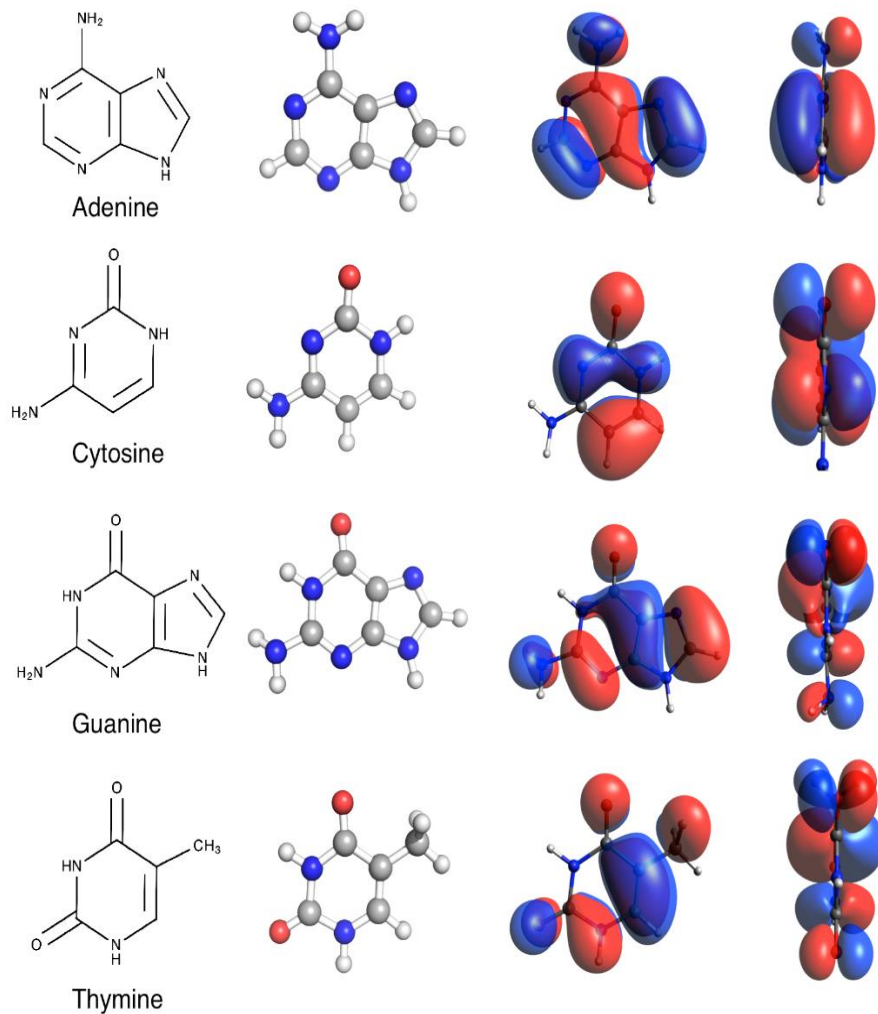
### III.2. La double ionisation des bases de l'ADN : C, G, T et A

La réaction de la double ionisation DI des bases  $B$  de l'ADN par impact d'un électron est représentée par :



La DI de chaque base d'ADN, Thymines ( $C_5H_6N_2O_2$ ), Adénine ( $C_5H_5N_5$ ), Cytosine ( $C_4H_5N_3O$ ) et Guanine ( $C_5H_5N_5O$ ) (voir figure III.1), respectivement, par impact d'électron est produite par les réactions suivantes :





**Figure III.1** : Représentation schématique des bases de l'ADN a): adénine ( $C_5H_5N_5$ , 70 électrons), b): cytosine ( $C_4H_5N_3O$ , 58 électrons), c): guanine ( $C_5H_5N_5O$ , 78 électrons) and d): thymine ( $C_5H_6N_2O_2$ , 66 électrons).

où  $e_i^-$ ,  $e_d^-$  et  $e_e^-$  désignent les électrons incident, diffusé et éjecté. Dans cette réaction (e, 3e), un électron projectile entre en collision avec l'un des électrons de valence de la cible, et les trois électrons émergents, l'électron diffusé et les deux électrons éjectés, sont détectés en coïncidence lors d'une expérience. L'étude des SEQD de cette réaction est effectuée en utilisant le modèle théorique 2CWWM, mentionné précédemment, dans la première approximation de Born ( $f_{b1}$ ). L'obtention des informations sur les mécanismes de la réaction(e, 3e), et l'investigation des conditions favorables pour la DI se fait à travers l'étude de la section efficace quintuplement différentielle  $\sigma^{(5)}$  (on pose  $e = m = \hbar = 1$ ) :

## CHAPITRE III

$$\sigma^{(6)}(\alpha, \beta, \gamma) = \frac{d^6 \sigma}{d\beta \sin \beta d\alpha d\gamma d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{k_d k_1 k_2}{k_i} |T_{fi}(\alpha, \beta, \gamma)|^2 \quad (\text{III-1})$$

$$\sigma^{(5)} = \frac{d^5 \sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} = \frac{1}{8\pi^2} \iiint d\beta \sin \beta d\alpha d\gamma [\sigma^{(6)}(\alpha, \beta, \gamma)] \quad (\text{III-2})$$

où la  $\sigma^{(5)}$  est calculée par intégration de la  $\sigma^{(6)}$  sur les angles d'Euler ( $\alpha, \beta, \gamma$ ), qui définissent l'orientation moléculaire. La section efficace quadruplement différentielle  $\sigma^{(4)}$  correspondant à un processus (e, 3-1e) est donnée par

$$\sigma^{(4)} = \frac{d^4 \sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 dE_1 dE_2} = \iint \frac{d^5 \sigma}{d\Omega_d d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1 dE_2} d\Omega_2 \quad (\text{III-3})$$

où seuls l'électron diffusé et l'un des électrons éjectés sont détectés en coïncidence.

$dE_1$  et  $dE_2$  indiquent les intervalles de l'énergie des deux électrons éjectés. Les électrons émergents, le diffusé et les deux éjectés, sont détectés respectivement à travers les éléments d'angles solides ( $d\Omega_d, d\Omega_1, d\Omega_2$ ), et les vecteurs d'onde ( $\vec{k}_d, \vec{k}_1, \vec{k}_2$ ). La conservation d'énergie dans les réactions (e, 3e) est donnée par

$$\frac{k_i^2}{2} = \frac{k_d^2}{2} + \frac{k_1^2}{2} + \frac{k_2^2}{2} + I_i \quad (\text{III-4})$$

où  $I_i$  est l'énergie de la double ionisation et  $\vec{k}_i$  le vecteur d'onde de l'électron incident. L'élément de matrice de diffusion  $T_{fi}$  définit la transition du système projectile-cible de l'état initial  $|\psi_i\rangle$  vers l'état final  $|\psi_f\rangle$  du système électron diffusé et des deux électrons éjectés.

$$T_{fi} = f_{b1} + f_{b2} \quad (\text{III-5})$$

$f_{b1}$  et  $f_{b2}$  sont les deux premiers termes de l'approximation de Born.

Dans cette étude nous utilisons seulement le premier terme de Born  $f_{b1}$ , on écrit :

$$T_{fi}(\alpha, \beta, \gamma) = f_{b1}(\alpha, \beta, \gamma) = -\frac{1}{2\pi} \langle \psi_f(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2) e^{i\vec{k}_d \cdot \vec{r}_0} | V | e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_0} \psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (\text{III-6})$$

où  $V$  représente le potentiel d'interaction entre l'électron incident et la cible donné dans le cadre de l'approximation du cœur gelé par :

$$V = \frac{-2}{r_0} + \sum_{i=1}^2 \frac{1}{|\vec{r}_{0i}|} \quad (\text{III-7})$$

$\vec{r}_0$ ,  $\vec{r}_1$  et  $\vec{r}_2$  représentent les vecteurs positions des électrons incident des deux éjectés, et  $|\vec{r}_{0i}| = |\vec{r}_0 - \vec{r}_i|$  est la distance relative entre l'électron incident et l'électron éjecté «  $i$  » ( $i = 1, 2$ ).

On peut réduire le problème de  $N$ -électrons cibles au problème à deux électrons cibles actifs en utilisant l'approximation du cœur gelé pour simplifier les calculs.

La fonction d'onde de l'état initial projectile-cible s'écrit :

$$|\psi_i(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)\rangle = |\psi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\rangle = |\phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\phi(\vec{k}_i, \vec{r}_0)\rangle \quad (\text{III-8})$$

et la fonction d'onde de l'état final (après collision) s'écrit :

$$|\psi_f(\vec{k}_d, \vec{r}_0; \vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2)\rangle = |\phi_f(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2)\phi(\vec{k}_d, \vec{r}_0)\rangle \quad (\text{III-9})$$

$\phi(\vec{k}_i, \vec{r}_0)$  et  $\phi(\vec{k}_d, \vec{r}_0)$  représentent les fonctions d'ondes des électrons incident et diffusé respectivement.

Dans cette étude, les deux électrons incident et diffusé ont des énergies cinétiques relativement élevées, ils sont représentés par des ondes planes :

$$\phi(\vec{k}, \vec{r}) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{III-10})$$

$\phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  et  $\phi_f(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2)$  sont les fonctions d'onde initiale et finale décrivant les électrons actifs de la cible.

### III.3. Description des états initial et final

L'état initial est composé d'un électron incident, représenté par une onde plane, et une fonction représentant une des bases de l'ADN. Les fonctions d'onde multi-centriques ont été construites en utilisant le programme gaussien 03 [54], où la géométrie de chaque molécule a été optimisée au niveau MP2 en employant un ensemble de base 6-31G (d). Cet ensemble de base comprend une couche de valence double-zeta et une polarisation orbitale sur les atomes différents de l'hydrogène. Ces fonctions d'onde multi-centriques sont ensuite converties en un développement relatif à un seul centre [55-56]. Nous nous limitons à l'étude de la double ionisation de la dernière couche (couche de valence) pour chaque base de l'ADN.

La fonction d'onde initiale de la cible sera écrite sous la forme suivante :

$$\phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \bar{\phi}_i(\vec{r}_1)\bar{\phi}_i(\vec{r}_2) \quad (\text{III-11})$$

où la fonction d'onde moléculaire mono-centrique  $\bar{\phi}(\vec{r})$  est exprimée par une combinaison linéaire des fonctions de type Slater [57] :

$$\bar{\phi}_i(\vec{r}) = \sum_{k=1}^{N_i} a_{ik} \phi_{n_{ik} l_{ik} m_{ik}}^{\xi_{ik}}(\vec{r}) \quad (\text{III-12})$$

où  $N_i$  est le nombre de fonctions de type Slater utilisées dans le développement de la  $i$ ème orbitale, les  $a_{ik}$  sont les poids de chaque composante du développement :

$$\phi_{n_{ik} l_{ik} m_{ik}}^{\xi_{ik}}(\vec{r}) = [R_{n_{ik} l_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) + i S_{n_{ik} l_{ik}}^{\xi_{ik}}(r)] Y_{l_{ik}}^{m_{ik}}(\hat{r}) \quad (\text{III-13})$$

## CHAPITRE III

$Y_{l_{ik}}^{m_{ik}}(\hat{r})$  représente les harmoniques sphériques complexes normalisées habituelles définies à partir des polynômes de Legendre associés  $P_l^m(\cos\theta)$ . Ces harmoniques sphériques s'écrivent :

$$Y_{lm}(\hat{r}) = \sqrt{\frac{(2l+1)(l-m)!}{4\pi(l+m)!}} \exp(im\varphi) P_l^m(\cos\theta) \quad (\text{III-14})$$

Les fonctions radiales  $(R_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) \text{ et } S_{n_{ik}}^{\xi_{ik}}(r))$  sont données par les fonctions de type Slater de la forme :

$$\frac{(2\xi_{ik})^{2n_{ik}+\frac{1}{2}}}{\sqrt{(2n_{ik})!}} b_{n_{ik}} r^{n_{ik}-1} e^{-r\xi_{ik}} \quad (\text{III-15})$$

Une difficulté majeure dans les calculs de la section efficace différentielle de la double ionisation est la description de l'état final. Nous utilisons le modèle 2CWWM [51] où l'interaction entre chaque électron éjecté et l'ion est prise en compte par une fonction d'onde Coulombienne et l'interaction entre les deux électrons éjectés est décrite par un facteur Ward-Macek  $\varphi_{WM}$  [52] :

$$|\phi_f(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2)\rangle = \left| \frac{1}{\sqrt{2}} [\phi_C(\vec{k}_1, \vec{r}_1)\phi_C(\vec{k}_2, \vec{r}_2) + \phi_C(\vec{k}_1, \vec{r}_2)\phi_C(\vec{k}_2, \vec{r}_1)] \varphi_{WM}(|\vec{k}_1 - \vec{k}_2|) \right\rangle \quad (\text{III-17})$$

$\phi_C(\vec{k}_i, \vec{r}_i)$  et la fonction d'onde Coulombienne habituelle :

$$\phi_C(\vec{k}_i, \vec{r}_i) = \frac{e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{r}_i}}{(2\pi)^{3/2}} \times {}_1F_1\left(-\frac{iZ_i}{k_i}, 1, -i(\vec{k}_i \cdot \vec{r}_i + k_i r_i)\right) \times e^{\left(\frac{\pi Z_i}{2k_i}\right)} \Gamma\left(1 + \frac{iZ_i}{k_i}\right) \quad (\text{III-18})$$

$Z_1 = Z_2 = 2$  dans cet cas, et le facteur Ward-Macek s'écrit :

$$\varphi_{WM}(|\vec{k}_1 - \vec{k}_2|) = \exp\left(-\frac{\pi\chi_{12}}{2}\right) \Gamma(1 - i\chi_{12}) {}_1F_1(i\chi_{12}, 1, -i|\vec{k}_1 - \vec{k}_2| r_{12av}) \quad (\text{III-19})$$

avec  $\chi_{12} = \frac{1}{|\vec{k}_1 - \vec{k}_2|}$  et  $r_{12av}$  représente une moyenne de  $|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$ .

En utilisant la relation Bethe

$$\int \frac{e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}}{|\vec{r} - \vec{r}_i|} d\vec{r} = \frac{4\pi}{K^2} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_i} \quad (\text{III-20})$$

l'intégration dans la formule de  $f_{bl}$  (Eq. III.6) sur les coordonnées du projectile  $\vec{r}_0$  peut être effectuée analytiquement et donc  $f_{bl}$  devient

$$f_{bl}(\alpha, \beta, \gamma) = -\frac{2}{K^2} \langle \phi_f(\vec{k}_1, \vec{r}_1; \vec{k}_2, \vec{r}_2) | -2 + e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1} + e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}_2} | \phi_i(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \rangle \quad (\text{III-21})$$

## CHAPITRE III

où  $\vec{K} = \vec{k}_i - \vec{k}_d$  est le vecteur de moment de transfert. La détermination des trois termes dans l'équation (III.21) nécessite le calcul d'intégrales de type  $I = \left\langle \Phi(\vec{k}; \vec{r}) \left| e^{i\vec{K}\cdot\vec{r}} \left| R_{n_{ik} l_{ik}}^{\xi_{ik}}(r) S_{l_{ik} m_{ik}}(\hat{r}) \right. \right. \right\rangle$  explicitement développées dans l'annexe A.

### III.4. Calcul de l'élément I «Les transformées de FOURIER-COULOMB»

On se propose de calculer l'élément de matrice :

$$I = \left\langle \Phi_c(\vec{k}_e; \vec{r}) \left| e^{i\vec{K}\cdot\vec{r}} \left| \Psi_{nlm}(\vec{r}) \right. \right. \right\rangle \quad (\text{III-22})$$

où  $\Phi_c(\vec{k}_e; \vec{r})$  et  $\vec{k}_e$  désignent respectivement la fonction d'onde coulombienne et le moment de l'électron éjecté. La formule exacte de la fonction d'onde  $\Phi_c(\vec{k}_e; \vec{r})$  s'écrit comme suit :

$$\Phi_c(\vec{k}_e; \vec{r}) = \frac{e^{i\vec{k}_e\cdot\vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\frac{\pi\alpha}{2}} \Gamma(1+i\alpha) {}_1F_1\left(-i\alpha, 1, -i(\vec{k}_e\cdot\vec{r} + k_e r)\right) \quad (\text{III-23})$$

où  ${}_1F_1\left(-i\alpha, 1, -i(\vec{k}_e\cdot\vec{r} + k_e r)\right)$  est une fonction hypergéométrique confluyente,  $\alpha$  est le coefficient de Sommerfeld défini par :  $\alpha = \frac{Z}{k_e}$ , et  $\Gamma(x)$  est la fonction gamma d'Euler.

La fonction d'onde  $\Psi_{nlm}(\vec{r})$  est de type Clémenti, peut s'écrire sous forme d'une sommation de termes de fonctions de Slater pour différentes orbitales moléculaires et poids statistiques correspondants  $\varepsilon'$  :

$$\Psi_{nlm}(\vec{r}) = \sum_{n', \varepsilon, \varepsilon'} \varepsilon' R_{n'l}(\varepsilon, r) Y_l^m(\theta, \varphi) \quad (\text{III-24})$$

Avec :  $R_{nl}(\varepsilon, r) = \frac{2\varepsilon^{n+1/2}}{\sqrt{(2n)!}} r^{n-1} e^{-\varepsilon r}$  est la partie radiale et  $Y_l^m(\theta, \varphi)$  sont les harmoniques sphériques.

Le calcul de  $I$  revient donc à calculer l'expression  $J$  :

$$J_{nlm} = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}_e\cdot\vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\frac{-\pi\alpha}{2}} \Gamma(1-i\alpha) {}_1F_1\left(-i\alpha, 1, -i(\vec{k}_e\cdot\vec{r} + k_e r)\right) \left| e^{i\vec{K}\cdot\vec{r}} \left| R_{nl}(\varepsilon, r) Y_l^m(\theta, \varphi) \right. \right. \right\rangle \quad (\text{III-25})$$

Le calcul exact de ce dernier terme est basé sur la méthode développée par Brothers et Bonham. Dans la suite nous détaillons le calcul des termes  $J(3d0)$  et  $J(11m0)$ .

#### III.4.1. Calcul de $J(3d0)$

Dans ce cas l'élément  $J$  s'écrit comme :

$$J_{3d0} = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}_e\cdot\vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\frac{\pi\alpha}{2}} \Gamma(1+i\alpha) {}_1F_1\left(-i\alpha, 1, -i(\vec{k}_e\cdot\vec{r} + k_e r)\right) \left| e^{i\vec{K}\cdot\vec{r}} \left| \frac{4\varepsilon^{7/2}}{3\sqrt{10}} r^2 e^{-\varepsilon r} Y_2^0 \right. \right. \right\rangle \quad (\text{III-26})$$

où  $Y_2^0 = \frac{\sqrt{5}}{2\sqrt{4\pi}} [3(\cos\theta)^2 - 1]$

Remplaçons la formule intégrale de la fonction  ${}_1F_1$  dans l'équation (III-26) :

$${}_1F_1(a, c, z) = \frac{\Gamma(c)}{\Gamma(a)\Gamma(c-a)} \int_0^1 t^{a-1} (1-t)^{c-a-1} e^{zt} dt \quad (\text{III-27})$$

## CHAPITRE III

$${}_1F_1\left(i\alpha, 1, -i(\vec{k}_e \cdot \vec{r} + k_e r)\right) = \frac{1}{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)} \int_0^1 t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} e^{ik_e r t} e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r} t} dt \quad (\text{III-28})$$

L'expression de l'élément  $J_{3d0}$  devient :

$$J_{3d0} = \left( \frac{4\varepsilon^{\frac{7}{2}} e^{\frac{\pi\alpha}{2}} \Gamma(1-i\alpha)}{3\sqrt{10} (2\pi)^{\frac{3}{2}}} \right) \frac{1}{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)} \int_0^1 dt t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} \int d\vec{r} e^{i(\vec{K}-\vec{k}_e) \cdot \vec{r}} e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r} t} e^{ik_e r t} e^{-\varepsilon r} r^2 Y_2^0 \quad (\text{III-29})$$

↗  
Transformée de Fourier

En utilisant la relation suivante

$$\int d\vec{r} e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} r e^{-pr} Y_l^m d\vec{r} = 4\pi(2i)^l l! \left(-\frac{d}{d\varepsilon}\right)^{1+k} \left( \frac{q^l Y_l^m(\theta_q, \phi_q)}{(q^2+p^2)^{l+1}} \right) \quad (\text{III-30})$$

où la puissance  $k$  prend des valeurs particulières :  $k = 0$  pour 1s, 2p, 3d ;  $k = 1$  pour 2s, 3p, 4d, ....

