

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE  
UNIVERSITE DE SETIF 1 – SETIF



**THESE**

Présentée à la Faculté des Sciences  
Département de Physique  
Pour l'obtention du diplôme de

**DOCTORAT EN SCIENCES**

Option : **Physique du solide**

Par

**AOUINA Nabila Yasmina**

**Thème**

***Simulation Monte Carlo du passage d'électrons  
énergétiques dans l'ADN et l'eau***

Soutenue le : 17/10/2020

Devant le jury :

Pr. HOUAMER SALIM	Univ. Ferhat Abbass - Sétif 1	Président
Pr. CHAOUI ZINE EL ABIDINE	Univ. Ferhat Abbass - Sétif 1	Rapporteur
Pr. BELAFRITAS ABDELFE TAH	Univ. Mohamed Seddik Ben Yahyia - Jijel	Examineur
Pr. DIB ANIS SAMY AMINE	Univ. USTO Mohamed Boudiaf - Oran	Examineur

## *Dédicaces*

*A mes Chers parents Mohamed et Farida*

*A mon mari Rachid et mes enfants Imad Eddine, Ahmed, Youcef et Ayoub.*

*Vous êtes la chose la plus précieuse dans ma vie.*

*A mon beau père Abbas*

*A la mémoire de ma belle mère Salika, ma belle sœur Nadia et mon beau frère  
Saouchi*

*Que Dieu les accueille dans son vaste Paradis*

*A mes frères Allaeddine et Zine El Abidine et leurs enfants. A mes sœurs Hassiba et  
Salima et leurs enfants, A mon beau frère Said. A Ali*

*A mes belles sœurs Mouna, Amira et Amina*

*A mes beaux frères et surtout Omar, Fatch et Achraf*

*A mes chères voisines Sakina et ses filles, Hanane et Farida*

*Vous m'avez beaucoup aidé. Mille mercis*

*A mes amies Amel, Djihane, Nacira et Nabila*

*Merci d'avoir été toujours à mes côtés*

*Nabila Yasmina*

*L'amour d'une mère pour son enfant ne connaît ni loi, ni pitié, ni limite. Il pourrait anéantir  
impitoyablement tout ce qui se trouve en travers de son chemin*

*Agatha Christie*

## **Remerciements**

*Cette thèse est l'aboutissement d'un travail de recherche de longue haleine et de plusieurs années. Dans ces lignes où il m'est donné l'occasion de remercier les personnes qui m'ont aidé d'une façon ou d'une autre dans l'élaboration de mon travail de thèse.*

*Je voudrais commencer par exprimer toute ma gratitude envers mon directeur de thèse, Monsieur le professeur Zine El Abidine Chaoui, sans lui ce travail (et bien d'autres choses) n'aurait pu voir le jour. Vous avez tout mis à ma disposition pour qu'elle arrive à son terme. Vous m'avez adopté avec mes défauts et mes qualités, et depuis lors vous ne ménagez aucun effort pour faire de moi une brillante chercheuse.*

*Mes plus sincères remerciements vont d'abord aux membres de jury d'avoir pris le temps de lire ce manuscrit en détail et de lui avoir accordé leur caution scientifique.*

*Tout d'abord, je tiens à exprimer vivement mes plus profonds remerciements au Pr Houamer S, Professeur à l'Université de Setif 1, de m'avoir fait l'honneur de présider mon jury.*

*Je suis très honoré de compter Professeur Belafritas A de l'Université de Tijel parmi les membres du jury de cette thèse. Qu'il reçoit également le témoignage de ma profonde reconnaissance pour avoir accepté d'examiner le présent travail.*

*Professeur Dib A.S.A de l'Université Oran, me fait l'honneur d'examiner cette thèse et en acceptant de porter un regard critique sur le présent travail. A cet égard, je l'en remercie vivement et je l'assure de mon profond respect.*

*Que toutes les personnes qui ont contribué de près ou de loin à l'élaboration de ce travail, soient vivement remerciées.*

*Enfin, je souhaite exprimer ma gratitude à ma famille et en particulier à mes parents pour leur écoute et leur soutien durant les moments difficile.*

*Mes remerciements les plus chaleureux sont destinés à mon mari pour ses encouragements, sa patience, sa compréhension et pour le réconfort qu'il m'a toujours apporté. Tu m'as accompagné durant cette thèse. Tu as été d'un grand soutien, tu as tant cru en moi. Je voudrais te dire merci infiniment.*

*En espérant avoir apporté ma contribution dans le domaine de la recherche, je remercie tous ceux qui se donneront la peine de lire entièrement ce manuscrit.*

*"Nous sommes faits d'un étrange mélange d'acides nucléiques et de souvenirs, de rêves et de protéines, de cellules et de mots"*

*François Jacob*

*"La vie, ce concept mystérieux, est ramenée à la présence d'ADN. Il n'y a plus de frontière entre matière animée et inanimée. Tout n'est qu'une question de degré de complexité"*

*Albert Jacquard*

# Sommaire

Remerciements	i
Abréviations	vi
Liste des tableaux	viii
Liste des figures	ix

<b>Introduction générale</b>	<b>01</b>
------------------------------	-----------

Références bibliographiques	03
-----------------------------	----

## **Chapitre I : Effets biologiques des rayonnements ionisants**

1. Introduction	04
2. Découverte de la molécule d'ADN	05
3. Structure de l'ADN	07
4. Structures alternatives de l'ADN	10
5. Constituants de l'ADN	13
5.1 Structure des nucléotides	14
5.1.1 Structure du désoxyribose	16
5.1.2 Base hétérocyclique	17
5.1.3 Groupement phosphate	18
5.2 Appariement des bases	18
6. Hydratation de l'ADN	21
6.1 Hydratation des groupement phosphate	21
6.2 Détermination des sites d'hydratation	23
7. Modélisation moléculaire de la structure d'ADN	26
7.1 Tétrahydrofurane (THF)	30
7.2 Triméthylphosphate (TMP)	31
7.3 Pyrimidine	31
7.4 Purine	32
8. Lésions radio-induites de l'ADN	33
8.1 Les cassures de brins	34
8.1.1 Les cassures simple brin (CSB)	34
8.1.2 Les cassures double brin (CDB)	34
8.2 Modification des bases	34
8.3 Pontages ADN-protéines	35
8.4 Altération des sucres	35
Références bibliographiques	36

## **Chapitre II : Modèles de calcul des sections efficaces élastiques différentielles et totales**

1. Introduction	40
2. Interactions des électrons et des positrons	41
3. Collisions élastiques	41
3.1 Calcul des sections efficaces élastiques	42

3.2 Sections efficaces des collisions élastiques avec les atomes	43
3.3 L'analyse relativiste de Dirac des ondes partielles	43
3.4 Section efficace des collisions élastiques avec les molécules	47
3.5 Méthode des règles d'additivité avec correction d'écran (SCAR)	48
4. Résultats et discussion	51
4.1 Section efficace élastique de collision des électrons et des positrons avec les bases d'ADN	51
4.2 Section efficace élastique de collision des électrons et des positrons avec le THF et la PY	58
4.3 Section efficace élastique différentielle de collision des électrons avec le THF et la PY	65
4.3.1 Tétrahydrofurane	66
4.3.2 Pyrimidine	70
5. Libre parcours moyen élastique de l'électron	77
6. Conclusion	80
Références bibliographiques	82

### **Chapitre III : Collisions élastiques et inélastiques des électrons et des positrons avec l'ADN et l'eau**

1. Introduction	86
2. Collision élastiques	87
2.1 Calcul des sections efficaces élastiques atomiques et moléculaires	87
2.2 Calcul des sections efficaces élastiques moléculaires des macromolécules	88
2.2.1 La méthode des règles d'additivité avec correction d'écran pour les macromolécules (SCAR-Macro)	88
3. Résultats et discussion	91
4. Collision inélastiques	96
4.1 Calcul des sections efficaces inélastiques d'un nucléotide par l'algorithme complet de Penn (FullMC)	96
4.1.1 Formalisme diélectrique	96
4.1.2 Fonction diélectrique optique	99
4.1.3 Libre parcours moyen inélastique de l'électron et pouvoirs d'arrêt	101
4.2 Calcul des sections efficaces inélastiques d'un nucléotide	102
5. Influence de la teneur en eau sur l'ADN	104
6. Résultats et discussion	104
6.1 Sections efficaces élastiques	105
6.2 Sections efficaces inélastiques	107
6.3 Libre parcours moyen élastique et inélastique	110
7. Libre parcours moyen total	115
8. Résultats et discussion	116
9. Conclusion	120
Références bibliographiques	123

### **Chapitre IV : Simulation Monte Carlo**

1. Introduction	125
2. Modèles d'ADN	127
3. Approche physique de la simulation Monte Carlo	128
4. Modèles de diffusion	129
4.1 Diffusion élastique de l'électron	130

<b>4.1.1</b> Section efficace élastique totale, libre parcours moyen et distribution angulaire	<b>130</b>
<b>4.2</b> Diffusion inélastique de l'électron	<b>132</b>
<b>4.2.1</b> Section efficace inélastique totale, Libre parcours moyen et distribution de la perte d'énergie	<b>132</b>
<b>5.</b> Procédure et programmation de Monte Carlo	<b>133</b>
<b>6.</b> Algorithme de la simulation Monte Carlo	<b>137</b>
<b>7.</b> Résultats et discussion	<b>139</b>
<b>7.1</b> Energie déposée	<b>140</b>
<b>7.2</b> Fractions rétrodiffusées des électrons (backscattering fractions)	<b>142</b>
<b>7.3</b> Perte d'énergie et perte d'énergie la plus probable	<b>143</b>
<b>8.</b> Conclusion	<b>151</b>
Références bibliographiques	<b>153</b>
<b>Conclusion générale</b>	<b>155</b>

## Abréviations

**3-hTHF** : 3-hydroxytétrahydrofurane

**A** : Adénine

**ADN** : Acide désoxyribonucléique

**ADP** : Adénosine diphosphate

**AMP** : Adénosine monophosphate

**AR** : Règle d'additivité

**ARN** : Acide ribonucléique

**ATP** : Adénosine triphosphate

**C** : Cytosine

**CDB** : Cassures double brin

**CSB** : Cassures simple brin

**dADP** : Deoxyadenosine diphosphate

**dAMP** : Deoxyadenosine monophosphate

**dATP** : Deoxyadenosine triphosphate

**dCMP** : Deoxycytidine monophosphate

**DEA** : processus de fixation des électrons dissociatifs

**dGMP** : Deoxyguanosine monophosphate

**DHF** : Dirac–Hartree – Fock

**DHFS** : Dirac–Hartree – Fock-Slater

**dTMP** : Deoxythymine monophosphate

**ELSEPA** : diffusion élastique des électrons et des positrons par les atomes

**FORTTRAN** : formula translation

**G** : Guanine

**3-hTHF** : 3-hydroxytétrahydrofurane

**HF** : Hartree – Fock

**IAM** : méthode de l'atome indépendant

**ICRU** : Commission internationale des unités et mesures radiologiques

**IUPAC-IUB** : Commission de nomenclature de l'union internationale de Biochimie

**NT** : Nucléotide

**pb** : Paire de base

**PDF** : Fonctions de densité de probabilité

**PENELOPE** : Pénétration et perte d'énergie des positrons et des électrons (Penetration and Energy Loss of Positrons and Electrons)

**PU** : purine

**PWA** : Analyse des ondes partielles

**PY** : Pyrimidine

**SCAR** : règles d'additivité avec correction d'écran

**T** : Thymine

**TEP** : Tomographies par émission de positrons

**TF**: Thomas–Fermi

**TFD** : Thomas – Fermi – Dirac

**TFM** : Thomas–Fermi–Molière

**THF** : Tétrahydrofurane

**TMP** : Triméthylphosphate

**U** : Uracile

**SCAR-M** : règles d'additivité avec correction d'écran de collision avec les macromolécules

**SCAR-Macro** : règles d'additivité avec correction d'écran de collision avec les macromolécules

**MC** : Monte Carlo

**FullMC** : Algorithme complet de Penn

**NB** : Bases nucléiques

**el** : élastique

**inel** : inélastique

**LOC** : Laboratoire d'optoélectronique et composants

**BEB**: Binary encounter Bethe (model)

**e – h** : électron -trou

**SCOP** : modèle du potentiel optique sphérique complexe

**ePOLYSCAT** : diffusion poly électronique

**POLYDCS** : section efficace élastique différentielle

# Liste des tableaux

## Chapitre I

<b>Tableau 1.1</b> : Paramètres structurels des structures alternatives de l'ADN	<b>08</b>
--	-----------

## Chapitre II

<b>Tableau 2.1</b> : Sections efficaces élastiques des positrons pour les composants d'ADN dans la plage d'énergie 10 eV à 100 keV	<b>57</b>
<b>Tableau 2.2</b> : Sections efficaces élastiques différentielles pour la diffusion d'électrons par le THF dans la plage d'énergie incidente de 10 eV à 10 KeV	<b>75</b>
<b>Tableau 2.3</b> : Sections efficaces élastiques différentielles pour la diffusion d'électrons par la pyrimidine dans la plage d'énergie incidente de 10 eV à 10 KeV	<b>76</b>

## Liste des figures

### Chapitre I

<b>Figure 1.1 :</b> Diagramme de diffraction de rayons X d'une fibre d'ADN	<b>08</b>
<b>Figure 1.2 :</b> Structure de la molécule d'ADN.	<b>08</b>
<b>Figure 1.3 :</b> L'ADN dans les chromosomes	<b>09</b>
<b>Figure 1.4 :</b> Structures alternatives de l'ADN	<b>10</b>
<b>Figure 1.5 :</b> Transition de l'ADN-B à l'ADN-A	<b>13</b>
<b>Figure 1.6 :</b> Localisation de l'ADN dans les cellules	<b>10</b>
<b>Figure 1.7 :</b> Structure d'un nucléotide	<b>14</b>
<b>Figure 1.8 :</b> Diagramme schématiques des quatre nucléotides : deoxyadenosine monophosphate (dAMP), deoxycytidine monophosphate (dCMP), deoxyguanosine monophosphate (dGMP), deoxythymidine monophosphate (dTMP)	<b>15</b>
<b>Figure 1.9 :</b> Numérotation du sucre pentose dans l'ADN	<b>16</b>
<b>Figure 1.10 :</b> Structure chimique et le système de numérotation des bases	<b>17</b>
<b>Figure 1.11 :</b> Structure de l'acide phosphorique	<b>18</b>
<b>Figure 1.12 :</b> Diagramme schématique de deux paires de base	<b>19</b>
<b>Figure 1.13 :</b> Différents types d'appariement des bases	<b>20</b>
<b>Figure 1.14 :</b> Première sphère d'hydratation autour du groupement phosphate dans l'ADN à double hélice	<b>22</b>
<b>Figure 1.15 :</b> Sites d'hydratation dans les paires de bases d'ADN	<b>23</b>
<b>Figure 1.16 :</b> Densité de l'eau et des ions montrant les 22 sites d'hydratation entourant l'ARN (a) et l'ADN (b)	<b>25</b>
<b>Figure 1.17 :</b> Diagramme schématique de la formation d'eau	<b>27</b>
<b>Figure 1.18 :</b> Diagramme schématique d'un segment d'ADN déroulé avec la molécule THF mis en évidence dans la structure du squelette phosphate-désoxyribose	<b>28</b>

<b>Figure 1.19 :</b> Diagramme schématique du tétrahydrofurane (THF) et du triméthylphosphate (TMP) analogues du désoxyribose et de l'ester triméthylrique de l'acide phosphorique respectivement	<b>29</b>
<b>Figure 1.20 :</b> Le cycle tétrahydrofurane de la 2-désoxyadénosine, un nucléoside d'ADN, est montré en rouge	<b>29</b>
<b>Figure 1.21 :</b> Diagramme schématique du cycle tétrahydrofurane	<b>30</b>
<b>Figure 1.22 :</b> Diagramme schématique du triméthylphosphate	<b>31</b>
<b>Figure 1.23 :</b> Diagramme schématique de la pyrimidine	<b>32</b>
<b>Figure 1.24 :</b> Diagramme schématique de la purine	<b>32</b>
<b>Figure 1.25 :</b> Lésions radio-induites de l'ADN	<b>33</b>

## Chapitre II

<b>Figure 2.1 :</b> Sections efficaces élastiques des électrons de l'adénine résultant de l'inclusion de différents potentiels d'interaction	<b>47</b>
<b>Figure 2.2 :</b> Sections efficaces élastiques des électrons de l'adénine	<b>53</b>
<b>Figure 2.3 :</b> Sections efficaces élastiques des électrons de la cytosine	<b>54</b>
<b>Figure 2.4 :</b> Sections efficaces élastiques des électrons de la guanine	<b>54</b>
<b>Figure 2.5 :</b> Sections efficaces élastiques des électrons de la thymine	<b>55</b>
<b>Figure 2.6 :</b> Présents sections efficaces élastiques des positrons de la guanine	<b>56</b>
<b>Figure 2.7 :</b> Sections efficaces élastiques des électrons du THF	<b>58</b>
<b>Figure 2.8 :</b> Sections efficaces élastiques des électrons du pyrimidine	<b>59</b>
<b>Figure 2.9 :</b> Présents sections efficaces élastiques des positrons du THF	<b>61</b>
<b>Figure 2.10 :</b> Présents sections efficaces élastiques des positrons de la pyrimidine	<b>62</b>
<b>Figure 2.11 :</b> Présents sections efficaces élastiques des électrons et des positrons du THF et de la pyrimidine	<b>64</b>
<b>Figure 2.12 :</b> Sections efficaces élastiques différentielles des électrons du THF	<b>66</b>

<b>Figure 2.13 :</b> Sections efficaces élastiques différentielles des électrons du pyrimidine	<b>71</b>
<b>Figure 2.14 :</b> Présent calcul du libre parcours moyen élastique des positrons et des électrons et le libre parcours moyen élastique du transport des positrons et des électrons pour les bases d'ADN	<b>78</b>
<b>Figure 2.15 :</b> Présent calcul du libre parcours moyen élastique des électrons	<b>79</b>

### **Chapitre III**

<b>Figure 3.1 :</b> Structures atomiques des nucléotides de l'ADN avec les paires de bases Watson-Crick (T, A et C, G reliées par des liaisons H, comme indiqué) liées à des molécules de désoxyribose et de phosphate	<b>89</b>
<b>Figure 3.2 :</b> Sections efficace élastiques calculées pour la diffusion des électrons avec le dAMP, dCMP, dGMP et dTMP respectivement	<b>92</b>
<b>Figure 3.3 :</b> Sections efficaces élastiques calculées pour la diffusion des positrons avec le dAMP, dCMP, dGMP et dTMP respectivement	<b>94</b>
<b>Figure 3.4 :</b> Sections efficaces élastiques calculées pour la moyenne des nucléotides dAMP, dCMP, dGMP et dTMP	<b>95</b>
<b>Figure 3.5 :</b> Constantes diélectriques de l'ADN déshydraté en fonction de l'énergie des photons	<b>100</b>
<b>Figure 3.6 :</b> Fonction de perte d'énergie de l'ADN déshydraté en fonction de l'énergie des photons	<b>100</b>
<b>Figure 3.7 :</b> Sections efficaces inélastiques de la diffusion d'électrons pour un nucléotide	<b>103</b>
<b>Figure 3.8 :</b> Influence de la teneur en molécules H <sub>2</sub> O/NT sur un nucléotide (dAMP) pour la diffusion élastique d'électrons	<b>105</b>
<b>Figure 3.9 :</b> Influence des différentes teneurs en molécules H <sub>2</sub> O/NT sur un nucléotide dans le cas de la diffusion élastique d'électrons et de positrons	<b>107</b>
<b>Figure 3.10 :</b> Influence de la teneur en molécules H <sub>2</sub> O/NT sur un nucléotide (dAMP) pour la diffusion inélastique d'électrons	<b>108</b>
<b>Figure 3.11 :</b> Influence des différentes teneurs en molécules H <sub>2</sub> O/NT sur un nucléotide dans le cas de la diffusion inélastique d'électrons et de positrons	<b>109</b>
<b>Figure 3.12 :</b> Libre parcours moyen pour la diffusion des électrons pour différentes teneurs en molécules H <sub>2</sub> O/NT	<b>111</b>
<b>Figure 3.13 :</b> Influence des différentes teneurs en molécules H <sub>2</sub> O/NT sur un nucléotide dans	<b>112</b>

le cas de la diffusion inélastique d'électrons et de positrons

<b>Figure 3.14</b> : Différences pour la diffusion des électrons et des positrons pour différentes teneurs en molécules H <sub>2</sub> O/NT	112
<b>Figure 3.15</b> : Libre parcours moyen inélastique des électrons	113
<b>Figure 3.16</b> : Libre parcours moyen des électrons et des positrons pour différentes teneurs en molécules H <sub>2</sub> O/NT	114
<b>Figure 3.17</b> : Différences pour la diffusion des électrons et des positrons pour différentes teneurs en molécules H <sub>2</sub> O/NT	115
<b>Figure 3.18</b> : Sections efficaces totales des électrons	117
<b>Figure 3.19</b> : Sections efficaces totales, sections efficaces élastiques et inélastiques pour le dAMP et l'eau	118
<b>Figure 3.20</b> : Libre parcours moyen total des électrons	119

## Chapitre IV

<b>Figure 4.1</b> : Modèle de l'ADN	128
<b>Figure 4.2</b> : Distributions angulaires numériques des collisions élastiques de l'électron avec le nucléotide (A-T) (C <sub>20</sub> H <sub>27</sub> N <sub>7</sub> O <sub>13</sub> P <sub>2</sub> ) ou (C-G) (C <sub>19</sub> H <sub>26</sub> N <sub>8</sub> O <sub>13</sub> P <sub>2</sub> ) et l'eau respectivement utilisées dans la simulation de Monte Carlo pour échantillonner l'angle de diffusion	131
<b>Figure 4.3</b> : Fonction de densités de probabilité en fonction de la perte d'énergie des collisions inélastiques de l'électron avec le nucléotide et l'eau respectivement	132
<b>Figure 4.4</b> : Schéma montrant le modèle discret pour la simulation Monte Carlo de la diffusion d'électrons	134
<b>Figure 4.5</b> : Algorithme illustrant le transport d'électrons dans le code Monte Carlo. $\Delta E$ représente la perte d'énergie et PDF est la fonction de la densité de probabilité	138
<b>Figure 4.6</b> : Différentes simulations de molécules d'eau par nucléotide dans un segment de 2 nm et 4nm	139
<b>Figure 4.7</b> : Variation de l'énergie moyenne déposée des électrons en fonction de l'énergie incidente pour différentes teneurs en eau dans un segment d'ADN de 2 nm	140
<b>Figure 4.8</b> : Fraction transmise en fonction de l'énergie incidente pour différentes teneurs en eau dans un segment d'ADN de 2 nm	141
<b>Figure 4.9</b> : Fraction rétrodiffusée des électrons en fonction de l'énergie incidente pour	142

différente teneurs en eau dans un segment d'ADN de 2 nm

- Figure 4. 10. (a) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 180 eV dans un segment d'ADN de 2 nm 143
- Figure 4. 10. (b) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 180 eV dans un segment d'ADN de 4 nm 144
- Figure 4. 10. (c) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 500 eV dans un segment d'ADN de 2 nm 145
- Figure 4. 10. (d) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 500 eV dans un segment d'ADN de 4 nm 146
- Figure 4. 10. (e) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 1000 eV dans un segment d'ADN de 2 nm 147
- Figure 4. 10. (f) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 1000 eV dans un segment d'ADN de 4 nm 147
- Figure 4.11 (a, b) :** La distribution d'énergie déposée pour une teneur de 6.28 de molécules H<sub>2</sub>O/NT et des énergies initiales de 30 eV – 180 eV. (a) : 2nm ; (b) : 4nm 148
- Figure 4.11 (c, d) :** La distribution d'énergie déposée pour une teneur de 6.28 de molécules H<sub>2</sub>O/NT et des énergies initiales de 280 eV – 1000 eV. (c) : 2nm ; (d) : 4nm 150

# *Introduction générale*

Au cours de la dernière décennie, les interactions des électrons avec les biomolécules, en particulier les biosystèmes complexes tels que l'ADN, l'ARN, les protéines et ses sous-unités moléculaires, ont suscité un intérêt considérable dans une grande variété de domaines d'études, comme la physique et la médecine, théoriquement et expérimentalement (Palihawadana *et al.*, 2013, Ferraz *et al.*, 2013, Friedland *et al.*, 2017, Nikjoo *et al.*, 2016).

Ceci est le résultat de l'utilisation répandue des rayonnements ionisants dans la pratique médicale pour l'imagerie et la thérapie, dans le monde entier et pour la compréhension des phénomènes physicochimiques dans divers environnements (Nikjoo *et al.*, 2016a). Les interactions entre les positrons et les biomolécules sont également entrées dans une nouvelle phase de recherche et sont utilisées dans un nombre croissant d'applications contemporaines en technologie et en médecine (Ferraz *et al.*, 2013). Ceux-ci incluent leur utilisation dans le traitement des tumeurs et l'imagerie médicale par tomographie à émission de positrons (PET) (Anderson *et al.*, 2014).

Les études expérimentales dans le cas de la diffusion de positrons rencontrent des problèmes similaires, ainsi que des difficultés supplémentaires dues à la réduction significative des flux de positrons incidents (Sanz *et al.*, 2014). Du point de vue théorique, malgré l'absence d'effet d'échange, les collisions entre positrons sont plus difficiles à modéliser que la diffusion équivalente d'électrons. Ceci est principalement dû à la formation de positronium et à la forte interaction corrélation-polarisation. Ceci est reflété dans les données disponibles dans la littérature pour les collisions de positrons, qui sont beaucoup plus rares que dans le cas des électrons (Sanz, 2014).

Il a été reconnu qu'une quantité appréciable de dégâts d'irradiation est causée par des électrons secondaires qui jouent un rôle primordial dans les applications biomédicales. Les électrons de basse énergie peuvent causer des dommages par formation de résonance (Boudaïffa *et al.*, 2000, Boudaïffa *et al.*, 2002) ou directement par une série de réactions séquentielles conduisant à des ruptures directes de simple et double brin par le processus d'attachement électronique dissociative ou par la formation de radicaux libres (Valko *et al.*, 2006, 2007).

Les collisions électrons ont également la capacité d'induire une mutation cellulaire ou une nécrose (Reisz *et al.*, 2014). L'interaction directe peut casser le squelette de l'ADN tandis que les résonances le dissocieront en fragments neutres et anioniques. Ces interactions électroniques favorisent les lésions cytotoxiques, mutagènes et cancérigènes (Sanche, 2009).

En plus des collisions d'électrons, les positrons peuvent provoquer des dommages potentiels dans les systèmes biomoléculaires, par exemple, par libération d'un grand nombre d'électrons secondaires de faibles énergies. Les positrons thermalisent dans le milieu biologique, grâce à des processus tels que l'ionisation directe (Chiari *et al.*, 2016).

Pour tenter de développer des technologies basées sur les rayonnements plus efficaces, il est nécessaire de comprendre plus en profondeur, au niveau moléculaire, les processus fondamentaux en épingleant les interactions électron et positron avec les molécules qui constituent le milieu. En premier lieu, il est essentiel de quantifier la pertinence de tous les processus de diffusion accessibles, en termes de probabilités d'interaction (sections efficaces). Cette quantification doit être effectuée sur une très large gamme d'énergies (Muñoz *et al.*, 2005). D'un point de vue fondamental, les sections efficaces sont des paramètres importants en eux-mêmes. Elles constituent également les principales données d'entrée pour les méthodes de simulation de Monte Carlo, qui sont un outil très utile pour modéliser les séquences complexes de processus induits par les radiations.

Le contenu de chaque chapitre peut être brièvement résumé comme suit :

Le premier chapitre donne une description détaillée sur la structure de l'ADN et ses différents constituants ainsi que la compréhension des effets biologiques des rayonnements ionisants. Le chapitre I traite en plus l'hydratation de l'ADN du point de vue que la conformation de l'ADN dépend du niveau d'hydratation. Ensuite, le chapitre II est consacré à la description des méthodes de diffusion utilisées dans ce travail pour traiter les collisions électron / positron-molécule, à savoir la méthode SCAR, une forme corrigée du modèle d'atome indépendant (IAM-SCAR) pour les énergies de 10 eV à 10 KeV. Les sections efficaces de diffusion intégrales et différentielles calculées pour les différents constituants de l'ADN sont présentées et discutées. Le chapitre III décrit les calculs et les résultats des collisions élastiques et inélastiques des électrons et des positrons avec l'ADN (ici les nucléotides) et l'eau. Après les avoir comparées aux données expérimentales et théoriques disponibles, des ensembles complets de sections efficaces de diffusion intégrales sont fournis à partir des basses énergies (10 eV) jusqu'à 10 keV. Le chapitre IV présente la procédure de simulation pour la modélisation de trajectoires d'électrons et de positrons de basse énergie dans des milieux biologiques. Après avoir décrit les caractéristiques du code de Monte Carlo de simulation de trajectoire de particules de basse énergie et les sources des paramètres d'entrée, nous rapportons un exemple d'application des collisions d'électrons et de positrons avec l'ADN entouré de molécules d'eau.

## Références bibliographiques

- Anderson, E. K., Boadle, R. A., Machacek, J. R., Chiari, L., Makochekanwa, C., Buckman, S. J., & Sullivan, J. P. (2014). Low energy positron interactions with uracil—Total scattering, positronium formation, and differential elastic scattering cross sections. *The Journal of chemical physics*, 141(3), 034306.
- Boudaïffa, B., Cloutier, P., Hunting, D., Huels, M. A., & Sanche, L. (2000). Resonant formation of DNA strand breaks by low-energy (3 to 20 eV) electrons. *Science*, 287(5458), 1658-1660.
- Boudaïffa, B., Cloutier, P., Hunting, D., Huels, M. A., & Sanche, L. (2002). Cross sections for low-energy (10–50 eV) electron damage to DNA. *Radiation research*, 157(3), 227-234.
- Chiari, L., Zecca, A., Blanco, F., García, G., & Brunger, M. J. (2016). Experimental and theoretical cross sections for positron scattering from the pentane isomers. *The Journal of chemical physics*, 144(8), 084301.
- Ferraz, J. R., dos Santos, A. S., de Souza, G. L. C., Zanelato, A. I., Alves, T. R. M., Lee, M. T., & Machado, L. E. (2013). Cross sections for electron scattering by formaldehyde and pyrimidine in the low-and intermediate-energy ranges. *Physical Review A*, 87(3), 032717.
- Friedland, W., Schmitt, E., Kundrat, P., Dingfelder, M., Baiocco, G., Barbieri, S., & Ottolenghi, A. (2017). Comprehensive track-structure based evaluation of DNA damage by light ions from radiotherapy-relevant energies down to stopping. *Scientific reports*, 7(1), 1-15.
- García Sanz, A. (2014). Interaction of electrons and positrons with molecular systems of biological interest.
- Muñoz, A., Pérez, J. M., García, G., & Blanco, F. (2005). An approach to Monte Carlo simulation of low-energy electron and photon interactions in air. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 536(1-2), 176-188.
- Nikjoo, H., Emfietzoglou, D., Liamsuwan, T., Taleei, R., Liljequist, D., & Uehara, S. (2016). Radiation track, DNA damage and response—a review. *Reports on Progress in Physics*, 79(11), 116601.
- Nikjoo, H., Taleei, R., Liamsuwan, T., Liljequist, D., & Emfietzoglou, D. (2016a). Perspectives in radiation biophysics: From radiation track structure simulation to mechanistic models of DNA damage and repair. *Radiation Physics and Chemistry*, 128, 3-10.
- Palihawadana, P., Boadle, R., Chiari, L., Anderson, E. K., Machacek, J. R., Brunger, M. J., Buckman, S. J., & Sullivan, J. P. (2013). Positron scattering from pyrimidine. *Physical Review A*, 88(1), 012717.
- Reisz, J. A., Bansal, N., Qian, J., Zhao, W., & Furdul, C. M. (2014). Effects of ionizing radiation on biological molecules—mechanisms of damage and emerging methods of detection. *Antioxidants & redox signaling*, 21(2), 260-292.
- Sanche, L. (2009). Low-energy electron interaction with DNA: Bond dissociation and formation of transient anions, radicals, and radical anions.
- Sanz, A. G., Fuss, M. C., Blanco, F., Carelli, F., Sebastianelli, F., Gianturco, F. A., & García, G. (2014). Electron scattering cross sections from anthracene over a broad energy range (0.00001–10,000 eV). *Applied Radiation and Isotopes*, 83, 68-76.
- Valko, M., Leibfritz, D., Moncol, J., Cronin, M. T., Mazur, M., & Telser, J. (2007). Free radicals and antioxidants in normal physiological functions and human disease. *The international journal of biochemistry & cell biology*, 39(1), 44-84.
- Valko, M., Rhodes, C., Moncol, J., Izakovic, M. M., & Mazur, M. (2006). Free radicals, metals and antioxidants in oxidative stress-induced cancer. *Chemico-biological interactions*, 160(1), 1-40.