L'équation (III-29) devient (dans le cas  $k = 0$  et  $l = 2$ )

$$J_{3d0} = \left( \frac{4\varepsilon^{\frac{7}{2}} e^{\frac{\pi\alpha}{2}} \Gamma(1-i\alpha)}{3\sqrt{10} (2\pi)^{\frac{3}{2}}} \right) \frac{1}{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)} (4\pi)(-4)(2) \left(-\frac{d}{d\varepsilon}\right) \int_0^1 \frac{t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} q^2 Y_2^0}{(q^2+p^2)^3} dt \quad (\text{III-31})$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} q^2 Y_2^0 = \frac{\sqrt{5}}{2\sqrt{4\pi}} [3q^2 (\cos \theta_q)^2 - q^2] \\ q \cos \theta_q = k_i - k_d \cos \theta_d - k_e \cos \theta_e (1-t) = k_z + k_e t \cos \theta_e \\ q^2 = K^2 + k_e^2 (1-t)^2 - 2\vec{K} \cdot \vec{k}_e (1-t), \text{ ou } \vec{q} = \vec{K} - \vec{k}_e (1-t) \\ -2\vec{K} \cdot \vec{k}_e = p^2 - K^2 - k_e^2 \\ p = \varepsilon - ik_e t \\ k_z = k_i - k_d \cos \theta_d - k_e \cos \theta_e \end{array} \right.$$

En utilisant de ces dernières équations on obtient :

$$3q^2 (\cos \theta_q)^2 - q^2 = 3k_z^2 - p^2 + t[2k_e^2 + 6k_z k_e \cos \theta_e + p^2 - K^2 - k_e^2] + t^2[3k_e^2 (\cos \theta_e)^2 - k_e^2]$$

Remplaçons cette équation dans l'intégral de (III-31), on obtient une intégration de la forme

$$\int_0^1 t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} (1-tw)^{-3} \{\alpha_1 + \beta_1 t + \gamma_1 t^2\} dt ; \quad (\text{III-32})$$

$$\text{où } w = \frac{-B}{A}, \quad A + Bt = q^2 + p^2, \quad A = (\vec{K} - \vec{k}_e)^2 + \varepsilon^2 \quad \text{et} \quad B = -2(k_e^2 + i\varepsilon k_e - \vec{K} \cdot \vec{k}_e)$$

$$\alpha_1 = 3k_z^2 - p^2$$

$$\beta_1 = 2k_e^2 + 6k_z k_e \cos \theta_e + p^2 - K^2 - k_e^2$$

$$\gamma_1 = 3k_e^2 (\cos \theta_e)^2 - k_e^2$$

Le calcul des termes de l'intégral (III-32) se fait par l'intermédiaire des fonctions hypergéométriques  ${}_2F_1$  définies par

$$\int_0^1 t^{b-1} (1-t)^{c-b-1} (1-tw)^{-a} dt = \frac{\Gamma(b)\Gamma(c-b)}{\Gamma(c)} {}_2F_1(a, b, c; w) \quad (\text{III-33})$$

Pour  $\alpha_1$ :  $b = i\alpha$ ;  $c = 1$ ;  $a = 3$

or  ${}_2F_1(3, i\alpha, 1; w) = (1-w)^{-i\alpha}$  et on sait que

## CHAPITRE III

$\frac{d^2}{dw^2} [w^2 {}_2F_1(1, i\alpha, 1; w)] = 2 {}_2F_1(3, i\alpha, 1; w)$  et

$${}_2F_1(3, i\alpha, 1; w) = \frac{1}{2} [2(1-w)^{-i\alpha} + 4wi\alpha(1-w)^{-i\alpha-1} + w^2i\alpha(i\alpha+1)(1-w)^{-i\alpha-2}]$$

donc, le premier termes de l'équation (III-32) devient :

$$\frac{\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)}{2} (1-w)^{-i\alpha-2} [w^2\{(i\alpha)^2 - 3i\alpha + 2\} + 4w(i\alpha - 1) + 2] \quad (\text{III-34})$$

Pour  $\beta_1: \int_0^1 t^{i\alpha} (1-t)^{-i\alpha} (1-tw)^{-3} dt = \frac{\Gamma(1+i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(2)} {}_2F_1(3, i\alpha + 1, 2; w)$

$b = i\alpha + 1; c = 2$  et  $a = 3$ ,

et sachant que :  $\frac{d}{dw} {}_2F_1(2, i\alpha, 1; w) = \frac{2(i\alpha)}{1} {}_2F_1(3, i\alpha + 1, 2; w)$ ,

$$\frac{d}{dw} [w {}_2F_1(1, i\alpha, 1; w)] = {}_2F_1(2, i\alpha, 1; w),$$

$${}_2F_1(2, i\alpha, 1; w) = (1-w)^{-i\alpha} + wi\alpha(1-w)^{-i\alpha-1},$$

$${}_2F_1(3, i\alpha + 1, 2; w) = \frac{1}{2} (1-w)^{-i\alpha-2} [2 + w(i\alpha - 1)]$$

on obtient le deuxième terme de (III-32) :

$$\frac{i\alpha\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)}{2} (1-w)^{-i\alpha-2} [2 + w(i\alpha - 1)] \quad (\text{III-35})$$

Pour  $\gamma_1: \int_0^1 t^{i\alpha+1} (1-t)^{-i\alpha} (1-tw)^{-3} dt = \frac{\Gamma(2+i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(3)} F(3, i\alpha + 2, 3; w)$

$b = i\alpha + 2; c = 3; a = 3$ , et on a

$$\frac{d^2}{dw^2} {}_2F_1(1, i\alpha, 1; w) = i\alpha(i\alpha + 1) {}_2F_1(3, i\alpha + 2, 3; w),$$

$${}_2F_1(3, i\alpha + 2, 3; w) = (1-w)^{-i\alpha-2}$$

le troisième terme de (III-32) devient :

$$\frac{i\alpha(i\alpha+1)\Gamma(i\alpha)\Gamma(1-i\alpha)}{2} (1-w)^{-i\alpha-2} \quad (\text{III-36})$$

par conséquent, l'élément (III-31) s'écrit sous cette nouvelle forme :

$$J_{3d0} = C_{3d0} \left( \frac{\sqrt{5}}{2\sqrt{4\pi}} \right) \frac{(-32\pi)}{(2)} \left( -\frac{d}{d\varepsilon} \right) [(A+B)^{-i\alpha-2} A^{i\alpha-3} \{ \alpha_0 B^2 [(i\alpha)^2 - 3i\alpha + 2] - 4\alpha_0 BA(i\alpha - 1) + 2\alpha_0 A^2 + 2\beta_0 i\alpha A^2 - \beta_0 i\alpha AB(i\alpha - 1) + \gamma_0 i\alpha (1 + i\alpha) A^2 \}] \quad (\text{III-37})$$

Ensuite, nous posons:  $f = A^{i\alpha-3}$ ,  $g = (A+B)^{-i\alpha-2}$  et

$$h = A^2 [2\alpha_0 + 2\beta_0 i\alpha + \gamma_0 i\alpha (1 + i\alpha)] - AB(i\alpha - 1) [4\alpha_0 + \beta_0 i\alpha] + \alpha_0 B^2 [(i\alpha)^2 - 3i\alpha + 2]$$

et leurs dérivées par rapport à  $\varepsilon$  sont :

$$f^{(1)} = 2\varepsilon(i\alpha - 3)A^{i\alpha-4}, \quad g^{(1)} = -2(\varepsilon - ik_e)(i\alpha + 2)(A+B)^{-i\alpha-3},$$

$$h^{(1)} = 4\varepsilon A [2\alpha_0 + 2\beta_0 i\alpha + \gamma_0 i\alpha (1 + i\alpha)] - 2\varepsilon B(i\alpha - 1) [4\alpha_0 + \beta_0 i\alpha] +$$

$$2\varepsilon A(ik_e)(i\alpha - 1) [4\alpha_0 + \beta_0 i\alpha] - 4\alpha_0 B(ik_e) [(i\alpha)^2 - 3i\alpha + 2]$$

Enfin,  $J_{3d0}$  peut s'écrire sous la forme suivante :



## CHAPITRE III

$$J_{3d0} = \left( \frac{\sqrt{5}}{2\sqrt{4\pi}} \right) (16\pi C_{3d0}) [f^{(1)}gh + fg^{(1)}h + fgh^{(1)}] \quad (\text{III-38})$$

$$\text{avec } 16\pi C_{3d0} = \frac{16 \varepsilon^{7/2} e^{\frac{\pi\alpha}{2}}}{3\sqrt{5}\sqrt{\pi}}.$$

### III.4.2. Calcul de $J(11m0)$

Nous rappelons que l'élément  $J_{11m}$  s'écrit comme :

$$J_{11m} = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1 + i\alpha) {}_1F_1(-i\alpha; 1; -i(k_e r + \vec{k}_e \cdot \vec{r})) \right\rangle e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \left| \frac{4\varepsilon^{23/2} Y_{10}^m r^{10} e^{-\varepsilon r}}{63(11)225\sqrt{88179}} \right\rangle \quad (\text{III-39})$$

En suivant les mêmes étapes du calcul précédent (cas de l'élément  $J_{3d}$ ), nous trouvons l'expression finale de  $J_{11m0}$  suivante :

$$J_{11m0} = C_{11m0} [f^{(1)}gh + fg^{(1)}h + fgh^{(1)}] \quad (\text{III-40})$$

tel que :  $f = A^{i\alpha-11}$ ,  $= (A + B)^{-i\alpha-10}$ , et :

$$h = A^{10}r_1 - BA^9r_2 + B^2A^8r_3 - B^3A^7r_4 + B^4A^6r_5 - B^5A^5p_6 + B^6A^4r_7 - B^7A^3r_8 + B^8A^2r_9 - B^9Ar_{10} + B^{10}r_{11}$$

$$h^{(1)} = 20\varepsilon A^9r_1 - r_2(18\varepsilon BA^8 - 2ik_e A^9) + r_3(16\varepsilon B^2A^7 - 4ik_e BA^8) - r_4(14\varepsilon B^3A^6 - 6ik_e B^2A^7) + r_5(12\varepsilon B^4A^5 - 8ik_e B^3A^6) - r_6(10\varepsilon B^5A^4 - 10ik_e B^4A^5) + r_7(8\varepsilon B^6A^3 - 12ik_e B^5A^4) - r_8(6\varepsilon B^7A^2 - 14ik_e B^6A^3) + r_9(4\varepsilon B^8A - 16ik_e B^7A^2) - r_{10}(2\varepsilon B^9 - 18ik_e B^8) + r_{11}(-20ik_e B^9)$$

Les coefficients  $r_{i=1,11}$  sont donnés par les formules suivantes :

$$r_1 = \left[ \begin{array}{l} \alpha_0(\alpha + 9)(\alpha + 8)(\alpha + 7)(\alpha + 6)(\alpha + 5)(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 10\beta_0(\alpha + 8)(\alpha + 7)(\alpha + 6)(\alpha + 5)(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 90\gamma_0(\alpha + 7)(\alpha + 6)(\alpha + 5)(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 720\delta_0(\alpha + 6)(\alpha + 5)(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 5040\sigma_0(\alpha + 5)(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 30240\lambda_0(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 151200\mu_0(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 604800\varepsilon_0(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 1814400\eta_0(\alpha + 1)\alpha + \\ 3628800\pi_0\alpha + 3628800\Lambda_0 \end{array} \right]$$

$$r_2 = (\alpha - 1) \left[ \begin{array}{l} \beta_0(\alpha + 8)(\alpha + 7)(\alpha + 6)(\alpha + 5)(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 20\gamma_0(\alpha + 7)(\alpha + 6)(\alpha + 5)(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 270\delta_0(\alpha + 6)(\alpha + 5)(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 2880\sigma_0(\alpha + 5)(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 25200\lambda_0(\alpha + 4)(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 181440\mu_0(\alpha + 3)(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 1058400\varepsilon_0(\alpha + 2)(\alpha + 1)\alpha + \\ 4838400\eta_0(\alpha + 1)\alpha + \\ 16329600\pi_0\alpha + 36288000\Lambda_0 \end{array} \right]$$

## CHAPITRE III

$$r_3 = q'_3 \left[ \begin{array}{l} \gamma_0(i\alpha + 7)(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 30\delta_0(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 540\sigma_0(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 7200\lambda_0(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 75600\mu_0(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 635040\varepsilon_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 4233600\eta_0(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 21772800\pi_0i\alpha + 81668000\Lambda_0 \end{array} \right]$$

$$r_4 = q'_4 \left[ \begin{array}{l} \delta_0(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 40\sigma_0(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 900\lambda_0(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 14400\mu_0(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 176400\varepsilon_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 1693440\eta_0(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 12700800\pi_0i\alpha + 72576000\Lambda_0 \end{array} \right]$$

$$r_5 = q'_5 \left[ \begin{array}{l} \sigma_0(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 50\lambda_0(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 1350\mu_0(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 25200\varepsilon_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 352800\eta_0(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 3810240\pi_0i\alpha + 31752000\Lambda_0 \end{array} \right]$$

$$r_6 = q'_6 \left[ \begin{array}{l} \lambda_0(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 60\mu_0(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 1890\varepsilon_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 40320\eta_0(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 635040\pi_0i\alpha + 7620480\Lambda_0 \end{array} \right], \quad r_7 = q'_7 \left[ \begin{array}{l} \mu_0(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 70\varepsilon_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 2520\eta_0(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 60480\pi_0i\alpha + 1058400\Lambda_0 \end{array} \right]$$

$$r_8 = q'_8 \left[ \begin{array}{l} \varepsilon_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 80\eta_0(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 3240\pi_0i\alpha + 86400\Lambda_0 \end{array} \right], \quad r_9 = q'_9 \left[ \begin{array}{l} \eta_0(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 90\pi_0i\alpha + 4050\Lambda_0 \end{array} \right], \quad r_{10} = q'_{10}[\pi_0i\alpha + 100\Lambda_0],$$

$$r_{11} = q'_{11}\Lambda_0$$

Les coefficients  $q'_{i=1,11}$  et  $(\alpha_0, \beta_0, \gamma_0, \delta_0, \sigma_0, \lambda_0, \mu_0, \varepsilon_0, \eta_0, \pi_0, \Lambda_0)$  de  $J_{11m0}$  sont déterminés de la même façon utilisée dans le calcul des coefficients de l'élément  $J_{12n0}$  dans l'annexe A.

### III.5. Conclusion

L'objectif de ce chapitre est de présenter le modèle théorique utilisé pour décrire le processus de double ionisation des bases moléculaires de l'ADN. Nous avons présenté les calculs nécessaires pour l'évaluation des sections efficaces quintuplement et quadruplement différentielles. La cible est décrite, dans son état initial, par une fonction d'onde donnée par un développement sous formes de Slater. L'état final est composé d'électrons émergents (un diffusé et deux autres éjectés) dans le champ de la cible résiduelle. L'interaction entre chaque électron éjecté et l'ion résiduel est décrite par une onde

## CHAPITRE III

---

coulombienne. Les corrélations entre les deux électrons éjectés dans le continuum sont décrites par le facteur de Ward-Macek.

## CHAPITRE III

---

### Références

- [1] L. Sanche, Eur. Phys. J. D **35**, 367 (2005).
- [2] F. Martin, P. D. Burrow, Z. Cai, P. Cloutier, D. Hinting, and L. Sanche, Phys. Lett. **93**, 068101 (2004).
- [3] B. Boudaiffa, P. Cloutier, D. Hunting, M.A. Huels, and L. Sanche, Science **287**, 1658 (2000).
- [4] S. M. Bellm, C.J. Colyer, B. Lohmann, and C. Champion, Phys. Rev. A **85**, 022710 (2012).
- [5] A. Lahmam-Bennani, C. Dupré, and A. Duguet, Phys. Rev. Lett. **63**, 1582 (1989).
- [6] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, A. M. Grisogono, and M. Lecas, J. Phys. B. **25**, 2873 (1992).
- [7] I. Taouil, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M. Lecas, and L. Avaldi, Phys. Rev. Lett. **81**, 4600 (1998).
- [8] A. Lahmam-Bennani, I. Taouil, A. Duguet, M. Lecas, L. Avaldi, and J. Berakdar, Phys. Rev. A **59**, 3548 (1999).
- [9] A. Dorn, R. Moshhammer, C. D. Schröter, T. J. M. Zouros, W. Schmitt, H. Kollmus, R. Mann, and J. Ullrich, Phys. Rev. Lett. **82**, 2496 (1999).
- [10] A. Dorn, A. Kheifets, C. D. Schröter, B. Najjari, C. Höhr, R. Moshhammer, and J. Ullrich, Phys. Rev. Lett. **86**, 3755 (2001).
- [11] A. Dorn, A. Kheifets, C. D. Schröter, B. Najjari, C. Höhr, R. Moshhammer, and J. Ullrich, Phys. Rev. A **65**, 115202 (2001).
- [12] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M. N. Gaboriaud, I. Taouil, M. Lecas, A. Kheifets, J. Berakdar, and C. Dal Cappello, J. Phys. B **34**, 3073 (2001).
- [13] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, C. Dal Cappello, H. Nebdi, and B. Piraux, Phys. Rev. A **67**, 010701 R (2003).
- [14] B. El Marji, C. Schröter, A. Duguet, A. Lahmam-Bennani, M. Lecas, and L. Spielberger, J. Phys. B **30**, 3677 (1997).
- [15] C. C. Jia, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, L. Avaldi, M. Lecas, and C. Dal Cappello, J. Phys. B **35**, 1103 (2002).
- [16] C. C. Jia, A. Lahmam-Bennani, C. Dal Cappello, A. Duguet, and L. Avaldi, J. Phys. B **36**, L17 (2003).
- [17] A. Naja, E. M. Staicu-Casagrande, X. G. Ren, F. Catoire, A. Lahmam-Bennani, C. Dal Cappello, and C. T. Whelan, J. Phys. B **40**, 2871 (2007).
- [18] C. Li, E. M. Staicu-Casagrande, A. Lahmam-Bennani, and A. Naja, J. Phys. B **45**, 135201 (2012).
- [19] E. M. Staicu-Casagrande, C. Li, A. Lahmam-Bennani, and C. Dal Cappello, J. Phys. B **47**, 115203 (2014).
- [20] M. Brauner, J. S. Briggs, and H. Klar, J. Phys. B **22**, 2265 (1989).
- [21] B. Joulakian, C. Dal Cappello, and M. Brauner, J. Phys B **25**, 2863 (1992).

## CHAPITRE III

---

- [22] B. Joulakian and C. Dal Cappello, *Phys. Rev. A* **47**, 3788 (1993).
- [23] J. Berakdar and H. Klar, *J. Phys B* **26**, 4219 (1993).
- [24] A. Kheifets, I. Bray, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, and I. Taouil, *J. Phys B* **32**, 5047 (1999).
- [25] A. Kheifets, I. Bray, J. Berakdar, and C. Dal Cappello, *J. Phys B* **35**, L15 (2002).
- [26] V. Serov, V. Derbov, B. Joulakian, and S. Vinitzky, *Phys. Rev. A* **75**, 012715 (2007).
- [27] G. Gasaneo, L. U. Ancarani, D. M. Mitnik, J. M. Randazzo, A. L. Frapiccini, and F. D. Colavecchia, *Adv. Quantum Chem.* **67**, 153 (2013).
- [28] S. Jones and D. H. Madison, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 073201 (2003).
- [29] P. Pluvinage, *Ann. Phys., (N.Y.)* **5**, 145 (1950).
- [30] L. U. Ancarani, T. Montagnese, and C. Dal Cappello, *Phys. Rev. A* **70** 012701 (2003).
- [31] L. U. Ancarani and C. Dal Cappello, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **161** 22 (2007).
- [32] A. S. Kheifets and I. Bray, *Phys. Rev. A* **69**, 050701 (R) (2004).
- [33] J. Berakdar, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4036 (2000).
- [34] S. A. Zaytsev, V.A. Knyr, and Yu. V. Popov, *Phys. At. Nucl.* **70**, 676 (2007).
- [35] M. Grin, C. Dal Cappello, R. El Mkhater, and J. Rasch, *J. Phys. B.* **33**, 131 (2000).
- [36] A. Kheifets, *Phys. Rev. A* **69**, 032712 (2004).
- [37] A. W. Malcherek and J. S. Briggs, *J. Phys. B.* **30**, 4419 (1997).
- [38] J. R. Götz, M. Walter, and J. S. Briggs, *J. Phys. B.* **36**, L77 (2003).
- [39] A. Mansouri, C. Dal Cappello, S. Houamer, I. Charpentier, and A. Lahmam-Bennani, *J. Phys. B* **37**, 1203 (2004).
- [40] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, and S. Roussin, *J. Phys. B* **35**, L59 (2002).
- [41] O. Chuluunbaatar, B. Joulakian, I. V. Puzynin, K. H. Tsookhuu, and S. I. Vinitzky, *J. Phys. B* **41**, 015204 (2008).
- [42] O. Chuluunbaatar, A. Gusev, and B. Joulakian, *J. Phys. B* **45**, 015205 (2012).
- [43] I. Kada, A. Mansouri, C. Dal Cappello, P. A. Hervieux, and A. C. Roy, *J. Phys. B* **42**, 025201 (2009).
- [44] A. Mansouri, C. Dal Cappello, I. Kada, C. Champion, and A. C. Roy, *Phys. Lett. A* **373**, 3151 (2010).
- [45] C. Champion, D. Oubaziz, H. Aouchiche, Yu V. Popov, and C. Dal Cappello, *Phys. Rev. A* **81**, 032704 (2010).
- [46] D. Oubaziz, H. Aouchiche, and C. Champion, *Phys. Rev. A* **83**, 012708 (2011).
- [47] D. Oubaziz, C. Champion, and H. Aouchiche, *Phys. Rev. A* **88**, 042709 (2013).
- [48] D. Oubaziz, M. A. Quinto, and C. Champion, *Phys. Rev. A* **91**, 022703 (2015).

## CHAPITRE III

---

- [49] C. Dal Cappello, I. Kada, A. Mansouri, and C. Champion, J. Phys. B: Conf. Ser. **288**, 012004 (2011).
- [50] C. Dal Cappello, C. Champion, I. Kada, and A. C. Mansouri, Phys. Rev. A **83**, 062716 (2011).
- [51] R. El Mir, E. M. Staicu-Casagrande, C. Dal Cappello, A. Naja, A. Mansouri and I. Kada, J. Phys. B: Conf. Ser. **601**, 012005 (2015).
- [52] S. J. Ward and J. H. Macek, Phys. Rev. A **49**, 1049 (1994).
- [53] H. Bartels, Ann. Physik, 6 (1930) 957.
- [54] M. J. Frisch et al., Gaussian 03, Revision B.05, Gaussian, Inc., Wallingford CT, (2004).
- [55] H. Hafied, A. Eschenbrenner, C. Champion, M.F. Ruiz-Lopez, C. Dal Cappello, I. Charpentier and P.A. Hervieux, Chem. Phys. Lett. 439, 55 (2007).
- [56] K. Kaufmann, W. Baumeister and M. Jungen, J. Phys. B **22**, 2223 (1989).
- [57] C. Dal Cappello, Z. Rezkallah, S. Houamer, I. Charpentier, P. A. Hervieux, F. Ruiz-Lopez, R. Dey and A. C. Roy, Phys. Rev. A **84**, 032711 (2011).

# **Chapitre IV**

## **Résultats et discussion**

### Introduction

Nous avons étudié les sections efficaces quintuplement différentielles dans le cas de la double ionisation des quatre bases de l'ADN par impact d'électrons pour deux énergies différentes du faisceau d'électrons incidents, l'une à haute énergie et l'autre à une plus faible. L'état initial de chaque molécule est décrit par une fonction calculée dans une approche multicentrique, elle est ensuite convertie en un développement par rapport à un seul centre. Puis la fonction moléculaire est écrite finalement comme des combinaisons linéaires des fonctions de type Slater. Les électrons incident et diffusé sont décrits par des ondes planes. Dans la voie de sortie, les électrons éjectés sont décrits par des ondes Coulombiennes, la corrélation entre les électrons éjectés est décrite par le facteur de Ward et Macek [1] qui utilise une fonction hypergéométrique avec une distance moyennée entre les deux électrons.