# Chapitre I

## *Effets Biologiques des Rayonnements Ionisants*

## 1. Introduction

Le but de ce chapitre est de donner un aperçu et d'essayer de montrer comment les différentes probabilités d'interaction vont influencer sur le transport des rayonnements ionisants à travers la matière. Cette connaissance est importante dans différentes applications médicales et la conception d'un traitement optimal ce qui nécessite un choix de la qualité du rayonnement et, bien sûr, la détermination de la distribution de dose absorbée dans le corps (Brahme, 2014). Elle est aussi également importante en radiologie diagnostique lors de l'optimisation de la qualité de l'image (Nikjoo et *al.*, 2012). La connaissance de l'interaction du rayonnement avec la matière est également fondamentale pour comprendre l'effet biologique du rayonnement et sa variation avec la densité d'ionisation. Le centre d'intérêt ne sera pas mis sur la physique de base mais sur l'impact des sections efficaces sur l'imagerie et la thérapie dans les applications de physique médicale (Brahme, 2014). Aujourd'hui, la compréhension de ces processus, associée à une connaissance détaillée de la structure atomique, fournit une grande partie de la base pour la théorie et la pratique de la protection radiologique de la santé (Nikjoo et *al.*, 2012).

La compréhension des effets biologiques des rayonnements ionisants reste à nos jours imparfaite et suscite un intérêt croissant dans la communauté des radiobiologistes et des oncologues radiothérapeutes. L'objectif de tout traitement par les rayonnements ionisants est d'obtenir le meilleur contrôle local de la maladie cancéreuse par la destruction des cellules tumorales. Cet objectif serait atteignable en augmentant, à souhait, les doses délivrées ; le facteur limitant et qui compromet cette escalade de dose reste évidemment la toxicité envers les tissus sains. Les lésions responsables de la mort cellulaire radio-induite sont majoritairement les atteintes du noyau causées par les rayonnements ionisants, et plus particulièrement les lésions de l'ADN (Boudiffa et *al.*, 2000).

Il est aujourd'hui admis que l'acide désoxyribonucléique (ADN) est la molécule cible des effets biologiques produits par les rayonnements ionisants. Les informations contenues sur la molécule d'ADN codent pour la construction, le développement et le fonctionnement des biomolécules formant les matériaux élémentaires du vivant, notamment l'ARN (Acide ribonucléique) et les protéines.

L'ARN est une molécule qui ressemble beaucoup à l'ADN, tant par sa structure que par son nom (acide ribonucléique). Il sert de base à la formation de protéines chez l'ensemble des êtres vivants. Synthétisé à partir de l'ADN, la molécule d'ARN agit comme intermédiaire entre l'ADN et les protéines. La première étape pour obtenir une protéine est la transformation de l'ADN en ARN.

La structure primaire de l'ARN ne diffère que par la présence du groupe 2'-OH sur l'unité sucre et le remplacement de la thymine par l'uracile (qui se différencie par l'absence du groupe méthyle en C5). Cependant, les ARN présentent une diversité structurale et une réactivité chimique plus grandes. Ils peuvent adopter des structures à double brin par appariement de bases et former également des structures pliées composées de domaines duplex reliés par des régions à simple brin.

Toutefois, plusieurs travaux ont également souligné l'implication des structures membranaires, en particulier de la membrane nucléaire, dans les effets biologiques des rayonnements ionisants (Symons, 1994).

Les effets des rayonnements ionisants sur la molécule cible peuvent être produits par interaction directe du rayonnement avec la molécule ou par l'intermédiaire de l'eau environnant la molécule. L'interaction du rayonnement avec la molécule d'eau est le type d'interaction prédominante observée avec des rayonnements comme les rayonnements gamma. La radiolyse de l'eau comporte plusieurs étapes qui conduisent à la formation d'espèces radicalaires et ioniques (Symons, 1994).

## 2. Découverte de la molécule d'ADN

Il est intéressant de connaître les différentes étapes de la découverte de la structure chimique de l'ADN qui s'est effectuée tout au long du XIX<sup>ème</sup> et XX<sup>ème</sup> siècle et qui s'étale sur environ 90 ans mais qu'elle a été complètement élucidée il y a seulement 60 ans. Au cours des 60 dernières années, l'ADN est passé d'une molécule obscure aux fonctions supposées accessoires ou structurelles à l'intérieur du noyau à l'icône de la bioscience moderne (Dahm, 2005)

L'histoire de l'ADN a commencé en 1869 lorsque Friedrich Miescher est devenu la première personne à isoler une substance riche en phosphore dans le noyau des cellules qui a ensuite été reconnue comme étant le matériel héréditaire (Dahm, 2008). Il a plus tard découvert que ce matériau était un constituant commun des levures, des reins, du foie, des globules rouges nucléés et des testicules (Blackburn et *al.*, 2006).

En raison de la localisation de la substance dans le noyau, Miescher a appelé le composé « nucléine ». La nucléine pure était une substance fortement acide qui existait sous la forme d'un sel avec une base azotée cristallisée par Miescher et appelée protamine. En fait, sa nucléine était vraiment une nucléoprotéine et il est tombé par la suite à Richard Altman en 1889 pour obtenir le premier sans protéines matériel, auquel il a donné le nom d'acide nucléique.

(Blackburn et *al.*, 2006). Cette substance s'est avérée pour exister seulement dans les chromosomes.

Les recherches sur l'ADN ont été renouvelées dans les années 1940 lorsqu'Avery, MacLeod et McCarty ont démontré que l'ADN, n'est pas des protéines comme on le croyait généralement auparavant, mais le support d'informations génétiques (Dahm, 2008).

Avery a conclu que "l'ADN est responsable de l'activité de transformation" et a publié son document historique en 1944 (Avery et *al.*, 1944). Les implications stupéfiantes du travail d'Avery ont tourné la recherche sur la nature moléculaire des acides nucléiques et il est vite devenu évident que les idées sur la chimie de la structure des acides nucléiques à cette époque était tout à fait insuffisante pour expliquer une découverte aussi capitale (Dahm, 2005).

Pour mieux comprendre la molécule d'ADN, les scientifiques ont essayé de créer un modèle pour comprendre son fonctionnement et son utilité. Dans les années 1940, un autre scientifique, Erwin Chargaff, trouva le motif dans les quantités des quatre bases : adénine, guanine, cytosine et thymine (Dahm, 2008). Il a prélevé des échantillons d'ADN de différentes cellules et a constaté que la quantité d'adénine était presque égale à la quantité de thymine et que la quantité de guanine était presque égale à la quantité de cytosine (Chargaff et *al.*, 1949 ; Chargaff, 1950). Ainsi, vous pourriez dire :  $A = T$  et  $G = C$ . Cette découverte devint plus tard la règle de Chargaff.

En 1952, Alfred Hershey et Martha Chase ont confirmé l'ADN en tant que matériel génétique (Hershey et Chase, 1952). Un an plus tard, s'appuyant sur les analyses par rayons X réalisées par Rosalind Franklin et Maurice Wilkins (Franklin et Gosling, 1953) qui ont déterminé que l'ADN a une structure hélicoïdale à répétition régulière (Wilkins et *al.*, 1953), Francis Crick et James Watson ont déchiffré la structure moléculaire de l'ADN (Watson et Crick, 1953) et ont reçu le prix Nobel de chimie en 1962 pour leur découverte révolutionnaire. La découverte que des informations héréditaires étaient contenues dans l'ADN et que la structure moléculaire était maintenant connue, ainsi que l'intérêt de pouvoir les répliquer fidèlement, était une question clé. Ils ont également constaté que, s'ils associaient la thymine à l'adénine et la guanine à la cytosine, leur apparence serait uniforme. Cette association était également conforme à la règle de Chargaff. Ils ont également découvert qu'une liaison hydrogène pouvait être formée entre les deux paires de bases. De plus, chaque côté est un complément complet de l'autre.

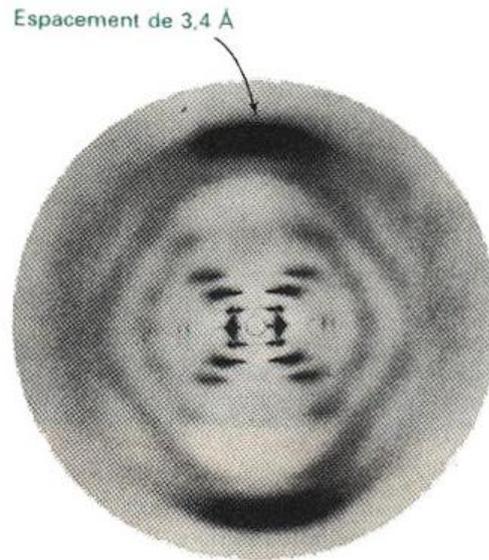
Une décennie plus tard, dans les années 1960, Holley, Khorana et Nirenberg ont déchiffré le code génétique (Holley et *al.*, 1965).

Les connaissances fournies par ces pionniers de la recherche sur les acides nucléiques ont permis de continuer à progresser dans la compréhension du génome humain ; dont la séquence complète a été publiée en 2001 (Venter et *al.*, 2001). L'examen de la structure de l'ADN et de son fonctionnement a permis de déverrouiller un domaine de recherche intéressant et important et a dirigé l'étude et le développement de traitements et de diagnostics de nombreuses maladies. Ainsi, sur une période d'environ 20 ans, de nombreux secrets d'ADN avaient été découverts (Portin, 2014).

### **3. Structure de l'ADN**

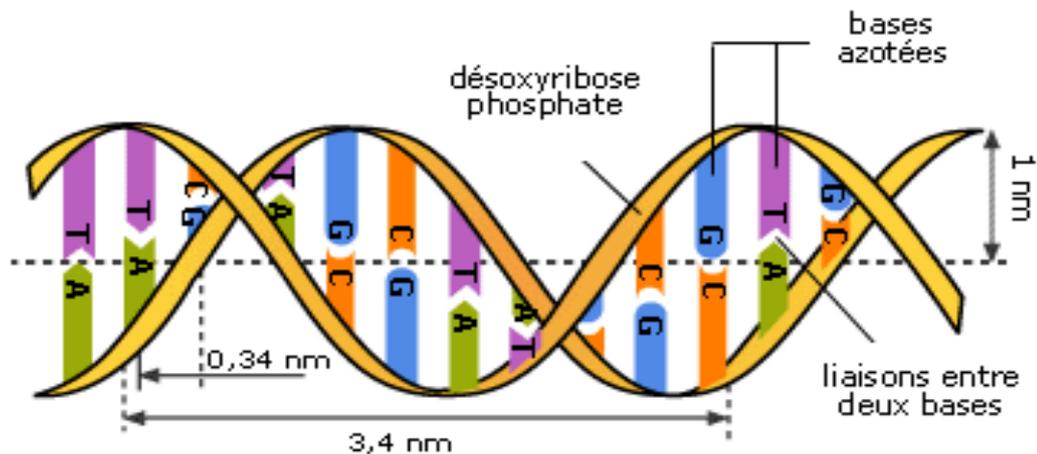
L'ADN est un composant essentiel dans les cellules vivantes, il porte l'information génétique et détermine la structure et les fonctions particulières de chaque cellule. Fondamentalement, la formule chimique de l'ADN est maintenant bien établie. Il se compose de deux chaînes de nucléotides antiparallèles torsadées en une hélice double brin (Watson et Crick, 1953) où deux nucléotides consécutifs sont liés par une forte liaison covalente le long d'un squelette sucre-phosphate. Ceux-ci ont une structure très simple, composée de trois composants : sucre, phosphate et base (adénine, guanine, cytosine, thymine) qui s'associent de façon complémentaire. Le squelette de l'ADN, chargé négativement, est formé de la répétition sucre-phosphate (Amos et *al.*, 2002).

La molécule d'ADN à double hélice sous sa forme B, l'ADN le plus fréquemment trouvé dans les cellules vivantes, est plus hydratée et a un diamètre de 2 nm et un pas de 3,4 nm. Sachant qu'il y a 10 paires de bases par spire hélicoïdale, on peut considérer que la distance axiale entre deux paires de bases adjacentes (figure 1.1) est de 0,34 nm (Watson et Crick, 1953).



**Figure 1.1 :** Diagramme de diffraction de rayons X d'une fibre d'ADN (Franklin et Gosling, 1953).

L'appariement des bases dans l'ADN (adénine-thymine et guanine-cytosine) conduit à la formation d'un grand et d'un petit sillon (figure 1.2) car les liaisons glycosidiques au désoxyribose ne sont pas diamétralement opposées (Watson et *al.*, 1953).



**Figure 1.2 :** Structure de la molécule d'ADN.

<http://www.maxicours.com>

Six milliards de paires de bases constituent le génome humain et sont réparties dans 23 paires de chromosomes. L'ADN est ensuite associé chez les eucaryotes à des protéines, les histones, l'ensemble forme des fibres de 11 nm de diamètre : les nucléosomes. Ceux-ci sont à leur tour compactés pour constituer une fibre de chromatine de 30 nm de diamètre. Cette

dernière structure est présente quelle que soit la phase du cycle cellulaire (figure 1.3). Toutefois, lorsque la cellule se divise, elle est condensée dans une nouvelle structure, le chromosome.

L'ADN nucléaire humain déroulé représenterait une double hélice de 1,8 m. Cette double hélice doit être condensée d'environ 1000 fois pour tenir dans un noyau interphasique de 6 µm de diamètre et de 6000 à 10000 fois dans le chromosome métaphasique (Alberts, 1994).

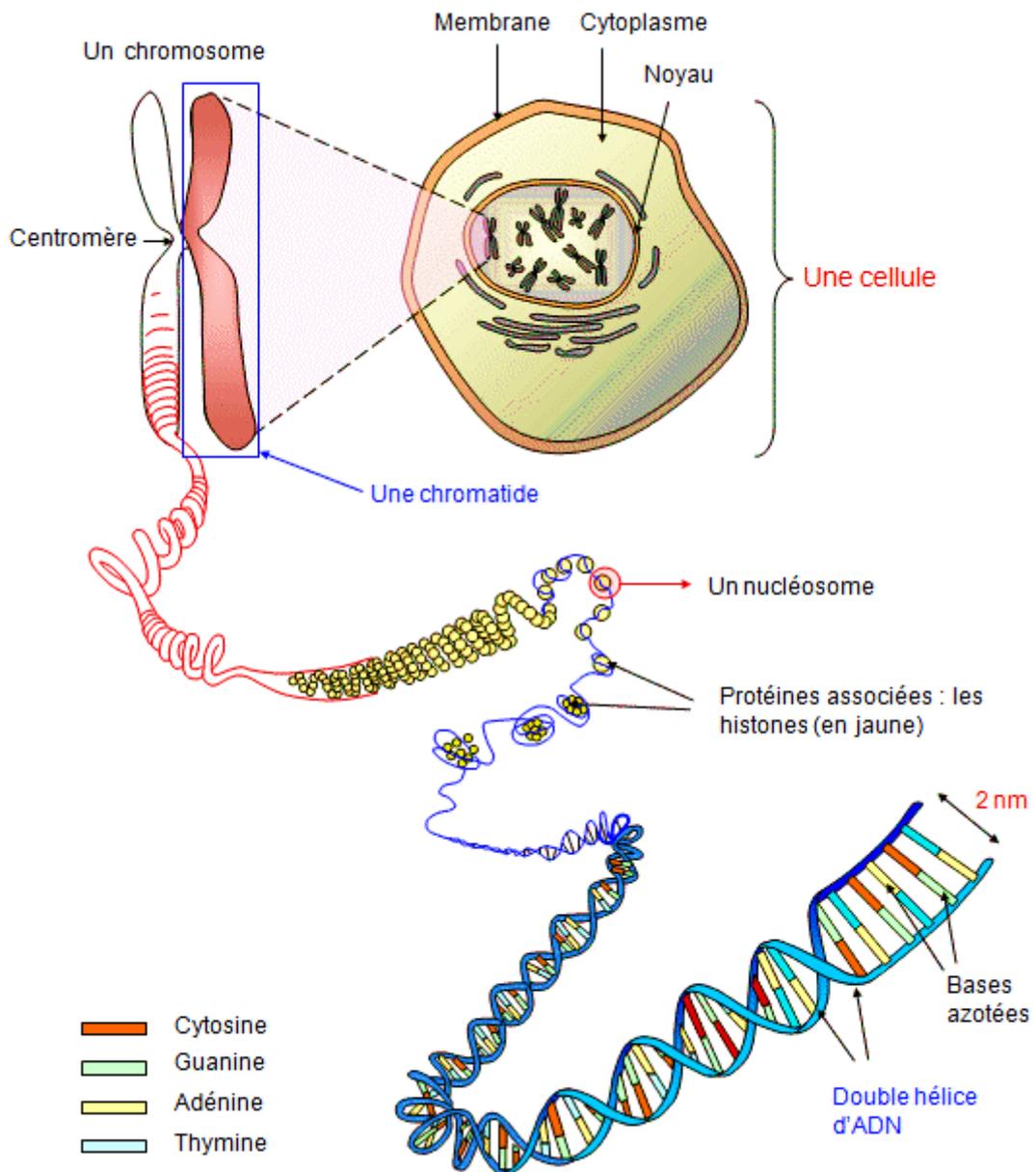


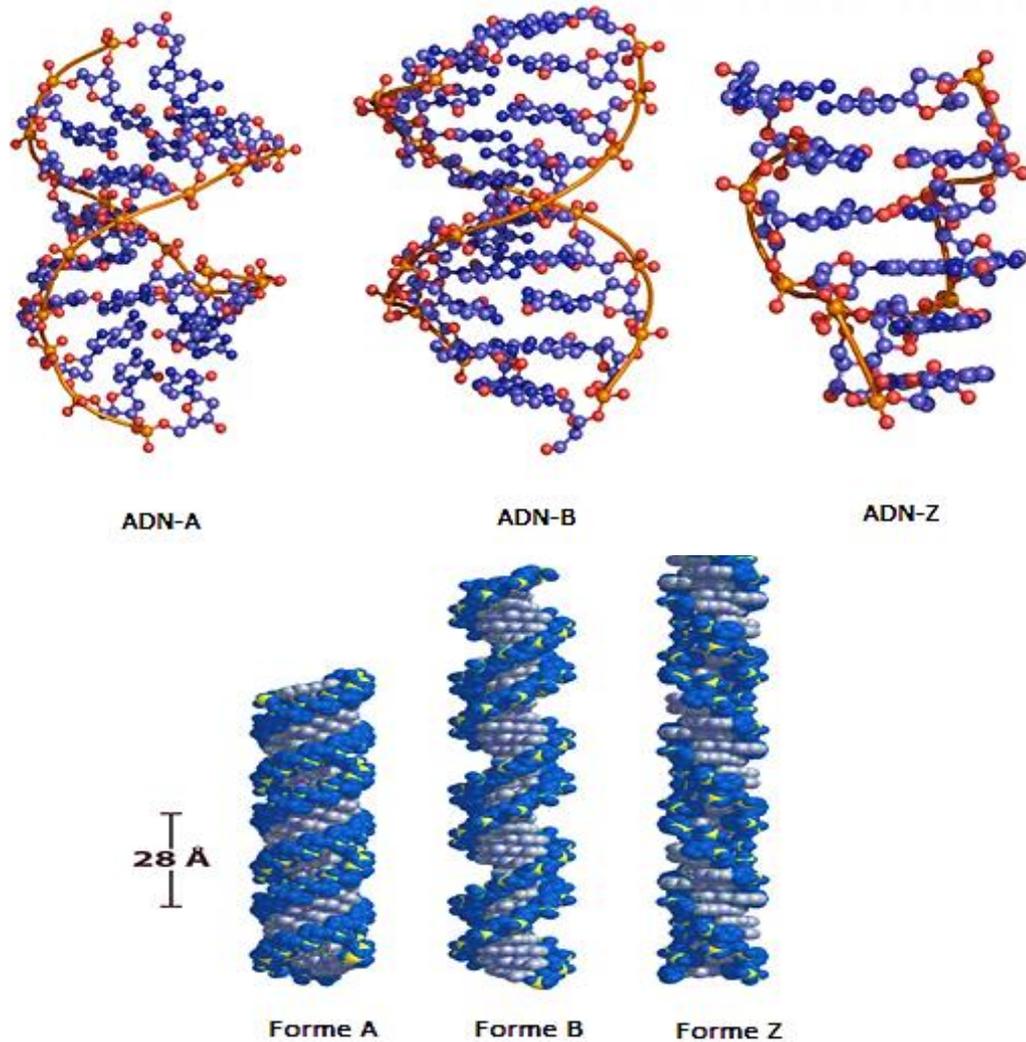
Figure 1.3 : L'ADN dans les chromosomes

[www.futura-sciences.com](http://www.futura-sciences.com)

#### 4. Structures alternatives de l'ADN

La double hélice d'ADN ne se présente pas comme une structure unique, mais représente plutôt une famille structurale de différents types. La forme B est celle décrite à l'origine par James Dewey Watson et Francis Crick et on croit être celui prédominant dans les cellules (Richmond et Davey, 2003). La caractéristique structurale essentielle de l'ADN-B est la formation de deux sillons, l'un grand (sillon majeur) et l'autre petit (sillon mineur).

La conformation d'ADN double hélice a mis en évidence jusqu'à maintenant au moins une douzaine. Trois d'entre eux sont soupçonnés d'être présents dans la nature (figure 1.4) : ADN-A, ADN-B et ADN-Z qui diffèrent de manière significative dans leur géométrie et leurs dimensions par rapport à l'ADN-B bien que présentant une structure en double hélice (Amos et *al.*, 2002). Le tableau 1.1 répertorie quelques paramètres structuraux définissant les trois formes d'hélices d'ADN.



**Figure 1.4 :** Les structures alternatives de l'ADN

**Tableau 1.1** : Paramètres structurels des structures alternatives de l'ADN

<https://fr.wikipedia.org/wiki>

Paramètre	ADN-A	ADN-B	ADN-Z
<b>Sens de l'hélice</b>	droite	droite	gauche
<b>Motif répété</b>	1 bp	1 bp	2 bp
<b>Rotation par paire de bases</b>	32,7°	34,3°	60°/2
<b>Paire de bases par tour d'hélice</b>	11	10	12
<b>Pas de l'hélice par tour</b>	2,82 nm	3,32 nm	4,56 nm
<b>Allongement de l'axe par paire de bases</b>	0,24 nm	0,32 nm	0,38 nm
<b>Diamètre</b>	2,3 nm	2,0 nm	1,8 nm
<b>Inclinaison des paires de bases sur l'axe de l'hélice</b>	+19°	-1,2°	-9°
<b>Torsion moyenne (<i>propeller twist</i>)</b>	+18°	+16°	0°
<b>Orientation des substituants des bases sur les résidus osidiques</b>	anti	anti	Pyrimidine : anti, Purine : syn

Au moins 10 types différents de conformations de l'ADN ont été identifiés, et il est probable que d'autres conformations seront découvertes (Wang et Vasquez, 2006). Les répétitions inversées peuvent former des structures en épingle à cheveux par contre les répétitions directes peuvent adopter des structures glissées avec des bases en boucle (Wang et Vasquez, 2006). Il y a eu jusqu'à présent mise en évidence l'ADN-C, l'ADN-D (Hayashi et al., 2005), l'ADN-E (Vargason et al., 2000), l'ADN-H, l'ADN-L (Hayashi et al., 2005) et l'ADN-S (Allemand et al., 1998).

L'ADN-B est une double hélice régulière parfaite, sauf que les paires de bases opposées ne se trouvent pas exactement au même niveau. Ils sont tordus de manière hélicoïdale. De cette façon, l'ADN peut facilement être plié sans provoquer de changements essentiels dans les structures locales (Langridge et al., 1960).

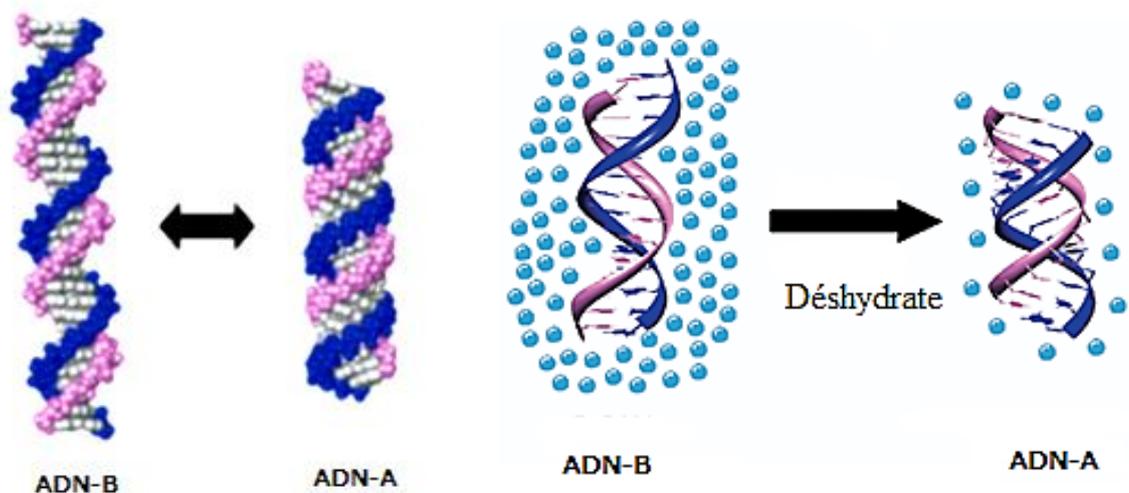
La conformation Z est plutôt typique des régions méthylées de l'ADN, dans lequel les filaments sont enroulés en sens inverse autour de l'axe. Même l'ADN complexé avec des protéines souvent conforme en forme Z bien que sa présence n'ait pas encore été démontrée *in vivo* (Ohyama, 2005). L'ADN-Z est une forme d'ADN très intéressante car il forme une hélice gauchère, plus allongée et plus fine que l'ADN-B, que l'on observe principalement dans des séquences alternées riches en cytosine / guanine sous de fortes concentrations de sel, cela conduit à une plus grande distance (0,77 nm) entre les paires de bases que dans l'ADN-B et une forme de zigzag d'où la désignation l'ADN-Z (Baker et Bowers, 2007).

L'ADN-A est rare. Il n'existe que dans l'état déshydraté et diffère de la forme B par une rotation de 20 degrés de l'axe perpendiculaire de l'hélice. L'ADN-A a un sillon majeur profond

et un sillon mineur plat (Fuller et *al.*, 1965). Cependant, l'empilement vertical est sensiblement plus petit. Il y a 11 paires de bases par tour et le pas est de 2,82 nm et un diamètre de 2,3 nm (Sanche, 2005).

En raison de la flexibilité de l'ADN, des transitions d'une forme d'hélice à une autre se produisent facilement dans certaines conditions. L'une des premières transitions structurales réversibles observées dans une biomolécule était la transition de l'ADN-B à l'ADN-A (figure 1.5), qui a été détectée pour la première fois près de cinquante ans plus tard (Franklin et Gosling, 1953).

La conformation de l'ADN dépend fortement du niveau d'hydratation : lors de la déshydratation, la forme B emblématique à double hélice est remplacée par d'autres conformations (Duboué-Dijon et *al.*, 2016). Lorsque l'humidité relative est réduite de 90 à 85% à 75%, les molécules d'ADN passent de la configuration B à la configuration A. D'une manière approximative, dans la molécule à cet état, les paires de bases sont inclinées à environ 70 ° par rapport à l'axe de l'hélice et sont déplacées de celui-ci, et le sucre et le groupe phosphate se trouvent environ à la même distance de l'axe de l'hélice (Langridge et *al.*, 1960, 1957).



**Figure 1.5** : La transition de l'ADN-B à l'ADN-A (Baker et Bowers, 2007)

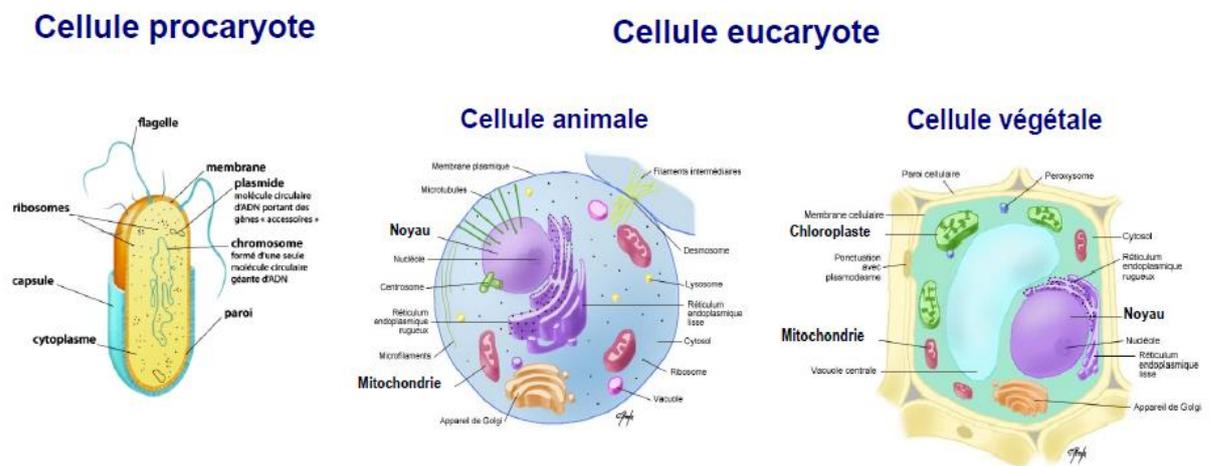
L'ADN apparaît comme une structure dynamique et non statique dont la conformation et l'hydratation peuvent influencer sur la radiosensibilité cellulaire (Schnier et *al.*, 1998 ; Gabelica et De Pauw, 2002).

Un nombre croissant de résultats met en évidence l'importance biologique de structures alternatives telles que des renflements, des épingles à cheveux, des jonctions ramifiées ou des

quadruplexes. Les progrès réalisés dans la synthèse chimique des oligonucléotides et dans la connaissance des facteurs favorables à une conformation particulière ont ouvert de nouveaux domaines de recherche dans le domaine de la reconnaissance moléculaire et de la conception de médicaments (Belmont *et al.*, 2000).

## 5. Constituants de l'ADN

L'acide désoxyribonucléique (ADN) est le support de l'information génétique de tous les êtres vivants. Chez les eucaryotes, l'ADN est localisé dans le noyau de chaque cellule de l'organisme. Chez les procaryotes, la molécule d'ADN est libre dans le cytoplasme des cellules (figure 1.6).



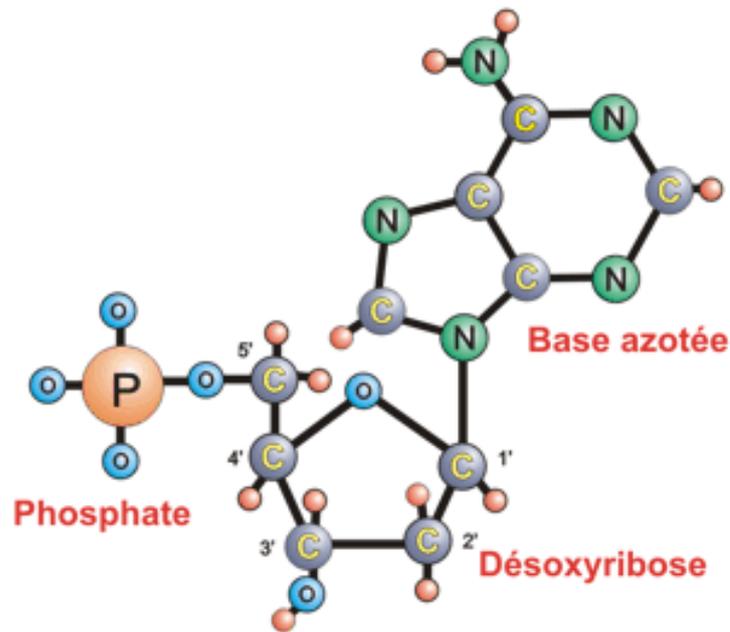
**Figure 1.6** : Localisation de l'ADN dans les cellules

<http://biologie.univ-mrs.fr>

La compréhension et l'enchaînement des mécanismes biologiques passent par la description de la structure et de la topologie de la molécule d'ADN. La connaissance des caractéristiques structurales des acides nucléiques est essentielle pour comprendre leur fonction biologique. Afin d'explorer les structures dérivées des dommages causés à l'ADN et leur signification, il convient tout d'abord de discuter de la nomenclature, des principes et des caractéristiques clés qui définissent les acides nucléiques.

## 5.1 Structure des nucléotides

Les caractéristiques définissant la structure primaire de l'ADN sont responsables de sa structure secondaire, tertiaire et quaternaire. L'ADN est un polymère linéaire qui code des informations *via* une série de monomères appelés nucléotides. Un nucléotide (figure 1.7) est une unité répétitive composée de trois composants distincts : le sucre, la base hétérocyclique et le groupe phosphate (Bowater, 2015).



**Figure 1.7 :** Structure d'un nucléotide

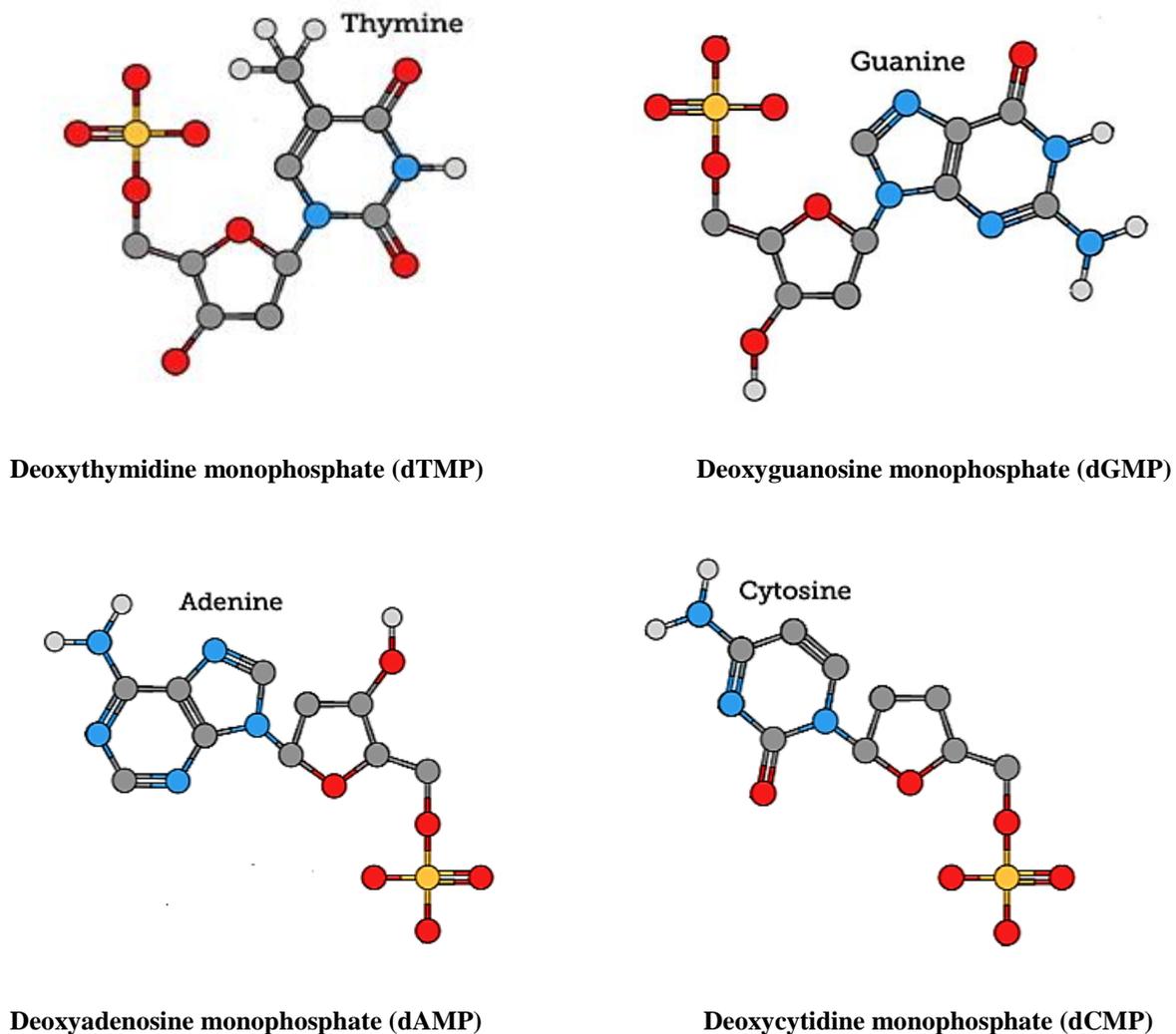
<https://babel.cegep-ste-foy.qc.ca>

La base hétérocyclique est liée au sucre pentose en position anomère *via* une liaison osidique  $\beta$  glycosidique ; ce produit de condensation se caractérise par un nucléoside. Les nucléosides, peuvent être phosphorylés (phosphorylation de l'un des groupes hydroxyle du sucre pentose) par des kinases spécifiques ce qui donne la formation d'un ester de phosphate (Rodwell et *al.*, 2015). Les bases n'interviennent pas dans les polymérisations et la chaîne est donc maintenue ensemble par un squelette sucre-phosphate à partir duquel les bases s'étendent (Alberts et *al.*, 2002).

Les nucléotides polymérisés sont unis les uns aux autres par des liaisons covalentes entre le désoxyribose d'un nucléotide et le groupe phosphate du nucléotide, formant ainsi une chaîne où alternent oses et phosphates, avec des bases nucléiques liées chacune à un ose. L'ordre dans

lequel se succèdent les nucléotides le long d'un brin d'ADN constitue la séquence de ce brin. C'est cette séquence qui porte l'information génétique (Alberts, 1994).

Les nucléotides jouent un rôle central dans de nombreux processus cellulaires, y compris la régulation métabolique et le stockage et l'expression de l'information génétique (Bowater, 2015). Les nucléotides (figure 1.8) sont généralement mentionnés sous une forme abrégée. Par exemple, les molécules avec, respectivement, un, deux et trois phosphates liés à l'adénosine sont l'AMP (adénosine monophosphate), l'ADP (adénosine diphosphate) et l'ATP (adénosine triphosphate) ; les variantes désoxy respectives sont dAMP, dADP et dATP (Bowater, 2015).

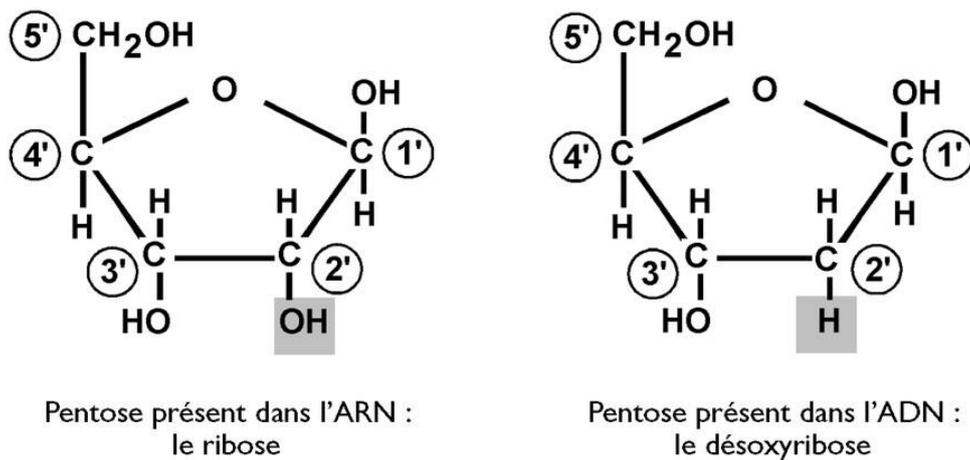


**Figure 1.8 :** Diagramme schématisique des quatre nucléotides : deoxyadénosine monophosphate (dAMP), deoxycytidine monophosphate (dCMP), deoxyguanosine monophosphate (dGMP), deoxythymidine monophosphate (dTMP)

### 5.1.1 Structure du désoxyribose

Le désoxyribose, ou plus exactement le 2-désoxyribose, est un pentose (aldopentose) dérivé du ribose par substitution d'hydrogène en remplacement du groupement hydroxyle en position 2, ce qui implique la perte d'un oxygène (Rodwell *et al.*, 2015).

Dans les deux acides nucléiques ARN et ADN, le sucre pentose est présent. L'une des deux variations structurelles inhérentes entre l'ADN et l'ARN est la substitution d'un atome d'hydrogène par un groupe hydroxyle sur le second carbone du cycle. Dans l'ADN, le sucre pentose est le 2-désoxy-D-ribose, tandis que dans l'ARN, il s'agit du D-ribose (Rodwell *et al.*, 2015). Le système de numérotation des atomes de sucre est indiqué selon la commission de nomenclature de l'union internationale de Biochimie (l'IUPAC-IUB) dans la figure 1.9 (Kirsch, 1970 ; Jansonius *et al.*, 1984).



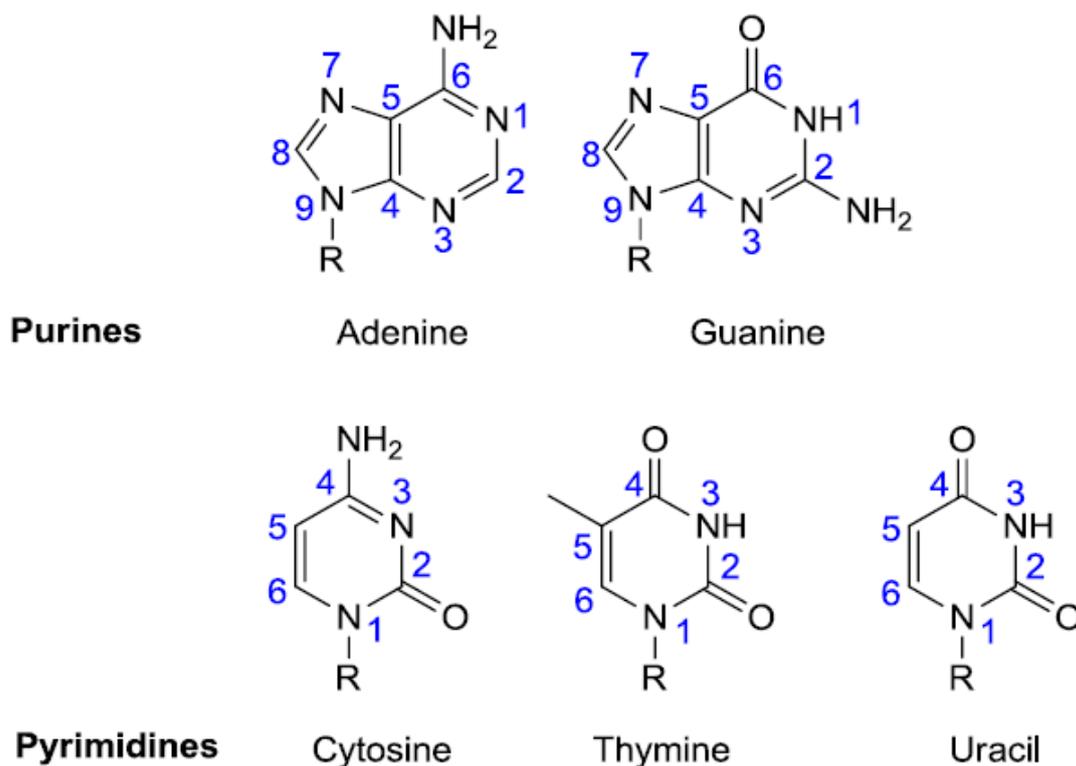
**Figure 1.9 :** Numérotation du sucre pentose dans l'ADN

Le désoxyribose ( $C_5H_{10}O_4$ ) est une forme de sucre pentose, mais avec un atome d'oxygène en moins. C'est aussi un sucre aldopentose, car il contient un groupe aldéhyde. La modification aide les enzymes présentes dans le corps vivant à différencier l'acide ribonucléique de l'acide désoxyribonucléique (Rich, 2003). La forme du sucre désoxyribose est telle que quatre atomes de carbone sur cinq forment avec un atome d'oxygène un cycle à cinq chaînons. L'atome de carbone restant est fixé à deux atomes d'hydrogène et se trouve à l'extérieur du cycle. Les groupes hydroxyle des troisième et cinquième atome de carbone sont libres de

s'attacher aux atomes de phosphate. Par conséquent, seuls deux atomes de phosphate peuvent se fixer au sucre désoxyribose (Rodwell et *al.*, 2015).

### 5.1.2 Base hétérocyclique

La base hétérocyclique constitue le composant distinctif des nucléosides. Il existe cinq bases naturelles, dont trois communes à l'ADN et à l'ARN : l'adénine (A), la cytosine (C) et la guanine (G). La thymine (T) et l'uracile (U), qui ne diffèrent que par l'absence d'un substituant méthyle, se trouvent respectivement dans l'ADN et l'ARN. Ces bases peuvent être classées en deux groupes en fonction de leur structure : les purines et les pyrimidines. Les purines constituées de A et G sont des molécules bicycliques, alors que les pyrimidines constituées de C, T et U sont des structures monocycliques plus petites (Belmont et *al.*, 2001). La structure chimique et le système de numérotation des bases selon l'IUPAC-IUB (1970,1984) sont illustrés dans la figure 1.10.



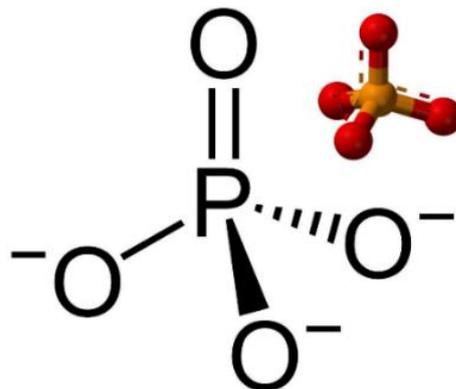
**Figure 1.10** : Structure chimique et le système de numérotation des bases

<https://fr.wikipedia.org>

La succession des bases nucléiques sur l'ADN détermine la succession des acides aminés qui constituent les protéines issues de ces gènes. La correspondance entre bases nucléiques et acides aminés est le code génétique. L'ensemble des gènes d'un organisme constitue son génome (Bowater, 2015).

### 5.1.3 Groupement phosphate

Les groupement phosphates sont liés au sucre par des liaisons ester, le site d'estérification le plus courant dans les composés naturels étant via l'hydroxyle en position C5'. Typiquement, un, deux ou trois phosphates sont joints, produisant des mono-, di- et triphosphates, respectivement. (Notez que les préfixes bis et tris sont utilisés en référence à des molécules avec deux ou trois phosphates liés à des hydroxyles différents sur le sucre) (Bowater, 2015). Par conséquent, seuls deux atomes de phosphate peuvent se fixer au sucre désoxyribose. Le désoxyribose plus une base qui peut être purique ou pyrimidique forme un désoxyribonucléoside. Lorsque les atomes de phosphate se fixent aux désoxyribonucléosides, ils forment de l'acide désoxyribonucléique ou de l'ADN.



**Figure 1.11** : Structure de l'acide phosphorique

<https://www.aquaportail.com/definition-4533-phosphate.html>

## 5.2 Appariement des bases

La structure de l'ADN déterminée par Watson et Crick décrit l'appariement de bases, ce qui est une caractéristique essentielle du stockage, de la copie directe et de la transformation de l'information génétique. Par conséquent, le modèle d'appariement de base le plus courant rencontré dans la nature est connu sous le nom d'appariement de base Watson-Crick ou encore

canoniques. Cet appariement a été fondée sur l'idée que l'adénine (A) s'apparie avec la thymine (T) grâce à deux ponts hydrogénés, et la guanine (G) s'apparie avec la cytosine (C) par trois ponts hydrogènes. Dans l'ARN, la thymine est remplacée par l'uracile (U). Cela tient compte non seulement de la règle de Chargaff, mais également des paramètres structuraux de la double hélice déterminés par cristallographie aux rayons X (<https://fr.wikipedia.org/wiki>).

Une paire de bases, en abrégé pb, sert à désigner l'appariement de deux bases azotées localisées sur deux brins complémentaires d'ADN ou ARN. Cet appariement est effectué par des ponts hydrogènes (figure 1.12). On peut aussi trouver dans l'ARN des paires de bases non canoniques, ou non Watson-Crick. Dans ce cas-là, les bases s'associent entre elles comme le permettent les atomes accepteurs d'un côté et donneurs de liaison hydrogène de l'autre. On appelle ce type d'appariements paires wobble (Belmont et *al.*, 2001).

La longueur des molécules d'ADN ou d'ARN est comptée en paires de bases. Cette unité est notée pb. Pour les ADN et ARN simple brin, on compte plutôt en nucléotides qu'en paires de bases. Cette unité est notée NT.

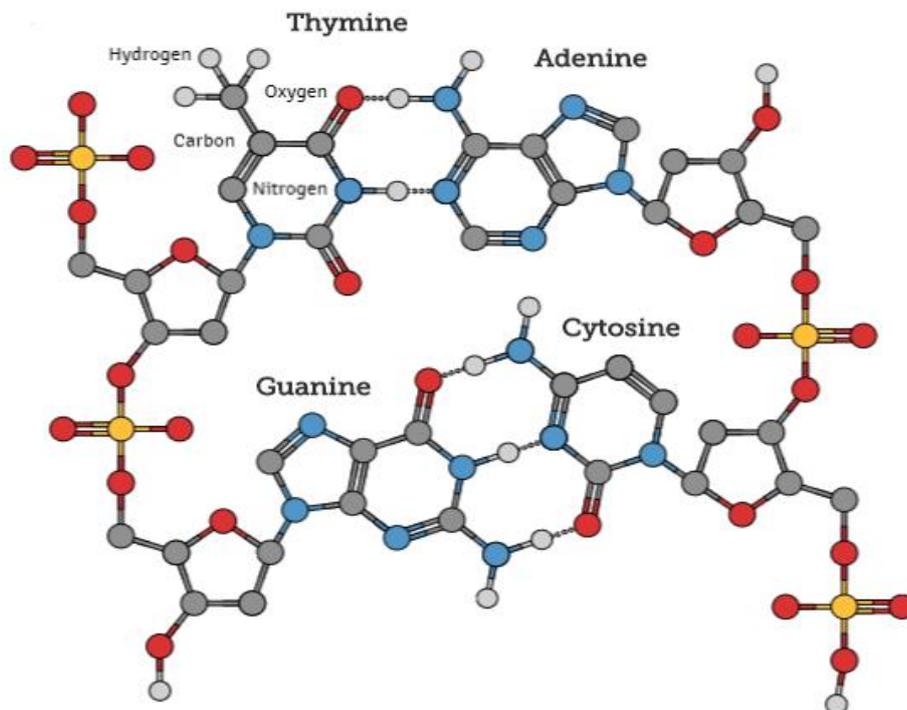
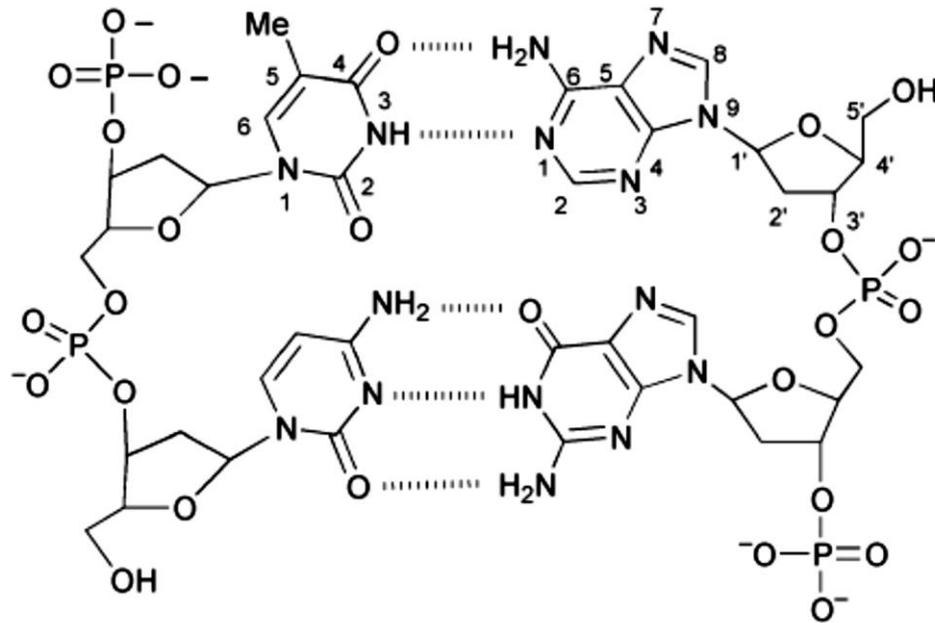
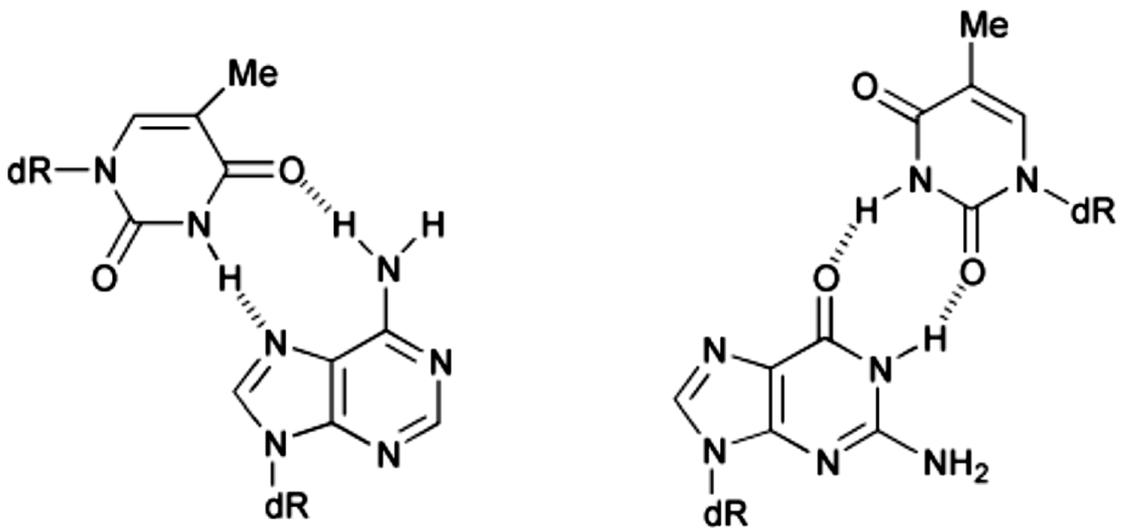


Figure 1.12 : Diagramme schématisé de deux paires de base.

<https://mindthegraph.com>



L'appariement canoniques ou Watson-Crick



L'appariement Hoogsteen (T-A)

L'appariement wobble (G-T)

Figure 1.13 : Différents types d'appariement des bases (Belmont et al., 2001).

## 6. Hydratation de l'ADN

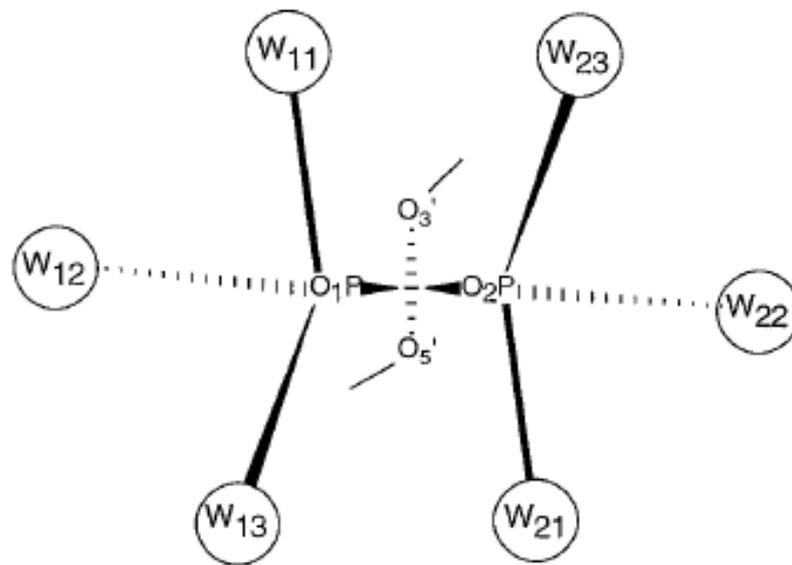
La couche de molécules d'eau entourant l'ADN joue un rôle essentiel à la fois pour préserver la structure de l'ADN et pour assurer sa fonction biochimique appropriée. La conformation de l'ADN dépend du niveau d'hydratation : lors de la déshydratation, l'ADN-B est remplacée par d'autres conformations (Saenger et *al.*, 1986).

La couche d'hydratation protège en outre la structure délicate de la double hélice d'un excès de chaleur et fournit une dissipation efficace et rapide de l'énergie résultant, par exemple, d'une absorption de photons UV avant la rupture des liaisons hydrogène (liaisons H) entre les bases de l'ADN (Middleton et *al.*, 2009). La couche d'hydratation est impliquée à la fois dans le traitement de l'information génétique codée dans l'ADN, par exemple dans la reconnaissance et la liaison d'enzymes de restriction. De tels processus nécessitent un déplacement et un réarrangement importants des molécules d'eau entourant l'ADN (Duboué-Dijon et *al.*, 2016).

Il a été proposé d'envisager l'hydratation de l'ADN sous forme de couches d'eau primaire et secondaire distinctes. L'enveloppe primaire est constituée de molécules d'eau immédiatement adjacentes à l'ADN. Elle est ensuite divisée en deux classes : la classe 1 regroupe les molécules directement liées à l'ADN et la classe 2, celles qui ne présentent toujours pas leurs caractéristiques d'eau liquide (Milton et Galley, 1986).

### 6.1 Hydratation des groupements phosphates

Selon diverses estimations, le nombre de molécules d'eau par nucléotide se situerait entre 5 et 12. À des humidités relatives plus faibles (figure 1.14), l'eau ne diffuse pas librement et se situe principalement autour des groupes phosphate (Milton et Galley, 1986 ; Edwards et *al.*, 1984). Le fait que l'eau soit d'abord retirée des sillons indique une liaison hydrogène plus faible par les bases que par les phosphates. Ces observations ont été confirmées par diffusion quasi élastique de neutrons (Schneider et *al.*, 1998).



**Figure 1.14 :** Première sphère d'hydratation autour du groupement phosphate dans l'ADN à double hélice. (Schneider et *al.*, 1998).

L'ADN-B a besoin d'environ 30% en poids d'eau pour conserver sa conformation native à l'état cristallin. La transformation dépend de divers facteurs tels que la séquence, la composition en ions, la concentration et l'activité de l'eau (Kulkarni et Mukherjee, 2017). La déshydratation partielle le convertit en ADN-A avec un sillon principal plus étroit, et un mini-sillon très large mais peu profond. La transition pour cette transformation se produit à environ 20 molécules d'eau par paire de bases, avec son point médian à environ 15 molécules d'eau par paire de bases (Brovchenko et *al.*, 2006).

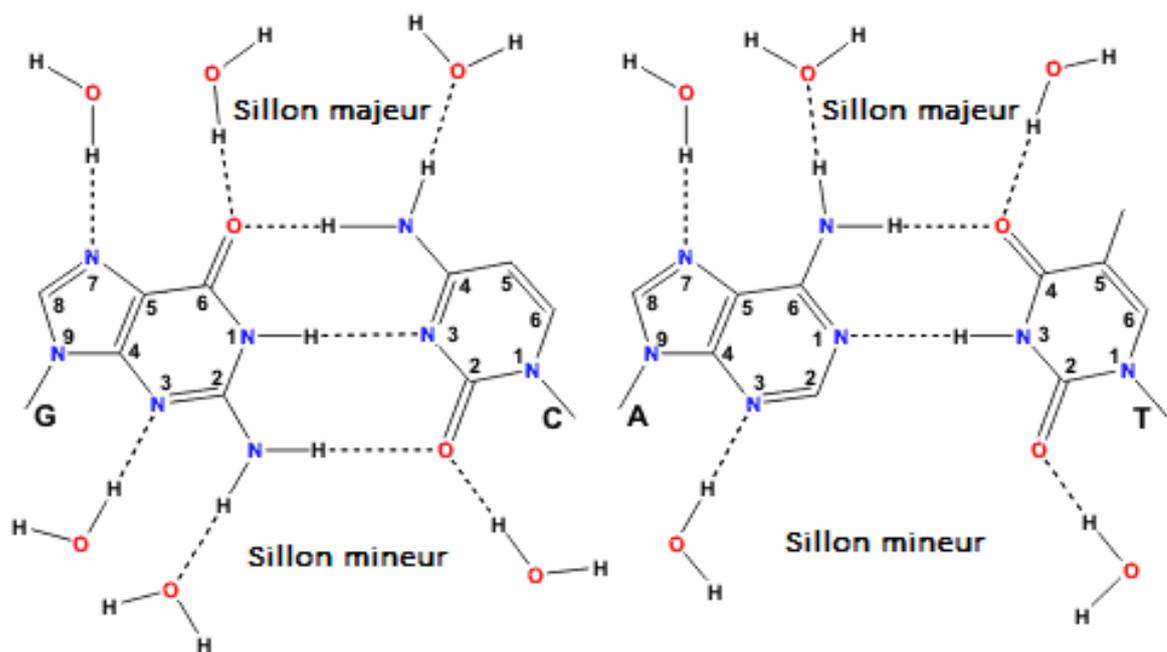
La couche d'eau primaire autour de l'ADN-B est généralement estimée à environ 20 molécules d'eau par nucléotide (Brovchenko et *al.*, 2006). Une déshydratation supplémentaire a pour résultat la formation de l'ADN-D le moins hydraté qui possède un sillon étroit (Fuller et *al.*, 2004).