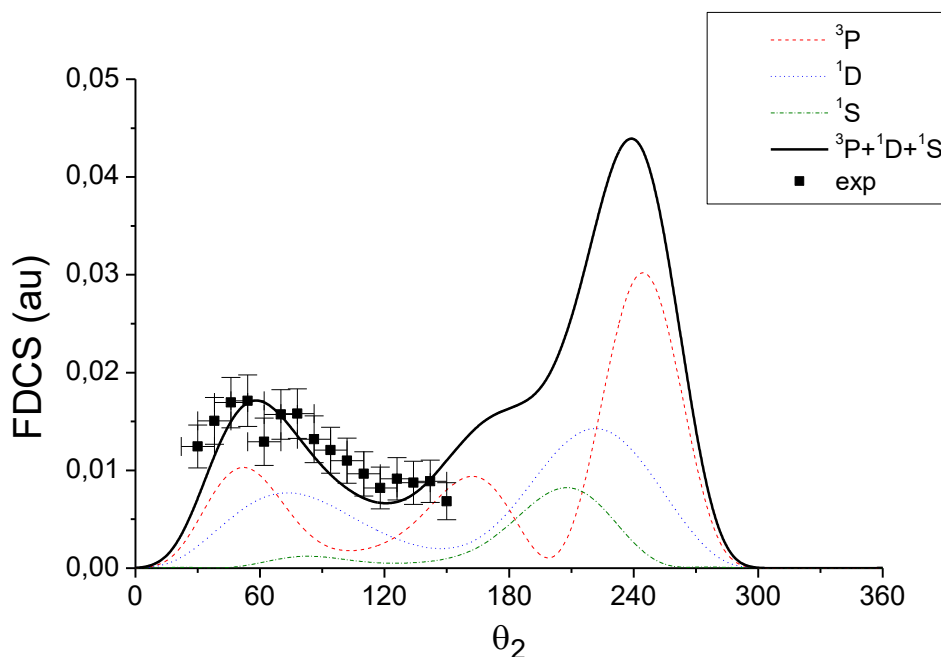
Nous présentons dans le présent chapitre l'ensemble des résultats obtenus dans cette étude. Le but dans ce travail étant, d'une part de cerner les mécanismes réactionnels impliqués dans la double ionisation des bases de l'ADN, et d'autre part de déterminer les conditions cinématiques de ces mécanismes et d'étudier la forme et l'amplitude des sections efficaces différentielles. Cette analyse se décompose en deux parties principales : l'étude du processus  $(e, 3e)$  dans des conditions cinématiques particulières (conditions du groupe d'Orsay) [2-5] en utilisant l'approximation de Ward-Macek "2CWWM" et avec un choix de deux types d'énergies d'incidence haute et plus faible.

### Partie I : Double ionisation des bases de l'ADN à haute énergie

#### IV.1. Variation de la SEQD $\sigma^{(5)}(\theta_1, \theta_2)$

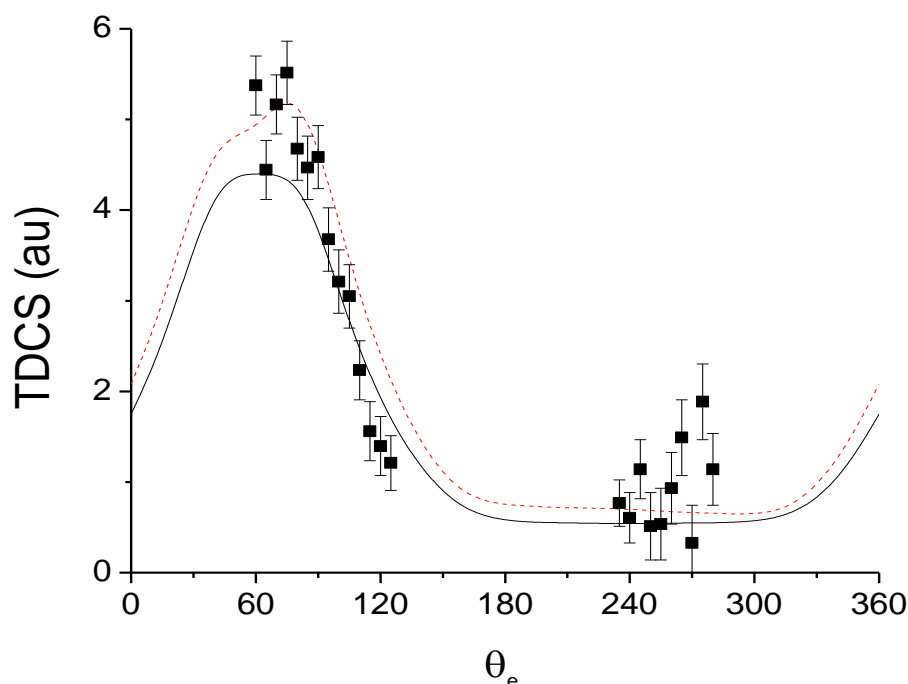
Jusqu'à présent, il n'y a pas de données expérimentales pour la double ionisation des bases de l'ADN. Pour vérifier la validité de notre modèle, nous comparons nos calculs, appliqués à la double ionisation du néon, avec les données expérimentales de SEQD de Schröter et al. [6]. La figure IV-1 montre que notre modèle est capable de donner un bon accord avec ces expériences et pourrait être utilisé pour la double ionisation d'autres atomes et molécules dans le cas d'une énergie incidente élevée (plus de 2 keV [7]).





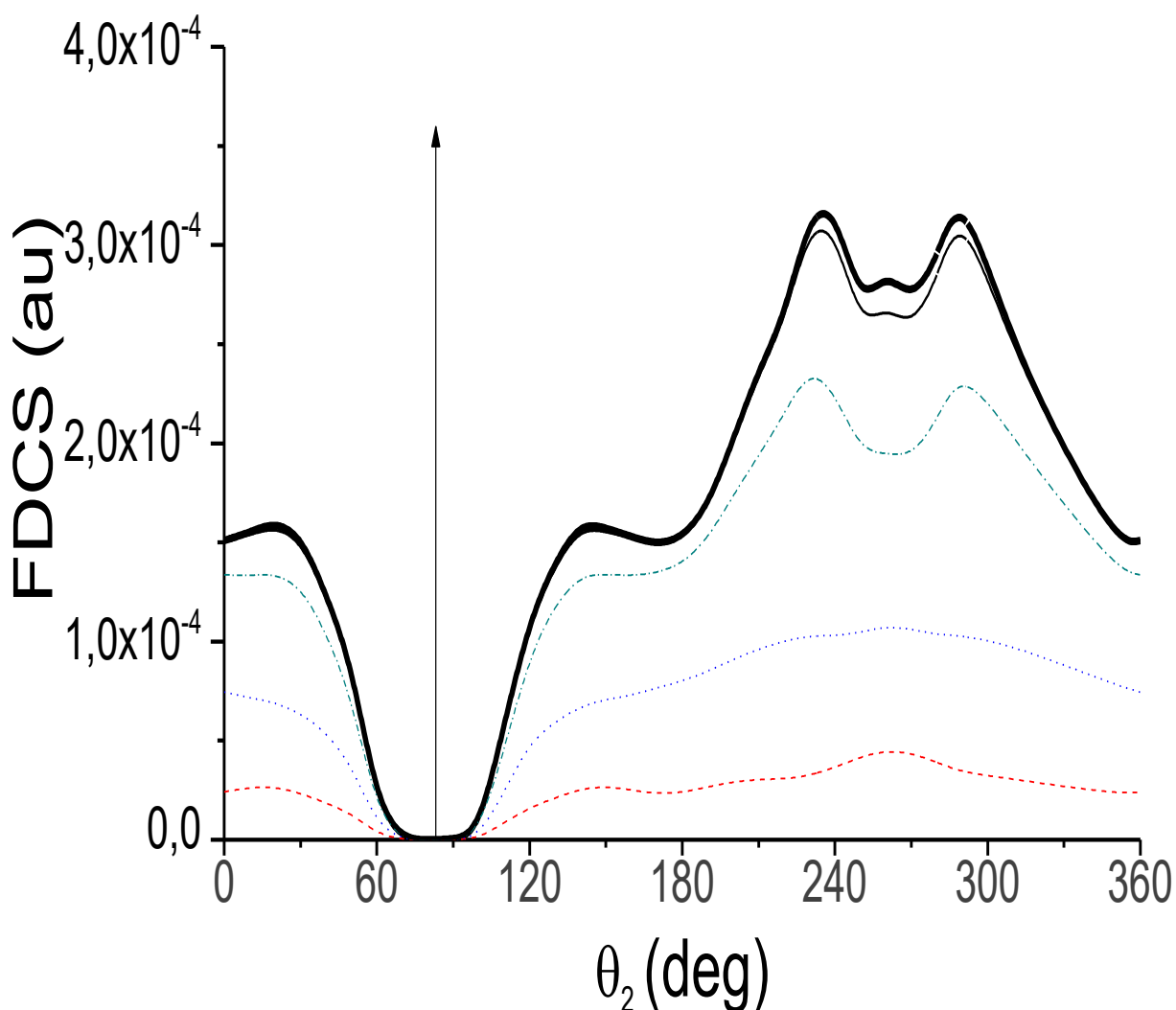
**Figure IV.1a :** La SEQD en unités atomiques pour la double ionisation du néon 2P6. Les énergies de l'électron diffusé et des éjectés sont respectivement de 5500 eV et de 10 eV. L'angle de diffusion est  $\theta_d = 0.45^0$ . Un électron est détecté à  $\theta_1 = 330^0$ . Les données expérimentales sont celles de Schröter et al. [6]. La ligne continue noire représente les résultats de notre modèle pour les trois états de l'ion ( $^3P + ^1D + ^1S$ ). Les lignes en pointillées représentent les résultats de notre modèle pour les états  $^3P$ (en rouge),  $^1D$ (en bleu) et  $^1S$ (en vert).

Puis nous discutons des résultats donnés par l'approximation de Born pour la section efficace triple différentielle (TDCS) dans le cas de la simple ionisation de la thymine figure IV-1b, où l'électron éjecté est décrit par une onde Coulombienne. On remarque un bon accord avec les données expérimentales relatives de Bellm et al. [8]. Une étude complète de la simple ionisation de la thymine peut être trouvée dans les références [9-11].



**Figure IV.1b** : Section efficace triple différentielle en unités atomiques pour la simple ionisation de la thymine (orbital 2a). Les énergies des électrons incident et éjecté sont de 250 eV et de 20 eV respectivement. L'électron diffusé est détecté à  $-10^\circ$  et  $-15^\circ$ . Les données expérimentales sont celles de Bellm et al. [8]. La ligne continue représente les résultats de la première approximation de Born et la ligne pointillée représente ceux de la seconde approximation de Born.

La fonction d'onde, pour les dernières couches des quatre bases de l'ADN, sont écrites sous la forme d'un développement sur les fonctions propres du nombre quantique orbital de  $L=1$  jusqu'à  $L=16$ . Pour optimiser le temps de calcul, nous avons tracé la SEQD pour la double ionisation de l'adénine (figure IV-2), Il est clair que les contributions de  $L = 1$  à  $L = 10$  sont suffisantes et nous pouvons négliger les autres contributions (de  $L = 11$  à  $L = 16$ ), l'erreur étant inférieure à 5%. Pour toute base d'ADN, nous limitons le développement en ondes partielles de la fonction d'onde multi-centrique de  $L = 1$  à  $L = 10$ .



**Figure IV.2 :** La SEQD en unités atomiques pour la double ionisation de l'adénine. L'électron diffusé a une énergie de 5500 eV, et les électrons éjectés ont une énergie de 37 eV. L'angle de diffusion est de  $-6^{\circ}$ . Le premier électron éjecté est détecté dans la direction de moment de transfert, tandis que le second est détecté à des angles variables. La flèche indique la direction du moment de transfert. Les calculs théoriques sont effectués dans la première approximation de Born: ondes partielles  $L = 1$  à  $L = 4$  (ligne discontinue), des ondes partielles  $L = 1$  à  $L = 6$  (ligne pointillée), les ondes partielles  $L = 1$  à  $L = 8$  ( ligne discontinue- pointillée), les ondes partielles  $L = 1$  à  $L = 10$  (ligne continue fine) et des ondes partielles  $L = 1$  à  $L = 16$  (ligne continue et épaisse).

#### IV.1.1. Variation de $\sigma^{(5)}(\theta_1, \theta_2)$ des bases de l'ADN

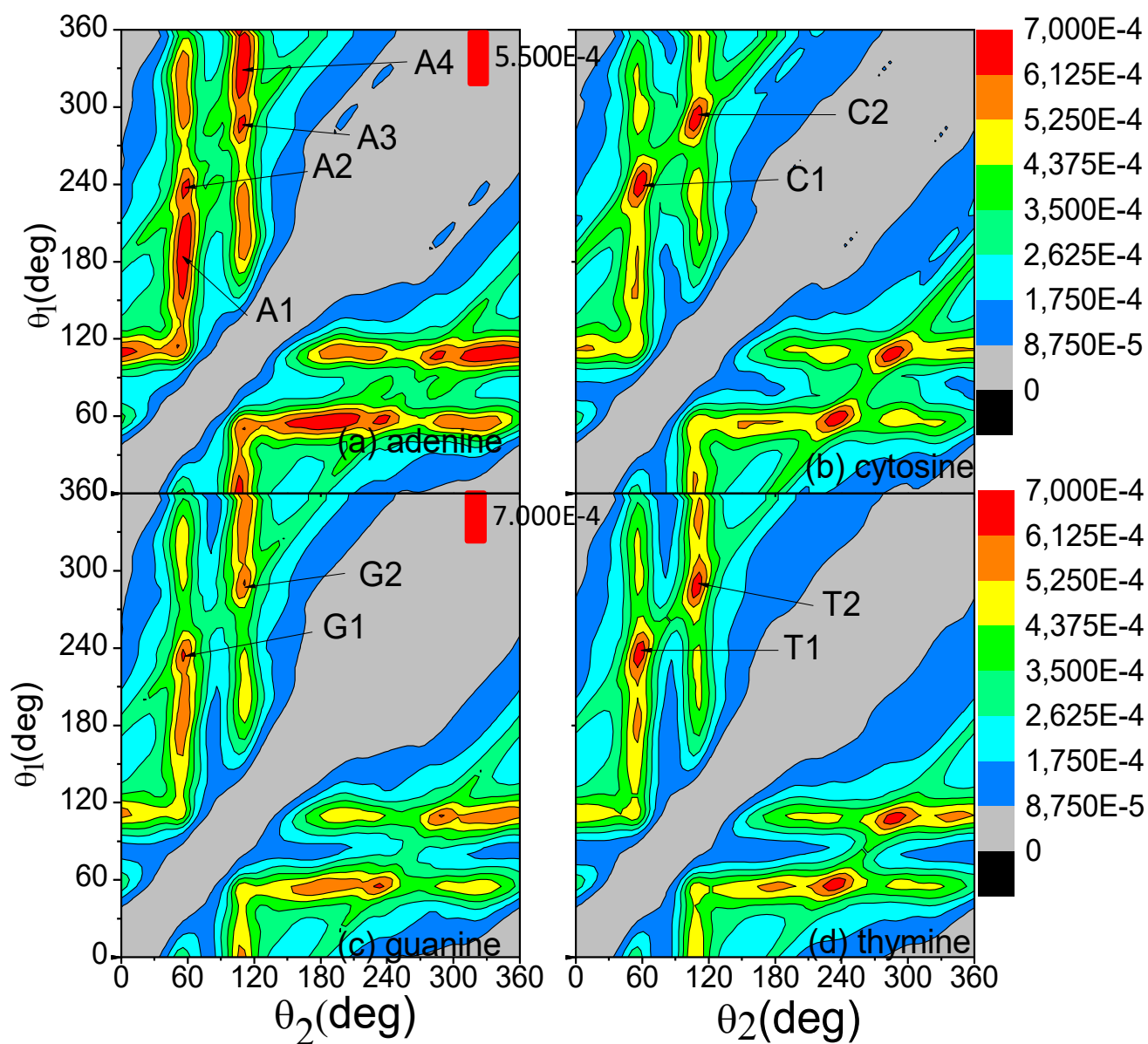
Nous présentons maintenant les résultats obtenus pour le calcul de la SEQD de la double ionisation des bases de l'ADN dans la cinématique utilisées par le groupe Orsay [2-5] : l'énergie diffusée est toujours fixée à 5500 eV, l'angle diffusé est  $\theta_d = -6^{\circ}$  [12]. Les électrons éjectés sont détectés avec des

## CHAPITRE IV

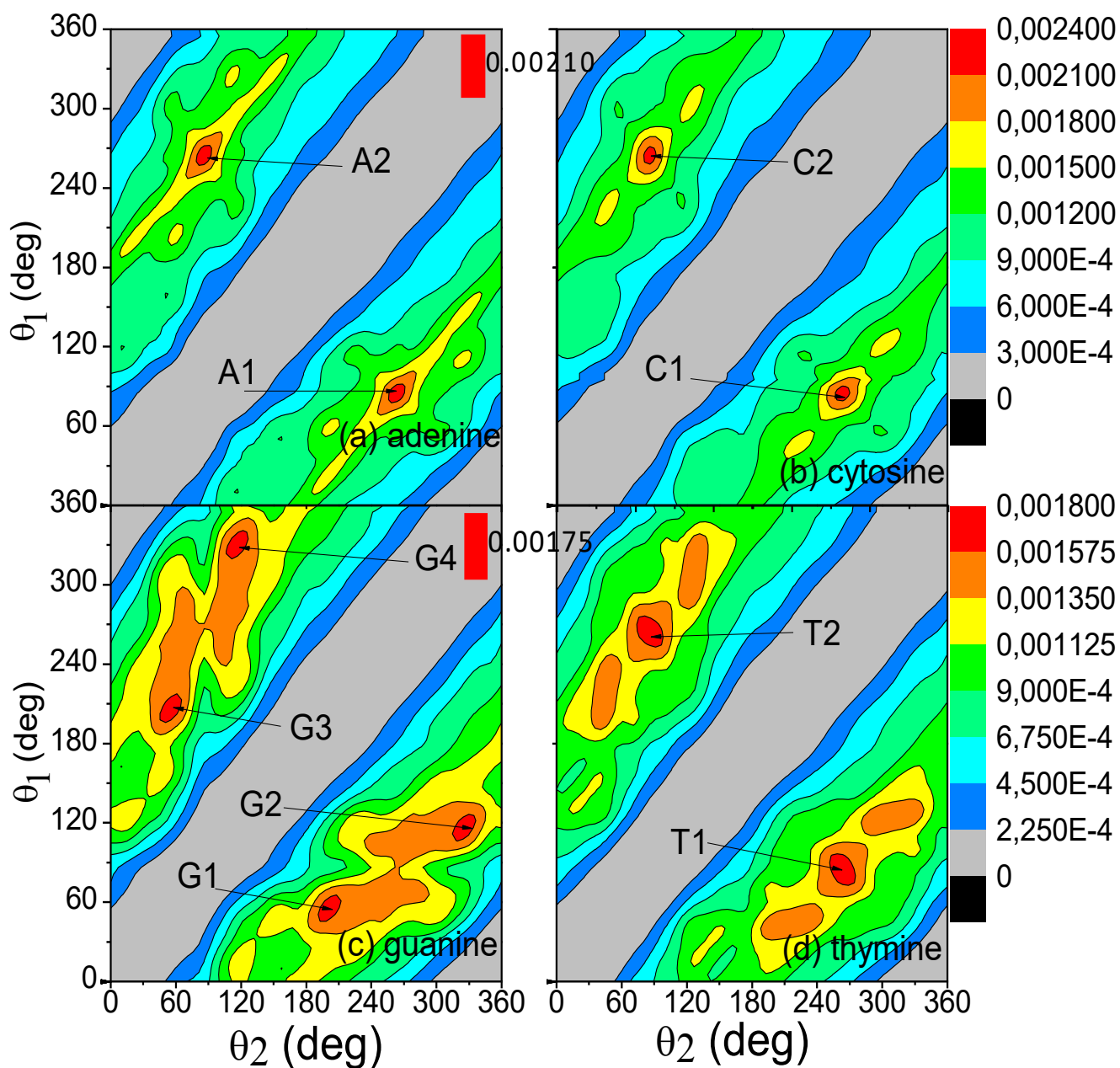
---

énergies égales : 1)  $E_1 = E_2 = 12$  eV, 2)  $E_1 = E_2 = 37$  eV, et avec des énergies inégales :  $E_1 = 12$  eV,  $E_2 = 37$  eV.