L'hydratation est plus importante et plus fermement maintenue autour des groupements phosphates qui s'étendent le long des bords intérieurs des principaux sillons. Les molécules d'eau ne sont pas toutefois localisées en permanence, en raison de la distribution électronique des groupements phosphates (Schneider et *al.*, 1998). L'hydratation est plus ordonnée et plus persistante autour des bases. En raison de la structure régulière de l'ADN, l'eau hydratante est maintenue en coopération le long de la double hélice dans les sillons majeurs et mineurs. Les acides nucléiques ont plusieurs groupes pouvant lier l'hydrogène à l'eau, l'ARN ayant une plus grande hydratation que l'ADN en raison de ses atomes d'oxygène supplémentaires (c'est-à-dire

le ribose O<sub>2</sub>') et de ses bases non appariées. Ces groupes hydroxyles supplémentaires créent également une hydratation supplémentaire dans l'ARN car ils fournissent un échafaudage pour le réseau d'hydratation des sillons mineurs (Rozners et *al.*, 2004).

## 6.2 Détermination des sites d'hydratation

Dans l'ADN, les bases sont impliquées dans des appariements liés à l'hydrogène, proches de la longueur de la liaison à 0.28 nm trouvée entre les molécules d'eau liées à l'hydrogène dans de l'eau liquide. L'environnement aqueux provoque un léger allongement (11%) des liaisons hydrogène de l'ADN et les affaiblit considérablement à 50% (Poater et *al.*, 2012). Tous ces groupes, à l'exception des atomes d'azote du cycle liés à l'hydrogène (pyrimidine N3 et purine N1) sont capables d'établir une liaison hydrogène supplémentaire avec l'eau à l'intérieur des sillons majeurs et mineurs de l'ADN-B.



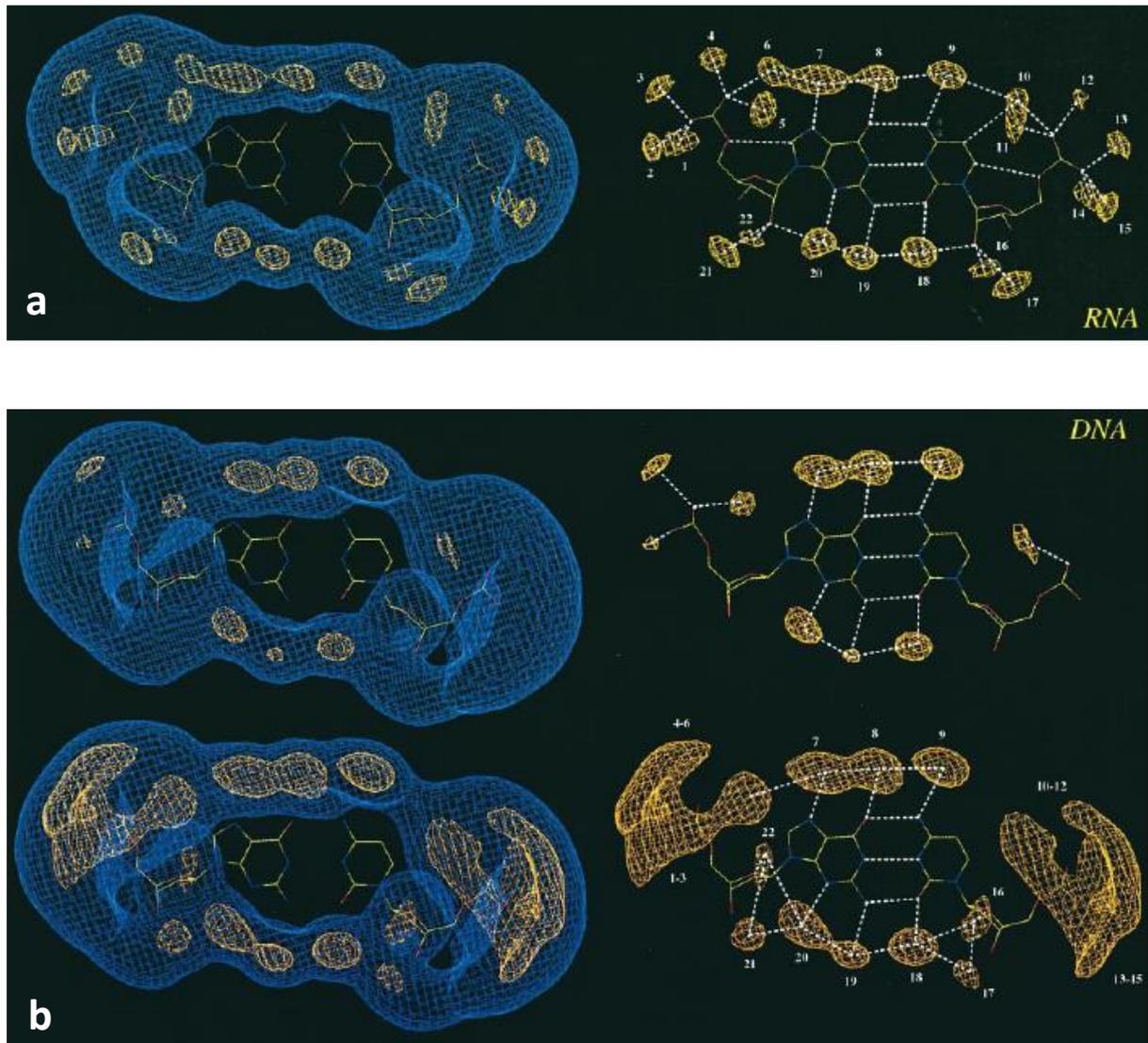
**Figure 1.15** : Sites d'hydratation dans les paires de bases d'ADN

[http://www1.lsbu.ac.uk/water/nucleic\\_acid\\_hydration.html](http://www1.lsbu.ac.uk/water/nucleic_acid_hydration.html)

Ainsi, dans l'ADN-B, la guanine se lie par hydrogène à une molécule d'eau pour les deux sillons majeur 2-amino et sillon mineur 6-céto- groupes, avec une hydratation supplémentaire sur les atomes d'azote du cycle libre (sillon mineur N3 et sillon majeur N7). La cytosine lie l'hydrogène à une molécule d'eau pour les deux sillons majeurs 4-amino et 2-céto groupes. L'adénine se lie par l'hydrogène à une molécule d'eau à partir du sillon majeur 6-amino groupes avec une hydratation supplémentaire sur les atomes d'azote du cycle libre (sillon mineur N3 et sillon majeur N7). La thymine (et l'uracile, si les bases sont appariées dans l'ARN) va se lier à une molécule d'eau à partir des sillons majeurs 2-céto et des sillons mineurs 4-céto groupes. L'hydratation du phosphate dans le sillon majeur est thermodynamiquement plus forte mais change plus vite (Rozners et *al.*, 2004).

Il y a six ou sept sites d'hydratation par phosphate, sans compter l'hydratation des atomes d'oxygène de liaison en résidus de désoxyribose ou de ribose. Les atomes de désoxyribose d'oxygène (phosphodiester O3', phosphodiester des noyaux O4' et O5) se lient tous à l'hydrogène à une molécule d'eau où le 2'-OH libre dans le ribose et peut retenir jusqu'à environ 2,5 molécules d'eau (Schneider et *al.*, 1998).

Les paires de bases d'ARN et d'ADN sont chacune entourées de 22 sites d'hydratation (figure 1.16) occupés par une moyenne de 20,8 et 19,2 molécules d'eau (ou de 21,4 et 19,8 molécules d'eau), respectivement. Ainsi, environ deux molécules d'eau supplémentaires se trouvent dans la sphère d'hydratation primaire d'ARN (Auffinger et Westhof, 2000).



**Figure 1.16 :** Densité de l'eau et des ions montrant les 22 sites d'hydratation entourant l'ARN (a) et l'ADN (b). (Auffinger et Westhof, 2000).

À un niveau de densité bas représentant tous les sites de contact possibles (sur la figure 1.16, les densités dues aux molécules d'eau sont présentées), il est évident que les paires de bases C=G sont complètement entourées de molécules d'eau, sauf évidemment sur les surfaces où se produisent des contacts superposés et sur les côtés 5' et 3' de la colonne vertébrale (Auffinger et Westhof, 1999).

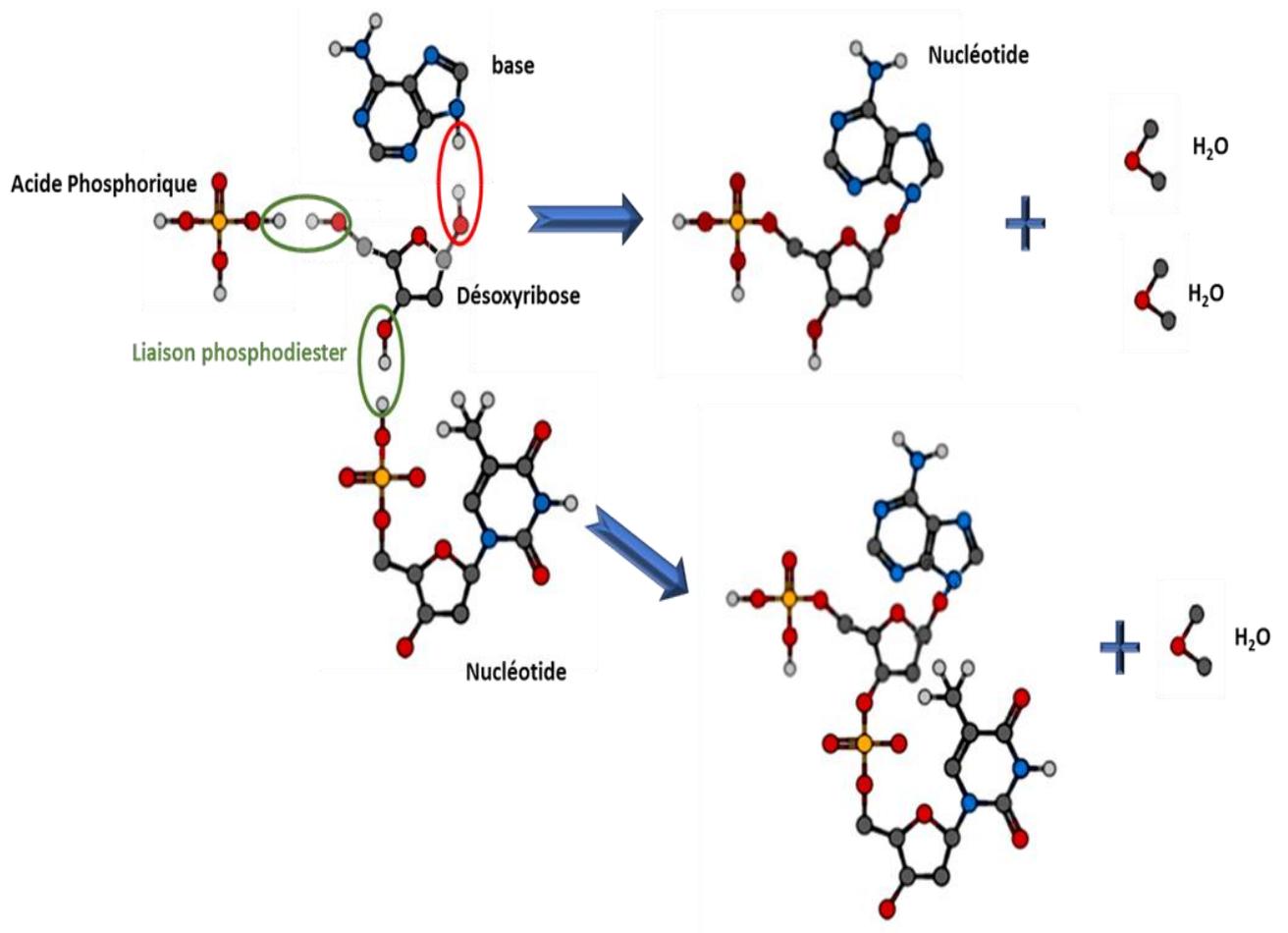
A un niveau de densité plus élevé, les sites d'hydratation apparaissent beaucoup moins ordonnés autour de l'ADN que l'ARN, en particulier autour des régions dorsales plus mobiles. Les sites d'hydratation autour des paires de bases sont, dans chaque cas, relativement bien définis. Pour les deux hélices, trois sites sont situés dans le sillon majeur au voisinage de N7,

O6 et N4, et trois sites dans les sillons mineurs au voisinage des atomes de N3, N2 et O2. De plus, pour l'ARN mais pas pour l'ADN, un site d'hydratation situé à proximité du groupe C5-H (figure 1.16.a) et partagé avec l'atome OR du groupe phosphate lié peut être reconnu (Auffinger et Westhof, 1998)

Le total de toutes ces hydrations serait d'environ 26 à 27, mais environ 14 de ces molécules d'eau sont partagées. Il existe de nombreuses façons de disposer ces molécules d'eau avec l'ADN-B possédant 22 sites d'hydratation primaires possibles par paire de bases mais n'en occupant que 19 (Auffinger et Westhof, 2000). La structure de l'ADN dépend de la manière dont ces sites sont occupés.

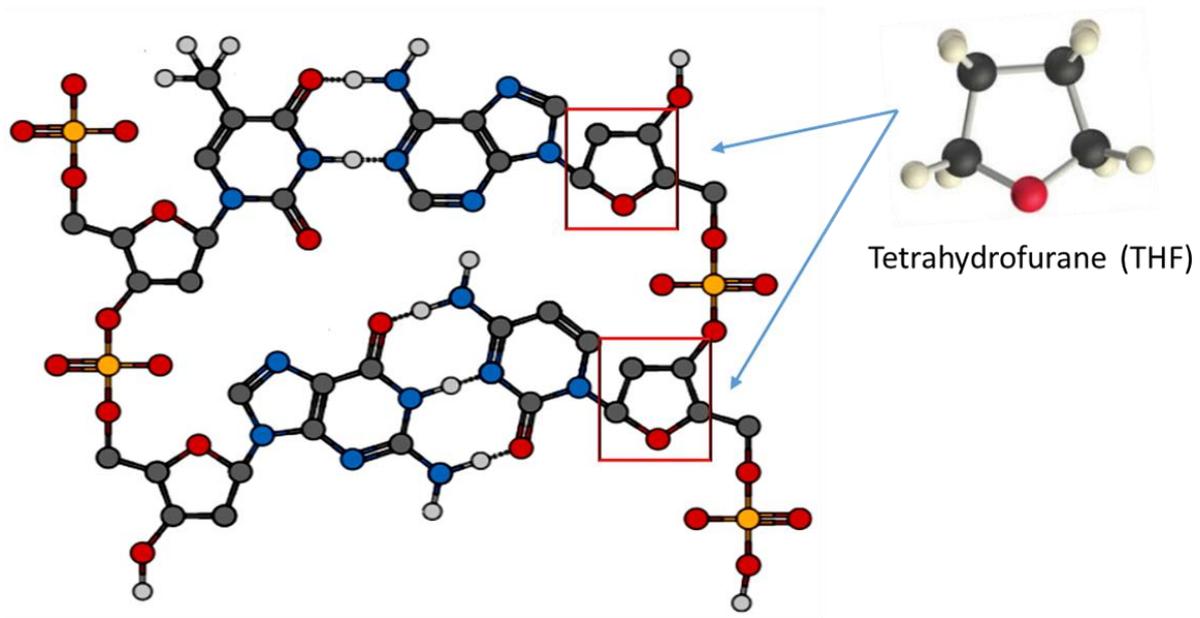
## 7. Modélisation moléculaire de la structure d'ADN

La structure chimique d'un segment d'ADN est schématisée dans la figure 1.17. Une fois liée dans l'ADN, le désoxyribose est estérifié sur son atome C4 en acide phosphorique. Le groupe phosphate du nucléotide précédent est lié à l'atome C3 du désoxyribose. Les deux connexions entraînent la perte de deux groupes hydroxyle du désoxyribose et de deux atomes d'hydrogène de l'acide phosphorique. C'est notamment pour cette raison que la structure moléculaire du squelette de l'ADN peut également être représentée par une alternance de molécules de tétrahydrofurane (THF) et de triméthylphosphate (TMP). Le THF est un précurseur du désoxyribose.



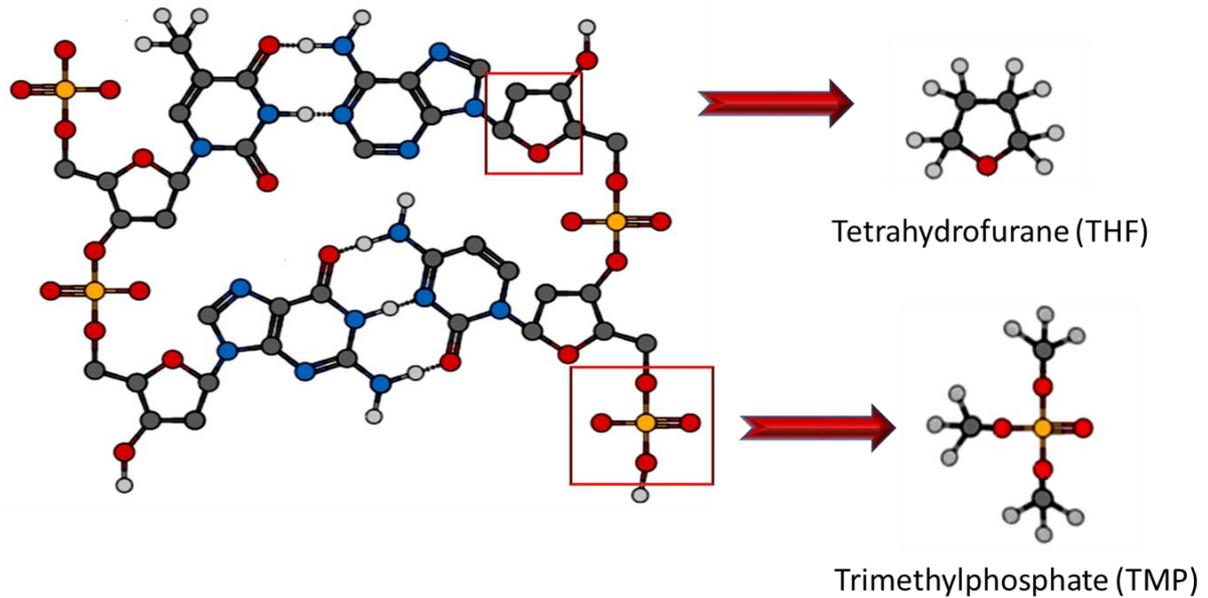
**Figure 1.17 :** Diagramme schématique de la formation d'eau

En combinaison avec le THF, le TMP fournit une représentation de l'ester triméthyle de l'acide phosphorique (Ruan et *al.*, 2008) au niveau de l'atome C4 du THF (Bug, 2014). En fait, comme le montre le diagramme schématique d'un segment d'ADN déroulé sur la figure 1.18, la structure du squelette des acides nucléiques peut être considérée comme une série de molécules du type THF maintenues ensemble par des liaisons phosphate, dans laquelle les bases nucléiques sont liées de manière covalente pour former les nucléotides. Par conséquent, le THF peut être considéré comme un analogue prototype des éléments constitutifs de la matière vivante (Chiari et *al.*, 2013).

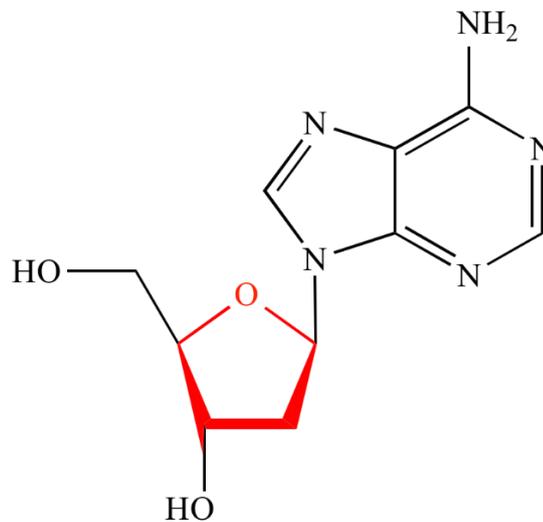


**Figure 1.18 :** Diagramme schématique d'un segment d'ADN déroulé avec la molécule THF mis en évidence dans la structure du squelette phosphate-désoxyribose.

Le squelette de l'ADN peut être donc modélisé en alternant le tétrahydrofurane (THF) ( $C_4H_8O$ ) et le triméthylphosphate (TMP) ( $(CH)_3PO_4$ ), où le THF est un analogue du désoxyribose et qui est similaire au désoxyribose (Baek et *al.*, 2014 ; Chiari et *al.*, 2013 ; Bug, 2014 ; Wang, 2017 ; Hommem et *al.*, 2012 ; Burrow et *al.*, 2008), sauf que ce dernier a des groupes -OH liés aux groupes C1 et C3 et une chaîne latérale  $CH_2OH$  liée au groupe C4. Le THF est utilisé à la place du désoxyribose car, dans l'ADN, les groupes OH sont fondamentalement modifiés par le phosphate et la base qui y sont attachés (voir figures 1.19 et 1.20) (Tonzani et Greene, 2006).



**Figure 1.19 :** Diagramme schématisique du tétrahydrofurane (THF) et du triméthylphosphate (TMP) analogues du désoxyribose et de l'ester triméthylphosphorique de l'acide phosphorique respectivement.



**Figure 1.20 :** Le cycle tétrahydrofurane de la 2-désoxyadénosine, un nucléoside d'ADN, est montré en rouge.

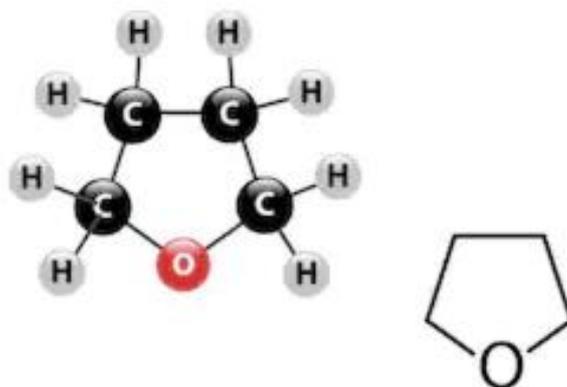
<http://www.chem.ucla.edu/~harding/IGOC/T/tetrahydrofuran.html>

Le TMP donne une représentation de l'ester triméthylrique de l'acide phosphorique (Ruan et *al.*, 2008). La pyrimidine (PY) et la purine (PU) sont des précurseurs des bases nucléiques (Bug, 2014 ; Wang, 2017). Le tétrahydrofurane (THF), le 3-hydroxytétrahydrofurane (3-hTHF) ( $C_4H_8O_2$ ) et l'alcool  $\alpha$ -tétrahydrofurfurylique ( $C_5H_{10}O_2$ ) sont couramment utilisés pour modéliser le cycle du désoxyribose (Mozejko et Sanche, 2005), en prenant en compte le fait que THF ne peut pas être considéré comme un modèle pour le désoxyribose dans l'ADN, du moins en ce qui concerne le processus de fixation des électrons dissociatifs (DEA) (Aflatooni et *al.*, 2006 ; Sulzer et *al.*, 2006). La solution consisterait soit à considérer un nucléotide entier, soit à utiliser du THF qui imite uniquement la structure cyclique (Tonzani et Greene, 2006).

### 7.1 Tétrahydrofurane (THF)

Les propriétés structurales du tétrahydrofurane (THF) ont longtemps été étudiées, à la fois en raison de son rôle important en tant qu'unité structurale des glucides et des molécules biologiques et dans le contexte d'un intérêt général pour la conformation et la déformation des cycles en anneaux de petite taille. Il représente un modèle ou un analogue approprié pour les cycles de sucre (ribose ou désoxyribose) contenus dans toutes les bases nucléosidiques et jouant un rôle essentiel dans la structure de l'ADN et de l'ARN (Cadioli et *al.*, 1993).

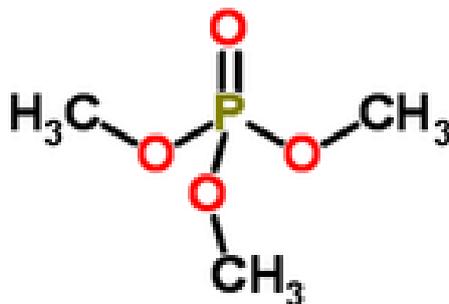
Le THF ( $CH_2$ )<sub>4</sub>O est un composé organique. Il est classé en tant que composé hétérocyclique, en particulier l'éther cyclique avec un atome d'oxygène exposé disponible pour la liaison hydrogène. Cette particularité dans sa structure lui en fait l'un des plus polaire des éthers simples et une espèce intéressante à étudier dans une perspective plus fondamentale (Chiari et *al.*, 2013).



**Figure 1.21** : Diagramme schématique du cycle tétrahydrofurane  
<https://www.shutterstock.com/fr/search/tetrahydrofurane+molecule>

## 7.2 Triméthylphosphate (TMP)

Le triméthylphosphate est un phosphate de trialkyle qui est l'ester triméthylique de l'acide phosphorique. Le TMP donne une représentation de l'ester triméthylique de l'acide phosphorique (Ruan *et al.*, 2008) au niveau de l'atome de C4 du THF (Bug, 2014).



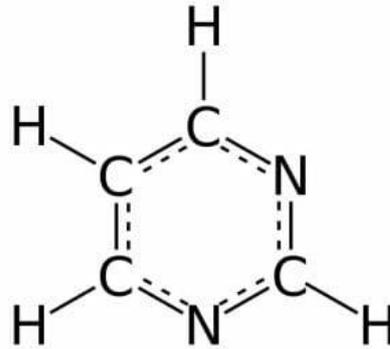
**Figure 1.22 :** Diagramme schématique du triméthylphosphate

[https://www.chemsrc.com/en/cas/512-56-1\\_1101668.html](https://www.chemsrc.com/en/cas/512-56-1_1101668.html)

## 7.3 Pyrimidine

La pyrimidine est un composé organique aromatique hétérocyclique semblable au benzène et à la pyridine, contenant deux atomes d'azote aux positions 1 et 3 du cycle à six chaînons. Les pyrimidines sont des structures cycliques carbonées hétérocycliques à six chaînons contenant de l'azote, l'uracile, la cytosine et la thymine étant les structures basales des nucléosides contenant du ribose (uridine, cytidine et thymidine respectivement), ou des désoxynucléosides contenant du désoxyribose, et leurs ribonucléotides correspondants désoxyribonucléotides (Katritzki et Pozharski, 2000).

Il possède également des propriétés physicochimiques intéressantes qui en font une molécule intéressante à étudier dans une perspective fondamentale. Ceux-ci comprennent une polarisabilité dipolaire et un moment dipolaire relativement importants, ainsi qu'un nuage de charge d'électrons avec une extension spatiale significative (Palihawadana *et al.*, 2011).



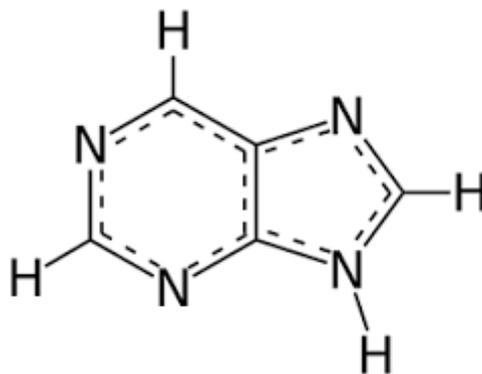
**Figure 1.23 :** Diagramme schématisique de la pyrimidine

<https://biologydictionary.net/pyrimidine/>

## 7.4 Purine

La purine est une molécule azotée hétérocyclique constituée d'un cycle pyrimidine fusionné à un cycle imidazole. C'est l'hétérocycle azoté le plus répandu dans la nature (Rosemeyer, 2004).

Le noyau purine nu n'existe pas dans la nature. On trouve en revanche de nombreux dérivés aminés, hydroxylés ou méthylés, souvent sous forme de nucléosides, qui sont inclus dans le terme général purines (Rosemeyer, 2004).

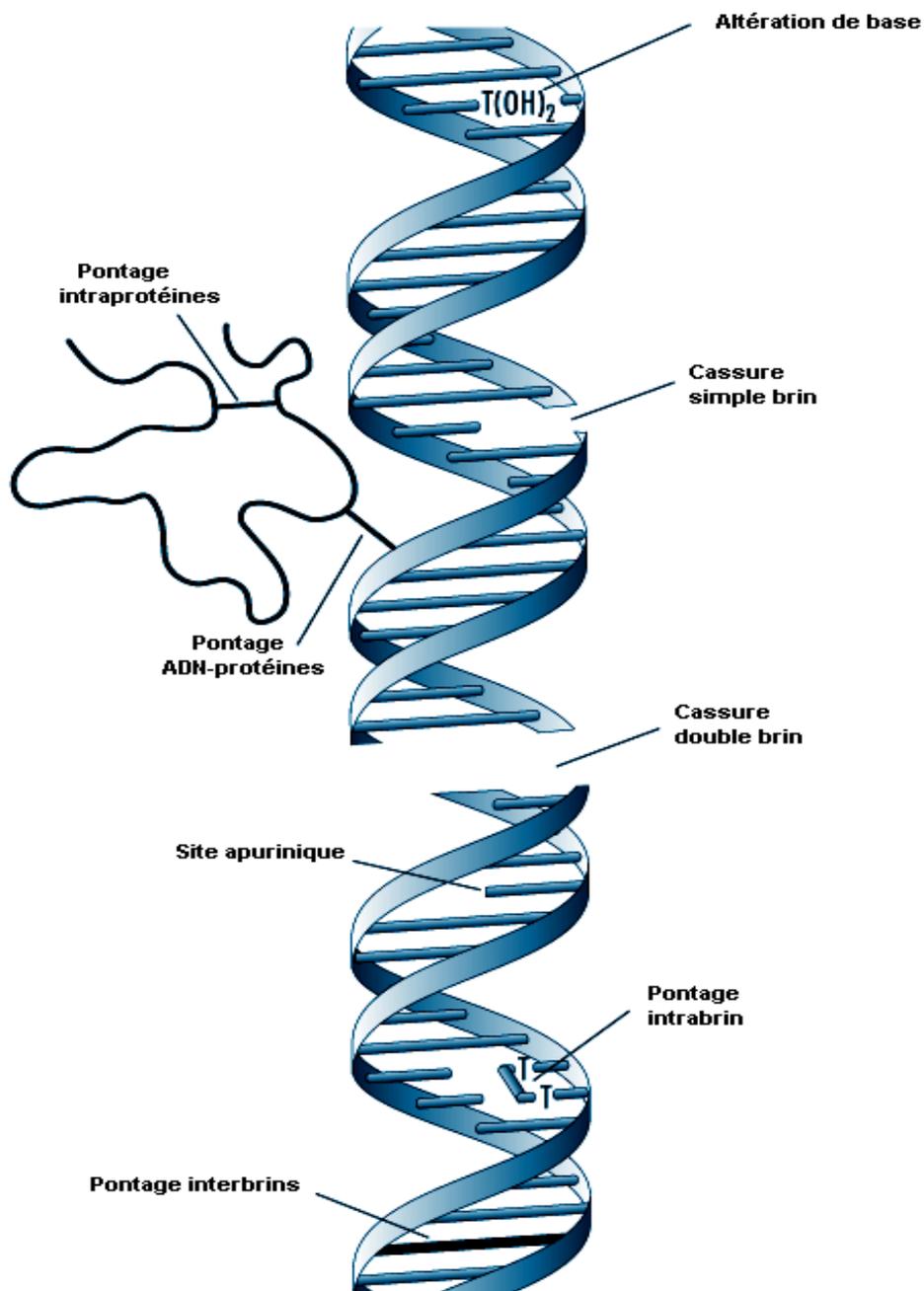


**Figure 1.24 :** Diagramme schématisique de la purine

<https://biologydictionary.net/pyrimidine/>

## 8. Lésions radio-induites de l'ADN

Les espèces radicalaires  $^{\circ}\text{OH}$ ,  $\text{H}^{\circ}$  et les électrons solvatés produits au cours de la radiolyse de l'eau peuvent réagir avec les bases ou avec le 2-désoxyribose de la molécule d'ADN. Le produit de ces réactions conduit à la formation de coupures simple ou double brin, de bases modifiées, de sites abasiques et de pontages entre ADN et protéines (Pouget et Mather, 2001).



**Figure 1.25** : Lésions radio-induites de l'ADN

<http://www.ilocis.org/fr/documents/ilo033.htm>

## 8.1 Les cassures de brins

### 8.1.1 Les cassures simple brin (CSB)

Elles sont dues à la rupture des liaisons phosphate-sucre consécutivement à un arrachement d'un atome d'hydrogène du sucre par le radical  $^{\circ}\text{OH}$ . L'arrachement d'un atome d'hydrogène du 2-désoxyribose par le radical 5-hydroxy-5,6-dihydropyrimid-6-yle peut aussi conduire à la formation d'une cassure de chaîne de l'ADN (Pouget et Mather, 2001).

Toutefois, ce processus est peu efficace. Le taux de formation des cassures simple brin est linéaire avec la dose. Il s'agit de lésions relativement vite réparées (en moins d'une heure) et qui ont peu d'impact en matière de létalité cellulaire.

### 8.1.2 Les cassures double brin (CDB)

Elles correspondent à une rupture des deux chaînes en des sites proches l'un de l'autre. Deux mécanismes sont avancés pour expliquer leur formation. Le premier suppose l'action d'un seul radical  $^{\circ}\text{OH}$  sur le 2-désoxyribose avec transfert du radical sur le deuxième brin. Le deuxième implique l'attaque de l'ADN par plusieurs radicaux hydroxyle dans des zones rapprochées. La réparation des CDB, qui peut être relativement longue, intervient comme un critère important dans la radiosensibilité cellulaire (Pouget et Mather, 2001).

## 8.2 Modification des bases

De nombreuses bases modifiées par l'irradiation gamma ont été identifiées. La nature des produits obtenus dépend des propriétés redox des espèces mises en jeu et de leur environnement (présence d'oxygène ou non).

Les modifications résultent essentiellement de l'attaque des radicaux hydroxyle sur le cycle aromatique des pyrimidines. Les radicaux  $^{\circ}\text{OH}$  étant très électrophiles (Cadet et *al.*, 1999), cette attaque s'effectue préférentiellement en position 5 du cycle de la thymine et de la cytosine. L'addition du radical  $^{\circ}\text{OH}$  sur la liaison 5,6 pyrimidique conduit à la formation de radicaux 5-hydroxy-6-yle ou 6-hydroxy-5-yle (Pouget et Mather, 2001).

L'addition des radicaux  $^{\circ}\text{OH}$  peut avoir lieu en position 4 ou 8 des purines. L'addition des radicaux  $^{\circ}\text{OH}$  en position 8, conduit à la formation d'un radical neutre intermédiaire, qui selon la nature du milieu, oxydant ou réducteur, pourra donner, respectivement, la 8-oxo-7,8-dihydroguanine (et la 8-oxo-7,8-dihydroadénine dans le cas de l'adénine) ou le 2,6-diamino-4-hydroxy-5-formamidopyrimidine (4,6-diamino-5-formamidopyrimidine dans le cas de

l'adénine). Des réactions de cyclisation entre la position 5' du sucre et 8 de la base se produisent de manière compétitive (Cadet et *al.*, 1999).

### 8.3 Pontages ADN-protéines

Des pontages intra-chaîne ou inter-chaînes ou entre l'ADN et les protéines environnantes peuvent aussi se former sous l'effet du rayonnement ionisant. Dans ce cas, le radical hydroxyle peut être impliqué. Ils peuvent se former (en absence d'oxygène) lorsque deux radicaux sont générés à la fois sur l'ADN et au niveau des acides aminés constitutifs des protéines proches de l'ADN. Des travaux ont mis en évidence la formation de pontage entre la tyrosine et la thymine mais aussi entre d'autres acides aminés et la thymine ou la cytosine (Cadet et *al.*, 1999).

### 8.4 Altération des sucres

L'attaque du 2-désoxyribose par les radicaux  $^{\circ}\text{OH}$  qui se traduit initialement par un arrachement d'un atome d'hydrogène, peut conduire à (Cadet et *al.*, 1999) :

- Une libération du sucre entraînant la formation d'une coupure de brin,
- Un sucre altéré mais toujours relié en 3' et 5' au squelette phosphodiester (site abasique),
- Un sucre altéré et seulement relié en 3' ou 5' au squelette phosphodiester (formation d'une coupure de brin).

Plusieurs produits d'altération ont été identifiés.

## Références bibliographiques

- Aflatooni, K., Scheer, A. M., & Burrow, P. D. (2006). Total dissociative electron attachment cross sections for molecular constituents of DNA. *The Journal of chemical physics*, 125(5), 054301.
- Alberts, B. (1994). Vesicular traffic in the secretory and endocytic pathways. *Molecular biology of the cell*, 599-651.
- Alberts, B., Johnson, A., Lewis, J., Raff, M., Roberts, K., Walter, P. (2002). *Molecular Biology of the Cell*. 4th Edition, Garland Science, New York, ISBN 0-8153-4072-9/0-8153-3218-1.
- Allemand, J. F., Bensimon, D., Lavery, R., & Croquette, V. (1998). Stretched and overwound DNA forms a Pauling-like structure with exposed bases. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 95(24), 14152-14157.
- Amos, M., Păun, G., Rozenberg, G., & Salomaa, A. (2002). Topics in the theory of DNA computing. *Theoretical computer science*, 287(1), 3-38.
- Auffinger, P., & Westhof, E. (1998). Simulations of the molecular dynamics of nucleic acids. *Current opinion in structural biology*, 8(2), 227-236.
- Auffinger, P., & Westhof, E. (1999). Singly and bifurcated hydrogen-bonded base-pairs in tRNA anticodon hairpins and ribozymes. *Journal of molecular biology*, 292(3), 467-483.
- Auffinger, P., & Westhof, E. (2000). Water and ion binding around RNA and DNA (C, G) oligomers. *Journal of molecular biology*, 300(5), 1113-1131.
- Avery, O. T., MacLeod, C. M., & McCarty, M. (1944). Studies on the chemical nature of the substance inducing transformation of pneumococcal types: induction of transformation by a desoxyribonucleic acid fraction isolated from pneumococcus type III. *Journal of experimental medicine*, 79(2), 137-158.
- Baek, W. Y., Bug, M. U., & Rabus, H. (2014). Differential elastic electron-scattering cross sections of pyrimidine in the energy range between 20 eV and 1 keV. *Physical Review A*, 89(6), 062716.
- Baker, E. S., & Bowers, M. T. (2007). B-DNA helix stability in a solvent-free environment. *Journal of the American Society for Mass Spectrometry*, 18(7), 1188-1195.
- Belmont, P., Constant, J. F., & Demeunynck, M. (2001). Nucleic acid conformation diversity: from structure to function and regulation. *Chemical Society Reviews*, 30(1), 70-81.
- Boudaïffa, B., Cloutier, P., Hunting, D., Huels, M. A., & Sanche, L. (2000). Resonant formation of DNA strand breaks by low-energy (3 to 20 eV) electrons. *Science*, 287(5458), 1658-1660.
- Bowater, R. P. (2015). *Nucleotides: Structure and properties*. eLS. John Wiley & Sons, Ltd: Chichester.
- Brahme, A. (2014). *Comprehensive biomedical physics*. 1st Edition, Elsevier ISBN : 978-0-444-53633-4
- Brovchenko, I., Krukau, A., Oleinikova, A., & Mazur, A. K. (2006). Water percolation governs polymorphic transitions and conductivity of DNA. *Physical review letters*, 97(13), 137801.
- Bug, M. U. (2014). *Nanodosimetric particle track simulations in water and DNA media*. (Doctoral dissertation, University of Wollongong).
- Burrow, P. D., Gallup, G. A., & Modelli, A. (2008). Are there  $\pi^*$  shape resonances in electron scattering from phosphate groups? *The Journal of Physical Chemistry A*, 112(17), 4106-4113.
- Cadet, J., Delatour, T., Douki, T., Gasparutto, D., Pouget, J. P., Ravanat, J. L., & Sauvaigo, S. (1999). Hydroxyl radicals and DNA base damage. *Mutation Research/Fundamental and Molecular Mechanisms of Mutagenesis*, 424(1-2), 9-21.
- Cadioli, B., Gallinella, E., Coulombeau, C., Jobic, H., & Berthier, G. (1993). Geometric structure and vibrational spectrum of tetrahydrofuran. *The Journal of physical chemistry*, 97(30), 7844-7856.
- Case, R., Schollmeyer, H., Kohl, P., Sirota, E. B., Pynn, R., Ewert, K. E., Safinya, C.R., & Li, Y. (2017). Hydration forces between aligned DNA helices undergoing B to A conformational change: In-situ X-ray fiber diffraction studies in a humidity and temperature-controlled environment. *Journal of structural biology*, 200(3), 283-292.
- Chargaff, E. (1950). Chemical specificity of nucleic acids and mechanism of their enzymatic degradation. *Cellular and molecular life sciences*, 6(6), 201-209.
- Chargaff, E., Vischer, E., Doniger, R., Green, C., & Misani, F. (1949). The composition of the desoxyribose nucleic acids of thymus and spleen. *Journal of Biological Chemistry*, 177(1), 405-416.

- Chiari, L., Anderson, E., Tattersall, W., Machacek, J. R., Palihawadana, P., Makochekeanwa, C., Sullivan, J. P., García, G., Blanco, F., McEachran, R. P., Brunger, M. J., & Buckman, S. J. (2013). Total, elastic, and inelastic cross sections for positron and electron collisions with tetrahydrofuran. *The Journal of chemical physics*, 138(7), 074301.
- Dahm, R. (2005). Friedrich Miescher and the discovery of DNA. *Developmental biology*, 278(2), 274-288.
- Dahm, R. (2008). Discovering DNA: Friedrich Miescher and the early years of nucleic acid research. *Human genetics*, 122(6), 565-581.
- Duboué-Dijon, E., Fogarty, A. C., Hynes, J. T., & Laage, D. (2016). Dynamical disorder in the DNA hydration shell. *Journal of the American Chemical Society*, 138(24), 7610-7620.
- Edwards, G. S., Davis, C. C., Saffer, J. D., & Swicord, M. L. (1984). Resonant microwave absorption of selected DNA molecules. *Physical review letters*, 53(13), 1284.
- Franklin, R. E., & Gosling, R. G. (1953). The structure of sodium thymonucleate fibres. I. The influence of water content. *Acta Crystallographica*, 6(8-9), 673-677.
- Fuller, W., Forsyth, T., & Mahendrasingam, A. (2004). Water–DNA interactions as studied by X–ray and neutron fibre diffraction. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series B: Biological Sciences*, 359(1448), 1237-1248.
- Fuller, W., Wilkins, W. H. F., Wilson, H. R., & Hamilton, L. D. (1965). The molecular configuration of deoxyribonucleic acid: IV. X-ray diffraction study of the A form. *Journal of molecular biology*, 12(1), 60-IN9.
- G. M. Blackburn, M. J. Gait, D. M. Williams, *Nucleic Acids in Chemistry and Biology*, 3rd Edition, ISBN-10: 0-85404-654-2, The Royal Society of Chemistry (2006).
- Gabelica, V., & De Pauw, E. (2002). Collision-induced dissociation of 16-mer DNA duplexes with various sequences: evidence for conservation of the double helix conformation in the gas phase. *International Journal of Mass Spectrometry*, 219(1), 151-159.
- Hayashi, G., Hagihara, M., & Nakatani, K. (2005, September). Application of L-DNA as a molecular tag. In *Nucleic Acids Symposium Series* (Vol. 49, No. 1, pp. 261-262). Oxford University Press.
- Hershey, A. D., & Chase, M. (1952). Independent functions of viral protein and nucleic acid in growth of bacteriophage. *The Journal of general physiology*, 36(1), 39-56.
- Holley, R. W., Apgar, J., Everett, G. A., Madison, J. T., Marquisee, M., Merrill, S. H., Penswick, J.R., & Zamir, A. (1965). Structure of a ribonucleic acid. *Science*, 1462-1465.
- Homem, M. G. P., López-Castillo, A., Barbatti, M., Rosa, L. F. S., Iza, P., Cavasso-Filho, R. L., Farenzena, L.S., Lee, M.T., & Iga, I. (2012). Experimental and theoretical investigations on photoabsorption and photoionization of trimethylphosphate in the vacuum-ultraviolet energy range. *The Journal of chemical physics*, 137(18), 184305.
- <http://biologie.univ-mrs.fr>
- <http://www.chem.ucla.edu/~harding/IGOC/T/tetrahydrofuran.html>
- <http://www.ilocis.org/fr/documents/ilo033.htm>
- <http://www.maxicours.com>
- [http://www1.lsbu.ac.uk/water/nucleic\\_acid\\_hydration.html](http://www1.lsbu.ac.uk/water/nucleic_acid_hydration.html)
- <https://babel.cegep-ste-foy.qc.ca>
- <https://biologydictionary.net/pyrimidine/>
- <https://biologydictionary.net/pyrimidine/>
- <https://fr.wikipedia.org>
- <https://fr.wikipedia.org/wiki>
- <https://mindthegraph.com>
- <https://www.aquaportail.com/definition-4533-phosphate.html>
- [https://www.chemsrc.com/en/cas/512-56-1\\_1101668.html](https://www.chemsrc.com/en/cas/512-56-1_1101668.html)
- <https://www.shutterstock.com/fr/search/tetrahydrofurane+molecule>
- Jansonius, J.N., Eichele, G., Ford, G.C., Kirsch, J.F., Picot, D., Thaller, C., Vincent, M.G., Gehring, H., & Christen, H. (1984). Chemical and Biological Aspects of Applied Crystallography, 174, 497-525.
- Katritzky, A. R., & Pozharski, A. F. (2000). Handbook of Heterocyclic. *Chemistry. Pergamon, New York*, 588.
- Kirsch, J. F. (1970). IUPAC-IUB COMMISSION ON BIOCHEMICAL NOMENCLATURE 1969 *Biochemistry*, 9, 3471-3479.

- Kulkarni, M., & Mukherjee, A. (2017). Understanding B-DNA to A-DNA transition in the right-handed DNA helix: Perspective from a local to global transition. *Progress in biophysics and molecular biology*, 128, 63-73.
- Langridge, R., Seeds, W. E., Wilson, H. R., Hooper, C. W., Wilkins, M. H. F., & Hamilton, L. D. (1957). Molecular structure of deoxyribonucleic acid (DNA). *The Journal of biophysical and biochemical cytology*, 3(5), 767.
- Langridge, R., Wilson, H. R., Hooper, C. W., Wilkins, M. H., & Hamilton, L. D. (1960). The molecular configuration of deoxyribonucleic acid: I. X-ray diffraction study of a crystalline form of the lithium salt. *Journal of Molecular Biology*, 2(1), 19-111.
- Middleton, C. T., de La Harpe, K., Su, C., Law, Y. K., Crespo-Hernández, C. E., & Kohler, B. (2009). DNA excited-state dynamics: from single bases to the double helix. *Annual review of physical chemistry*, 60, 217-239.
- Milton, J. G., & Galley, W. C. (1986). Evidence for heterogeneity in DNA-associated solvent mobility from acridine phosphorescence spectra. *Biopolymers: Original Research on Biomolecules*, 25(9), 1673-1684.
- Mozejko, P., & Sanche, L. (2005). Cross sections for electron scattering from selected components of DNA and RNA. *Radiation Physics and Chemistry*, 73(2), 77-84.
- Nikjoo, H., Uehara, S., & Emfietzoglou, D. (2012). *Interaction of radiation with matter*. CRC Press. London : Taylor and Francis.
- Ohyama, T. (2005). *DNA conformation and transcription*. Springer US.
- Palihawadana, P., Sullivan, J., Brunger, M., Winstead, C., McKoy, V., Garcia, G., Blanco, F., & Buckman, S. (2011). Low-energy elastic electron interactions with pyrimidine. *Physical Review A*, 84(6), 062702.
- Poater, J., Swart, M., Guerra, C. F., & Bickelhaupt, F. M. (2012). Solvent effects on hydrogen bonds in Watson–Crick, mismatched, and modified DNA base pairs. *Computational and Theoretical Chemistry*, 998, 57-63.
- Portin, P. (2014). The birth and development of the DNA theory of inheritance: sixty years since the discovery of the structure of DNA. *Journal of genetics*, 93(1), 293-302.
- Pouget, J. P., & Mather, S. J. (2001). General aspects of the cellular response to low-and high-LET radiation. *European journal of nuclear medicine*, 28(4), 541-561.
- Rich, A. (2003). The double helix: a tale of two puckers. *Nature Structural & Molecular Biology*, 10(4), 247.
- Richmond, T. J., & Davey, C. A. (2003). The structure of DNA in the nucleosome core. *Nature*, 423(6936), 145.
- Rodwell, V., Bender, D., Botham, K. M., Kennelly, P. J., & Weil, P. A. (2015). *Harpers illustrated biochemistry 30th edition*. McGraw Hill Professional.
- Rosemeyer, H. (2004). The chemodiversity of purine as a constituent of natural products. *Chemistry & Biodiversity*, 1(3), 361-401.
- Rozners, E., & Moulder, J. (2004). Hydration of short DNA, RNA and 2'-OMe oligonucleotides determined by osmotic stressing. *Nucleic acids research*, 32(1), 248-254.
- Ruan, C., Huang, H., & Rodgers, M. T. (2008). A simple model for metal cation-phosphate interactions in nucleic acids in the gas phase: alkali metal cations and trimethyl phosphate. *Journal of the American Society for Mass Spectrometry*, 19(2), 305-314.
- Saenger, W., Hunter, W. N., & Kennard, O. (1986). DNA conformation is determined by economics in the hydration of phosphate groups. *Nature*, 324(6095), 385.
- Sanche, L. (2005). Low energy electron-driven damage in biomolecules. *The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 35(2), 367-390.
- Schneider, B., Patel, K., & Berman, H. M. (1998). Hydration of the phosphate group in double-helical DNA. *Biophysical journal*, 75(5), 2422-2434.
- Schnier, P. D., Klassen, J. S., Strittmatter, E. F., & Williams, E. R. (1998). Activation Energies for Dissociation of Double Strand Oligonucleotide Anions: Evidence for Watson–Crick Base Pairing in Vacuo. *Journal of the American Chemical Society*, 120(37), 9605-9613.
- Sulzer, P., Ptasinska, S., Zappa, F., Mielewska, B., Milosavljevic, A. R., Scheier, P., Märk, T. D., Bald, I., Gohlke, S., Huels, M. A., & Illenberger, E. (2006). Dissociative electron attachment to furan, tetrahydrofuran, and fructose. *The Journal of chemical physics*, 125(4), 044304.

- Symons, M. C. (1994). Direct and indirect damage to DNA by ionising radiation. *Radiation Physics and Chemistry* (1993), 43(4), 403-405.
- Tonzani, S., & Greene, C. H. (2006). Radiation damage to DNA: Electron scattering from the backbone subunits. *The Journal of chemical physics*, 125(9), 094504.
- Vargason, J. M., Eichman, B. F., & Ho, P. S. (2000). The extended and eccentric E-DNA structure induced by cytosine methylation or bromination. *Nature Structural & Molecular Biology*, 7(9), 758.
- Venter, J. C., Adams, M. D., Myers, E. W., Li, P. W., Mural, R. J., Sutton, G. G., ... & Gocayne, J. D. (2001). The sequence of the human genome. *science*, 291(5507), 1304-1351.
- Wang, G., & Vasquez, K. M. (2006). Non-B DNA structure-induced genetic instability. *Mutation Research/Fundamental and Molecular Mechanisms of Mutagenesis*, 598(1-2), 103-119.
- Wang, M. (2017). Experimental determination of cross sections for ionization of DNA constituents by proton impact. *Mensch & Buch Verlag*.
- Watson, J. D., & Crick, F. H. (1953). Molecular structure of nucleic acids. *Nature*, 171(4356), 737-738.
- Wilkins, M. H. F., Stokes, A. R., & Wilson, H. R. (1953). Molecular structure of nucleic acids: Molecular structure of deoxypentose nucleic acids. *Nature*, 171(4356), 738.
- [www.futura-sciences.com](http://www.futura-sciences.com)
- [www.magazinescience.com](http://www.magazinescience.com)

## Chapitre II

# *Modèles de Calcul des Sections Efficaces Elastiques, Différentielles et Totales*

## 1. Introduction

Depuis les premiers travaux de Rutherford et Bragg, l'étude de la pénétration des rayonnements de haute énergie dans la matière a été importante pour la physique nucléaire, en liaison avec l'analyse expérimentale. La pénétration fournit également des informations sur les propriétés des matériaux traversés.

La diffusion élastique et inélastique des électrons et des positrons par les atomes et les molécules a fait l'objet de nombreuses études expérimentales (Walker, 1971).

La modélisation précise du mouvement des particules chargées à travers les solides est importante dans de nombreux domaines de la science de la surface, la physique et la micro-électronique à l'état solide. Toutes les techniques utilisant des faisceaux de positrons ou d'électrons rapides comme faisceau primaire frappant une cible où les électrons émis par la cible constituent le signal mesuré, nécessitent la connaissance de l'interaction des positrons ou des électrons avec l'échantillon étudié. Cela a motivé un grand nombre de travaux sur la pénétration des particules destinés à l'analyse d'expériences ainsi qu'à l'étude des aspects fondamentaux de l'interaction des particules rapides avec les solides (Jensen *et al.*, 1993).

La connaissance des sections efficaces différentielles pour la diffusion élastique d'électrons et de positrons par les atomes et les molécules est nécessaire pour les études quantitatives en techniques analytiques de surface, microscopie électronique, microanalyse à sonde électronique, conception de détecteurs de rayonnement, protection contre les radiations, planification de radiothérapie, et d'autres (Salvat *et al.*, 2005). La section efficace est l'une des données centrales de la physique des particules élémentaires.

Les quantités moyennes telles que le libre parcours moyen élastique est aussi importantes pour décrire l'interaction des électrons et des positrons avec la matière condensée. Le libre parcours moyen élastique, ou la distance moyenne parcourue par un électron entre deux collisions, est utile dans les techniques spectroscopiques de surface (par exemple, la photoémission) en tant que mesure approximative de la profondeur de l'échantillon par les électrons émergents (Ashley, 1990).

La simulation du transport des électrons et des positrons est beaucoup plus difficile que celle du transport de photons. La raison principale est que la perte d'énergie moyenne d'un électron dans une seule interaction est très faible (de l'ordre de quelques dizaines d'eV) et que, par conséquent, les électrons de haute énergie subissent un grand nombre de collisions avant d'être efficacement ralentis à énergies thermiques. Pour les électrons et les positrons de haute

énergie, la plupart des codes de Monte-Carlo ont recours à des théories de diffusion multiple qui permettent de simuler l'effet global d'un grand nombre d'événements (Salvat et *al.*, 2009).

## 2. Interactions des électrons et des positrons

Depuis la découverte de l'électron à la fin du XIXe siècle, l'étude des collisions électron-atome a joué un rôle central dans le développement de notre compréhension actuelle de la mécanique quantique et des systèmes à plusieurs corps (Bederson, 1971).

Les interactions dominantes des électrons et des positrons avec les atomes sont la diffusion élastique, les collisions inélastiques et l'émission de Bremsstrahlung. Les positrons subissent également une annihilation. Par définition, les interactions élastiques sont celles dans lesquelles les états quantiques initial et final de l'atome cible sont les mêmes. Les déviations angulaires des trajectoires des électrons et des positrons dans la matière sont principalement dues à la diffusion élastique ; Les collisions inélastiques provoquent également des déviations angulaires, mais elles sont en moyenne beaucoup plus faibles. En raison de la grande masse du noyau, l'énergie de recul de l'atome cible est supposée être négligeable dans toutes les interactions (Salvat et Fernandez-Varea, 2009).

## 3. Collisions élastiques

La description théorique des collisions élastiques est beaucoup plus simple que celle des autres processus de collision car l'interaction effective entre le projectile et l'atome est essentiellement électrostatique. Bien que le noyau et les électrons de l'atome aient des moments magnétiques de spin, les interactions magnétiques ont un effet beaucoup moins important, ce qui peut être négligé dans la plupart des cas pratiques (Salvat et Fernandez-Varea, 2009).

La diffusion élastique a un effet important sur le transport des électrons rapides et des positrons à travers la matière. En raison de la petite taille de la masse électronique, ces particules peuvent subir des déviations angulaires relativement importantes (Salvat 2003).

La connaissance des sections efficaces différentielles pour la diffusion élastique d'électrons et de positrons est nécessaire pour étudier leur transport dans la matière et pour nombreuses applications pratiques. Celles-ci incluent l'analyse quantitative en spectroscopie d'électrons de surface et de positrons, la conception et la caractérisation de détecteurs, la dosimétrie des rayonnements et la planification de traitements de radiothérapie. Les calculs de transport d'électrons sont fréquemment effectués à l'aide d'une simulation de Monte Carlo qui nécessite des totalisations systématiques des sections efficaces différentielles élastiques en fonction de l'énergie cinétique du projectile  $E$  et de l'angle de diffusion  $\theta$  (Salvat et *al.*, 2005).

### 3.1 Calcul de sections efficaces élastiques

La demande en données de diffusion cohérente pour la modélisation du transport du rayonnement dans la matière a augmenté ces dernières années, avec des applications dans l'analyse des matériaux, les études de réponse des détecteurs et la radiothérapie (Bransden et Joachain 2003)

On rappelle tout d'abord la définition habituelle des sections efficaces en Physique Corpusculaire. Les paramètres qui caractérisent les processus de collision sont les sections efficaces. Les sections efficaces de collision d'électrons dépendent de l'énergie d'impact  $E$  et des angles de diffusion  $\theta$  et  $\phi$ . La section efficace différentielle (par unité d'angle solide) pour la diffusion élastique d'un projectile d'énergie cinétique  $E$  dans l'élément d'angle solide est définie comme (Walker, 1971 ; Drake et *al.*, 2006) :

$$\frac{d\sigma_n(E_0, \Omega)}{d\Omega} = \frac{k_f}{k_i} |f_n(E_0, \Omega)|^2 \quad (1)$$

Avec  $\Omega$  est l'angle polaire de détection,  $k_i$  et  $k_f$  sont les moments initial et final, et  $f_n$  est l'amplitude de diffusion complexe ( $n=0$  se réfère à la diffusion élastique).

L'intégration sur tous les angles de diffusion donne les sections efficaces intégrales (Drake et *al.*, 2006) :

$$\sigma_n(E_0) = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} \frac{d\sigma_n(E_0, \Omega)}{d\Omega} \sin\theta d\theta d\phi \quad (2)$$

Dans le cas de la diffusion élastique, la section efficace de transfert d'impulsion est définie comme suit (Drake et *al.*, 2006) :

$$\sigma_0^M(E_0) = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} \frac{d\sigma_n(E_0, \Omega)}{d\Omega} (1 - \cos\theta) \sin\theta d\theta d\phi \quad (3)$$

La section efficace totale de diffusion des électrons est obtenue en faisant la somme de toutes les sections efficaces intégrales (Drake et *al.*, 2006 ; Mayol et Salvat, 1997)

$$\sigma_{tot}(E_0) = \sum_n \sigma_n(E_0) \quad (4)$$

### 3.2 Sections efficaces des collisions élastiques avec les atomes

Les sections efficaces de diffusion élastique sont obtenues à partir du code ELSEPA. Le système de code FORTRAN 77 ELSEPA est conçu pour le calcul de la diffusion élastique des électrons et des positrons par les atomes et les ions positifs. Ces codes effectuent des calculs d'ondes partielles relativistes (Dirac) pour la diffusion par un potentiel d'interaction central local  $V(r)$ . Pour les atomes et les ions, l'approximation du champ statique est adoptée, le potentiel défini étant égal à l'énergie d'interaction électrostatique entre le projectile et la cible, plus une interaction d'échange local approximatif lorsque le projectile est un électron (Salvat et *al.*, 2005).

Pour les projectiles ayant des énergies cinétiques allant jusqu'à 10 keV, le potentiel peut éventuellement inclure un potentiel de corrélation–polarisation semi-empirique pour décrire l'effet de polarisation de la charge cible. De plus, pour les projectiles d'énergies inférieures à 1 MeV, un potentiel d'absorption imaginaire peut être introduit (Salvat et *al.*, 2005).

### 3.3 L'analyse relativiste de Dirac des ondes partielles

Les collisions élastiques d'électrons avec des atomes peuvent être décrites au moyen de l'approximation dite de « champ statique », c'est-à-dire comme une dispersion du projectile par le champ électrostatique de l'atome cible. On suppose que la densité d'électrons atomiques  $\rho(r)$  en fonction du rayon  $r$ , est de symétrie sphérique ; cela implique une moyenne sur les orientations. L'énergie potentielle du projectile,  $V(r)$ , est alors également sphérique (Jablonski et *al.*, 2005).

L'échange entre le projectile et les électrons atomiques peut être comptabilisé approximativement en ajoutant une correction locale à l'interaction électrostatique (Jablonski et *al.*, 2004).

Dans la théorie non relativiste de Schrödinger, la fonction d'onde décrivant l'événement de diffusion est une onde plane avec la forme asymptotique : (Jablonski et *al.*, 2004)

$$\psi(r) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}) + \frac{\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r})}{r} f(\theta) \quad (5)$$

où  $r$  est le vecteur de position,  $\vec{p} = \hbar\vec{k}$ ,  $p$  est le moment du projectile et  $\hbar$  est la constante de Planck. La section efficace différentielle pour la diffusion est entièrement déterminée par l'amplitude de diffusion  $f(\theta)$  (Jablonski et *al.*, 2004).

Dans la formulation relativiste adoptée ici,  $\psi(r)$  est une solution de l'équation de Dirac indépendante du temps ayant le potentiel  $V(r)$ . Pour calculer la section efficace différentielle,

l'onde (Eq.5) s'exprime sous la forme d'une superposition d'ondes sphériques, c'est-à-dire des fonctions propres du moment angulaire total qui sont calculés numériquement en résolvant l'équation d'onde radiale. En fait, seule une série de décalages de phase  $\delta_1$  est nécessaire pour déterminer l'amplitude de diffusion et la section efficace différentielle (Jablonski et *al.*, 2004).

Les potentiels utilisés dans les calculs des sections efficaces de collisions élastiques peuvent être classés en : (Salvat et *al.*, 2005, Jablonski et *al.*, 2005)

1. Potentiels résultant du modèle statistique de l'atome, c'est-à-dire le potentiel de Thomas–Fermi (TF) ou le potentiel de Thomas – Fermi – Dirac (TFD).
2. Potentiels de Thomas–Fermi–Molière (TFM)
3. Potentiels dérivés pour les atomes des méthodes relativistes ou non relativistes auto-cohérentes de Hartree – Fock, par exemple, le potentiel relativiste de Dirac–Hartree – Fock-Slater (DHFS) considéré dans le présent travail.