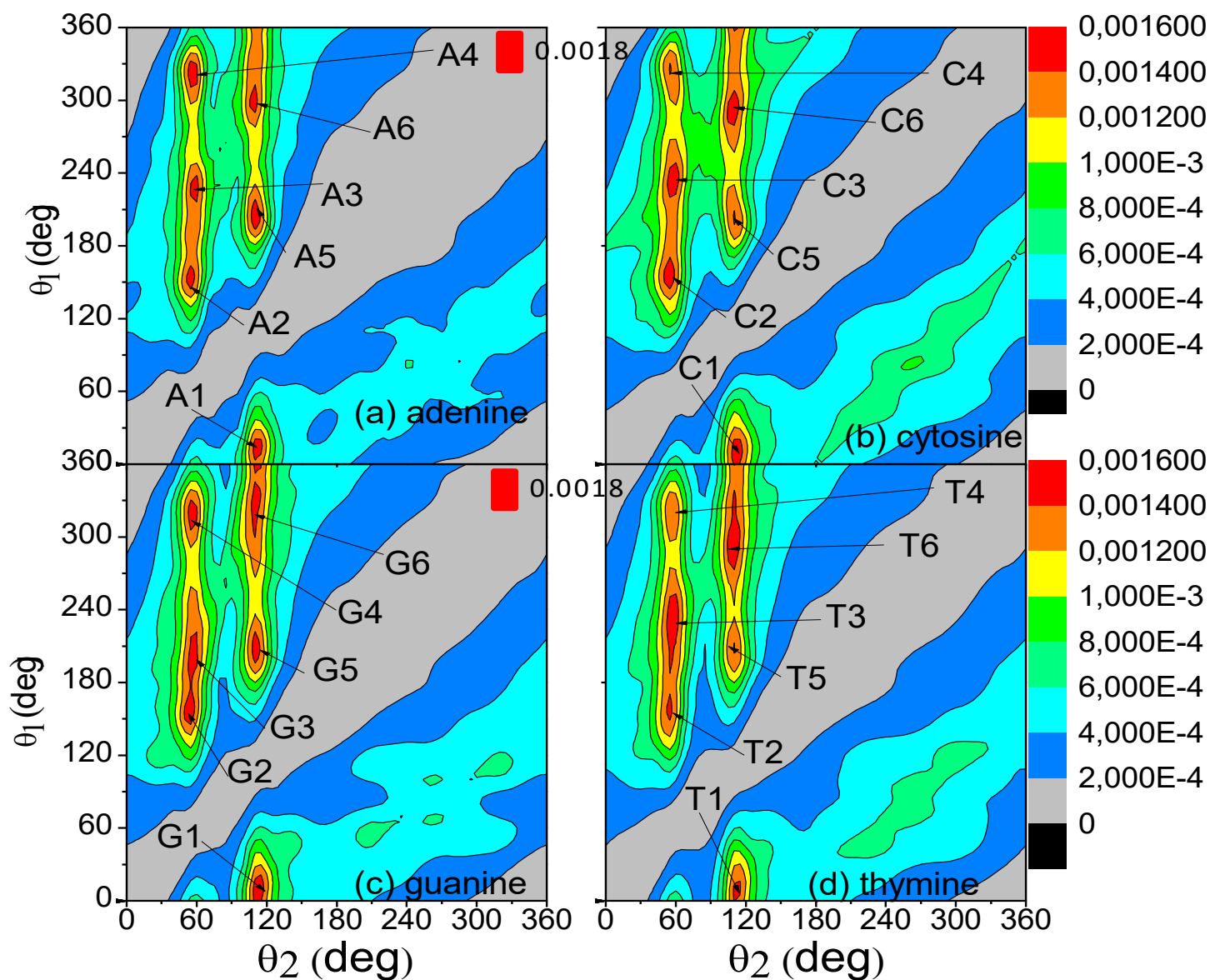
Les figures IV-3, IV-4 et IV-5 donnent, respectivement, les variations du **SEQD**, en unités atomiques, en fonction des deux angles d'éjections :  $\theta_1$  et  $\theta_2$  (directions des deux électrons éjectés).



**Figure IV.3 :** La SEQD en unités atomiques pour la double ionisation de la dernière couche de l'adénine (a), de la cytosine (b), de la guanine (c) et de la thymine (d) en fonction des angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  des électrons éjectés par rapport à la direction de l'électron incident. L'énergie de l'électron diffusé est de 5500 eV et  $\theta_d = -6^\circ$ . Les énergies des électrons éjectés sont  $E_1 = E_2 = 37\text{eV}$ .



**Figure IV.4 :** La SECD en unités atomiques pour la double ionisation de la dernière couche de l'adénine (a), de la cytosine (b), de la guanine (c) et de la thymine (d) en fonction des angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  des électrons éjectés par rapport à la direction de l'électron incident. L'énergie de l'électron diffusé est de 5500 eV et  $\theta_d = -6^\circ$ . Les énergies des électrons éjectés sont  $E_1 = E_2 = 12\text{eV}$ .



**Figure IV.5 :** La SECD en unités atomiques pour la double ionisation de la dernière couche de l'adénine (a), de la cytosine (b), de la guanine (c) et de la thymine (d) en fonction des angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  des électrons éjectés par rapport à la direction de l'électron incident. L'énergie de l'électron diffusé est de 5500 eV et  $\theta_d = -6^\circ$ . Les énergies des électrons éjectés sont  $E_1 = 12\text{eV}$  et  $E_2 = 37\text{eV}$ .

## CHAPITRE IV

On observe très peu de différences entre la figure IV-3 ( $E_1 = E_2 = 37eV$ ) et la figure IV-5 ( $E_1 = 12eV$  et  $E_2 = 37eV$ ) : il y a quatre maximums dans les cas de la double ionisation de la cytosine, la guanine et la thymine. Un électron est éjecté le long des directions  $\vec{K} \pm 30^0$  qui donnent :  $53^0$  ou  $113^0$ , puis le second électron est éjecté dans la direction opposée :  $233^0$  ou  $293^0$ . Le mécanisme ici est le SO : un électron est éjecté le long du maximum de la section efficace différentielle (voir la figure IV-6 qui correspond à une simple ionisation des bases de l'ADN) et nous constatons que nous avons deux maxima dans la région binaire (la direction du moment de transfert n'est pas la situation la plus favorable). Le second électron de la cible est éjecté dans la direction opposée qui est la situation la plus favorable si l'on tient compte de la répulsion entre les deux électrons éjectés, parce que le pic de recul ne présente pas pratiquement de maximum (figure IV-6).

Pour la double ionisation de l'adénine nous observons huit maxima. Quatre d'entre eux sont similaires aux cas précédents (mécanisme SO). Les quatre autres maxima sont localisés à  $(48^0, 178^0)$ ,  $(118^0, 348^0)$  et leurs positions symétriques  $(177^0, 47^0)$  et  $(347^0, 117^0)$ . Un premier électron est éjecté comme précédemment ( $53^0$  ou  $113^0$ ). Pour le cas où le premier électron éjecté à  $53^0$ , il entre en collision avec un autre électron de la cible et l'angle entre ces deux électrons doit être un peu plus de  $90^0$  : nous obtenons  $53^0 + 65^0 = 118^0$ , et  $53^0 - 65^0 = 348^0$ . Cette seconde collision semble être une collision élastique pure, mais la répulsion entre les deux électrons éjectés augmente l'angle entre eux à partir de  $90^0$  comme décrit dans [13]. C'est un mécanisme TS1. Le second maximum peut être expliqué comme précédemment : un électron est éjecté à  $113^0$ , puis ce premier électron entre en collision avec un autre électron de la cible et l'éjecte, nous obtenons :  $113^0 + 65^0 = 178^0$  et  $113^0 - 65^0 = 48^0$ . L'angle entre les deux électrons éjectés est de  $130^0$  qui correspond au mécanisme TS1.

La situation est changée dans la figure IV-4 ( $E_1 = E_2 = 12eV$ ). Nous avons un résultat différent pour la double ionisation de la guanine, contrairement aux autres cas (adénine, cytosine et thymine). Tout d'abord, à l'aide de la figure IV-7, qui correspond à l'ionisation simple de la guanine, on voit qu'un premier électron peut être éjecté le long des directions  $\vec{K} \pm 23^0$  :  $63^0$  ou  $109^0$ . Mais ici le second électron n'a pas été détecté dans la direction opposée comme précédemment. On remarque sur la figure IV-4 que le maximum dans la région de recul (de  $180^0$  à  $360^0$ ) n'est pas le long de  $-\vec{K}$ , mais selon les directions  $-\vec{K} \pm 42^0$  :  $308^0$  ou  $224^0$ . Le second électron est finalement éjecté le long d'une direction proche de  $-\vec{K} \pm 42^0$  ce qui donne un minimum pour le facteur de Gamow. Par exemple, si le premier électron est éjecté à  $63^0$ , le second sera éjecté à  $200^0$ , une valeur proche de celle donnée par  $-\vec{K} - 42^0 = 224^0$ .



## CHAPITRE IV

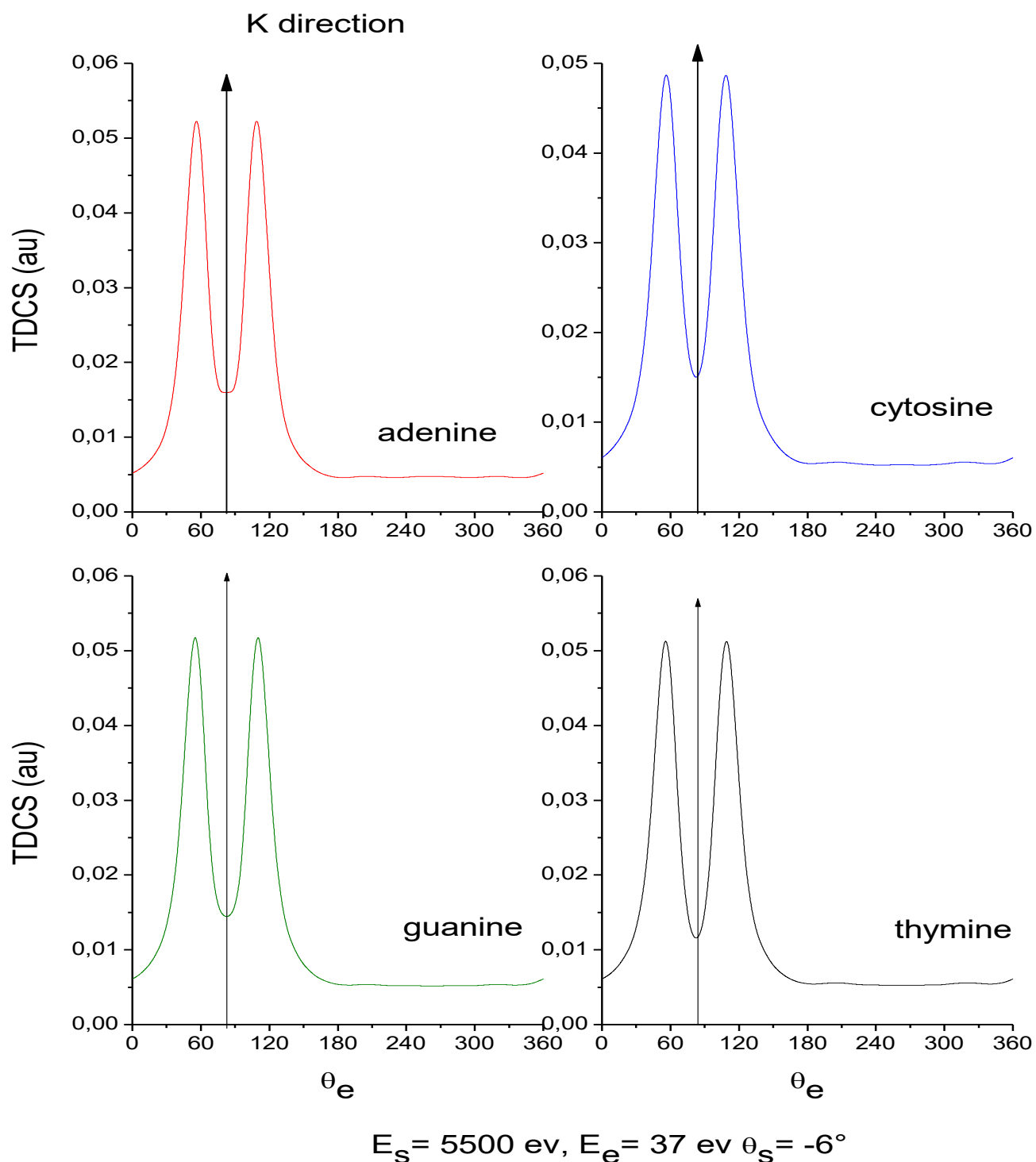
---

Maintenant, si le premier électron est éjecté à  $109^\circ$ , le second sera éjecté à  $325^\circ$ , une valeur proche de celle donnée par  $-\vec{K} + 42^\circ = 308^\circ$ . C'est est un mécanisme SO.

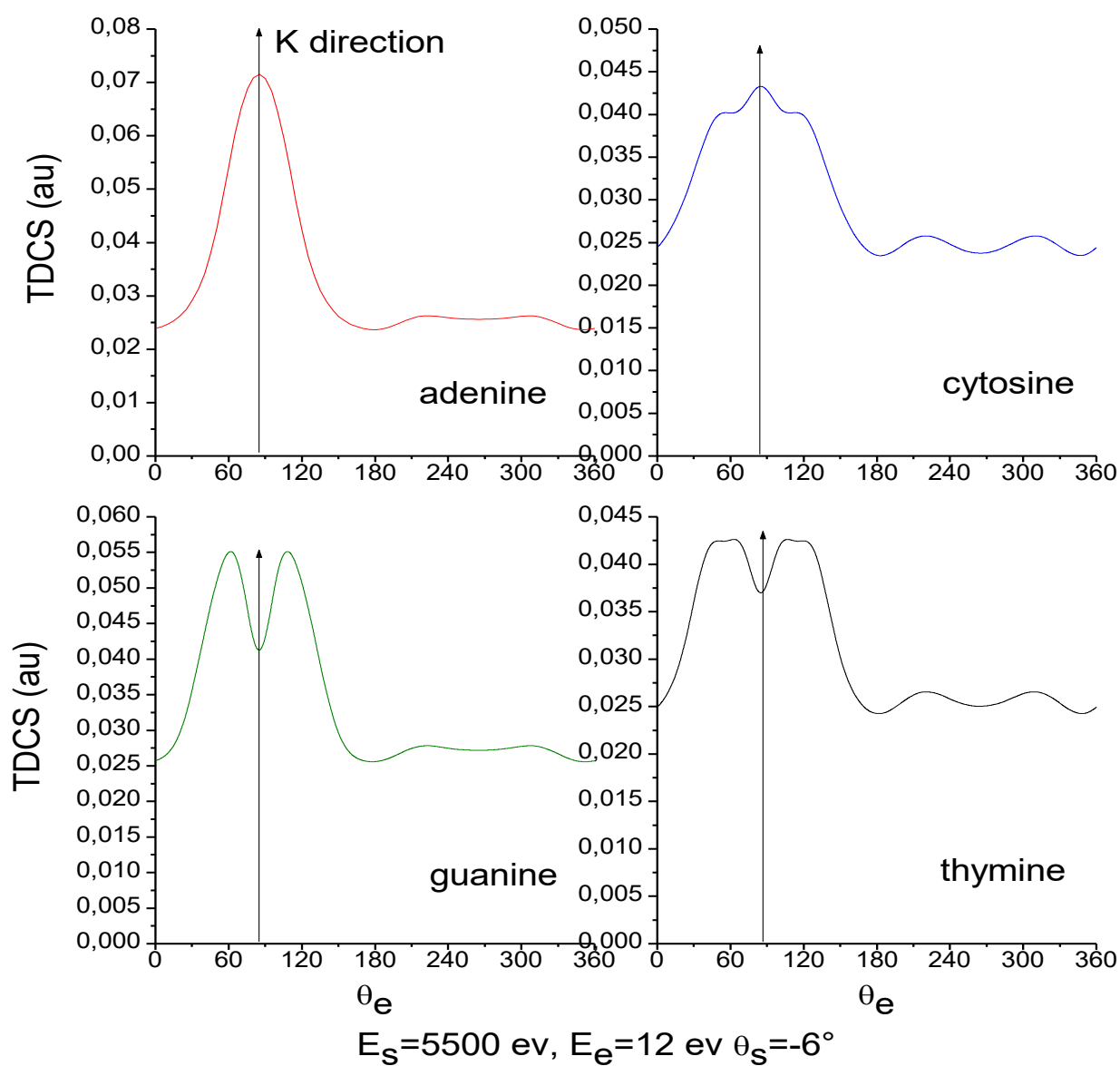
Dans le cas de la double ionisation de l'adénine, de la cytosine et de la thymine nous n'observons que deux maxima. Par exemple, dans le cas de la double ionisation de l'adénine nous remarquons que l'ionisation simple de cette molécule a un maximum le long de la direction de  $\vec{K}$  (figure IV-7). Le second électron est éjecté le long  $-\vec{K}$  et il correspond au mécanisme habituel de SO.

Dans la figure IV-5 ( $E_1 = 12eV$  et  $E_2 = 37eV$ ) nous observons 6 maxima pour la double ionisation de chaque molécule. Par exemple, dans le cas de la double ionisation de l'adénine un électron est éjecté le long des directions  $\vec{K} \pm 30^\circ$  qui donnent soit  $53^\circ$  ou  $113^\circ$ , puis un second électron quitte la cible dans les directions de  $-\vec{K} \pm 35^\circ$  : soit  $298^\circ$  ou  $228^\circ$ . Le mécanisme est le SO. Mais nous observons deux autres maxima, un premier électron est éjecté comme précédemment ( $53^\circ$  ou  $113^\circ$ ), puis ce premier électron éjecté entre en collision avec un autre électron de la cible et l'angle entre ces deux électrons, dans la voie de sortie, est un peu plus de  $90^\circ$  : nous obtenons  $53^\circ + 50^\circ = 103^\circ$ , et  $53^\circ - 50^\circ = 3^\circ$ . Cette seconde collision semble être une collision purement élastique, mais la répulsion entre les deux électrons éjectés augmente l'angle entre eux à partir de  $90^\circ$  et peut aller jusqu'à  $140^\circ$  comme décrit dans [13]. Ce mécanisme est un TS1.

Dans les autres cas, nous constatons de petits changements des positions des maxima.



**Figure IV.6 :** La section efficace triplement différentielle en unités atomiques (ligne continue) pour la simple ionisation des bases de l'ADN. Les énergies des électrons diffusé et éjectés sont respectivement de 5500 eV et de 37 eV. L'angle de diffusion est de  $-6^\circ$ . La flèche indique la direction du moment de transfert.

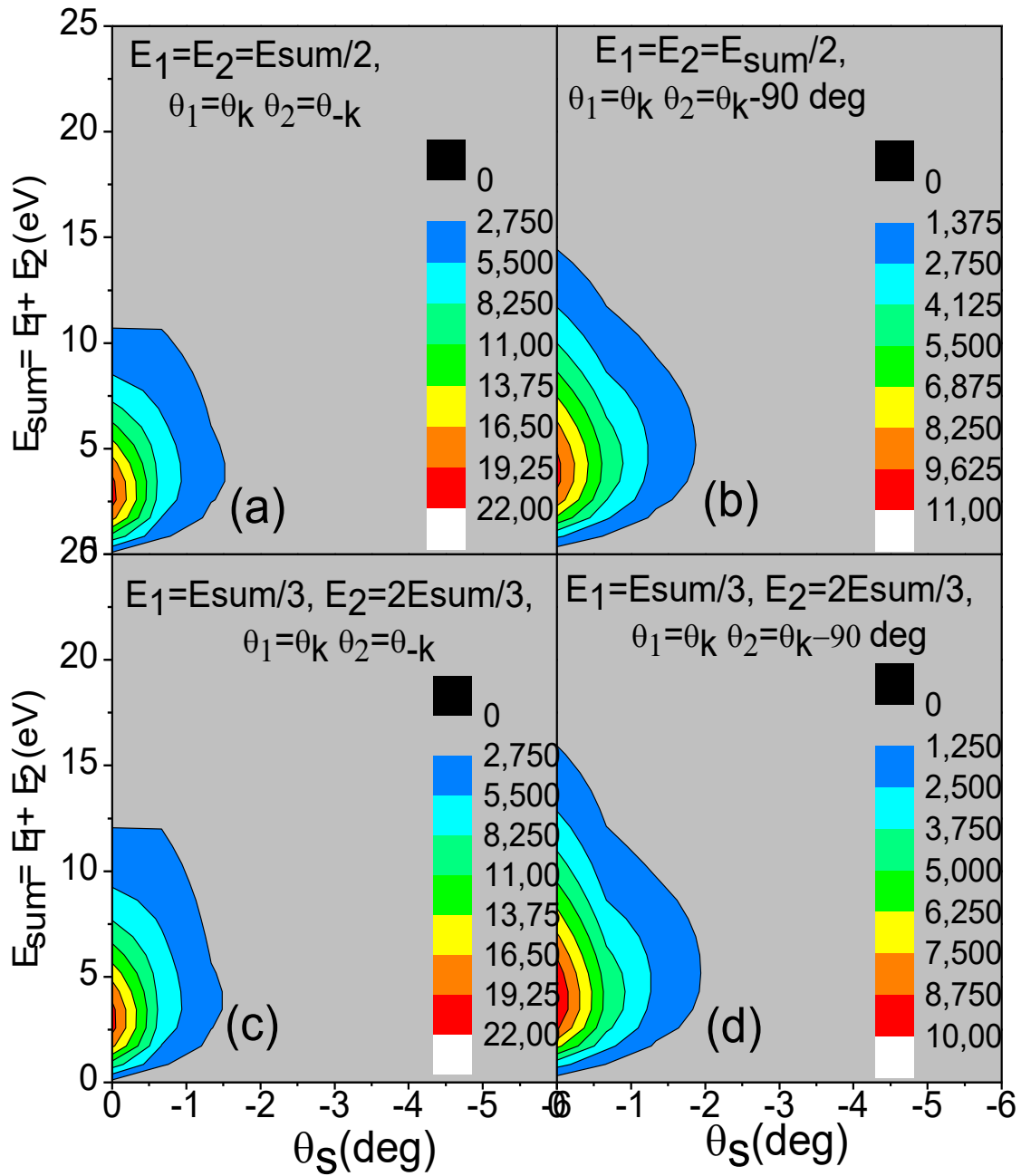


**Figure IV.7 :** La section efficace triplement différentielle en unités atomiques (ligne continue) pour la simple ionisation des bases de l'ADN. Les énergies des électrons diffusé et éjectés sont respectivement de 5500 eV et de 12 eV. L'angle de diffusion est de  $-6^\circ$ . La flèche indique la direction du moment de transfert.

### IV.1.2. Variation de la SEQD en fonction de $E_s$ et $\theta_d$

Afin de proposer des conditions de réactions maximales pour ce processus, pour de nouvelles expériences, nous avons calculé la SEQD de la double ionisation pour chaque base d'ADN par impact électronique en fonction des énergies d'éjection et de l'angle de diffusion. L'énergie de l'électron diffusé est fixée à 5500 eV comme dans les expériences réalisées par le groupe d'Orsay [2-5]. Pour cela, nous étudions la SEQD en fonction de  $E_{\text{som}} = E_1 + E_2$  et de  $\theta_d$  angle de diffusion pour chaque base de l'ADN.