Le potentiel de diffusion considéré dans le code ELSEPA a la forme générale :

$$V(r) = V_{st}(r) + V_{ex}(r) + V_{cp}(r) + iW_{abs}(r) \quad (6)$$

où  $V_{st}(r)$  est le potentiel électrostatique,  $V_{ex}(r)$  est le potentiel d'échange local (uniquement dans le cas de la diffusion d'électrons),  $V_{cp}(r)$  est le potentiel de corrélation-polarisation et  $W_{abs}(r)$  est le potentiel d'absorption. Le code ELSEPA offre le choix de différents modèles pour les contributions de  $V_{st}(r)$ ,  $V_{ex}(r)$ ,  $V_{cp}(r)$  et  $W_{abs}(r)$  dans le potentiel total (Salvat et *al.*, 2005). Le potentiel  $V_{st}(r)$  comprend l'interaction électrostatique des projectiles avec la distribution de charge positive du noyau et la distribution de charge négative des électrons atomiques (Jablonski et *al.*, 2005).

La partie réelle représente la diffusion élastique des électrons ou des positrons incidents tandis que la partie imaginaire représente les processus inélastiques considérés comme "absorption" du faisceau incident (Salvat 2003). Lorsqu'on considère les collisions élastiques d'électrons et de positrons à partir d'atomes libres, la partie réelle du potentiel d'interaction est utilisée comme

$$\begin{cases} V(r) = V_{st}(r) + V_{cp}(r) + V_{ex}(r) & \text{pour les électrons} \\ V(r) = -V_{st}(r) + V_{cp}(r) & \text{pour les positrons} \end{cases} \quad (7)$$

Pour la diffusion d'électrons, le potentiel est représenté par la somme du potentiel d'interaction électrostatique  $V_{st}(r)$  dérivé d'un calcul de Hartree-Fock de la distribution de

charge atomique (Salvat 2003 ; Salvat et *al.*, 2005), le potentiel d'échange  $V_{ex}(r)$  (utilisé uniquement pour les électrons) (Salvat 2003) pour expliquer l'indiscernabilité des électrons incidents (Salvat et *al.*, 2005),  $V_{cp}(r)$  le potentiel de corrélation-polarisation (nécessaire uniquement pour les projectiles lents, avec des énergies incidentes  $E$  inférieures à environ 10 keV) (Salvat 2003).

Pour la diffusion de positrons, la partie réelle n'a que deux termes :  $V_{st}(r)$  et  $V_{cp}(r)$ . Pour les énergies de projectiles jusqu'à quelques MeV, le noyau peut être représenté comme une charge ponctuelle. Les densités électroniques sphériquement symétriques  $\rho(r)$  des atomes libres sont générées à l'aide du code Dirac-Fock de Desclaux (Salvat 2003 ; Salvat et *al.*, 2005). Le potentiel d'interaction électrostatique  $V_{st}(r)$  du projectile à une distance  $r$  du noyau de l'atome cible est donné par (Salvat 2003 ; Salvat et *al.*, 2005) ;

$$V_{st}(r) \equiv \frac{Z_0 Z e^2}{r} - Z_0 e^2 \left( \frac{1}{r} \int_0^r \rho(r') 4\pi r'^2 dr' + \int_r^\infty \rho(r') 4\pi r' dr' \right) \quad (8)$$

où  $Z_0 e$  est la charge du projectile.

Le potentiel d'échange de Furness et McCarthy qui est dérivé directement de l'expression formelle de l'interaction d'échange non locale (Salvat 2003) est considéré pour le cas des électrons comme ;

$$V_{ex}(r) = \frac{1}{2} [E - V_{st}(r)] - \frac{1}{2} \{ [E - V_{st}(r)]^2 + 4\pi a_0 e^4 \rho(r) \}^{1/2} \quad (9)$$

Lorsque le projectile est loin de l'atome, l'énergie potentielle de polarisation peut être approchée au moyen du potentiel de Buckingham qui est également valable pour les positrons

$$V_{cp}(r) = - \frac{\alpha_d e^2}{2(r^2 + d^2)^2} \quad (10)$$

où  $\alpha_d$  est la polarisabilité dipolaire de l'atome cible et  $d$  est un paramètre de coupure phénoménologique qui sert à empêcher le potentiel de polarisation de diverger en  $r = 0$  (Salvat 2003);

$$d^4 = \frac{1}{2} \alpha_d a_0 Z^{-1/3} b_{pol}^2 \quad (11)$$

où  $b_{pol}$  en tant que paramètre réglable dépendant de l'énergie (Salvat et *al.*, 2005).

$$b_{pol}^2 = \max\{(E - 50\text{eV})/(16\text{ eV}), 1\} \quad (12)$$

La section efficace totale pour un atome  $i$  est donnée par (Walker, 1971) ;

$$\frac{d\sigma_i^{el}}{d\theta} = |F_l(\theta)|^2 + |G_l(\theta)|^2 \quad (13)$$

Où

$$F_l = \frac{1}{2iK} \{(l+1)[\exp(2i\delta_{l+}) - 1] + l[\exp(-2i\delta_{l-}) - 1]\} P_l(\cos\theta) \quad (14)$$

$$G_l = \frac{1}{2iK} \{\exp(-2i\delta_{l-}) - \exp(-2i\delta_{l+})\} P_l^1(\cos\theta) \quad (15)$$

et  $\delta_{l-}$ ,  $\delta_{l+}$  sont les déphasages d'ordre  $l$ .  $k$  représente l'impulsion du projectile qui est liée à son énergie cinétique  $E$  à travers (Salvat 2003, Salvat et al., 2005, Shimizu et Ding, 1992)

$$k^2 = E(E + 2c^2)/c^2 \quad (16)$$

où  $c$ 'est la vitesse de la lumière dans le vide. Pour chaque valeur du moment angulaire orbital  $l$  (sauf  $l = 0$ ) (Salvat et al., 2005)

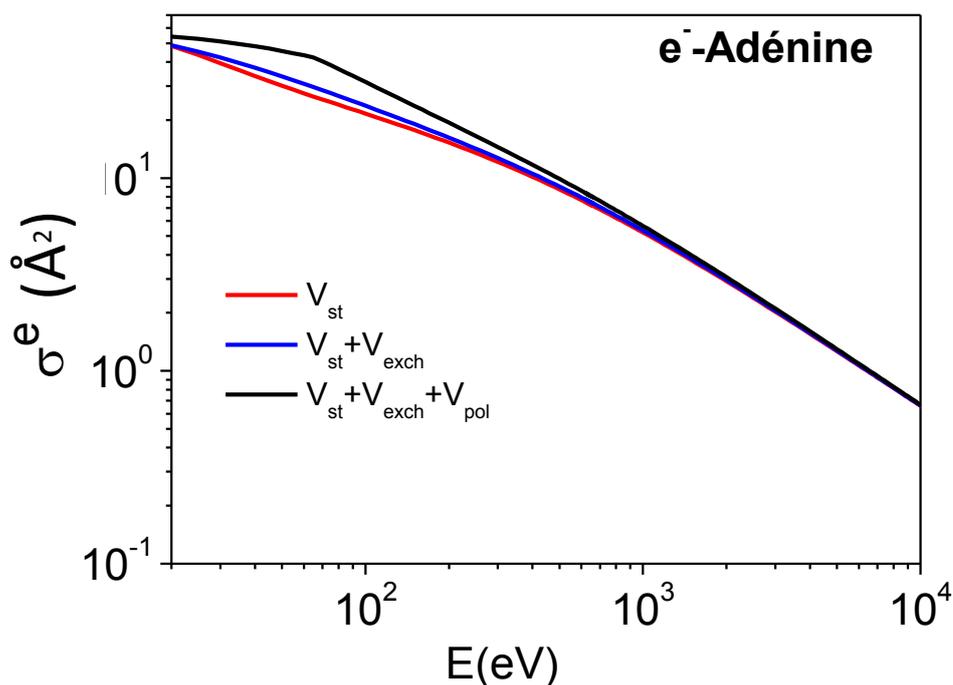
La section efficace totale pour un atome  $i$  est ensuite calculée à partir de la section efficace différentielle comme

$$\sigma_i^{el} = \int_0^\pi \frac{d\sigma_i^{el}}{d\theta} d\Omega \quad (17)$$

En conséquence, la section efficace de transport élastique atomique  $\sigma_i^{tr}$  est calculée à l'aide de l'équation

$$\sigma_i^{tr} = \int_0^\pi \frac{d\sigma_i^{el}}{d\theta} (1 - \cos\theta) d\Omega \quad (18)$$

Les différents ensembles de données résultant de l'inclusion de différents potentiels d'interaction dans le modèle actuel sont représentés dans la figure 2.1. Pour les énergies d'électrons supérieures à quelques keV, l'effet d'échange et de polarisation n'a pas de sens. L'effet est plus prononcé lorsque l'énergie de l'électron diminue à partir de 1 keV.



**Figure 2.1 :** Sections efficaces élastiques des électrons de l'adénine résultant de l'inclusion de différents potentiels d'interaction

La section efficace comprenant le potentiel d'interaction d'échange et de polarisation est supérieure à celle qui comprend le potentiel d'échange et sans potentiel de polarisation. Des effets similaires ont été observés dans le cas de d'autres constituants d'ADN. Afin d'évaluer la validité de l'effet du potentiel d'interaction, une comparaison avec les sections efficaces expérimentales est nécessaire. Dans notre modèle théorique, les excitations rotationnelles et la correction dipolaire ne sont pas prises en compte.

### 3.4 Sections efficaces des collisions élastiques avec les molécules

Une fois que la diffusion élastique des électrons et des positrons par les atomes est résolue, les sections efficaces moléculaires sont calculées à partir des données atomiques en appliquant une addition cohérente, connue sous le nom de règle d'additivité (AR). Dans cette approximation, l'amplitude de diffusion moléculaire peut être déduite de la somme de toutes les amplitudes atomiques pertinentes, conduisant ainsi aux sections efficaces différentielles élastiques moléculaires de la cible en question.

### 3.5 La méthode des règles d'additivité avec correction d'écran (SCAR)

Sachant que la diffusion électron-molécule présente un problème plus complexe que celui correspondant à la diffusion d'atomes d'électrons due à la nature multicentrique et l'absence de centre de symétrie (dans le cas des molécules polyatomiques et hétéronucléaires) (Craggs et Massey, 1959 ; Blanco et Garcia, 2004). Pour calculer les sections efficaces élastiques totales pour la diffusion des électrons et des positrons de tous les composants de la molécule d'ADN, nous avons appliqué une procédure des règles d'additivité avec correction d'écran (SCAR) (une forme corrigée de la méthode de l'atome indépendant) qui incorpore une correction géométrique pour chaque atome du reste de la molécule. Seules les coordonnées spatiales atomiques sont nécessaires pour le calcul des sections efficaces élastiques totales des différents composants des molécules d'ADN, sans tenir compte de la symétrie moléculaire et une fois les sections efficaces connues, les quantités moléculaires corrigées sont directement évaluées (Blanco et Garcia, 2004, 2007)

Il faut noter que ce traitement n'utilise pas les considérations de symétrie moléculaire mais nécessite seulement des données sur les sections efficaces totales atomiques et les positions atomiques dans la biomolécule. Cette correction est décrite par une introduction de l'effet de correction d'écran de tous les atomes de la biomolécule.

La méthode prend en compte la géométrie de la molécule (distances interatomiques) en utilisant des coefficients de correction d'écran qui ajustent à la fois les sections efficaces différentielle et intégrale, en particulier pour les énergies inférieures et les énergies intermédiaires. Cette méthode a été largement utilisée dans les références (Blanco et Garcia, 2004, 2007, 2009 ; Blanco et *al.*, 2013 ; Sanz et *al.*, 2012) mais comme nous le verrons dans la suite, notre modèle diffère dans la dérivation de la section transversale différentielle élastique.

Cette méthode donne des résultats raisonnables pour des énergies supérieures à 100 eV, car les particules incidentes sont suffisamment rapides pour voir efficacement la molécule cible comme une somme des atomes individuels. Pour les énergies faibles, les sections efficaces atomiques sont suffisamment grandes pour se chevaucher, ce qui conduit à une surestimation des sections efficaces moléculaires. Pour réduire cette limitation, une approche de l'AR modifiée a été développée pour prendre en compte les effets d'écran à faible énergie (Sanz, 2014).

La règle d'additivité pour une molécule composée de  $N$  atomes conduit à la section efficace total donné comme ;

$$\sigma^{el} = \sigma_1^{el} + \sigma_2^{el} + \dots + \sigma_N^{el} = \sum_{i=1,N} \sigma_i^{el} \quad (19)$$

où  $\sigma^{el}$  est la section efficace élastique totale des atomes de la molécule.

L'introduction de coefficients d'écran  $s_i$  à la règle d'additivité conduit à

$$\sigma^{el} = s_1 \sigma_1^{el} + s_2 \sigma_2^{el} + \dots + s_N \sigma_N^{el} = \sum_{i=1,N} s_i \sigma_i^{el} \quad (20)$$

qui peut être écrit comme (Aouina et Chaoui, 2018 a) ;

$$\int_0^\pi \frac{d\sigma^{el}}{d\theta} d\Omega = s_1 \int_0^\pi \frac{d\sigma_1^{el}}{d\theta} d\Omega + s_2 \int_0^\pi \frac{d\sigma_2^{el}}{d\theta} d\Omega + \dots + s_N \int_0^\pi \frac{d\sigma_N^{el}}{d\theta} d\Omega \quad (21)$$

où  $\Omega = 2\pi \sin \theta d\theta$  avec  $\theta = [0 - \pi]$  l'angle polaire ; Les coefficients  $s_i$  ne dépendent donc que de section efficace totales des collision élastique avec les atomes (Aouina et Chaoui, 2018 a) ;

$$\int_0^\pi \frac{d\sigma^{el}}{d\theta} d\Omega = \int_0^\pi \left( s_1 \frac{d\sigma_1^{el}}{d\theta} + s_2 \frac{d\sigma_2^{el}}{d\theta} + \dots + s_N \frac{d\sigma_N^{el}}{d\theta} \right) d\Omega \quad (22)$$

La section élastique différentielle totale est exprimée comme suit (Aouina et Chaoui, 2018 a) :

$$\frac{d\sigma^{el}}{d\theta} = s_1 \frac{d\sigma_1^{el}}{d\theta} + s_2 \frac{d\sigma_2^{el}}{d\theta} + \dots + s_N \frac{d\sigma_N^{el}}{d\theta} \quad (23)$$

Nous avons vérifié que l'intégrale du côté gauche de l'équation (23) conduit exactement à la valeur de la section efficace totale indiquée dans le côté gauche de l'équation (20) (Aouina et Chaoui, 2018 b).

La section efficace élastique donné par Eq. (20) est identique à celle utilisée dans les références (Blanco et Garcia, 2004, 2007) qui se base sur la même règle d'additivité avec correction d'écran (SCAR), mais la section efficace élastique différentielle donnée par l'équation (22) est complètement différente de l'équation (5-8) de la référence (Blanco et Garcia, 2007) ou de manière similaire l'équation (13-15) dans la référence (Blanco et Garcia, 2007). La principale différence est due au fait que dans la référence (Blanco et Garcia, 2007), la section efficace élastique différentielle de la biomolécule est approximé par deux contributions distinctes correspondant à une particule chargée incidente présentant des déviations appréciables et une directivité forte. Les équations (5-8) de la référence (Blanco et Garcia, 2007) sont calculées après une estimation de la pertinence de ces contributions (Aouina et Chaoui, 2018 b).

La section efficace élastique totale de transport des positrons ou des électrons de la biomolécule est donc calculée en se basant sur la connaissance de la section efficace de transport élastique atomique de chaque atome  $i$  comme ;

$$\sigma^{tr} = s_1\sigma_1^{tr} + s_2\sigma_2^{tr} + \dots + s_N\sigma_N^{tr} = \sum_{i=1,N} s_i\sigma_i^{tr} \quad (24)$$

Les coefficients de correction d'écran  $0 \leq s_i \leq 1$  réduisent la contribution de chaque atome à la section efficace totale. Le calcul des coefficients  $s_i$  nécessite seulement des données sur la position et la section totale de chaque atome dans la molécule (Blanco et Garcia, 2004, 2007, 2009 ; Blanco et *al.*, 2013). Pour une énergie incidente de l'électron ou du positron, les coefficients de sélection  $s_i$  sont calculés en premier lieu. Les expressions explicites sont données (Blanco et Garcia, 2004, 2007) comme

$$s_i = \sum \pm \frac{\varepsilon_i^{(N)}}{N!} \quad (25)$$

Où

$$\varepsilon_i^{(k)} = \frac{N - k + 1}{N - 1} \sum_{j(\neq i)} \frac{\sigma_i^{el} \varepsilon_j^{(k-1)}}{\alpha_{ij}} \quad (k = 2, \dots, N) ; \quad \varepsilon_i^{(1)} = 1 \quad (26)$$

L'indice  $j$  parcourt tous les atomes  $N$  sauf l'atome  $i$ ,

$$\alpha_{ij} = \max(4\pi r_{ij}^2, \sigma_i^{el}, \sigma_j^{el}) \quad (27)$$

où  $r_{ij}$  est la distance entre les centres des atomes  $i$  et  $j$ . La contribution des coefficients dans l'évaluation de la section efficace élastique peut être interprétée comme l'effet de la configuration géométrique des atomes dans la molécule avec leurs sections efficaces correspondantes considérées comme des surfaces par la particule chargée incidente qui peut se chevaucher selon la distance entre les centres des atomes. Puisque tous les atomes contribuent en fonction de leurs sections efficaces et de leurs positions à l'intérieur de la molécule, chaque coefficient de correction d'écran  $s_i$  utilisé dans chaque terme  $s_i\sigma_i^{el}$  représente une moyenne des contributions de tous les atomes (en exclusion de l'atome  $i$ ) dans la collision élastique.

## 4. Résultats et discussions

Les sections efficaces élastiques différentielles pour la diffusion d'électrons et de positrons à partir des biomolécules citées avant ont été calculées en utilisant une forme corrigée de la méthode des atomes indépendants qui réduit le problème de collision avec des atomes individuels en supposant que chaque atome de la molécule se disperse indépendamment. Il ne nécessite que des données sur les sections efficaces totales atomiques et les positions des atomes dans la biomolécule. Cette correction est décrite par l'introduction de l'effet d'écran de tous les atomes de la biomolécule. Contrairement au modèle SCAR notre modèle utilise les mêmes coefficients de sélection  $si$  mais diffère considérablement dans la dérivation de la section efficace élastique différentielle. Les sections efficaces élastiques différentielles et totales d'électrons et de positrons des différents atomes composant les bases d'ADN (H, C, O, N et P), THF et PY sont calculés à partir de l'analyse d'ondes partielles relativiste (Dirac) à des énergies incidentes entre 10 eV et 100 keV.

### 4.1 Section efficace élastique de collision des électrons et des positrons avec les bases d'ADN

Les figures de 2.2 à 2.5 représentent les variations des sections efficaces élastiques des électrons pour l'adénine, la cytosine, la guanine et la thymine dans toute la gamme d'énergie de 10 eV à 100 keV.

Les données théoriques des sections efficaces élastiques de Mozejko et Sanche (2003), de Vinodkumar et *al.* (2014) et de Blanco et Garcia (2007) sont incluses pour la comparaison. A partir de la littérature au moins consultée, aucune donnée expérimentale concernant les sections efficaces élastiques totales n'est disponible dans la littérature.

En examinant les quatre courbes, on constate que les données de Mozejko et Sanche (2003) sont supérieures à nos sections efficaces élastiques. Elles sont basées sur la méthode des atomes indépendants, qui inclut un potentiel de polarisation statique pour les énergies incidentes comprises entre 50 et 4000 eV ; les sections efficaces atomiques sont calculées à partir de l'équation de Schrödinger selon la méthode de Numerov. La différence relative par rapport à nos sections efficaces élastiques est d'environ 34%. Cela est probablement dû à l'inclusion du potentiel de polarisation des atomes composant les différentes bases.

Les sections efficaces atomique utilisées dans notre modèle sont calculées à l'aide d'une analyse relativiste aux ondes partielles de Dirac (Salvat et *al.*, 2005). Les fonctions radiales sont

déterminées à l'aide des méthodes numériques robustes. La méthode de la série de puissance de Bühring (1965) est utilisée. Cette méthode de solution présente de nombreux avantages (Salvat, 2003 ; Salvat et *al.*, 2005 ; ICRU-77 ; Stepanek et *al.*, 2003 ; Salvat and Mayol, 1991 ; Salvat and Mayol, 1993 ; Shadwick et *al.*, 1989) par rapport aux méthodes de Numerov ou de Runge – Kutta adoptées pour résoudre les équations radiales de Schrödinger.

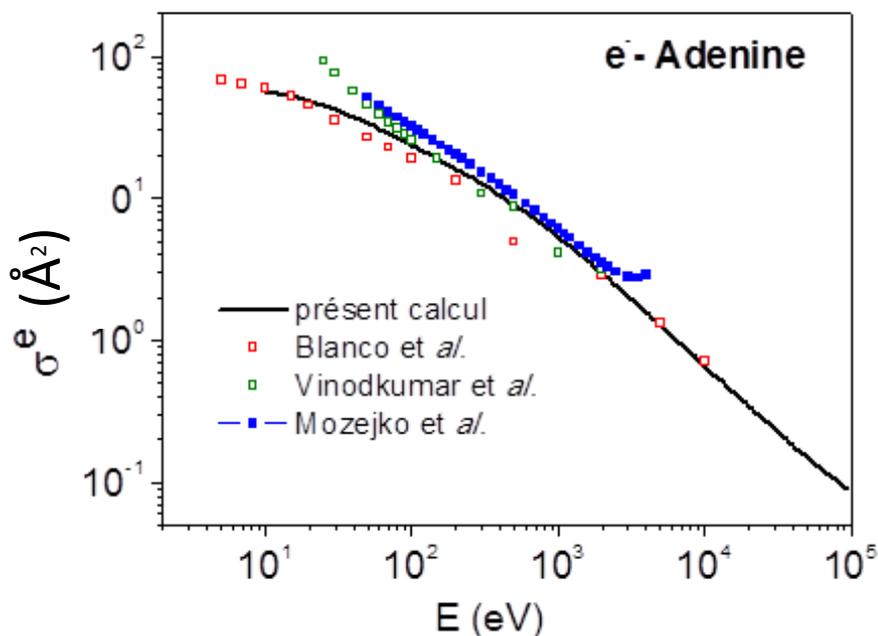
Les sections efficaces élastiques calculées de Blanco et de Garcia (2007) sont différentes de nos sections efficaces élastiques pour les électrons. Elles sont basées sur la même règle d'additivité avec correction d'écran que celle utilisée dans la présente étude, mais utilisent l'équation de Schrödinger, comme c'est mentionné avant, dans la dérivation des sections efficaces élastiques différentielles. Les courbes montrent clairement que les résultats actuels des sections efficaces élastiques pour les électrons trouvent un excellent accord avec les résultats de Blanco et de Garcia (2007) sur l'ensemble des énergies supérieures à 100 eV. Mais les résultats de SCAR de Blanco et Garcia (2007) sont beaucoup inférieures par rapport aux résultats actuels ainsi que ceux de Mozejko et Sanche (2003) pour des énergies inférieures à 100 eV. Alors que le traitement SCAR réussit partiellement à prendre en compte les corrections de l'effet d'écran géométriques pour des moyennes et grandes énergies, il ne faut pas s'attendre à des résultats fiables à très basses énergies en raison de sa nature semi-classique (Vinodkumar et *al.*, 2014). Cet accord à hautes énergies au-delà de 100 eV est attendu car l'effet du l'effet d'écran s'atténuera progressivement avec l'augmentation de l'énergie incidente. Blanco et Garcia (2007) prévoyaient des erreurs de 10% dans leurs sections efficaces totales (Vinodkumar et *al.*, 2014).

Les données de Vinodkumar et *al.* (2014) sont basées sur une approche possible pour l'estimation des sections efficaces d'excitation rotationnelle induite par les dipôles qui consiste à approximer la molécule cible par un dipôle électrique libre dans le cadre de la première approximation de Born proposée par Jain et *al.* (1986, 1987, 1988) qui utilise l'équation de Schrödinger et le potentiel sphérique de la molécule, notamment le potentiel d'échange et de polarisation. Les sections efficaces élastiques correspondantes ne sont en désaccord avec nos sections efficaces élastiques que pour les énergies inférieures à 100 eV ; A des énergies inférieures, elles sont plus élevées de nos sections efficaces élastiques et inférieurs à ceux de Mozejko et de Sanche (2003). Ce désaccord peut être attribuée à deux faits : premièrement, le chevauchement mutuel des atomes voisins est ignoré et donc les atomes internes sont partiellement masqués par les atomes extérieurs et deuxièmement, d'autres contributions telles que l'effet dipolaire et les excitations de rotation devraient être incluses. A très basses énergies,

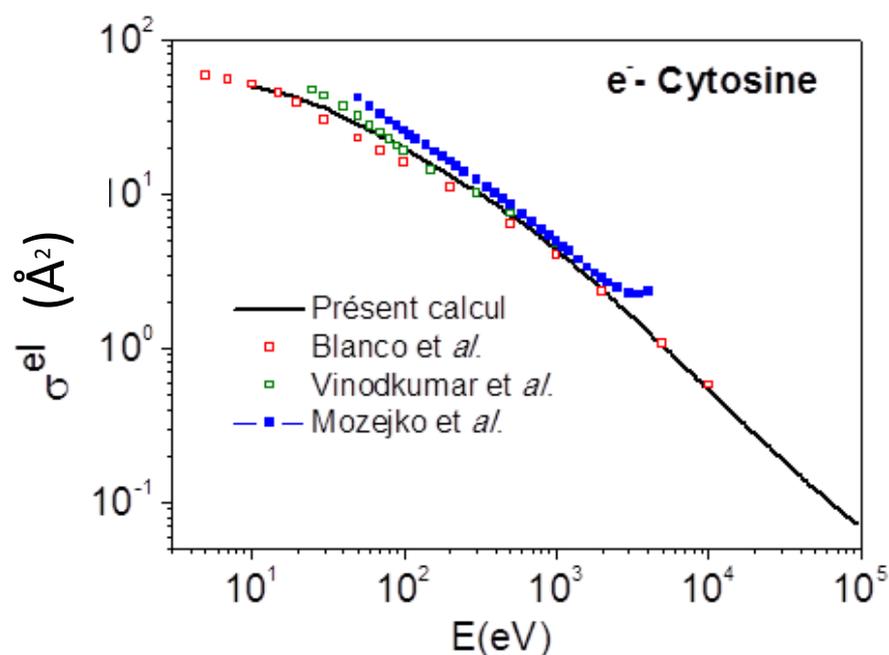
l'effet d'écran entre les atomes est important mais d'autres effets quantiques doivent être pris en compte. La méthode R-Matrix (Burke et *al.*, 2011) est plus appropriée pour quelques eV d'énergies d'incident.

La procédure développée par Blanco et Garcia est basée sur des calculs de potentiel optique en supposant une représentation atomique indépendante de la molécule. Une telle approximation n'est valable que lorsque l'énergie incidente est suffisamment élevée pour que les sections efficaces de diffusion des différents atomes n'interfèrent pas entre elles.

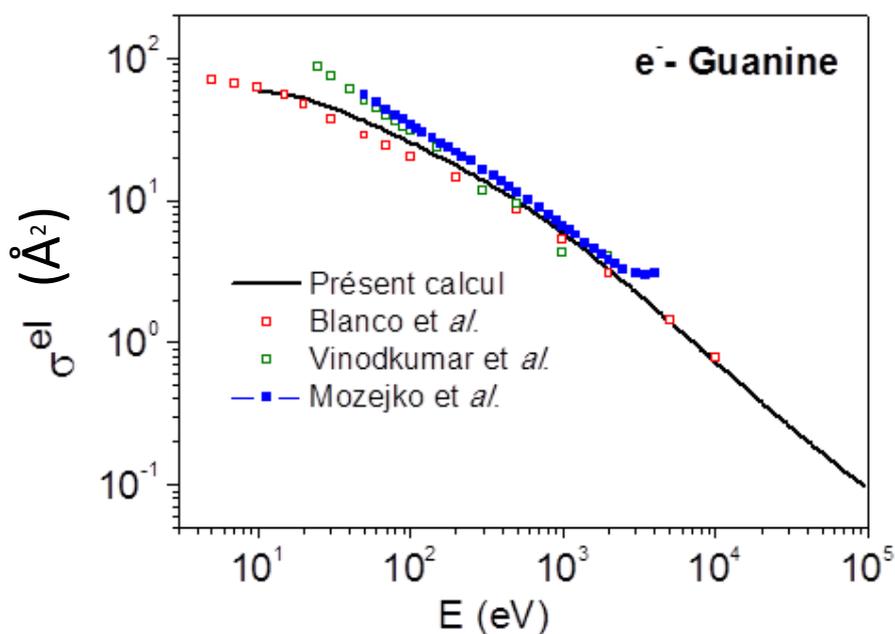
Tous les résultats ont tendance à se confondre avec les résultats actuels, révélant le fait que ces approximations ne sont efficaces que si les énergies incidentes sont faibles et que leur effet diminue progressivement avec l'augmentation de l'énergie.



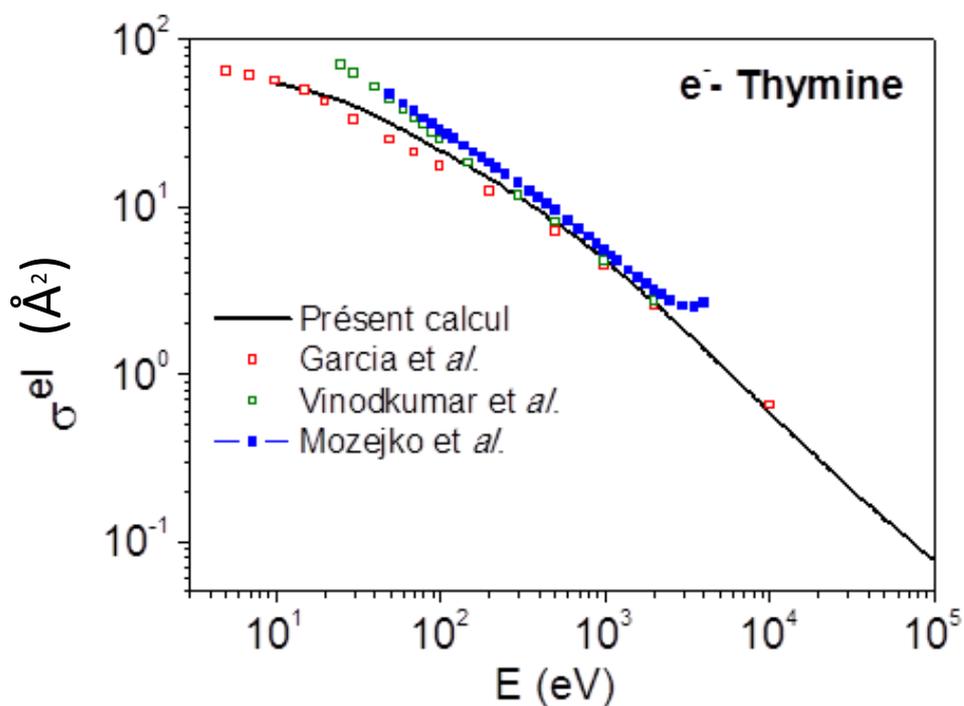
**Figure 2.2** : Sections efficaces élastiques des électrons de l'adénine comparées avec les sections efficaces élastiques des électrons de Blanco et Garcia (2007), Vinodkumar et *al.* (2014), et Mozejko et Sanche (2003).



**Figure 2.3 :** Sections efficaces élastiques des électrons de la cytosine comparées avec les sections efficaces élastiques des électrons de Blanco et Garcia (2007), Vinodkumar et al. (2014), et Mozejko et Sanche (2003)

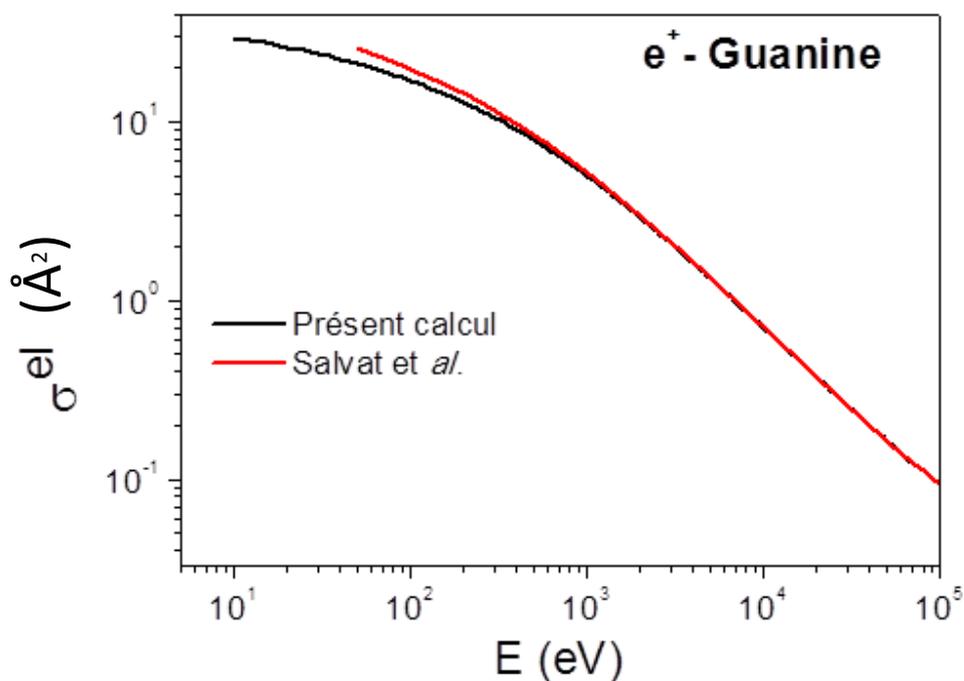


**Figure 2.4 :** Sections efficaces élastiques des électrons de la guanine comparées avec les sections efficaces élastiques des électrons de Blanco et Garcia (2007), Vinodkumar et al. (2014), et Mozejko et Sanche (2003)



**Figure 2.5 :** Sections efficaces élastiques des électrons de la thymine comparées avec les sections efficaces élastiques des électrons Blanco et Garcia (2007), Vinodkumar et *al.* (2014), et Mozejko et Sanche (2003)

Pour les positrons, l'inclusion de l'effet de corrélation de polarisation atomique a augmenté considérablement la section efficace élastique de la molécule ; par conséquent, seul le potentiel statique d'interaction est pris en compte. Les résultats concernant les sections efficaces élastiques du positron (10 eV à 100 keV) sont illustrés à la figure 2.6.



**Figure 2.6 :** Présents sections efficaces élastiques des positrons de la guanine comparée avec la base de données PENELOPE de Salvat et *al.* (2014)

Dans la figure de 2.6, notre modélisation des section efficaces élastiques des positrons peut être considérée comme une correction de la méthode IAM-SCAR dans les références (Blanco et Garcia, 2004, 2009 ; Blanco et *al.*, 2013). Un comportement similaire peut être trouvé pour les positrons bien que dans ce cas, il n'existe pas ni des données théoriques ou expérimentales concernant les bases d'ADN. Pour la guanine, on a effectué un calcul monte Carlo PENELOPE. La courbe montre clairement que les résultats actuels des sections efficaces élastiques pour les positrons trouvent un excellent accord avec le calcul PENELOPE au-delà de 100 eV.

En ce qui concerne nos résultats de positrons pour les composants d'ADN et en absence de données théoriques et expérimentales, nous nous contentons de présenter les données de sections efficaces élastiques sous forme de tableau. Pour cela, les données de sections efficaces élastiques de l'adénine, la thymine, la guanine, la cytosine, le désoxyribose et l'acide phosphorique pour des énergies incidentes de positrons comprises entre 10 et 100 keV sont présentées dans le tableau 2.1.

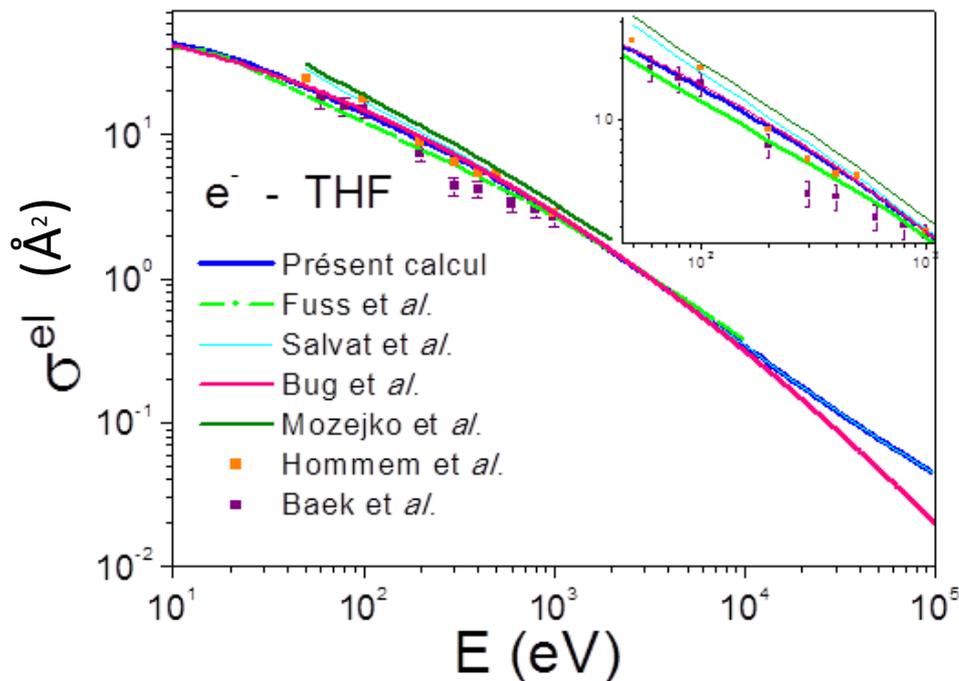
**Tableau 2.1** : Sections efficaces élastiques des positrons pour les composants d'ADN dans la plage d'énergie 10 eV à 100 keV

E(eV)	Adénine	Cytosine	Guanine	Thymine	Désoxyribose	Acide phosphorique
10	27.819	23.082	29.595	25.892	27.364	15.969
20	24.693	20.385	26.320	22.874	24.046	14.136
30	22.631	18.618	24.156	20.893	21.870	12.957
50	19.853	16.255	21.236	18.242	18.976	11.399
70	17.951	14.653	19.233	16.443	17.029	10.350
90	16.514	13.448	17.715	15.090	15.577	9.564
100	15.910	12.944	17.077	14.524	14.973	9.235
150	13.598	11.026	14.631	12.370	12.693	7.983
200	11.991	9.704	12.927	10.886	9.076	7.115
300	9.821	7.930	10.619	8.896	9.076	5.940
500	7.335	5.913	7.965	6.635	6.760	4.576
700	5.904	4.757	6.428	5.341	5.442	3.774
900	4.958	3.996	5.410	4.487	4.575	3.233
1000	4.595	3.703	5.017	4.159	4.242	3.021
2000	2.678	2.160	2.938	2.429	2.484	1.864
3000	1.902	1.535	2.091	1.728	1.769	1.368
4000	1.478	1.194	1.628	1.344	1.378	1.086
5000	1.211	0.978	1.335	1.102	1.131	0.903
7000	0.892	0.721	0.984	0.8125	0.834	0.679
9000	0.708	0.572	0.782	0.6452	0.663	0.546
10000	0.642	0.519	0.709	0.585	0.602	0.498
20000	0.338	0.274	0.374	0.309	0.318	0.269
30000	0.234	0.189	0.259	0.213	0.220	0.188
40000	0.181	0.146	0.200	0.165	0.170	0.146
50000	0.149	0.121	0.165	0.136	0.140	0.121
70000	0.112	0.0910	0.124	0.103	0.106	0.092
90000	0.0920	0.0745	0.102	0.0841	0.087	0.075
1000000	0.084	0.068	0.097	0.077	0.080	0.069

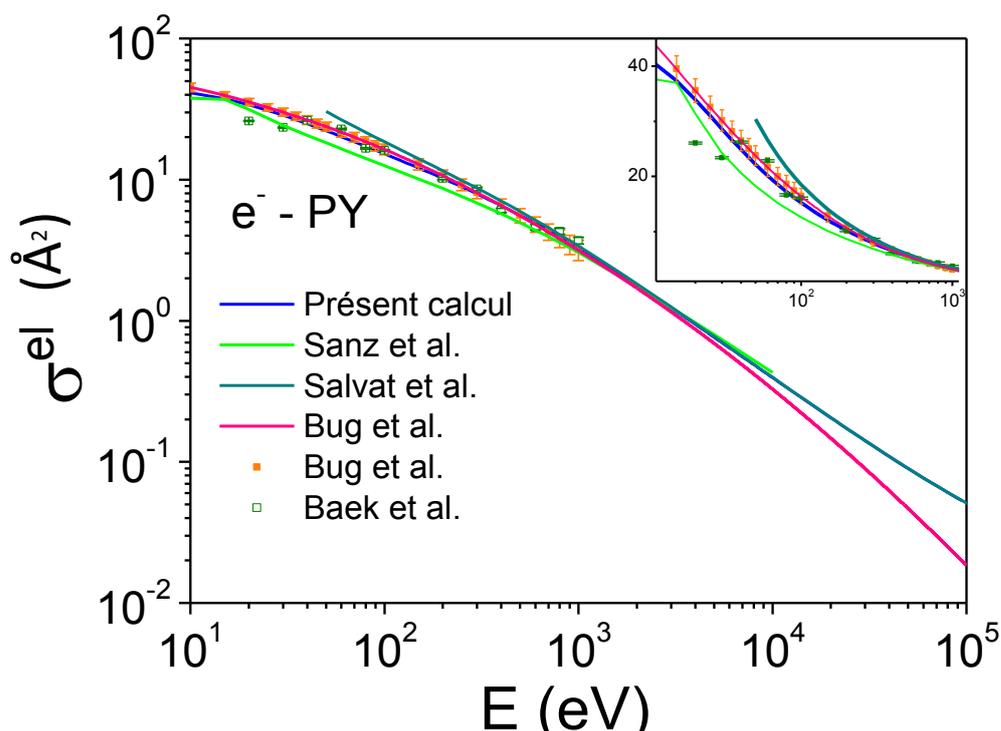
## 4.2 Section efficace élastique de collision des électrons et des positrons avec le THF et la PY

La section efficace incluant l'échange et le potentiel d'interaction de polarisation dans chaque atome est plus élevée que la section efficace incluant l'échange et sans potentiel de polarisation. Des effets similaires ont été notés pour le cas de la PY. Afin d'évaluer la validité de l'effet du potentiel d'interaction, une comparaison avec les sections efficaces élastiques expérimentales est nécessaire.

Dans les figures 2.7 et 2.8, nous montrons des comparaisons de nos sections efficaces des collisions d'électrons du THF et du PY avec les données théoriques et expérimentales disponibles dans la littérature. Il est à noter que les figures 2.7 et 2.8, en particulier le graphique incrusté dans les deux courbes, présentent un très bon accord avec les données mesurées de Bug *et al.* (2017) et Bug (2014). Nous avons utilisé pour le calcul des sections efficaces élastiques atomiques où le potentiel d'interaction inclue le potentiel d'échange ou le potentiel d'échange et de polarisation.



**Figure 2.7 :** Sections efficaces élastiques des électrons du THF comparées avec les sections efficaces élastiques des électrons de Fuss *et al.* (2009), base de données PENELOPE de Salvat *et al.* (2014), Bug *et al.* (2017), Mozejko *et al.* (2005), Hommem *et al.* (2009) et Baek *et al.* (2012).



**Figure 2.8 :** Sections efficaces élastiques des électrons du pyrimidine comparées avec les sections efficaces élastiques des électrons de Sanz (Sanz 2014), base de données PENELOPE de Salvat et *al.* (2014), Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) et Baek et *al.* (2014).

Les résultats des sections efficaces élastiques électroniques du THF sont présentés sur la figure 2.7. Les différents ensembles de données résultent de l'inclusion de différents potentiels d'interaction dans le présent modèle. Pour les énergies d'électrons supérieures à quelques keV, l'effet d'échange et de polarisation n'a pas de sens. L'effet est plus prononcé lorsque l'énergie électronique diminue à partir de 1 keV.

Pour des énergies d'électrons incidents jusqu'à 3 keV, les résultats actuels diffèrent de moins de 10 % par rapport aux données de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) ; Pour des énergies plus faibles, l'effet d'écran entre les atomes de la molécule est très prononcé et conduit à un meilleur accord avec les données mesurées dans les références Bug et *al.* (2017) et Bug (2014). Les données des sections efficaces élastiques de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) représentent l'intégration des sections élastiques différentielle expérimentales jusqu'à 1 keV, ainsi que l'interpolation et l'extrapolation à des énergies de l'ordre des keV basées sur le modèle des ondes partielles ; Ils diffèrent dans la procédure d'intégration des données mesurées de Baek et *al.* (2014).

Pour des énergies plus élevées, notre modèle se réduit à un modèle simple des atomes indépendant car l'effet d'écran n'a aucun sens et diminue avec l'augmentation des énergies incidentes. En conséquence, la modélisation des sections efficaces élastiques reposera sur la validité des sections efficaces élastiques atomiques à des énergies incidentes élevées. Notons qu'à partir d'une énergie incidente de 1 keV, nos résultats diffèrent de moins de 4% par rapport aux données de PENELOPE (Salvat et *al.*, 2015) résultant de l'analyse des ondes partielles de Dirac pour le cas atomique et au moyen d'une approximation utilisant la somme incohérente d'intensités de diffusion dans le cas des molécules. A des énergies plus élevées, les données de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) sont basées sur la section efficace de Rutherford examinée pour leur procédure d'extrapolation.

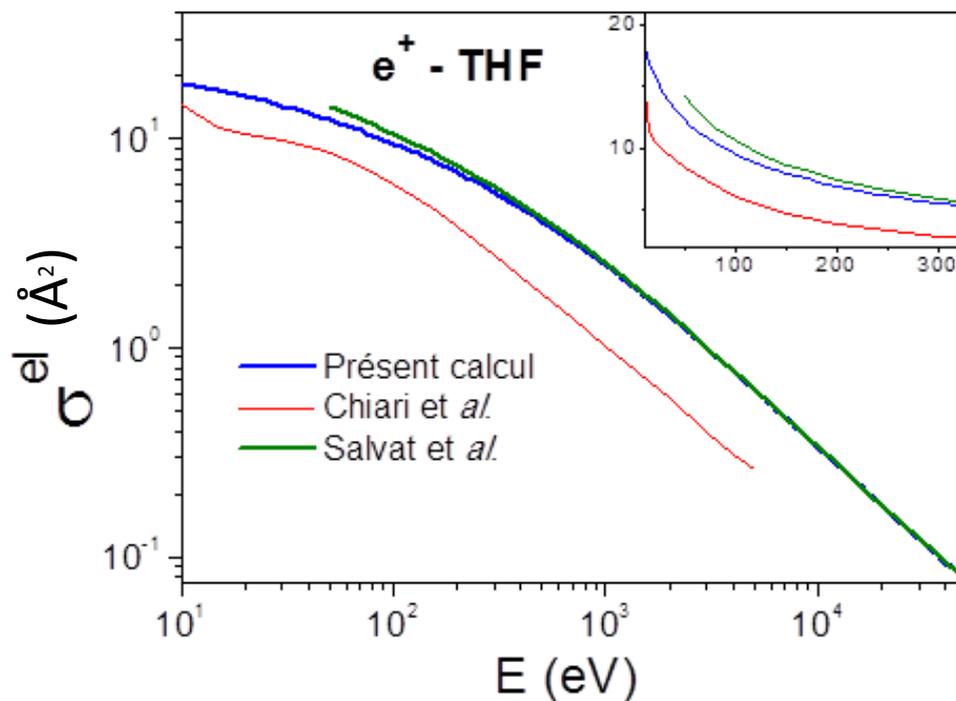
Dans la figure 2.8, pour une énergie incidente comprise entre 50 eV et 1 keV, nos résultats diffèrent de moins de 15% par rapport aux données de Homem et *al.* (2009) ; à quelques centaines d'eV, ils diffèrent jusqu'à 50% des données Baek et *al.* (2012). Les données de Mozejko et Sanche (2005) sont presque 40% plus élevées de toutes les données présentées sur la figure 2.8. Les données théoriques de Fuss et *al.* (2009) diffèrent de nos résultats et les données Bug et *al.* (2017) pour les énergies incidentes d'électrons jusqu'à 1 keV des deux molécules. La différence est significative pour la PY.

Il est important de noter que les données Fuss et *al.* (2009), tabulées jusqu'à 1 keV, sont calculées à l'aide de la même règle d'additivité à correction d'écran que celle utilisée dans la présente étude (Sanz, 2014 ; Blanco et Garcia, 2004, 2007, 2009 ; Blanco et *al.*, 2013 ; Fuss et *al.*, 2013). Le calcul des sections efficaces, y compris la règle d'additivité avec correction d'écran, sont donnés en détail par Blanco et García dans les références (Blanco et Garcia, 2004, 2007). La section efficace différentielle est calculée à partir de l'équation de Schrödinger puis modifiée en fonction de l'estimation de la pertinence de la diffusion d'électrons avec des déviations appréciables et une directionnalité forte. En plus de l'effet d'écran, à énergie incidente très basse, l'effet dipolaire et / ou les excitations rotationnelles sont inclus (Blanco et Garcia, 2007, 2009 ; Blanco et *al.*, 2013 ; Fuss, et *al.*, 2013). Pour les énergies inférieures à 200 eV, nous suggérons d'utiliser des sections efficaces (Bug et *al.*, 2017) mesurées.

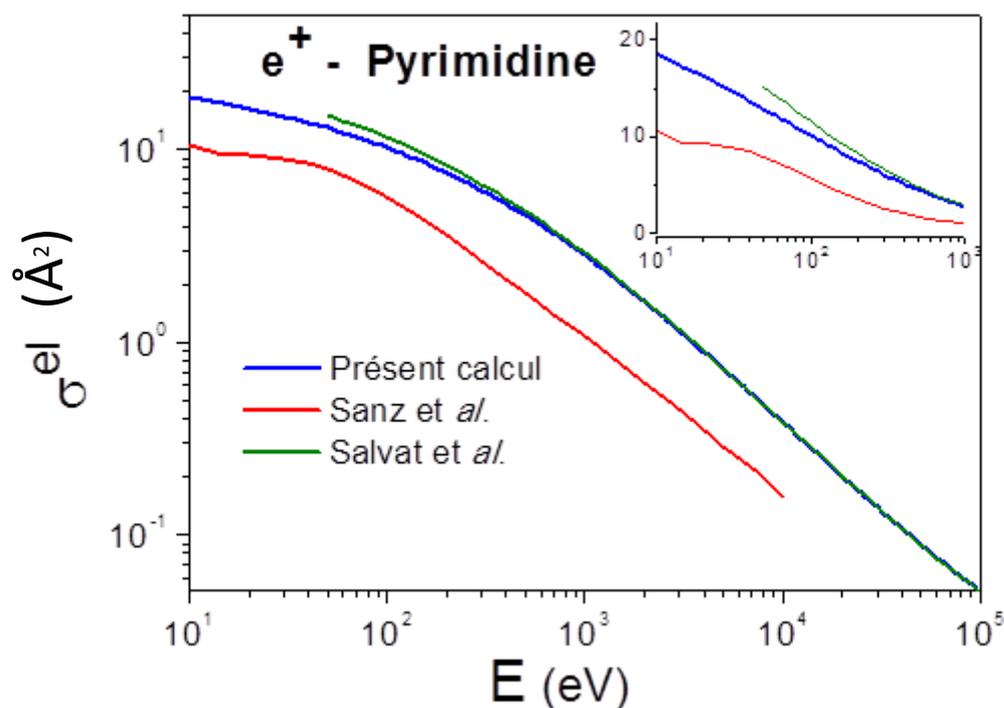
Comme mentionné ci-dessus, la section efficace atomique utilisée dans notre modèle pour les biomolécules est calculée à l'aide d'une analyse relativiste à ondes partielles de Dirac (Salvat et *al.*, 2005 ; Bug et *al.*, 2017 ; Bug, 2014 ; Salvat et *al.*, 2015 ; Homem et *al.*, 2009 ; Baek et *al.*, 2012 ; Mozejko and Sanche, 2005 ; Fuss et *al.*, 2009 ; ICRU- 77). Les fonctions radiales sont déterminées à l'aide des méthodes numériques robustes. La méthode de Bühring

(Bühring, 1965) est utilisée. Cette méthode présente de nombreux avantages (Salvat, 2003, Salvat et al., 2005 ; ICRU- 77 ; Stepanek et al., 2003 ; Salvat and Mayol, 1991 ; Salvat and Mayol 1993, Shadwick et al., 1989) par rapport aux méthodes de Numerov ou de Runge – Kutta adoptées pour résoudre les équations radiales de Schrödinger.

Dans les figures de 2.9 et 2.10, nos sections efficaces élastiques des positrons sont comparés aux données de Chiari et al. (2013) pour le THF et les données de Sanz et al. (2013) pour la PY. Les sections efficaces élastiques utilisés dans la base de données PENELOPE (Salvat et al., 2014) sont également incluses.



**Figure 2.9** : Présents sections efficaces élastiques des positrons du THF. À titre de comparaison, les données de Chiari et al. (2013) et les données PENELOPE de Salvat et al. (2014) sont incluses.



**Figure 2.10 :** Présents sections efficaces élastiques des positrons de la pyrimidine. À titre de comparaison les données de Sanz et *al.* (2013) et les données de PENELOPE (Salvat et *al.*, 2014) sont incluses.

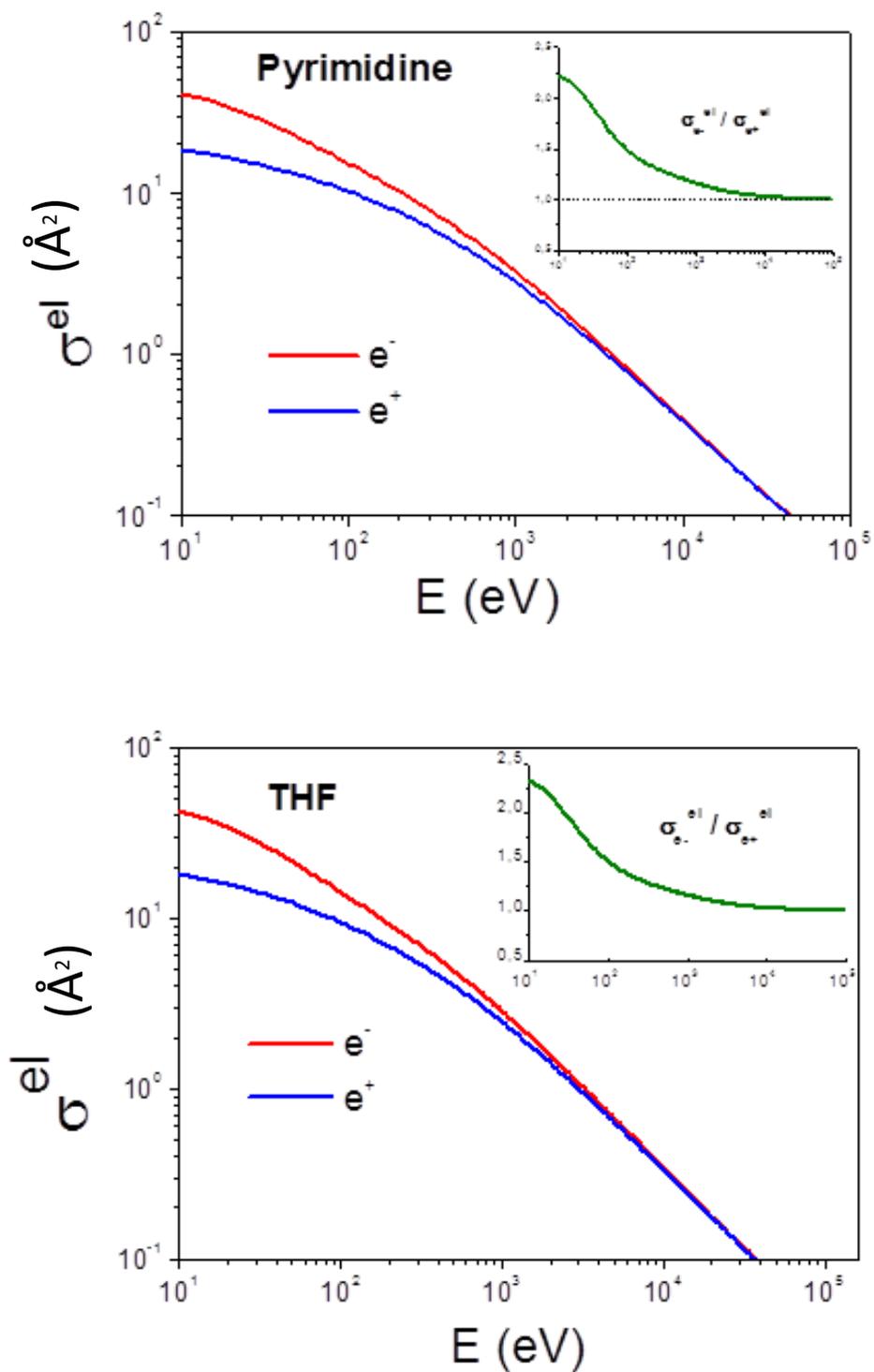
Il est important de noter que, dans la gamme d'énergie actuelle, les sections efficaces élastiques des positrons sont très rares. Quelques section efficaces élastiques de positrons issus de bases nucléiques sont publiés dans des gammes d'énergie limitées (Zecca et *al.*, 1987, 1991, 1992, 2005, 2010, 2011a, 2011b ; Chiari, 2012, 2013b, 2016). À une énergie incidente de 50 eV, nos sections efficaces élastiques diffèrent de 55% de ceux utilisées dans la base de données PENELOPE (Salvat et *al.*, 2015).

Cette différence diminue rapidement avec l'augmentation de l'énergie des positrons et atteint presque 30% pour les deux molécules à 300 eV. Aux énergies supérieures à 1 keV, la différence est inférieure à 5%. Au contraire, comme indiqué sur les figures 2.9 et 2.10, les présents résultats s'écartent considérablement des données de Chiari et *al.* (2013) pour le THF et les données de Sanz (2014) et Sanz et *al.* (2013) pour la pyrimidine. Les données de Chiari et *al.* (2013), Sanz (2014) et Sanz et *al.* (2013) utilisent le modèle de règle d'additivité avec correction d'écran décrit dans les références de Blanco et García (2004, 2007) appliqué sur la diffusion des positrons.

Dans la plage d'énergie 300 eV à 5 keV, les données de Chiari et *al.* (2013) concernant le THF diffère considérablement des résultats actuels et de ceux utilisés dans la base de données PENELOPE (Salvat et *al.*, 2015). Comme représenté sur les figures 2.9 et 2.10, pour des énergies allant jusqu'à 1 keV, nos données diffèrent des données PENELOPE qui sont basées sur le modèle de diffusion incohérente sans diffusion d'interférence entre les différents atomes de la molécule ; cet effet se traduit dans nos résultats par l'inclusion de l'effet d'écran.

Pour les données de Sanz et *al.* (2013) concernant la pyrimidine, la différence est très importante même à une énergie incidente de 10 keV. À des énergies incidentes élevées, les effets tels que l'effet d'écran entre les atomes, les effets dipolaires et les excitations rotationnelles sont négligeables ; le potentiel statique dans le potentiel d'interaction est la seule partie dominante prise en compte dans la solution de la fonction radiale. Par conséquent, les sections efficaces élastiques moléculaire se réduit au simple modèle atomique indépendant tel que confirmé par l'accord trouvé aux figures 2.9 et 2.10 lors de la comparaison de nos données avec les données PENELOPE. Ainsi, notre modélisation des sections efficaces élastiques du positron peut être considérée comme une correction de IAM - SCAR des références (Chiari et *al.*, 2013 ; Sanz, 2014 ; Sanz et *al.*, 2013).

D'autre part, ces grandes différences montrées sur les figures 2.9 et 2.10 ne sont pas expliqués par le fait que les données de Chiari et *al.* (2013), Sanz (2014) et Sanz et *al.* (2013) sont basés sur l'utilisation de l'équation radiale de Schrödinger et nos résultats sur l'équation relativiste de Dirac. La même remarque a été signalée par Bug et *al.* (2017) concernant la section efficace totale des positrons de Chiari et *al.* (2013) pour le THF. Cependant le rapport des sections efficaces élastiques électron / positron est une quantité clé utilisée pour évaluer quantitativement la validité des sections efficaces élastiques calculées comme le montre la figure 2.11.



**Figure 2.11 :** Présents sections efficaces élastiques des électrons et des positrons du THF et de la pyrimidine. Le graphique incrusté représente le rapport entre sections efficaces élastiques des électrons et des positrons compris entre 10eV et 100 keV.

Aux faibles énergies incidentes, les sections efficaces élastiques des électrons sont plus élevées que celles des positrons pour le THF et la pyrimidine. Pour des énergies allant jusqu'à 2 keV, le rapport des sections efficaces élastiques des électrons et des positrons, indiqué dans le graphique incrusté dans la figure 2.11, augmente considérablement avec la diminution des énergies incidentes.

À 2 keV, une différence de 9% est notée par rapport au THF et de 10% pour la pyrimidine. À 5 keV, il est de 5% et moins de 2% à 10 keV pour les deux molécules. Pour des énergies incidentes croissantes, ce rapport diminue et tend à l'unité. A hautes énergies, puisque les effets de l'échange et d'autres effet à faible énergie sont négligeables, les sections efficaces élastiques des électrons et des positrons sont tout à fait similaires ; par conséquent, il est évident que la valeur du rapport tend à l'unité.