La figure IV-8 montre que la SEQD est maximale lorsque l'angle de diffusion est faible. On se rappelle que les premières expériences (e, 3e) ont été réalisées à  $\theta_d = -0.45^\circ$  [2-5]. Nous proposons pour les expériences futures de prendre en compte cette valeur plutôt que  $\theta_d = -6^\circ$  comme dans [12]. On remarque aussi sur la figure IV-8 que le maximum de la SEQD se produit pour  $2\text{eV} \leq E_{\text{som}} \leq 4\text{eV}$  lorsque  $E_1 / E_2 = 1/2$  et l'électron éjecté le plus lent est détecté dans la direction de moment de transfert tandis que l'électron éjecté le plus rapide est détecté dans la direction opposée.



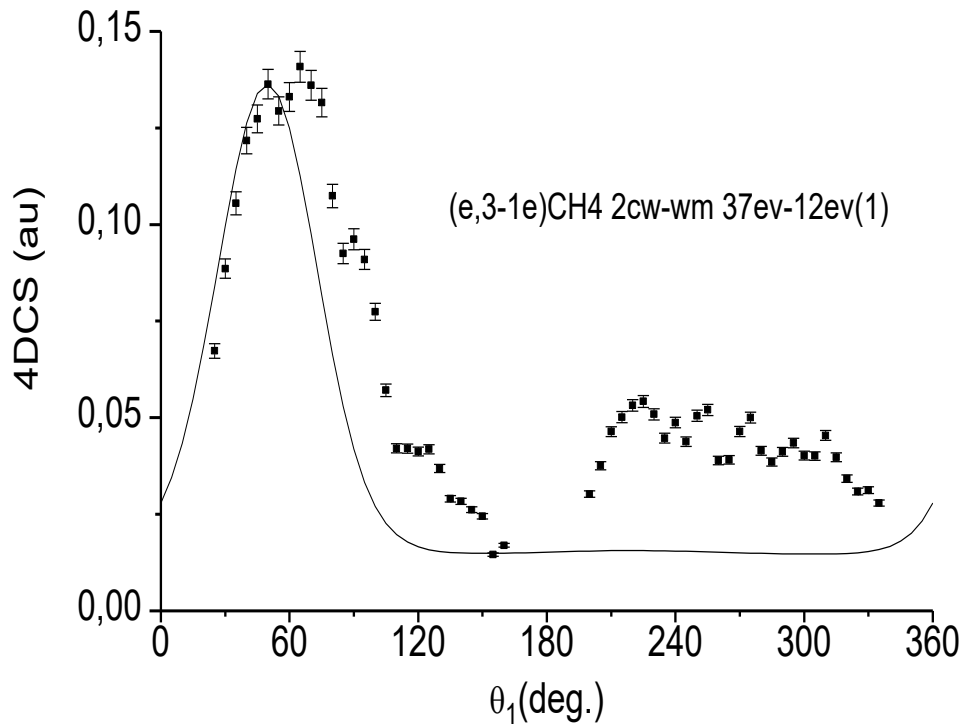
**Figure IV.8 :** La SEQD en unités atomiques pour la double ionisation de l'adénine en fonction de l'angle de diffusion et de la somme de l'énergie des deux électrons éjectés pour  $E_1 = E_2$ . Le premier électron éjecté est détecté dans la direction du moment de transfert  $\theta_1 = \theta_k$ , tandis que le second est détecté : dans le sens opposé  $\theta_2 = \theta_k$  (a), pour  $\theta_2 = \theta_k - 90^\circ$  (b) ; mêmes situations dans les figures (c) et (d) mais pour le cas  $E_1 / E_2 = 1/2$ . L'électron diffusé a une énergie de 5500 eV.

## Partie II : Double ionisation des bases de l'ADN à 500 eV

### IV.2.1. Variation de $\sigma^{(5)}(\theta_1, \theta_2)$ des bases de l'ADN

Pour cette seconde partie, nous fixons l'énergie de l'électron diffusé à 500 eV, tout en gardant les conditions cinématiques de la partie précédente.

Pour tester notre modèle, nous comparons nos résultats, réalisés avec le même modèle, pour calculer la section efficace quadruplement différentielle de la double ionisation du méthane ( $1t_2$ ). Nos résultats sont comparés, pour le même processus, aux données expérimentales relatives de la 4DCS de El Mir et al [14] (figure IV-9). Notre modèle est capable de reproduire le pic binaire, le décalage est certainement dû à des effets de second ordre [15]. Le pic de recul n'est pas décrit par notre théorie, car il dépend fortement de la contribution de la seconde approximation de Born.



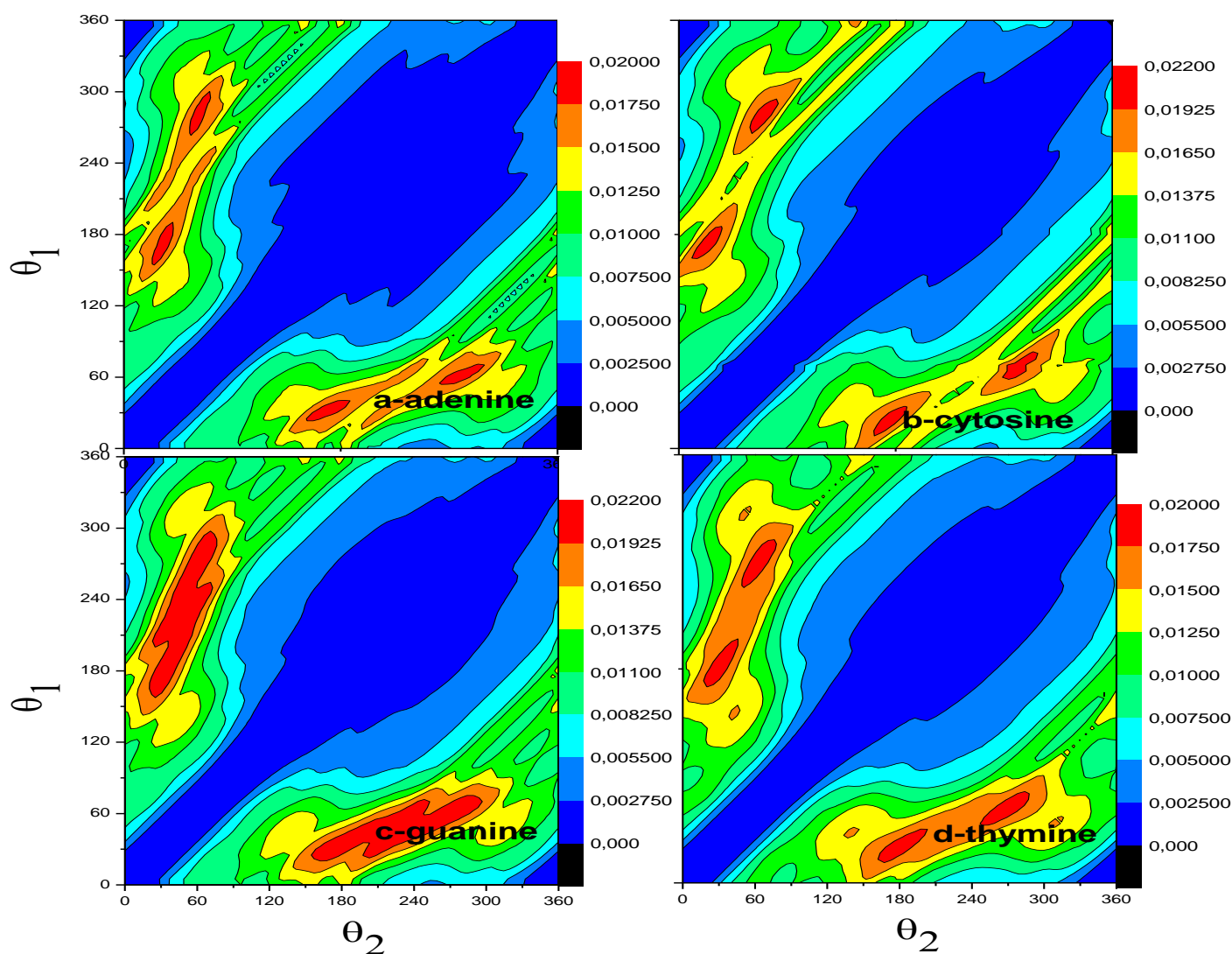
**Figure IV.9 :** 4DCS en unités atomiques de la double ionisation du méthane ( $1t_2$ ). Les énergies des électrons sont de 500 eV et de 12 eV, pour les électrons diffusé et éjectés. Le diffusé sort avec un angle  $-6^\circ$ . Les points expérimentaux sont ceux de El Mir et al. [14]. En ligne continue nous représentons les résultats du calcul avec le modèle 2CWWM.

## CHAPITRE IV

---

Nous représentons sur les figures IV-10, IV-13 et IV-14, les distributions spatiales de la SEQD en fonction des deux angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  des électrons éjectés qui varient simultanément et ( $\varphi_1 = \varphi_2 = 0$ ).

## Le cas 37 eV - 37 eV

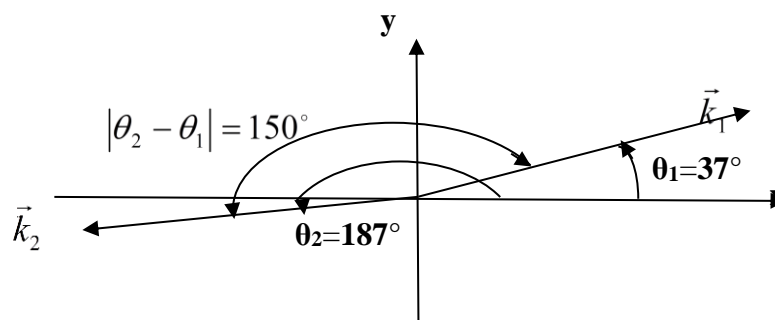


**Figure IV.10 :** La SEQD en unités atomiques, pour la double ionisation de la dernière couche de l'adénine (a), la cytosine (b), la guanine (c) et la thymine (d) en fonction des angles d'électrons éjectés  $\theta_1$  et  $\theta_2$  par rapport à la direction de l'électron incident. L'énergie de l'électron diffusé est de 500 eV et  $\theta_d = -6^\circ$ . Les énergies des électrons éjectés sont  $E_1 = E_2 = 37\text{eV}$ .



## CHAPITRE IV

Nous remarquons que les figures IV-10 (a, b et d) sont relativement semblables, celle de la guanine (c) étant différente. Toutes les structures sont symétriques par rapport à l'axe  $\theta_1 = \theta_2$  (les électrons éjectés ont même énergie). Nous constatons que les maximums de la SEQD sont situés dans des positions voisines pour l'adénine  $(\theta_1, \theta_2) = (37^\circ, 185^\circ), (60^\circ, 270^\circ)$ , la cytosine  $(\theta_1, \theta_2) = (26^\circ, 175^\circ), (72^\circ, 281^\circ)$ , et la thymine  $(\theta_1, \theta_2) = (30^\circ, 180^\circ), (62^\circ, 268^\circ)$ . Pour les premiers maximums des SEQD avoisinant  $2.10^{-2}$  u.a. (pour les trois molécules), les éjectés font entre eux un angle  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 150^\circ$ , le mécanisme dominant et le shake off (Fig.IV-11).

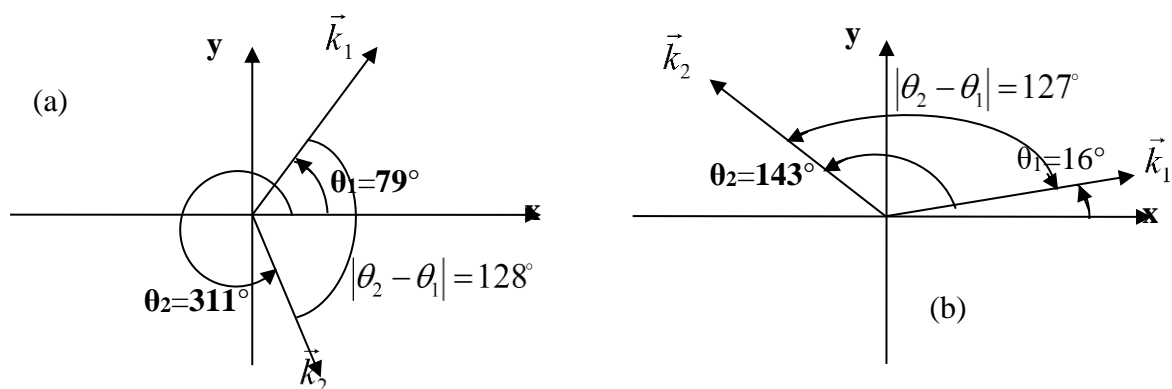


**Figure IV.11 :** Schéma des directions d'éjection des deux électrons de l'adénine (pour le premier maximum).

Pour ces trois molécules, les seconds maximums sont repérés pour  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 210^\circ$ , là aussi le mécanisme de double ionisation des trois molécules est le mécanisme shake off.

Pour le cas de la guanine, la figure (IV-10-c) montre l'existence de deux structures de réaction maximale symétriques par rapport à l'axe  $\theta_1 = \theta_2$ , la première structure s'étend dans la gamme angulaire  $(\theta_1, \theta_2) = (21^\circ-160^\circ, 73^\circ-293^\circ)$ . Le maximum de cette structure est situé autour de  $(\theta_1, \theta_2) = (48^\circ, 226^\circ)$  avec  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 174^\circ$ , donc l'émission des deux électrons peut être expliquée ici par le mécanisme SO. Dans cette structure (dans sa limite inférieure) nous remarquons aussi que  $(\theta_1, \theta_2)$  peut prendre les valeurs  $(\theta_1, \theta_2) = (36^\circ, 167^\circ)$ , c'est à dire  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 131^\circ$ , et c'est juste la limite d'action du mécanisme TS1. Dans le cas de la guanine, le mécanisme responsable est le shake off avec une légère contribution du mécanisme TS1.

On constate aussi la présence du mécanisme en deux étapes TS1 mais avec une probabilité plus faible (pics d'amplitudes près de  $1.8 \times 10^{-2}$  u.a.) que le mécanisme SO, situé en :  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 130^\circ$  pour l'adénine, la cytosine et la guanine, et en  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 100^\circ$  pour la thymine. Pour l'adénine par exemple, nous observons deux types d'émission TS1, une vers l'avant  $(\theta_1=79^\circ, \theta_2=311^\circ)$  où  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 128^\circ$  (Fig.IV-12(a)) et une seconde vers l'arrière  $(\theta_1=16^\circ, \theta_2=143^\circ)$  où  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 127^\circ$  (Fig.IV-12(b)).



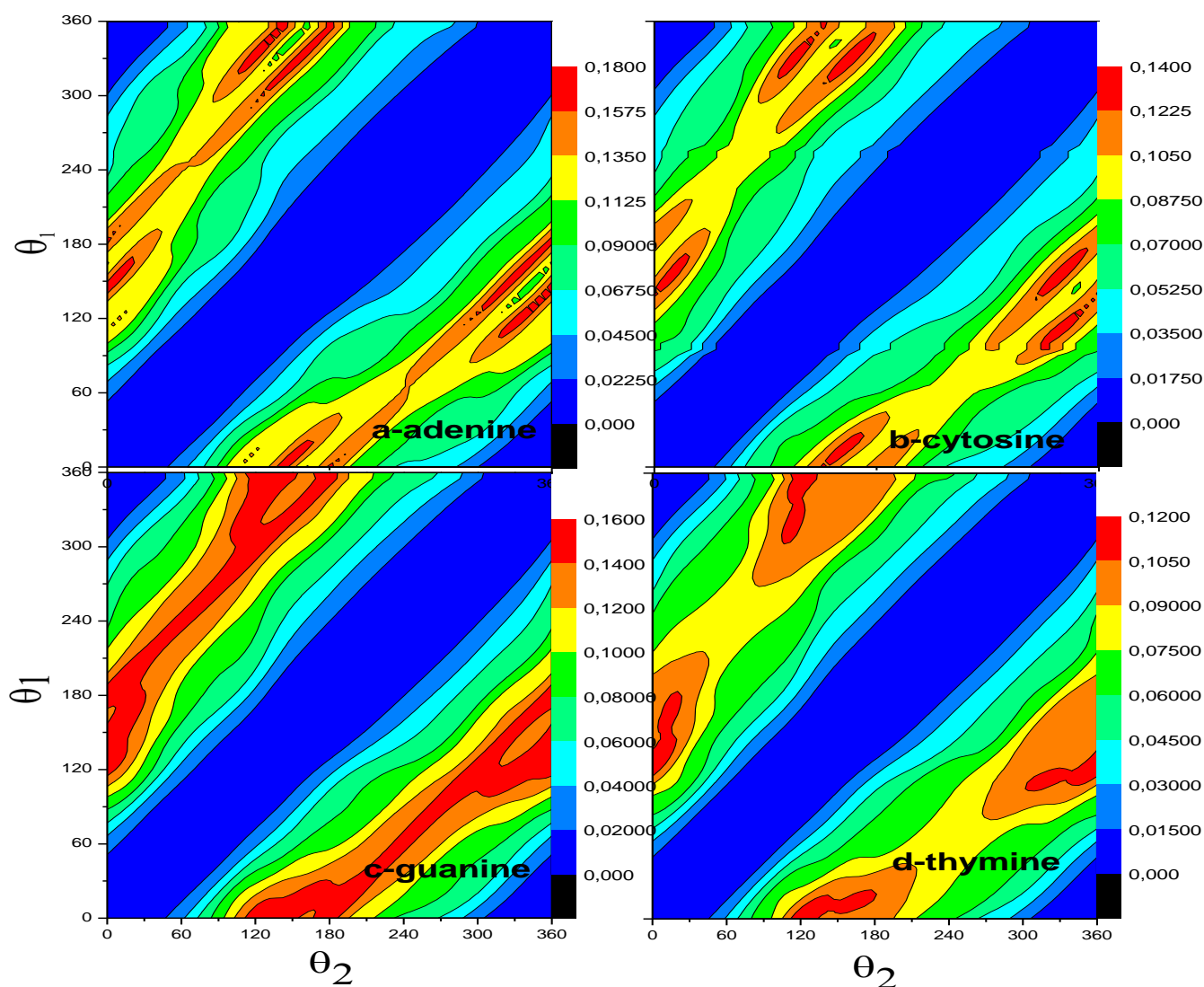
**Figure IV.12** : Schéma des directions d'éjection par le mécanisme TS1 des deux électrons de la cible A2 ((a) TS1 vers l'avant) et A1 ((b) TS1 vers l'arrière).

L'émission TS1 pour les autres bases est effectuée selon les directions suivantes :  $(\theta_1, \theta_2) = [(68^\circ, 296^\circ), (24^\circ, 156^\circ)]$ ,  $[(80^\circ, 308^\circ), (15^\circ, 145^\circ)]$  et  $[(53^\circ, 311^\circ), (44^\circ, 145^\circ)]$  pour la cytosine, la guanine et la thymine. Dans le cas de la cytosine et de la guanine  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 132^\circ$ , et pour la thymine  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 101^\circ$ .

## CHAPITRE IV

### Le cas 12 eV - 12 eV

La même étude est faite pour une autre situation cinématique, le cas où les électrons sont éjectés à  $E_1 = E_2 = 12 \text{ eV}$ . Sur la figure IV-13 nous présentons les structures spatiales de la SEQD des quatre base de l'ADN pour  $E_1 = E_2 = 12 \text{ eV}$ .



**Figure IV.13 :** La SEQD en unités atomiques, pour la double ionisation de la dernière couche de l'adénine (a), la cytosine (b), la guanine (c) et la thymine (d) en fonction des angles d'électrons éjectés  $\theta_1$  et  $\theta_2$  par rapport à la direction de l'électron incident. L'énergie de l'électron diffusé est de 500 eV et  $\theta_d = -6^\circ$ . Les énergies des électrons éjectés sont  $E_1 = E_2 = 12 \text{ eV}$ .

## CHAPITRE IV

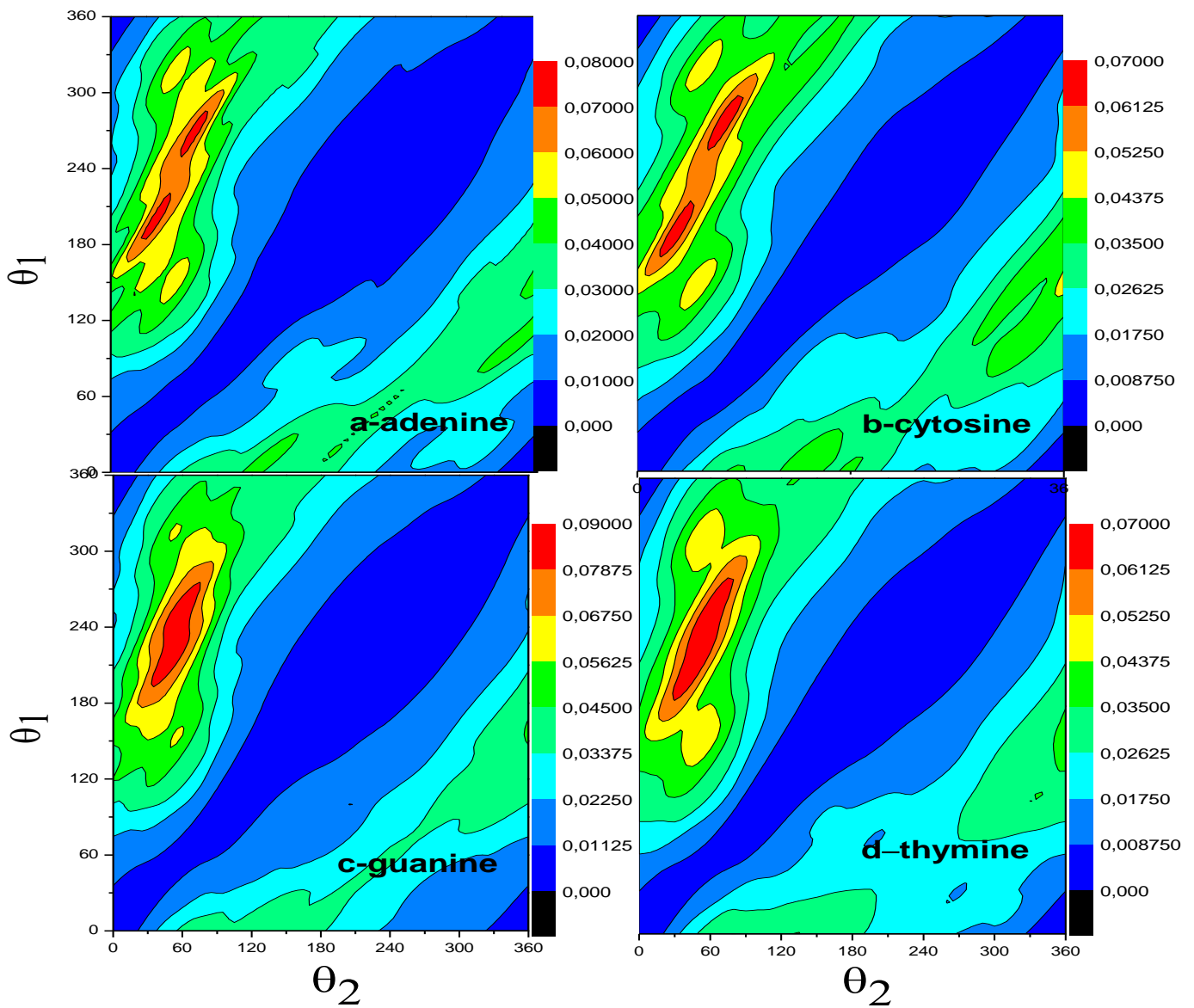
La figure IV-13 montre des distributions angulaires complètement différentes que celles trouvées dans la figure IV-10, où dans ce cas les énergies d'éjection ( $E_1 = E_2 = 12\text{eV}$ ) sont plus faibles que dans le cas précédent. Ces valeurs faibles d'énergies favorisent l'apparition d'une plus forte répulsion entre les électrons éjectés. La figure IV-13-c pour la guanine, montre bien cet effet où on observe une structure de deux gros lobes symétriques par rapport à  $\theta_1 = \theta_2$  où l'émission des électrons est favorisée par le mécanisme SO dans une grande zone de distribution angulaire  $(\theta_1, \theta_2) = (113^\circ\text{-}360^\circ, 0^\circ\text{-}186^\circ)$ . On peut observer aussi une possibilité d'émission TS1 soit vers l'avant  $(\theta_1, \theta_2) = (117^\circ, 357^\circ) : |\theta_1 - \theta_2| \approx 120^\circ$ , ou soit vers l'arrière  $(\theta_1, \theta_2) = (3^\circ, 120^\circ) : |\theta_1 - \theta_2| \approx 117^\circ$ .

Dans la situation de la thymine (figure IV-13-d), on observe quatre structures symétriques par rapport à l'axe  $\theta_1 = \theta_2$ . Les deux mécanismes SO et TS1 sont présents ici. Les deux pics d'amplitude maximale pour que le mécanisme SO soit favorisé sont localisés autour de  $(\theta_1, \theta_2) = (11^\circ, 152^\circ)$  et  $(117^\circ, 337^\circ)$  où  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 140^\circ$ , et la distribution angulaire qui donne lieu au mécanisme TS1 est située autour de  $(\theta_1, \theta_2) = (4^\circ, 128^\circ)$  et  $(122^\circ, 357^\circ)$  où  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 124^\circ$ .

Les figures IV-13 (a et b) montrent une distribution angulaire similaire de la double ionisation des deux bases adénine et cytosine, sauf qu'en amplitude la SEQD de l'adénine est 1.3 fois plus grande que celle de la cytosine. Pour les deux molécules les distributions angulaires sont composées par deux plages symétriques par rapport à l'axe  $\theta_1 = \theta_2$ , contenant chacune trois lobes, les pics d'amplitude maximale, au nombre de trois, situés en  $(\theta_1, \theta_2) = (11^\circ, 156^\circ)$ ,  $(126^\circ, 338^\circ)$  et  $(158^\circ, 329^\circ)$  pour l'adénine, et en  $(\theta_1, \theta_2) = (15^\circ, 156^\circ)$ ,  $(114^\circ, 328^\circ)$  et  $(158^\circ, 330^\circ)$  pour la cytosine. Nous remarquons que pour les deux bases, les pics de réaction maximale vérifient :  $145^\circ \leq |\theta_1 - \theta_2| \leq 190^\circ$ , la double ionisation a eu lieu avec le mécanisme SO. Néanmoins, le mécanisme TS1 est aussi présent dans ces distributions, et ce dans les extrémités des lobes de réaction maximale :  $(\theta_1, \theta_2) = (4^\circ, 135^\circ)$  et  $(127^\circ, 356^\circ)$  pour l'adénine et  $(\theta_1, \theta_2) = (1^\circ, 130^\circ)$  et  $(124^\circ, 355^\circ)$  pour la cytosine ; dans les deux cas  $|\theta_1 - \theta_2| \approx 130^\circ$ .

### Le cas 37 eV - 12 eV

Une autre situation cinématique est considérée, le cas où les électrons sont éjectés avec  $E_1 = 37\text{eV}$  et  $E_2 = 12\text{eV}$ . La figure IV-14 montre les distributions spatiales de la SEQD des quatre bases de l'ADN pour cette situation.



**Figure IV.14 :** La SEQD en unités atomiques, pour la double ionisation de la dernière couche de l'adénine (a), la cytosine (b), la guanine (c) et la thymine (d) en fonction des angles d'électrons éjectés  $\theta_1$  et  $\theta_2$  par rapport à la direction de l'électron incident. L'énergie de l'électron diffusée est 500 eV et  $\theta_d = -6^\circ$ . Les énergies des électrons éjectés sont :  $E_1 = 37eV$  et  $E_2 = 12eV$ .

## CHAPITRE IV

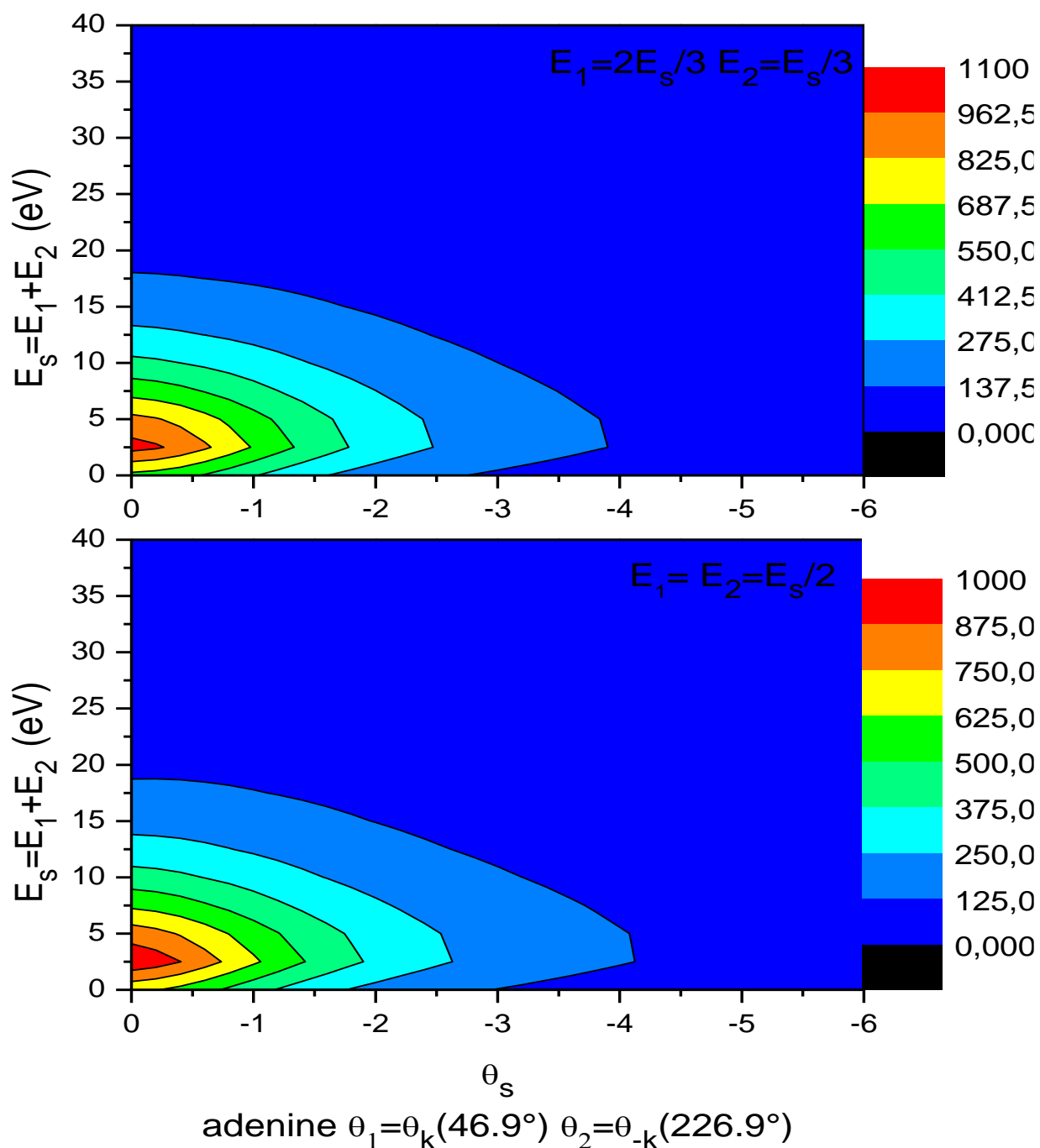
La figure IV-14 illustre des structures similaires deux à deux de la SEQD dans le cas où les électrons sont émis avec des énergies différentes ( $E_1 = 37, E_2 = 12\text{eV}$ ). On note deux maxima séparés pour l'adénine et la cytosine, et un seul maxima pour la guanine et la thymine. Pour ces deux dernières molécules le maximum s'étend sur une zone assez large. Les maximums avoisinent en amplitude les :  $8 \times 10^{-2}$  u.a. ; ces maximums sont repérés par les directions angulaires  $(\theta_1, \theta_2) = (45^\circ, 209^\circ)$  et  $(74^\circ, 272^\circ)$  pour l'adénine,  $(\theta_1, \theta_2) = (33^\circ, 190^\circ)$  et  $(74^\circ, 276^\circ)$  pour la cytosine,  $(\theta_1, \theta_2) = (56^\circ, 234^\circ)$  pour la guanine et  $(\theta_1, \theta_2) = (53^\circ, 232^\circ)$  pour la thymine. Nous remarquons que, pour cette situation cinématique, et pour les quatre bases les maximums de réaction sont situés à :  $157 \leq |\theta_1 - \theta_2| \leq 198^\circ$ . Le mécanisme le plus probable est le mécanisme SO.

On remarque aussi que, pour les quatre bases, l'amplitude de la SEQD, pour cette situation cinématique, est plus élevée comparée aux deux autres situations précédentes ( $E_1 = E_2 = 37\text{eV}$  et  $E_1 = 37, E_2 = 12\text{eV}$ ).

### IV.2.2. Variation de la SEQD en fonction de $E_s$ et $\theta_d$

Nous proposons, à la fin de ce chapitre, d'étudier la SEQD en fonction de la somme des énergies des deux électrons éjectés ( $E_s = E_1 + E_2$ ) et de l'angle de diffusion  $\theta_d$ . Nous choisissons, pour la détection des deux électrons éjectés, les directions  $(\theta_1 = \theta_K, \theta_2 = \theta_{-K})$ . L'énergie  $E_s$  varié dans l'intervalle (0 eV - 60 eV) et  $\theta_d$  de  $0^\circ$  à  $10^\circ$ , en choisissant des rapports entre les énergies des électrons éjectés  $E_1/E_2$ . L'énergie de l'électron diffusé est fixée à 500 eV.

L'analyse des courbes de la SEQD en fonction de  $E_s$  et de  $\theta_d$  (calculée avec le modèle 2CWWM) (Figure IV.15), montre que le processus de double ionisation de l'adénine est plus favorable pour des angles de diffusion plus faibles  $0^\circ < \theta_d < 0.4^\circ$ . On remarque aussi sur la même figure que le maximum de la SEQD se produit pour  $2.4 \leq E_{\text{som}}(\text{eV}) \leq 3$  et  $1.8 \leq E_{\text{som}}(\text{eV}) \leq 4$  lorsque  $E_1 / E_2 = 1/2$  et  $E_1 = E_2$  respectivement. L'électron éjecté le plus lent est détecté dans la direction de moment de transfert ( $\theta_1 = \theta_K = 46.9^\circ$ ), tandis que l'électron éjecté le plus rapide est détecté dans la direction opposée ( $\theta_2 = \theta_{-K} = 226.9^\circ$ ).



**Figure IV.15** : La SEQD en unités atomiques pour la double ionisation de l'adénine en fonction de l'angle de diffusion et de la somme de l'énergie des deux électrons éjectés pour deux cas :  $E_1 / E_2 = 1/2$  et  $E_1 = E_2$ . Le premier électron éjecté est détecté dans la direction du moment de transfert  $\theta_1 = \theta_k$ , tandis que le second est détecté : dans le sens opposé  $\theta_2 = \theta_{-k}$ . L'électron diffusé a une énergie de 500 eV.

### IV.3. Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre les résultats de la section efficace quintuplement différentielle SEQD de la double ionisation par impact d'électrons de la dernière couche de chaque molécule des quatre bases d'ADN. Ces résultats sont obtenus dans le contexte de la première approximation de Born et en utilisant le modèle 2CWWM où la fonction d'onde de l'état final est un produit de deux ondes Coulombiennes multipliées par un facteur correctif appelé facteur de Ward-Macek [1], qui introduit une fonction hypergéométrique pour décrire la répulsion entre les deux électrons éjectés. L'étude a été réalisée pour deux types d'énergie de diffusion : une haute énergie (5500 eV), et une énergie plus faible (500 eV).

Vu l'absence des données expérimentales pour la double ionisation des bases de l'ADN, et pour tester l'application du modèle 2CWWM en première approximation de Born sur ces bases, nous avons appliqué ce modèle au calcul des SEQD de la double ionisation du néon par impact d'électrons, les résultats théoriques obtenus ont été comparés avec les données expérimentales de Schröter et al. [6], le bon accord de notre calcul avec ces résultats montre la possibilité d'appliquer ce modèle dans l'étude de la double ionisation des autres atomes ou molécules à haute énergie (plus de 2 keV [7]).

Nous avons calculé la SEQD de la double ionisation de l'adénine, la cytosine, la guanine et la thymine en considérant la cinématique utilisée actuellement par le groupe d'Orsay [16] pour une partition des énergies d'éjection égales  $(E_1, E_2) = (12, 12)$  et  $(37, 37)$  eV et inégales  $(E_1, E_2) = (37, 12)$  eV. Les résultats des calculs sont illustrés sur des figures comparatives, l'étude des distributions spatiales et l'analyse des mécanismes de réaction conduisant à l'ionisation de chaque base a été faite.

Nous avons remarqué que le mécanisme de la double ionisation le plus probable est le mécanisme SO, car l'énergie incidente est très élevée : un électron est éjecté comme dans une simple ionisation et l'autre électron est éjecté à cause d'un changement soudain dans le potentiel de la cible après cette première éjection. Le mécanisme TS1 est aussi présent mais avec une plus faible probabilité. Pour l'énergie d'incidence plus faible, les sections efficaces sont cent fois plus grandes en amplitude, les deux mécanismes SO et TS1 sont aussi identifiés dans les structures des SEQD des quatre bases.

On note aussi que les structures de la SEQD sont différentes en forme et en nombre de lobes, entre les deux gammes d'énergies élevée et plus faible. Un point commun entre ces deux types d'énergie, est que l'émission des électrons éjectés par le mécanisme SO est la plus favorable. Le mécanisme TS1 est présent aussi pour les deux gammes d'énergie mais avec une probabilité plus faible que le mécanisme SO. Nous observons une structure particulière des SEQD pour la double ionisation de la guanine, par rapport aux autres bases de l'ADN, notamment pour le cas où les électrons sont éjectés à  $(E_1, E_2) = (12, 12)$ .



## CHAPITRE IV

---

Une autre remarque importante, est que le processus de la double ionisation des bases de l'ADN, est plus favorable pour les basses énergies. Pour confirmer ce résultat, nous avons étudié les SEQD en fonction de l'angle de diffusion  $\theta_d$  et de la somme des énergies d'éjection des deux électrons  $E_{\text{som}}=E_1+E_2$ , pour l'adénine, les résultats montrent que la SEQD est maximale lorsque l'angle de diffusion est faible  $\theta_d < 4^\circ$  et lorsque l'énergie  $E_{\text{som}} = E_1+E_2$  est faible. Cette étude a montré aussi que les SEQD sont beaucoup plus importantes lorsque le rapport  $E_1/E_2$  est important.

## CHAPITRE IV

---

### Références

- [1] S. J. Ward and J. H. Macek, Phys. Rev. A **49**, 1049 (1994).
- [2] A. Lahmam-Bennani, C. Dupré, and A. Duguet, Phys. Rev. Lett. **63**, 1582 (1989).
- [3] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, A. M. Grisogono, and M. Lecas, J. Phys. B. **25**, 2873 (1992).
- [4] I. Taouil, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M. Lecas, and L. Avaldi, Phys. Rev. Lett. **81**, 4600 (1998).
- [5] A. Lahmam-Bennani, I. Taouil, A. Duguet, M. Lecas, L. Avaldi, and J. Berakdar, Phys. Rev. A **59**, 3548 (1999).
- [6] C. Schröter, B. El Marji, A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M. Lecas, and L. Spielberger, J. Phys. B **31**, 131 (1998).
- [7] M. J. Ambrosio, D. M. Mitnik, A. Dorn, L. U. Ancarani and G. Gasaneo, Phys. Rev. A **93** 032705 (2016).
- [8] S. M. Bellm, C.J. Colyer, B. Lohmann, and C. Champion, Phys. Rev. A **85**, 022710 (2012).
- [9] S. Houamer, C. Dal Cappello, I. Charpentier, P.A. Hervieux and A. C. Roy Phys Rev A **86** 026701 (2012).
- [10] C. Dal Cappello, I. Charpentier, S. Houamer, P.A. Hervieux, F. Ruiz-Lopez, A. Mansouri and A. C. Roy, J. Phys B **45**, 175205 (2012).
- [11] C. Dal Cappello, Z. Rezkallah, S. Houamer, I. Charpentier, A.C. Roy, P.A. Hervieux and M.F. Ruiz-Lopez, Eur. Phys. J.D. **67**,117 (2013).
- [12] E. M. Staicu-Casagrande, C. Li, A. Lahmam-Bennani, and C. Dal Cappello, J. Phys. B **47**, 115203 (2014).
- [13] A. Dorn, A. Kheifets, C. D. Schröter, B. Najjari, C. Höhr, R. Moshhammer and J. Ullrich, Phys. Rev. A **65**, 032709 (2002).
- [14] R. El Mir, E. M. Staicu-Casagrande, C. Dal Cappello, A. Naja, A. Mansouri and I. Kada, J. Phys. B: Conf. Ser. **601**, 012005 (2015).
- [15] C. Li, A. Lahmam-Bennani, E. M. Staicu-Casagrande, and C. Dal Cappello, J. Phys. B **44**, 115201 (2011).
- [16] A. Lahmam-Bennani, A. Duguet, M. N. Gaboriaud, I. Taouil, M. Lecas, A. Kheifets, J. Berakdar, and C. Dal Cappello, J. Phys. B **34**, 3073 (2001).

# **Conclusion générale**

## CONCLUSION GENERALE

---

L'étude des effets et des conséquences de l'interaction des particules ionisantes sur la matière biologique offre aujourd'hui au monde de la recherche de nombreuses informations importantes nécessaires dans différents domaines tels que la radiothérapie ou la radioprotection.

Notre travail avait pour objectif, l'étude de la double ionisation des bases de l'ADN par impact des électrons. Cette étude est basée sur un modèle théorique permettant de calculer des sections efficaces quintuplement différentielles, les distributions angulaires des sections efficaces sont discutées et analysées.

Nous avons présenté, au premier chapitre, un rappel sur les notions théoriques de base pour l'étude de processus de collision, des notions sur la section efficace différentielle associée à la réaction (e, 3e) et les différents mécanismes gouvernant cette dernière. Nous avons utilisé l'équation intégrale de la diffusion en termes de fonction de Green, nous avons déduit par la suite l'amplitude de diffusion et l'expression de la section efficace à partir des éléments de la matrice de diffusion.

Dans le deuxième chapitre, nous avons décrit en détails les principaux mécanismes réactionnels impliqués dans le processus de la double ionisation nous avons mis l'accent en particulier sur le mécanisme Shake-Off, et les mécanismes à deux étapes Two Step1 et Two Step2. Nous avons aussi cité les conditions cinématiques et géométriques, de la réaction (e, 3e), utilisés par les différents groupes de recherche. Dans ce chapitre nous avons aussi rappelé de façon générale les différents modèles théoriques traitant la double ionisation.

Dans le troisième chapitre, un historique des travaux expérimentaux et théoriques précédents a été rappelé, nous avons présenté le modèle théorique utilisé pour décrire la réaction de double ionisation des bases de l'ADN, Nous avons calculé analytiquement la section efficace quintuplement différentielle de la réaction (e, 3e) pour les quatre bases. Le modèle utilisé dans notre étude pour interpréter le processus de la double ionisation des bases de l'ADN par impact d'électrons est basé sur une méthode qui approche d'une bonne manière le modèle à trois ondes coulombiennes BBK, en utilisant des fonctions d'ondes mono-centriques pour décrire l'état initial des cibles moléculaires. Les électrons incident et diffusé ont été représentés par des ondes planes, et pour décrire l'état final des deux électrons éjectés, on a associé à chaque électron une onde coulombienne, et la répulsion entre ces deux électrons est représentée par le facteur de Ward-Macek. Ce modèle théorique 2CWWM est utilisé en première approximation de Born.

Dans le quatrième chapitre, nous avons présenté les différents résultats de la section efficace quintuplement différentielle obtenus pour les quatre bases de l'ADN pour deux domaines d'énergies de l'électron incident : hautes et plus faibles, et pour une partition équivalente et non équivalente des énergies des deux électrons éjectés. Vu l'absence des résultats expérimentaux pour cette réaction, nous

## CONCLUSION GENERALE

---

avons testé, dans un premier lieu, notre modèle sur des travaux existants ((e, 3e) pour d'autres molécules et (e,2e) pour la thymine), les résultats étaient très concluants. Les sections efficaces pour différentes situations cinématiques ont été représentées et analysées.

Les résultats obtenus ont montré que les deux mécanismes SO et TS1 sont présents, néanmoins le processus dominant, pour les deux types d'énergies de l'électron incident, est le mécanisme SO pour les zones des maximums de probabilité de la réaction. Pour l'énergie d'incidence à 500 eV, nous constatons la présence des mécanismes SO et TS1 avec des probabilités cent fois plus grandes que pour le cas des hautes énergies. On note aussi des structures différentes en forme et en nombre de lobes de la SEQD entre les deux gammes d'énergies haute et plus faible. Le mécanisme TS1 est possible aussi pour les deux gammes d'énergie mais avec une probabilité relativement plus faible que le mécanisme SO.

Une autre remarque importante, est que le processus de la double ionisation, des bases de l'ADN, est plus favorable pour les énergies de diffusion  $E_d=500\text{eV}$  et pour les énergies d'éjection équivalentes 12:12 eV. Par ailleurs, l'analyse de l'amplitude des sections efficaces quintuplement différentielles en fonction de la somme des électrons éjectés  $E_{\text{som}}=E_1+E_2$  et l'angle de diffusion a montré que la SEQD est maximale pour de faibles valeurs de  $E_{\text{som}}$  et lorsque l'angle de diffusion est faible  $\theta_d < 4^\circ$ .

L'étude a montré aussi que les SEQD sont beaucoup plus importantes lorsque le rapport  $E_1/E_2$  est important et lorsqu'un des électrons est éjecté suivant le transfert.

# **Annexe**

**Annexe A**

**Calcul de l'élément  $J(12n)$**

**1. Calculs préliminaires**

En utilisant les mêmes étapes suivies dans le calcul de l'élément  $J(3d)$  (Chapitre III), on peut calculer explicitement l'élément  $J(12n)$ .

L'expression de  $J_{12n}$  est définie par :

$$J_{12n} = \left\langle \frac{e^{i\vec{k}_e \cdot \vec{r}}}{(2\pi)^{3/2}} e^{\pi\alpha/2} \Gamma(1+i\alpha) {}_1F_1(-i\alpha; 1; -i(k_e r + \vec{k}_e \cdot \vec{r})) \Big| e^{i\vec{K} \cdot \vec{r}} \left| \frac{2^{3/2} \varepsilon^{25/2} Y_{11}^m r^{11} e^{-\varepsilon r}}{\sqrt{(23)19(17)13(11)9(35)45(3)\sqrt{7}}} \right. \right\rangle \quad (\text{A-1})$$

Les expressions des termes  $(\alpha_0, \beta_0, \gamma_0, \delta_0, \sigma_0, \lambda_0, \mu_0, \varepsilon_0, \eta_0, \pi_0, \Lambda_0, \Gamma_0)$  de l'intégration, similaires aux équations calculées en chapitre III (III-34, III-35 et III-36), sont données comme suit : (de (A-2) à (A-13)) :

$$\text{Pour } \Gamma_0 : \int_0^1 dt t^{i\alpha-1} (1-t)^{-i\alpha} (1-tw)^{-12} = \Gamma(i\alpha) \frac{\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(1)} {}_2F_1(12, i\alpha, 1, w) \quad (\text{A-2})$$

$${}_2F_1(12, i\alpha, 1, w) = \frac{1}{11(10)9(8)7(720)} \frac{d^{11}}{dw^{11}} [w^{11}(1-w)^{-i\alpha}]$$

$$f = w^{11}; f^{(1)} = 11w^{10}; f^{(2)} = 110w^9; f^{(3)} = 990w^8; f^{(4)} = 8(990)w^7; f^{(5)} = 56(990)w^6;$$

$$f^{(6)} = 336(990)w^5; f^{(7)} = 1680(990)w^4; f^{(8)} = 6720(990)w^3$$

$$f^{(9)} = 2016(990)w^2; f^{(10)} = 4032(990)w; f^{(11)} = 4032(990);$$

$$g = (1-i\alpha)^{-i\alpha}; g^{(1)} = i\alpha(1-w)^{-i\alpha-1}; g^{(2)} = [(i\alpha)^2 + i\alpha](1-w)^{-i\alpha-2};$$

$$g^{(3)} = [(i\alpha)^3 + 3(i\alpha)^2 + 2i\alpha](1-w)^{-i\alpha-3}$$

$$g^{(4)} = [(i\alpha)^4 + 6(i\alpha)^3 + 11(i\alpha)^2 + 6i\alpha];$$

$$g^{(5)} = [(i\alpha)^5 + 10(i\alpha)^4 + 35(i\alpha)^3 + 50(i\alpha)^2 + 24i\alpha](1-w)^{-i\alpha-5}$$

$$g^{(6)} = [(i\alpha)^6 + 15(i\alpha)^5 + 85(i\alpha)^4 + 225(i\alpha)^3 + 274(i\alpha)^2 + 120i\alpha](1-w)^{-i\alpha-6}$$

$$g^{(7)} = [(i\alpha)^7 + 21(i\alpha)^6 + 175(i\alpha)^5 + 735(i\alpha)^4 + 1624(i\alpha)^3 + 1764(i\alpha)^2 + 720i\alpha](1-w)^{-i\alpha-7}$$

$$g^{(8)} = \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^8 + 28(i\alpha)^7 + 322(i\alpha)^6 + 1960(i\alpha)^5 + 6769(i\alpha)^4 + 13132(i\alpha)^3 \\ + 13068(i\alpha)^2 + 5040i\alpha \end{array} \right] (1-w)^{-i\alpha-8}$$

$$g^{(9)} = \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^9 + 36(i\alpha)^8 + 546(i\alpha)^7 + 4536(i\alpha)^6 + 22449(i\alpha)^5 + 67284(i\alpha)^4 \\ + 118124(i\alpha)^3 + 109584(i\alpha)^2 + 40320i\alpha \end{array} \right] (1-w)^{-i\alpha-9}$$

$$g^{(10)} = \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^{10} + 45(i\alpha)^9 + 870(i\alpha)^8 + 9450(i\alpha)^7 + 63273(i\alpha)^6 + 269325(i\alpha)^5 \\ + 723680(i\alpha)^4 + 1172700(i\alpha)^3 + 1026576(i\alpha)^2 + 362880i\alpha \end{array} \right] (1-w)^{-i\alpha-10}$$

## ANNEXE

$$g^{(11)} = \begin{bmatrix} (i\alpha)^{11} + 55(i\alpha)^{10} + 1320(i\alpha)^9 + 18150(i\alpha)^8 + 157773(i\alpha)^7 \\ +902055(i\alpha)^6 + 3416930(i\alpha)^5 + 8409500(i\alpha)^4 \\ +12753576(i\alpha)^3 + 10628640(i\alpha)^2 + 3628800i\alpha \end{bmatrix} (1-w)^{-i\alpha-11}$$

$$\frac{d^{11}}{dw^{11}}(fg) = f^{(11)}g + 11f^{(10)}g^{(1)} + 55f^{(9)}g^{(2)} + 165f^{(8)}g^{(3)} + 330f^{(7)}g^{(4)} + 462f^{(6)}g^{(5)} \\ + 462f^{(5)}g^{(6)} + 330f^{(4)}g^{(7)} + 165f^{(3)}g^{(8)} + 55f^{(2)}g^{(9)} + 11f^{(1)}g^{(10)} + fg^{(11)}$$

$$f^{(11)}g = 40320(1-w)^{-i\alpha-11} \begin{bmatrix} -w^{11} + 11w^{10} - 55w^9 + 165w^8 - 330w^7 \\ +462w^6 - 462w^5 + 330w^4 - 165w^3 \\ +55w^2 - 11w + 1 \end{bmatrix}$$

$$11f^{(10)}g^{(1)} = 11(40320)990w(1-w)^{-i\alpha-11}(i\alpha) \begin{bmatrix} w^{10} - 10w^9 + 45w^8 - 120w^7 \\ +210w^6 - 252w^5 + 210w^4 \\ -120w^3 + 45w^2 - 10w + 1 \end{bmatrix}$$

$$55f^{(9)}g^{(2)} = 55(20160)990w^2(1-w)^{-i\alpha-11}[(i\alpha)^2 + i\alpha] \begin{bmatrix} -w^9 + 9w^8 - 36w^7 + 84w^6 \\ -126w^5 + 126w^4 - 84w^3 \\ +36w^2 - 9w + 1 \end{bmatrix}$$

$$165f^{(8)}g^{(3)} = 165(6720)990w^3(1-w)^{-i\alpha-11} \times [(i\alpha)^3 + 3(i\alpha)^2 + 2i\alpha] \begin{bmatrix} w^8 - 8w^7 \\ +28w^6 - 56w^5 \\ +70w^4 - 56w^3 \\ +28w^2 - 8w + 1 \end{bmatrix}$$

$$330f^{(7)}g^{(4)} = 330(1680)990w^4(1-w)^{-i\alpha-11} \begin{bmatrix} (i\alpha)^4 + 6(i\alpha)^3 \\ +11(i\alpha)^2 + 6i\alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} -w^7 + 7w^6 \\ -21w^5 + 35w^4 \\ -35w^3 + 21w^2 \\ -7w + 1 \end{bmatrix}$$

$$462f^{(6)}g^{(5)} = 462(336)990w^5(1-w)^{-i\alpha-11} \begin{bmatrix} (i\alpha)^5 + 10(i\alpha)^4 + 35(i\alpha)^3 \\ +50(i\alpha)^2 + 24i\alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} w^6 - 6w^5 \\ +15w^4 - 20w^3 \\ +15w^2 - 6w \\ +1 \end{bmatrix}$$

$$462f^{(5)}g^{(6)} = 462(56)990w^6(1-w)^{-i\alpha-11} \begin{bmatrix} (i\alpha)^6 + 15(i\alpha)^5 \\ +85(i\alpha)^4 + 225(i\alpha)^3 \\ +274(i\alpha)^2 + 120i\alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} -w^5 + 5w^4 - 10w^3 \\ +10w^2 - 5w + 1 \end{bmatrix}$$

$$330f^{(4)}g^{(7)} = 330(8)990w^7(1-w)^{-i\alpha-11} \begin{bmatrix} (i\alpha)^7 + 21(i\alpha)^6 + 175(i\alpha)^5 \\ +735(i\alpha)^4 + 1624(i\alpha)^3 \\ +1764(i\alpha)^2 + 720i\alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} w^4 - 4w^3 \\ +6w^2 - 4w + 1 \end{bmatrix}$$

$$165f^{(3)}g^{(8)} = 165(990)w^8(1-w)^{-i\alpha-11} \begin{bmatrix} (i\alpha)^8 + 28(i\alpha)^7 + 322(i\alpha)^6 + 1960(i\alpha)^5 \\ +6769(i\alpha)^4 + 13132(i\alpha)^3 \\ +13068(i\alpha)^2 + 5040i\alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} -w^3 \\ +3w^2 \\ -3w + 1 \end{bmatrix}$$

$$55f^{(2)}g^{(9)} = 55(110)w^9(1-w)^{-i\alpha-11} \begin{bmatrix} (i\alpha)^9 + 36(i\alpha)^8 + 546(i\alpha)^7 + 4536(i\alpha)^6 \\ +22449(i\alpha)^5 + 67284(i\alpha)^4 + 118124(i\alpha)^3 \\ +109584(i\alpha)^2 + 40320i\alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} w^2 \\ -2w + 1 \end{bmatrix}$$

$$11f^{(1)}g^{(10)} = 121w^{10}(1-w)^{-i\alpha-11} \begin{bmatrix} (i\alpha)^{10} + 45(i\alpha)^9 + 870(i\alpha)^8 + 9450(i\alpha)^7 \\ +63273(i\alpha)^6 + 269325(i\alpha)^5 + 723680(i\alpha)^4 \\ +1172700(i\alpha)^3 + 1026576(i\alpha)^2 + 362880i\alpha \end{bmatrix} [1-w]$$



## ANNEXE

$$fg^{(11)} = w^{11}(1-w)^{-i\alpha-11} \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^{11} + 55(i\alpha)^{10} + 1320(i\alpha)^9 + 16150(i\alpha)^8 + 157773(i\alpha)^7 \\ + 902055(i\alpha)^6 + 3416930(i\alpha)^5 + 8409500(i\alpha)^4 \\ + 12753576(i\alpha)^3 + 10628640(i\alpha)^2 + 3628800i\alpha \end{array} \right]$$

$$\frac{d^{11}}{dw^{11}}(fg) = (1-w)^{-i\alpha-11} \left\{ \begin{array}{l} w^{11} \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^{11} - 66(i\alpha)^{10} + 1925(i\alpha)^9 - 32670(i\alpha)^8 \\ + 11(32493)(i\alpha)^7 - 121(21798)(i\alpha)^6 \\ + 55(242537)(i\alpha)^5 - 1210(38013)(i\alpha)^4 \\ + 11(9568916)(i\alpha)^3 - 99(1524424)(i\alpha)^2 \\ + 90(1339376)i\alpha - 990(40320) \end{array} \right] \\ + 121w^{10} \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^{10} - 55(i\alpha)^9 + 1320(i\alpha)^8 \\ - 18150(i\alpha)^7 + 157773(i\alpha)^6 \\ - 902055(i\alpha)^5 + 3416930(i\alpha)^4 \\ - 8409500(i\alpha)^3 + 12753576(i\alpha)^2 \\ - 10628640i\alpha + 3628800 \end{array} \right] \\ + 6050w^9 \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^9 - 45(i\alpha)^8 \\ + 870(i\alpha)^7 - 9450(i\alpha)^6 \\ + 63273(i\alpha)^5 - 269325(i\alpha)^4 \\ + 723680(i\alpha)^3 - 1172700(i\alpha)^2 \\ + 1026576i\alpha - 362880 \end{array} \right] \\ + 163350w^8 \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^8 - 36(i\alpha)^7 + 546(i\alpha)^6 \\ - 4536(i\alpha)^5 + 22449(i\alpha)^4 \\ - 67284(i\alpha)^3 + 118124(i\alpha)^2 \\ - 109584i\alpha + 40320 \end{array} \right] \\ + 2613600w^7 \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^7 - 28(i\alpha)^6 \\ + 322(i\alpha)^5 - 1960(i\alpha)^4 \\ + 6769(i\alpha)^3 - 13132(i\alpha)^2 \\ + 13068i\alpha - 5040 \end{array} \right] \\ + 25613280w^6 \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^6 - 21(i\alpha)^5 + 175(i\alpha)^4 \\ - 735(i\alpha)^3 + 1624(i\alpha)^2 \\ - 1764i\alpha + 720 \end{array} \right] \\ + 153679680w^5 \left[ \begin{array}{l} (i\alpha)^5 - 15(i\alpha)^4 + 85(i\alpha)^3 \\ - 225(i\alpha)^2 + 274i\alpha - 120 \end{array} \right] \\ + 548856000w^4 [(i\alpha)^4 - 10(i\alpha)^3 + 35(i\alpha)^2 - 50i\alpha + 24] \\ + 1097712000w^3 [(i\alpha)^3 - 6(i\alpha)^2 + 11i\alpha - 6] \\ + 1097712000w^2 [(i\alpha)^2 - 3i\alpha + 2] \\ + 439084800w [i\alpha - 1] \\ + 39916800 \end{array} \right\}$$

Posons :

## ANNEXE

$$q_{12} = \begin{bmatrix} (i\alpha)^{11} - 66(i\alpha)^{10} + 1925(i\alpha)^9 - 32670(i\alpha)^8 \\ +11(32493)(i\alpha)^7 - 121(21798)(i\alpha)^6 \\ +55(242537)(i\alpha)^5 - 1210(38013)(i\alpha)^4 \\ +11(9568916)(i\alpha)^3 - 99(1524424)(i\alpha)^2 \\ +90(1339376)i\alpha - 990(40320) \end{bmatrix}$$

$$q_{11} = 121 \begin{bmatrix} (i\alpha)^{10} - 55(i\alpha)^9 + 1320(i\alpha)^8 \\ -18150(i\alpha)^7 + 157773(i\alpha)^6 \\ -902055(i\alpha)^5 + 3416930(i\alpha)^4 \\ -8409500(i\alpha)^3 + 12753576(i\alpha)^2 \\ -10628640i\alpha + 3628800 \end{bmatrix}$$

$$q_{10} = 6050 \begin{bmatrix} (i\alpha)^9 - 45(i\alpha)^8 \\ +870(i\alpha)^7 - 9450(i\alpha)^6 \\ +63273(i\alpha)^5 - 269325(i\alpha)^4 \\ +723680(i\alpha)^3 - 1172700(i\alpha)^2 \\ +1026576i\alpha - 362880 \end{bmatrix}$$

$$q_9 = 163350 \begin{bmatrix} (i\alpha)^8 - 36(i\alpha)^7 + 546(i\alpha)^6 \\ -4536(i\alpha)^5 + 22449(i\alpha)^4 \\ -67284(i\alpha)^3 + 118124(i\alpha)^2 \\ -109584i\alpha + 40320 \end{bmatrix}$$

$$q_8 = 2613600 \begin{bmatrix} (i\alpha)^7 - 28(i\alpha)^6 \\ +322(i\alpha)^5 - 1960(i\alpha)^4 \\ +6769(i\alpha)^3 - 13132(i\alpha)^2 \\ +13068i\alpha - 5040 \end{bmatrix}$$

$$q_7 = 25613280 \begin{bmatrix} (i\alpha)^6 - 21(i\alpha)^5 + 175(i\alpha)^4 \\ -735(i\alpha)^3 + 1624(i\alpha)^2 \\ -1764i\alpha + 720 \end{bmatrix}$$

$$q_6 = 153679680 \begin{bmatrix} (i\alpha)^5 - 15(i\alpha)^4 + 85(i\alpha)^3 \\ -225(i\alpha)^2 + 274i\alpha - 120 \end{bmatrix}$$

$$q_5 = 548856000[(i\alpha)^4 - 10(i\alpha)^3 + 35(i\alpha)^2 - 50i\alpha + 24]$$

$$q_4 = 1097712000[(i\alpha)^3 - 6(i\alpha)^2 + 11i\alpha - 6]$$

$$q_3 = 1097712000[(i\alpha)^2 - 3i\alpha + 2]$$

$$\text{Pour } \Lambda_0: \int_0^1 dt t^{i\alpha}(1-t)^{-i\alpha}(1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+1)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(2)} {}_2F_1(12, i\alpha + 1, 2, w) \quad (\text{A-3})$$

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha, 1, w) = \frac{11(i\alpha)}{1} {}_2F_1(12, i\alpha + 1, 2, w)$$

$${}_2F_1(11, i\alpha, 1, w) = \frac{(1-w)^{-i\alpha-10}}{10(9)8(7)720} \begin{bmatrix} w^{10}q_{11} + 100w^9q_{10} + 4050w^8q_9 + 86400w^7q_8 \\ +1058400w^6q_7 + 7620480w^5q_6 + 3175200w^4q_5 \\ +72576000w^3q_4 + 81648000w^2q_3 + 36288000w(i\alpha - 1) \\ +3628800 \end{bmatrix}$$

## ANNEXE

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha, 1, w) = \frac{(1-w)^{-i\alpha-11}(\alpha)}{10(9)8(7)720} \begin{bmatrix} w^{10}q_{11} + 110w^9q_{10} + 4950w^8q_9 \\ +118800w^7q_8 + 1663200w^6q_7 \\ +11(1270080)w^5q_6 + 11(6350400)w^4q_5 \\ +18144000(11)w^3q_4 + 27216000w^2q_3 \\ +18144000(11)w(i\alpha - 1) + 11(3628800) \end{bmatrix}$$

Pour  $\Pi_0$ :  $\int_0^1 dt t^{i\alpha+1}(1-t)^{-i\alpha}(1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+2)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(3)} {}_2F_1(12, i\alpha + 2, 3, w)$  (A-4)

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 1, 2, w) = \frac{11(i\alpha+1)}{2} {}_2F_1(12, i\alpha + 2, 3, w)$$

$${}_2F_1(11, i\alpha + 1, 2, w) = \frac{(1-w)^{-i\alpha-10}}{10(9)8(7)720} \begin{bmatrix} w^9q_{10} + 90w^8q_9 + 3240w^7q_8 + 60480w^6q_7 \\ +635040w^5q_6 + 3810240w^4q_5 + 12700800w^3q_4 \\ +21772800w^2q_3 + 16329600w(i\alpha - 1) + 3628800 \end{bmatrix}$$

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 1, 2, w) = \frac{(1-w)^{-i\alpha-11}}{10(9)8(7)720} (i\alpha + 1) \begin{bmatrix} w^9q_{10} + 99w^8q_9 + 3960w^7q_8 + 83160w^6q_7 \\ +9979200w^5q_6 + 6985440w^4q_5 \\ +27941760w^3q_4 + 59875200w^2q_3 \\ +59875200w(i\alpha - 1) + 19958400 \end{bmatrix}$$

Pour  $\eta_0$ :  $\int_0^1 dt t^{i\alpha+2}(1-t)^{-i\alpha}(1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+3)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(4)} {}_2F_1(12, i\alpha + 3, 4, w)$  (A-5)

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 2, 3, w) = \frac{11(i\alpha+2)}{3} {}_2F_1(12, i\alpha + 3, 4, w)$$

$${}_2F_1(11, i\alpha + 2, 3, w) = \frac{2(1-w)^{-i\alpha-10}}{10(9)8(7)720} \begin{bmatrix} w^8q_9 + 80w^7q_8 + 2520w^6q_7 \\ +40320w^5q_6 + 352800w^4q_5 \\ +1693440w^3q_4 + 4233600w^2q_3 \\ +4838400w(i\alpha - 1) + 1814400 \end{bmatrix}$$

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 2, 3, w) = \frac{2(1-w)^{-i\alpha-11}}{10(9)8(7)720} (i\alpha + 2) \begin{bmatrix} w^8q_9 + 80w^7q_8 + 3080w^6q_7 \\ +55440w^5q_6 + 554400w^4q_5 \\ +3104640w^3q_4 + 9313920w^2q_3 \\ +13305600w(i\alpha - 1) + 6652800 \end{bmatrix}$$

Pour  $\varepsilon_0$ :  $\int_0^1 dt t^{i\alpha+3}(1-t)^{-i\alpha}(1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+4)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(5)} {}_2F_1(12, i\alpha + 4, 5, w)$  (A-6)

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 3, 4, w) = \frac{11(i\alpha+3)}{4} {}_2F_1(12, i\alpha + 4, 5, w)$$

$${}_2F_1(11, i\alpha + 3, 4, w) = \frac{6(1-w)^{-i\alpha-10}}{10(9)8(7)720} \begin{bmatrix} w^7q_8 + 70w^6q_7 + 1890w^5q_6 + 2520w^4q_5 \\ +176400w^3q_4 + 635040w^2q_3 \\ +1058400w(i\alpha - 1) + 604800 \end{bmatrix}$$

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 3, 4, w) = \frac{6(1-w)^{-i\alpha-11}}{10(9)8(7)720} (i\alpha + 3) \begin{bmatrix} w^7q_8 + 77w^6q_7 + 2310w^5q_6 \\ +34650w^4q_5 + 277200w^3q_4 \\ +1164240w^2q_3 + 2328480w(i\alpha - 1) \\ +1663200 \end{bmatrix}$$

Pour  $\rho_0$ :  $\int_0^1 dt t^{i\alpha+4}(1-t)^{-i\alpha}(1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+5)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(6)} {}_2F_1(12, i\alpha + 5, 6, w)$  (A-7)

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 4, 5, w) = \frac{11(i\alpha+4)}{5} {}_2F_1(12, i\alpha + 5, 6, w)$$

## ANNEXE

$${}_2F_1(11, i\alpha + 4, 5, w) = \frac{24(1-w)^{-i\alpha-10}}{10(9)8(7)720} \left[ w^6 q_7 + 60w^5 q_6 + 1350w^4 q_5 + 14400w^3 q_4 + \right.$$

$$\left. \frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 3, 4, w) = \frac{24(1-w)^{-i\alpha-11}}{10(9)8(7)720} (i\alpha + 4) \left[ \begin{array}{l} w^6 q_7 + 66w^5 q_6 + 1650w^4 q_5 \\ + 19800w^3 q_4 + 118800w^2 q_3 \\ + 332640w(i\alpha - 1) + 332640 \end{array} \right] \right.$$

Pour  $\lambda_0$ :  $\int_0^1 dt t^{i\alpha+5} (1-t)^{-i\alpha} (1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+6)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(7)} {}_2F_1(12, i\alpha + 6, 7, w)$  (A-8)

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 5, 6, w) = \frac{11(i\alpha+5)}{6} {}_2F_1(12, i\alpha + 6, 7, w)$$

$${}_2F_1(11, i\alpha + 5, 6, w) = \frac{120(1-w)^{-i\alpha-10}}{10(9)8(7)720} \left[ \begin{array}{l} w^5 q_6 + 50w^4 q_5 + 900w^3 q_4 \\ + 7200w^2 q_3 + 25200w(i\alpha - 1) \\ + 30240 \end{array} \right]$$

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 5, 6, w) = \frac{120(1-w)^{-i\alpha-11}}{10(9)8(7)720} (i\alpha + 5) \left[ w^5 q_6 + 55w^4 q_5 + 1100w^3 q_4 \right.$$

Pour  $\sigma_0$ :  $\int_0^1 dt t^{i\alpha+6} (1-t)^{-i\alpha} (1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+7)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(8)} {}_2F_1(12, i\alpha + 7, 8, w)$  (A-9)

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 6, 7, w) = \frac{11(i\alpha+6)}{7} {}_2F_1(12, i\alpha + 7, 8, w)$$

$${}_2F_1(11, i\alpha + 6, 7, w) = \frac{720(1-w)^{-i\alpha-10}}{10(9)8(7)720} \left[ w^4 q_5 + 40w^3 q_4 + 540w^2 q_3 \right.$$

$$\left. \frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 6, 7, w) = \frac{720(1-w)^{-i\alpha-11}}{10(9)8(7)720} (i\alpha + 6) \left[ w^4 q_5 + 44w^3 q_4 + 660w^2 q_3 \right. \right.$$

Pour  $\delta_0$ :  $\int_0^1 dt t^{i\alpha+7} (1-t)^{-i\alpha} (1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+8)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(9)} {}_2F_1(12, i\alpha + 8, 9, w)$  (A-10)

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 7, 8, w) = \frac{11(i\alpha+7)}{8} {}_2F_1(12, i\alpha + 8, 9, w)$$

$${}_2F_1(11, i\alpha + 7, 8, w) = \frac{7(720)(1-w)^{-i\alpha-10}}{10(9)8(7)720} [w^3 q_4 + 30w^2 q_3 + 270w(i\alpha - 1) + 720]$$

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 7, 8, w) = \frac{7(720)(1-w)^{-i\alpha-11}}{10(9)8(7)720} (i\alpha + 7) [w^3 q_4 + 33w^2 q_3 + 330w(i\alpha - 1) + 990]$$

Pour  $\gamma_0$ :  $\int_0^1 dt t^{i\alpha+8} (1-t)^{-i\alpha} (1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+9)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(10)} {}_2F_1(12, i\alpha + 9, 10, w)$  (A-11)

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 8, 9, w) = \frac{11(i\alpha+8)}{9} {}_2F_1(12, i\alpha + 9, 10, w)$$

$${}_2F_1(11, i\alpha + 8, 9, w) = \frac{8(7)720(1-w)^{-i\alpha-10}}{10(9)8(7)720} [w^2 q_3 + 20w(i\alpha - 1) + 90]$$

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 8, 9, w) = \frac{8(7)720(1-w)^{-i\alpha-11}}{10(9)8(7)720} (i\alpha + 8) [w^2 q_3 + 22w(i\alpha - 1) + 110]$$

Pour  $\beta_0$ :  $\int_0^1 dt t^{i\alpha+9} (1-t)^{-i\alpha} (1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+10)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(11)} {}_2F_1(12, i\alpha + 10, 11, w)$  (A-12)

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 9, 10, w) = \frac{11(i\alpha+9)}{10} {}_2F_1(12, i\alpha + 10, 11, w)$$

$${}_2F_1(11, i\alpha + 9, 10, w) = \frac{9(8)7(720)(1-w)^{-i\alpha-10}}{10(9)8(7)720} [w(i\alpha - 1) + 10]$$

## ANNEXE

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 9, 10, w) = \frac{9(8)7(720)(1-w)^{-i\alpha-11}}{10(9)8(7)720} (i\alpha + 9) [w(i\alpha - 1) + 11]$$

Pour  $\alpha_0$  :  $\int_0^1 dt t^{i\alpha+10} (1-t)^{-i\alpha} (1-tw)^{-12} = \frac{\Gamma(i\alpha+11)\Gamma(1-i\alpha)}{\Gamma(12)} {}_2F_1(12, i\alpha + 11, 12, w)$  (A-13)

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 10, 11, w) = \frac{11(i\alpha+10)}{11} {}_2F_1(12, i\alpha + 11, 12, w)$$

$${}_2F_1(11, i\alpha + 10, 11, w) = (1-w)^{-i\alpha-10}$$

$$\frac{d}{dw} {}_2F_1(11, i\alpha + 10, 11, w) = (i\alpha + 10)(1-w)^{-i\alpha-11} \Rightarrow {}_2F_1(12, i\alpha + 11, 12, w) = (1-w)^{-i\alpha-11}$$

A l'aide des équations ((A-2) à (A-13)), l'équation (A-1) devient :

## ANNEXE

$$J_{12n} = \frac{2^{3/2}(\epsilon^{25/2})}{(2\pi)^{3/2} 99(35)45(3)\sqrt{7}} 4\pi (2i)^{11} (11!) \frac{-d}{d\epsilon} \left[ \frac{A^{i\alpha-12}(A+B)^{-i\alpha-11}}{\sqrt{(23)19(17)13}} \right] \times$$

$$\left\{ \begin{aligned}
 & [A^{11} \alpha_0 (i\alpha + 10)(i\alpha + 9)(i\alpha + 8)(i\alpha + 7)(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha] \\
 & + \beta_0 \left[ \frac{11A^{11} - BA^{10}(i\alpha - 1)}{BA^{10}(i\alpha - 1)} \right] [(i\alpha + 9)(i\alpha + 8)(i\alpha + 7)(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha] \\
 & + \gamma_0 \left[ \frac{110A^{11} - 22BA^{10}(i\alpha - 1) + B^2A^9 q_3}{-22BA^{10}(i\alpha - 1)} \right] [(i\alpha + 8)(i\alpha + 7)(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha] \\
 & + \delta_0 \left[ \frac{990A^{11} - 330BA^{10}(i\alpha - 1) + 33B^2A^9 q_3 - B^3A^8 q_4}{990A^{11} - 330BA^{10}(i\alpha - 1)} \right] [(i\alpha + 7)(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha] \\
 & + \sigma_0 \left[ \frac{7920A^{11} - 39600BA^{10}(i\alpha - 1) + 660B^2A^9 q_3 - 44B^3A^8 q_4 + B^4A^7 q_5}{7920A^{11} - 39600BA^{10}(i\alpha - 1)} \right] [(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha] \\
 & + \lambda_0 \left[ \frac{55440A^{11} - 39600BA^{10}(i\alpha - 1) + 9900B^2A^9 q_3 - 1100B^3A^8 q_4 + 55B^4A^7 q_5 - B^5A^6 q_6}{55440A^{11} - 39600BA^{10}(i\alpha - 1)} \right] [(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha] \\
 & + \rho_0 \left[ \frac{332640A^{11} - 332640BA^{10}(i\alpha - 1) + 118800B^2A^9 q_3 - 19800B^3A^8 q_4 + 1650B^4A^7 q_5 - 66B^5A^6 q_6 + B^6A^5 q_7}{332640A^{11} - 332640BA^{10}(i\alpha - 1)} \right] [(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha] \\
 & + \epsilon_0 \left[ \frac{1663200A^{11} - 2328480BA^{10}(i\alpha - 1) + 1164240B^2A^9 q_3 - 277200B^3A^8 q_4 + 34650B^4A^7 q_5 - 2310B^5A^6 q_6 + 77B^6A^5 q_7 - B^7A^4 q_8}{1663200A^{11} - 2328480BA^{10}(i\alpha - 1)} \right] [(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha] \\
 & + \eta_0 \left[ \frac{6652800A^{11} - 13305600BA^{10}(i\alpha - 1) + 9313920B^2A^9 q_3 - 3104640B^3A^8 q_4 - 554400B^4A^7 q_5 - 55440B^5A^6 q_6 + 3080B^6A^5 q_7 - 88B^7A^4 q_8 + B^8A^3 q_9}{6652800A^{11} - 13305600BA^{10}(i\alpha - 1)} \right] [(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha] \\
 & + \pi_0 \left[ \frac{19958400A^{11} - 59875200BA^{10}(i\alpha - 1) + 59875200B^2A^9 q_3 - 27941760B^3A^8 q_4 + 6985440B^4A^7 q_5 - 997920B^5A^6 q_6 + 83160B^6A^5 q_7 - 3960B^7A^4 q_8 + 99B^8A^3 q_9 - B^9A^2 q_{10}}{19958400A^{11} - 59875200BA^{10}(i\alpha - 1)} \right] [(i\alpha + 1)i\alpha] \\
 & + \Lambda_0 \left[ \frac{39916800A^{11} - 19958400A^{10}(i\alpha - 1) + 299376000B^2A^9 q_3 - 199584000B^3A^8 q_4 + 69854400B^4A^7 q_5 - 13970880B^5A^6 q_6 + 1663200B^6A^5 q_7 - 118800B^7A^4 q_8 + 4950B^8A^3 q_9 - 110B^9A^2 q_{10} + B^{10}A q_{11}}{39916800A^{11} - 19958400A^{10}(i\alpha - 1)} \right] [i\alpha] \\
 & + \Gamma_0 \left[ \frac{39916800A^{11} - 439084800A^{10}(i\alpha - 1) + 1097712000B^2A^9 q_3 - 1097712000B^3A^8 q_4 + 548856000B^4A^7 q_5 - 153679680B^5A^6 q_6 + 25613280B^6A^5 q_7 - 2613600B^7A^4 q_8 + 163350B^8A^3 q_9 - 6050B^9A^2 q_{10} + 121B^{10}A q_{11} - B^{11} q_{12}}{39916800A^{11} - 439084800A^{10}(i\alpha - 1)} \right]
 \end{aligned} \right\}$$

## ANNEXE

Si on pose

$$f = A^{i\alpha-12}, g = (A+B)^{-i\alpha-11} \text{ et}$$

$$h = A^{11}p_1 - BA^{10}p_2 + B^2A^9p_3 - B^3A^8p_4 + B^4A^7p_5 - B^5A^6p_6 + B^6A^5p_7 - B^7A^4p_8 + B^8A^3p_9 - B^9A^2p_{10} + B^{10}Ap_{11} - B^{12}p_{12}$$

et sachant que :  $\frac{d}{d\varepsilon}A = 2\varepsilon$ ,  $\frac{d}{d\varepsilon}B = -2ik_e$ , donc

$$\begin{aligned} h^{(1)} = & 22\varepsilon A^{10}p_1 - p_2(20\varepsilon BA^9 - 2ik_e A^{10}) + p_3(18\varepsilon B^2A^8 - 4ik_e BA^9) - p_4(16\varepsilon B^3A^7 - \\ & 6ik_e B^2A^8) + p_5(14\varepsilon B^4A^6 - 8ik_e B^3A^7) - p_6(12\varepsilon B^5A^5 - 10ik_e B^4A^6) + p_7(10\varepsilon B^6A^4 - \\ & 12ik_e B^5A^5) - \\ & p_8(8\varepsilon B^7A^3 - 14ik_e B^6A^4) + p_9(6\varepsilon B^8A^2 - 16ik_e B^7A^3) - p_{10}(4\varepsilon B^9A - 18ik_e B^8A^2) + \\ & p_{11}(2\varepsilon B^{10} - 20ik_e AB^9) - p_{12}(-22ik_e B^{10}) \end{aligned}$$

où, les coefficients  $p_{i=1,12}$  sont donnés par les formules suivantes :

$$p_1 = \left[ \begin{aligned} & \alpha_0(\alpha+10)(\alpha+9)(\alpha+8)(\alpha+7)(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 11\beta_0(\alpha+9)(\alpha+8)(\alpha+7)(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 110\gamma_0(\alpha+8)(\alpha+7)(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 990\delta_0(\alpha+7)(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 7920\sigma_0(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 55440\lambda_0(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 332640\mu_0(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 1663200\varepsilon_0(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 6652800\eta_0(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 19958400\pi_0(\alpha+1)\alpha + 33916800\Lambda_0\alpha + 39916800\Gamma_0 \end{aligned} \right]$$

$$p_2 = (\alpha-1) \left[ \begin{aligned} & \beta_0(\alpha+9)(\alpha+8)(\alpha+7)(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 22\gamma_0(\alpha+8)(\alpha+7)(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 330\delta_0(\alpha+7)(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 3960\sigma_0(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 39600\lambda_0(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 332640\mu_0(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 2328480\varepsilon_0(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 13305600\eta_0(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 59875200\pi_0(\alpha+1)\alpha + 199584000\Lambda_0\alpha + 439084800\Gamma_0 \end{aligned} \right]$$

$$p_3 = q_3 \left[ \begin{aligned} & \gamma_0(\alpha+8)(\alpha+7)(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 33\delta_0(\alpha+7)(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 660\sigma_0(\alpha+6)(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 9900\lambda_0(\alpha+5)(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 118800\mu_0(\alpha+4)(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 1164240\varepsilon_0(\alpha+3)(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 9313920\eta_0(\alpha+2)(\alpha+1)\alpha + \\ & 59875200\pi_0(\alpha+1)\alpha + 299376000\Lambda_0\alpha + 1097712000\Gamma_0 \end{aligned} \right]$$

## ANNEXE

$$p_4 = q_4 \left[ \begin{array}{l} \delta_0(i\alpha + 7)(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 44\sigma_0(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 1100\lambda_0(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 19800\mu_0(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 277200\varepsilon_0(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 3104640\eta_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 27941760\pi_0(i\alpha + 1)i\alpha + 199584000\Lambda_0i\alpha + 1097712000\Gamma_0 \end{array} \right]$$

$$p_5 = q_5 \left[ \begin{array}{l} \sigma_0(i\alpha + 6)(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 55\lambda_0(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 1650\mu_0(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 34650\varepsilon_0(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 554400\eta_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 6985440\pi_0(i\alpha + 1)i\alpha + 69854400\Lambda_0i\alpha + 548856000\Gamma_0 \end{array} \right]$$

$$p_6 = q_6 \left[ \begin{array}{l} \lambda_0(i\alpha + 5)(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 66\mu_0(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 2310\varepsilon_0(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 55440\eta_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 997920\pi_0(i\alpha + 1)i\alpha + 13970880\Lambda_0i\alpha + 153679680\Gamma_0 \end{array} \right]$$

$$p_7 = q_7 \left[ \begin{array}{l} \mu_0(i\alpha + 4)(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 77\varepsilon_0(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 3080\eta_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 83160\pi_0(i\alpha + 1)i\alpha + 1663200\Lambda_0i\alpha + 25613280\Gamma_0 \end{array} \right]$$

$$p_8 = q_8 \left[ \begin{array}{l} \varepsilon_0(i\alpha + 3)(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 88\eta_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 3960\pi_0(i\alpha + 1)i\alpha + 118800\Lambda_0i\alpha + 2613600\Gamma_0 \end{array} \right]$$

$$p_9 = q_9 \left[ \begin{array}{l} \eta_0(i\alpha + 2)(i\alpha + 1)i\alpha + \\ 99\pi_0(i\alpha + 1)i\alpha + 4950\Lambda_0i\alpha + 163350\Gamma_0 \end{array} \right], p_{10} =$$

$$q_{10}[\pi_0(i\alpha + 1)i\alpha + 110\Lambda_0i\alpha + 6050\Gamma_0]$$

$$p_{11} = q_{11}[\Lambda_0i\alpha + 121\Gamma_0], p_{12} = \Gamma_0$$

Enfin, on obtient la formule de  $J_{12n_0}$  suivante :

$$J_{12n_0} = \frac{2^{3/2}(\varepsilon^{25/2})}{99(35)45(3)\sqrt{7}\sqrt{23(19)17(13)}} \frac{\sqrt{46}}{512\pi} i^{2^{11}} (11!) [f^{(1)}gh + fg^{(1)}h + fgh^{(1)}] \quad (\text{A-14})$$



# Etude de la double ionisation des bases de l'ADN par impact d'électrons

## Résumé

L'étude d'ionisation des molécules biologiques par impact d'électrons est une étape essentielle pour comprendre les dommages d'irradiation dans ces molécules et précisément dans les bases de l'ADN et l'ARN. Notre travail a consisté à calculer les sections efficaces quintuplement différentielles de double ionisation des bases de l'ADN par impact électronique. Ces calculs sont effectués en utilisant la première approximation de Born1 et les conditions expérimentales du groupe d'Orsay pour deux types d'énergie d'impact : haute énergie 5500 eV et énergie intermédiaire 500 eV. Les fonctions d'ondes des bases de l'ADN sont construites en utilisant les fonctions d'onde multicentriques obtenues à partir du programme gaussien 03. Ces fonctions d'onde multi-centres sont convertis en une expansion de fonctions de type Slater d'un seul centre. Pour l'état final, les deux électrons éjectés sont décrits par deux fonctions d'onde coulombiennes et la répulsion électron-électron est prise en compte. Les mécanismes de la double ionisation sont discutés pour chaque cas et les meilleurs choix des paramètres cinématiques et angulaires sont déterminés pour les futures expériences des autres molécules biologiques. Nous nous rappelons que les données expérimentales sur l'ionisation des systèmes biologiques sont nécessaires, par exemple dans le traitement du cancer par des ions lourds.

**Mots clés :** section efficace, double ionisation, impact d'électrons, bases de l'ADN.

## Abstract

The study of biological molecules ionization by electron impact is a fundamental step to understand the radiation damage in these molecules and precisely in the DNA and RNA bases. We investigate here the calculations of the five-fold differential cross sections for electron-impact double ionization of DNA bases highest occupied molecular orbital. These calculations are performed using the first approximation of Born1 and the experimental conditions of the Orsay group for two types of impact energy : high energy 5500 eV and intermediate energy 500 eV. The wavefunctions of the DNA bases are constructed using the multi-center wave functions obtained from the Gaussian 03 program. These multi-center wave functions are converted into single-center expansions of Slater-type functions. For the final state, the two ejected electrons are described by two Coulomb wave functions and the electron-electron repulsion is taken into account. Mechanisms of the double ionization are discussed for each case and the best choices of the kinematical parameters are determined for other biological molecules next experiments. We remember that experimental data about the ionization of biological systems are needed, for instance in heavy-ion cancer therapy.

**Key words :** cross section, double ionization, electron impact, DNA bases.

## ملخص

دراسة تأين الجزيئات البيولوجية بالإلكترونات هو خطوة أساسية في فهم أضرار الإشعاع على هذه الجزيئات وتحديدًا على الحمض النووي الريبوزي المنقوص الأكسجين ADN والحمض النووي الريبوزي ARN. قمنا في إطار هذا العمل بحساب المقاطع الفعالة خماسية التفاضل للتأين المزدوج بالإلكترونات لجزيئات الحمض النووي. هذه العمليات الحسابية تمت باستخدام التقريب الأول لبورن والشروط التجريبية لمجموعة أورساي لنوعين من الطاقة: الطاقة العالية 5500 فولت والطاقة المتوسطة 500 فولت. دوال الموجة لجزيئات الحمض النووي تم إعدادها باستخدام دوال الموجة متعددة المراكز المتحصل عليها من برنامج جاوس 03. هذه الدوال حولت إلى نشر لمجموعة دوال أحادية المركز من نوع سلاتر. في الحالة النهائية للتأين المزدوج، الإلكترونين الصادرين وصفا بدالتين موجيتين كولومبيتين، والتنافر الكولومبي بين هذه الإلكترونات أخذ بعين الاعتبار. آليات التأين المزدوج لكل حالة نوقشت وتم تحديد أفضل الخيارات للشروط الحركية والزاوية للتجارب المستقبلية للجزيئات البيولوجية الأخرى. من الناحية التطبيقية، نذكر أن هناك حاجة ماسة للبيانات التجريبية لتأين النظم البيولوجية، على سبيل المثال في علاج السرطان بالأيونات الثقيلة.

**الكلمات المفتاحية:** المقطع الفعال، التأين الثنائي، التصادم بالإلكترونات، قواعد الحمض النووي.