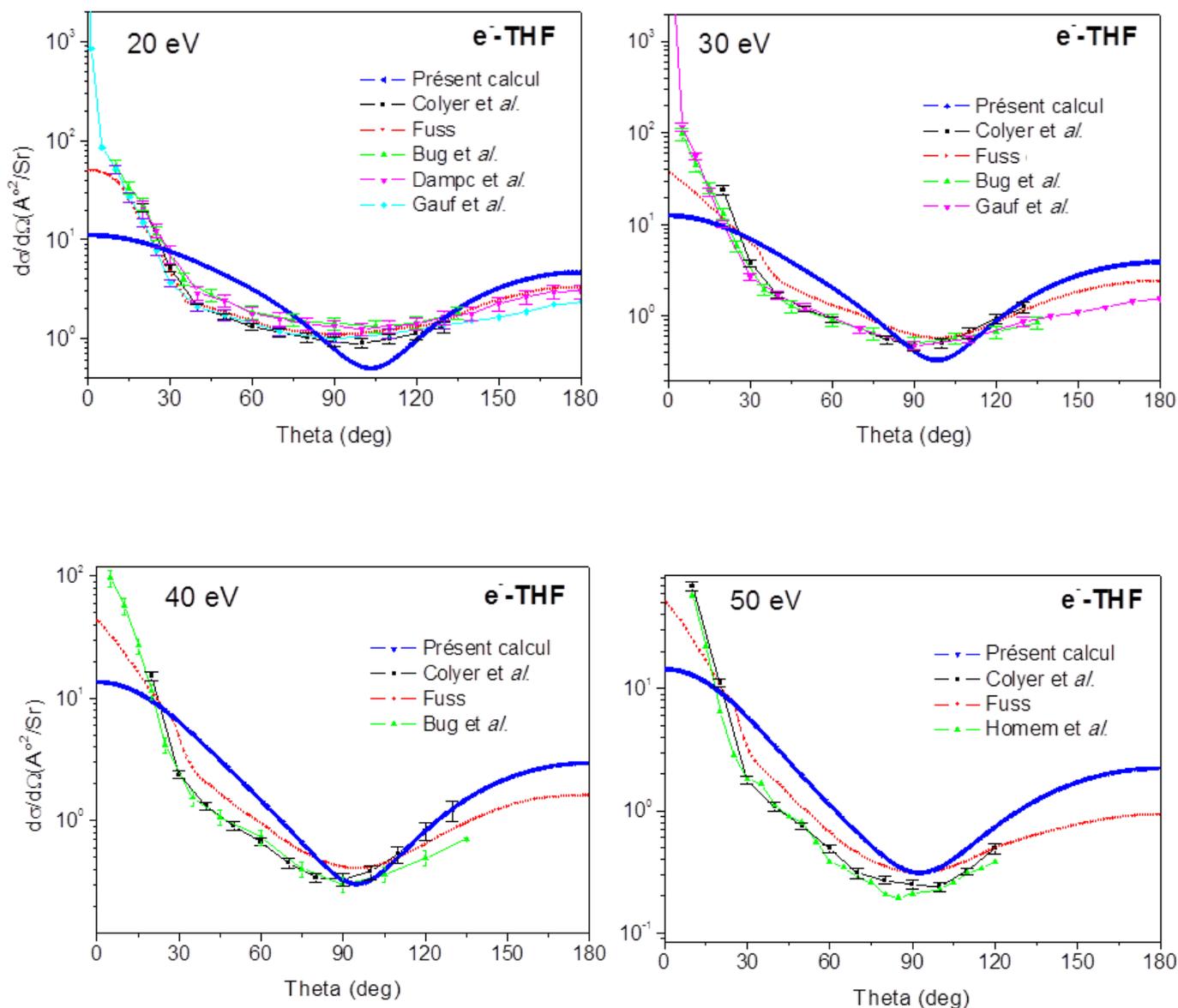
À l'aide de la Figure 2.11, l'effet du potentiel d'échange d'électrons n'est pas dominant dans le rapport des sections efficaces élastiques des électrons et des positrons. La principale différence peut être expliquée par la différence entre le potentiel statique utilisé dans le potentiel d'interaction de l'électron et du positron. En utilisant les données de Sanz (2014) et Sanz *et al.*, (2013) pour la pyrimidine, le rapport est presque élevé dans toute la plage d'énergie considérée dans leur étude, allant de 1 eV à 10 keV ; il est 2,75 à 5 keV et 2,68 à 10 keV. Dans le rapport ICRU 77 (ICRU-77), pour tous les éléments du tableau périodique, ce rapport décroît avec l'énergie et tend vers l'unité aux énergies incidentes de l'ordre de quelques keV. Pour une énergie incidente de 10 keV (ICRU-77), il est de 1,06 pour Au (matériau à haute Z), 1,05 pour Al et 1,02 pour les atomes de C (matériaux à faible Z) ; dans notre cas, il est de 1,02 pour le THF et de 1,03 pour le PY.

#### 4.3 Section efficace élastique différentielle de collision des électrons avec le THF et la PY

Dans les figures 2.12 et 2.13, nous présentons nos sections efficaces élastiques différentielles pour la diffusion d'électrons par le THF et la PY dans la plage d'énergie incidente de 10 eV à 10 KeV, ils sont également représentés dans les tableaux 2.2 et 2.3. Nos sections efficaces élastiques différentielles sont calculés en utilisant des sections efficaces élastiques différentielles atomiques résultant de l'équation relativiste de Dirac. Les sections efficaces élastiques différentielles théoriques de Fuss (2013) et Fuss *et al.* (2009) dans la plage d'énergie de 50 à 1 KeV sont également présentés à titre de comparaison.

## 4.3.1 Tétrahydrofurane

Pour le THF, la comparaison est faite avec les sections efficaces élastiques différentielles des électrons de Fuss et *al.* (2009), Bug (2014), Colyer et *al.* (2007), Dampc et *al.* (2007), Gauf et *al.* (2012) et Homem et *al.* (2009).



**Figure 2.12 :** Sections efficaces élastiques différentielles des électrons du THF comparées avec les sections efficaces élastiques différentielles des électrons de Fuss et *al.* (2009), Bug (2014), Colyer et *al.* (2007), Dampc et *al.* (2007), Gauf et *al.* (2012) et Homem et *al.* (2009).

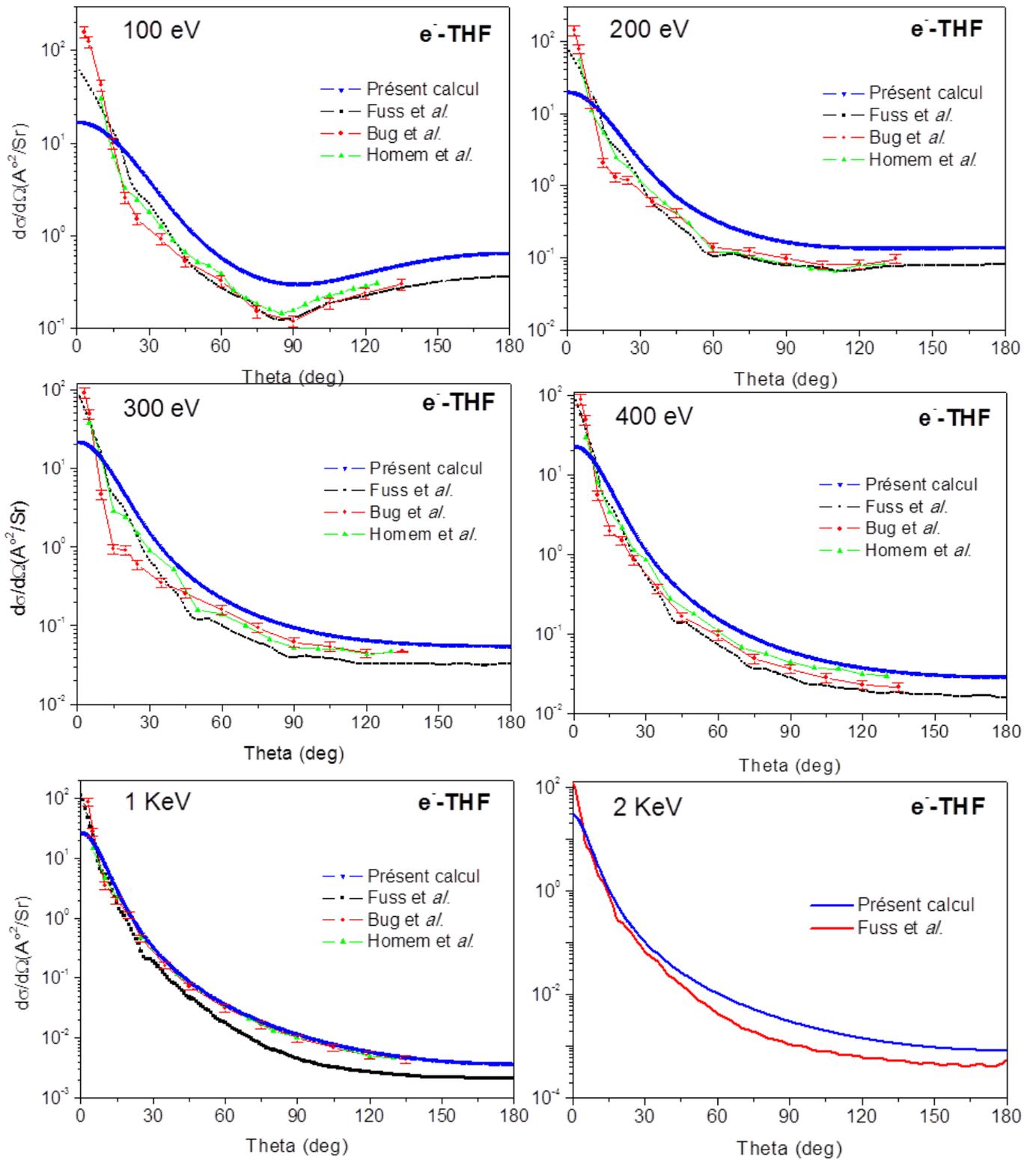


Figure 2.12 : Suite

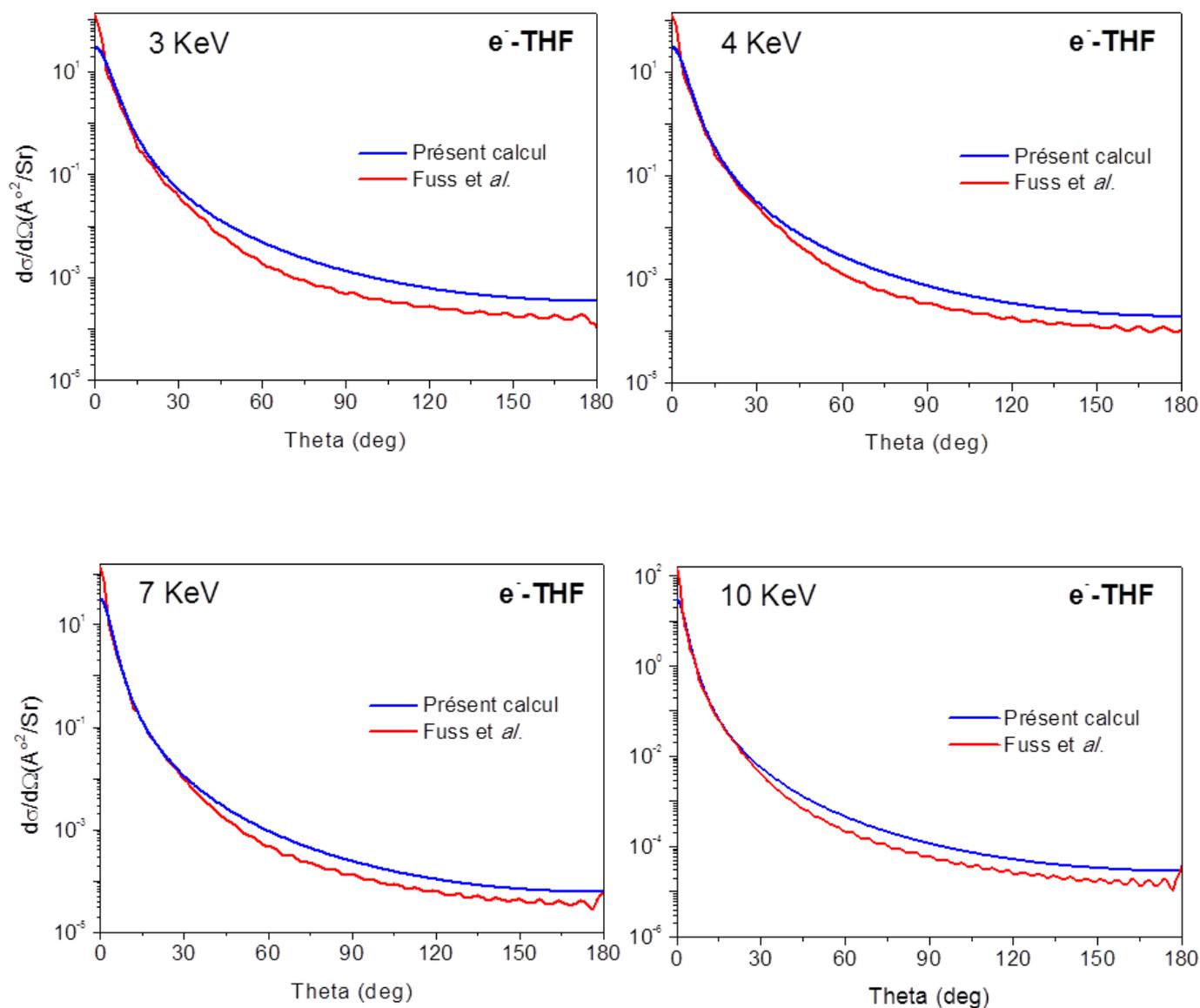


Figure 2.12 : Suite

À des énergies inférieures à 50 eV, il existe un désaccord important, entre nos données et celles présentées sur les figures à des angles de diffusion inférieurs à 90°. À des angles plus grands, leurs résultats calculés concordent qualitativement avec nos données. Cependant, ce désaccord peut être attribué d'une part à l'effet dipolaire et les excitations de rotation ou probablement en raison de la négligence des effets d'absorption bien que les effets d'absorption puissent influencer sensiblement sur les sections efficaces élastiques différentielles pour la diffusion élastique électron-molécule dans les énergies supérieures à 30 eV.

À mesure que, quand l'énergie du projectile diminue, les excitations électroniques de vibration et de rotation, ainsi que les processus de transfert de charge et les processus élastiques, deviennent de plus en plus importants par rapport aux processus d'ionisation. L'excitation rotationnelle dépend du moment dipolaire de la molécule et elle est dominante si le moment dipolaire est grand. Souvent, la contribution des excitations rotationnelles est incluse dans le processus de diffusion élastique pour pouvoir être comparée aux données expérimentales, où les excitations rotationnelles ne peuvent pas être résolues. Et d'autre part, pour des énergies faibles, les sections efficaces atomiques sont suffisamment grandes pour se chevaucher, ce qui entraîne une surestimation des sections efficaces moléculaires.

À 100 et 200 eV, il existe un accord général entre nos sections efficaces élastiques différentielles et ceux de Fuss et *al.* (2009), Bug (2014), Bug et *al.*, (2017) et Homem et *al.* (2009). Les sections efficaces élastiques différentielles calculées à l'aide de l'IAM-SCAR sont en accord qualitatif avec nos données. À 200 eV, un accord quantitatif raisonnable est également observé pour des angles de diffusion supérieurs à 20 °. Cependant, aux deux énergies, le calcul IAM-SCAR surestime considérablement les sections efficaces élastiques différentielles à petits angles. À des angles plus grands, leurs résultats concordent qualitativement avec nos données.

À 300 et 400 eV, nos sections efficaces élastiques différentielles s'accorde assez bien, à la fois qualitativement et quantitativement, avec les sections efficaces élastiques différentielles expérimentales de Homem et *al.* (2009) et qualitativement avec les sections efficaces élastiques différentielles expérimentales de Bug (2014) et Bug et *al.*, (2017) pour des angles de diffusion supérieurs à 20 °. Bien que les sections efficaces élastiques différentielles de Fuss et *al.*, (2009) soient quantitativement plus faibles et se situent systématiquement en dessous.

À 1 KeV, un accord quantitatif et qualitatif est observé pour tous les angles de diffusion sauf que certaines divergences ont été détectées pour des angles plus petits. À des énergies incidentes aussi élevées, on constate un très bon accord, à la fois de forme et de magnitude, entre la théorie et l'expérience, sauf aux angles de diffusion proches de la direction, ceci est probablement due à la manière dont la contribution des effets de polarisation est prise en compte.

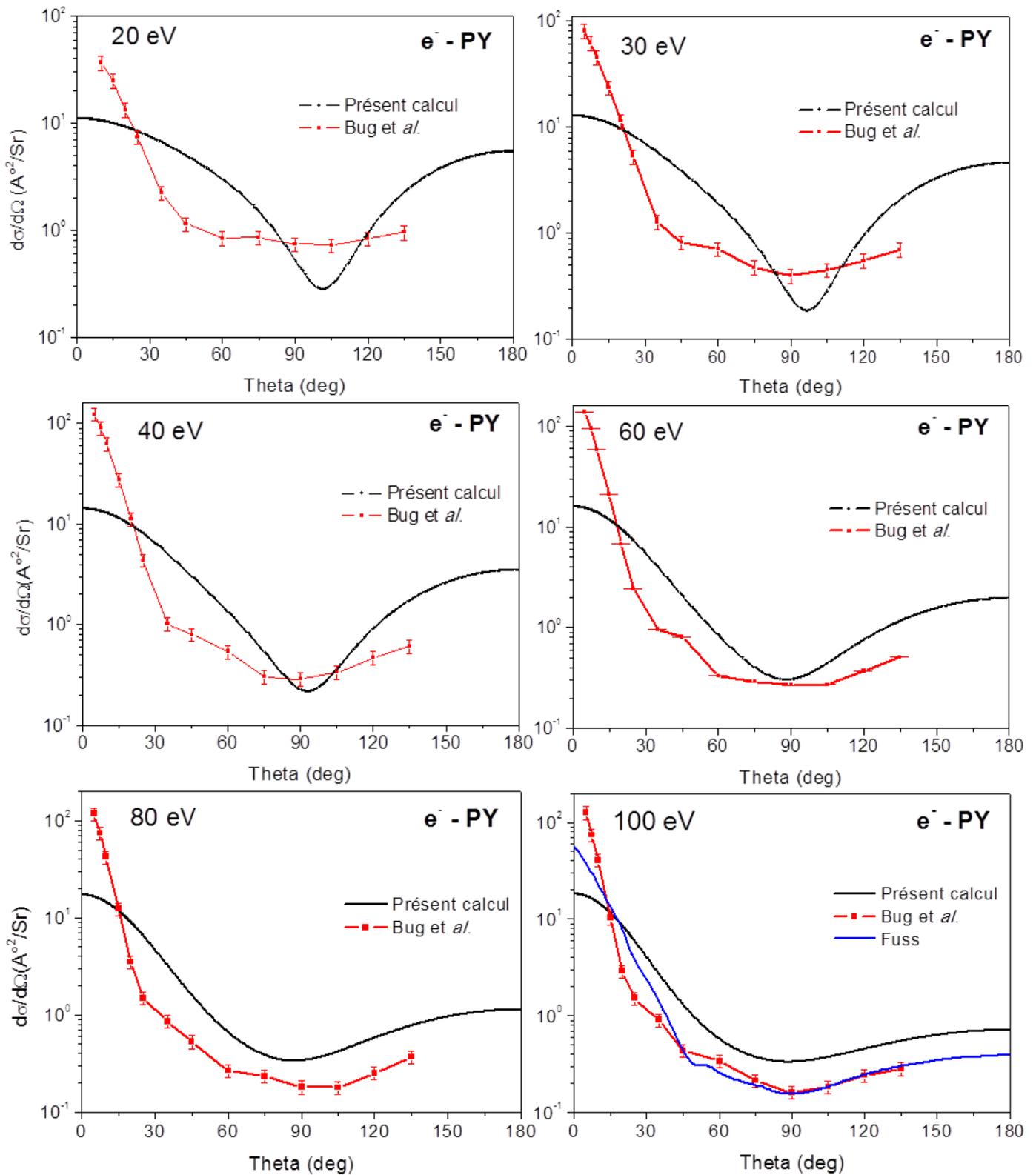
À 2 KeV il n'y a pas de données expérimentales dans la littérature. Par conséquent, la comparaison est faite uniquement avec les résultats calculés Fuss et *al.* (2009). Les sections efficaces élastiques différentielles théoriques de Fuss et *al.* (2009) se situent systématiquement

en dessous de nos données dans toute la plage angulaire. En outre, la forme de leur sections efficaces élastiques différentielles montre des oscillations, contrairement à celles observées dans nos données. De telles structures oscillatoires dans les sections efficaces élastiques différentielles sont probablement dues à la diffraction des électrons par les noyaux.

Encore une fois, les sections efficaces élastiques différentielles IAM-SCAR sont en accord qualitatif avec nos données. Au-delà de 2 KeV jusqu'à 10 KeV, les résultats de Fuss et *al.* (2009) calculés concordent qualitativement avec nos données. Ce comportement a été vérifié en supprimant la contribution d'absorption du potentiel optique IAM-SCAR : lorsque seule la diffusion élastique est prise en compte, les sections efficaces de l'IAM-SCAR augmentent considérablement et les deux méthodes tendent à converger vers les mêmes valeurs pour des énergies croissantes, ce qui peut être le cas.

### 4.3.2 Pyrimidine

Pour la pyrimidine, la comparaison est faite uniquement avec les résultats théoriques de Fuss (2013) et les résultats expérimentaux de Bug (2014), Bug et *al.*, (2017) et de Baek et *al.* (2014). De la même manière que le THF, aux basses énergies inférieures à 60 eV, il y a un faible accord entre l'approche IAM-SCAR et les autres travaux expérimentaux et théoriques comme prévu. Pour les molécules polaires, les rotations peuvent toutefois représenter une contribution majeure à la diffusion totale des sections efficaces.



**Figure 2.13 :** Sections efficaces élastiques différentielles des électrons du pyrimidine, comparées avec les sections efficaces élastiques différentielles des électrons de Fuss et al. (2013), Bug et al. (2017), Baek et al. (2014).

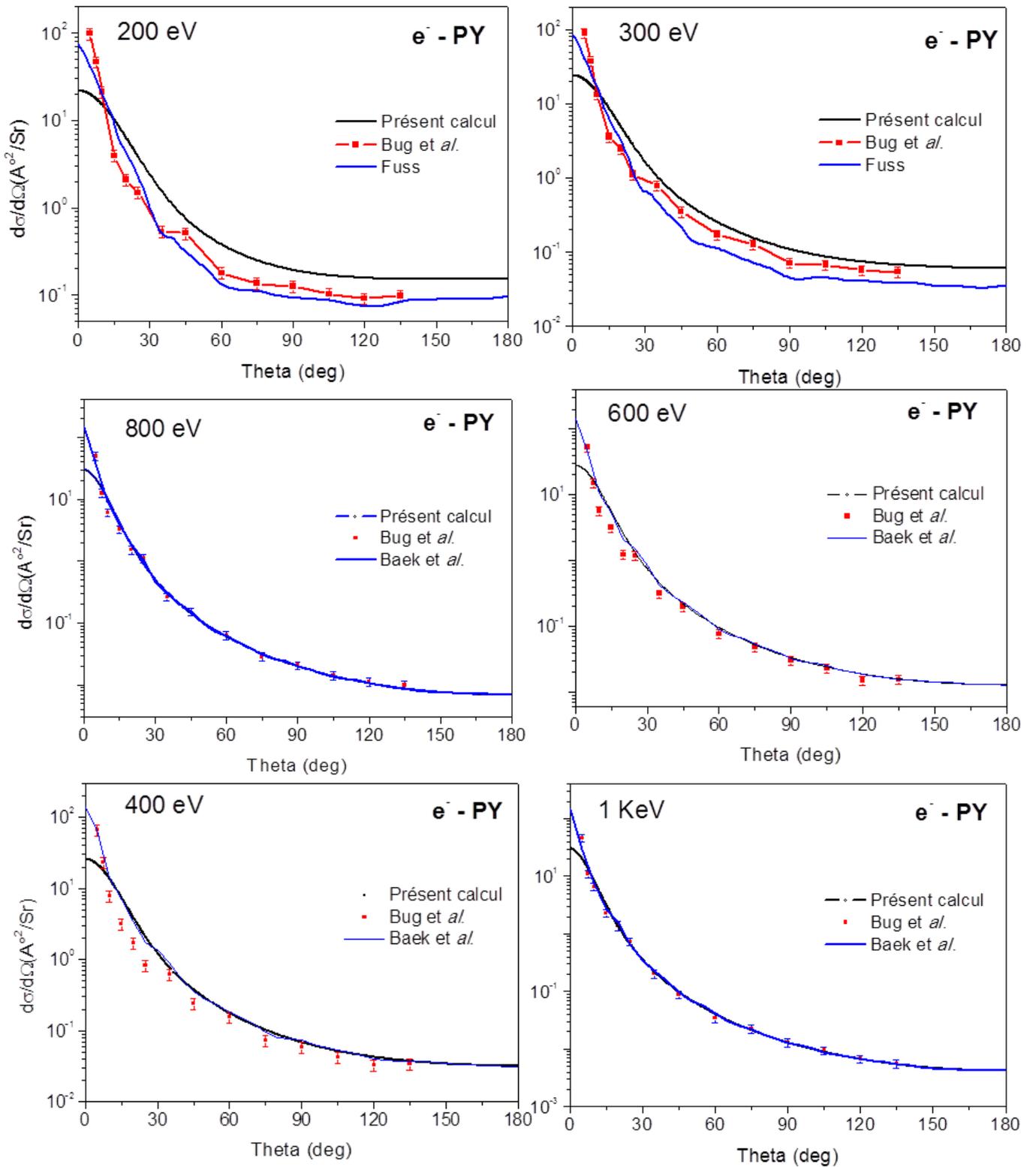


Figure 2.13 : Suite

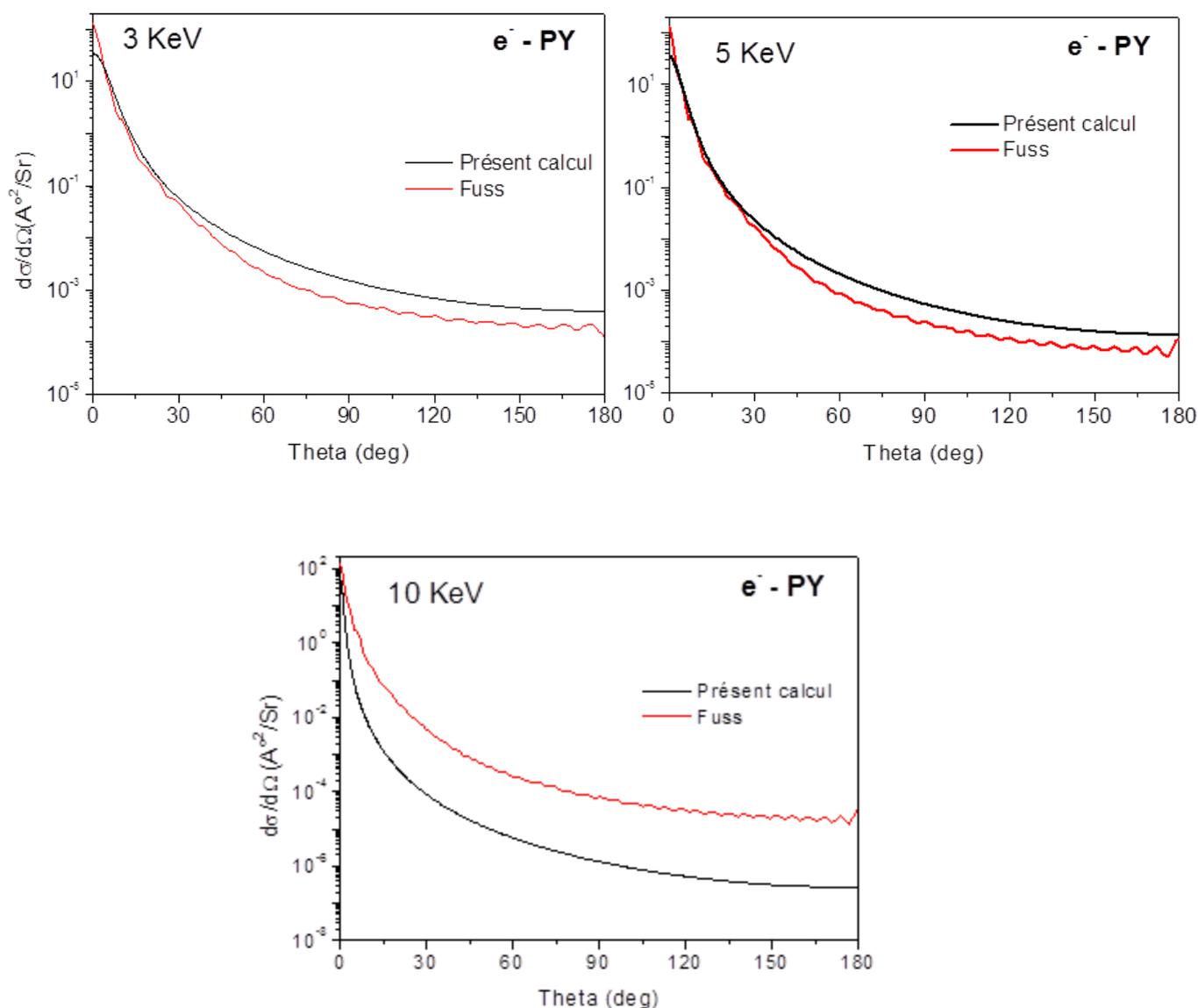


Figure 2.13 : Suite

Aux énergies supérieures à 80 eV jusqu'à 300 eV, les résultats de Bug *et al.* (Bug 2014, Bug *et al.*, 2017) sont en accord qualitatif avec nos données bien qu'il existe des divergences dans la région angulaire en dessous de 20 ° C. Cependant, pour des énergies  $\geq 300$  eV, ces divergences disparaissent.

De 400 eV à 1KeV, il existe un excellent accord dans toute la plage angulaire avec les données expérimentales de Bug (2014), Bug *et al.*, (2017) et de Baek *et al.* (2014).

De la même façon que le THF, pour les énergies 3Kev et 5KeV, les résultats de Fuss (2013) calculés concordent qualitativement avec nos données et la forme de leur sections

efficaces élastiques différentielles montre toujours des oscillations, contrairement à celles observées dans nos données. Par contre, à 10 KeV, il existe un désaccord quantitatif important, entre nos données et celles de Fuss (2013) mais les sections efficaces élastiques différentielles garde toujours la même la forme. La stabilité de la convergence dans l'analyse par ondes partielles garantit l'utilisation des sections efficaces atomiques même aux énergies incidentes en MeV. Nos données pour 10 keV présentées sur les figures 8 et 9 sont très stables. Cependant, dans les méthodes numériques habituellement utilisées pour résoudre l'équation radiale de Schrödinger, la densité de la grille doit être suffisamment dense et augmentée pour que les énergies croissantes maintiennent l'erreur de troncature constante. Les effets telles que l'excitation rotationnelle et vibrationnelle affectent la section élastique différentielle à très basse énergie; Une approche utile connue sous le nom de ePOLYSCAT (Gianturco et *al.*, 1994; Sanna et Gianturco, 1998) peut être utilisée pour calculer la section efficace différentielle élastique de rotation et inélastique d'un état à l'autre ou bien POLYDCS (Gianturco et Lucchese, 2004) pour calculer la section efficace élastique différentielle pour les molécules polaires telles que la pyrimidine.

Les sections efficaces des excitations rotationnelles diminuent rapidement avec l'augmentation de l'énergie des électrons incidents ; À une énergie électronique incidente de 100 eV, les sections efficaces d'excitation rotationnelle calculées par Sanz (2014) affectent les sections efficaces différentielles de l'électron calculé pour la pyrimidine de 15% et diminue à moins de 5% à 150 eV. Pour les molécules polaires avec un moment dipolaire important, un terme correctif de premier ordre pour les sections efficaces élastiques différentielles peut être inclus dans le modèle de Sanz (2014) et Sanz et *al.*, (2012) en utilisant la correction suggérée par Dickinson et *al.* (1977). Pour les énergies supérieures à 60 eV, la correction dipolaire introduit un faible effet sur les sections efficaces élastiques différentielles pour la pyrimidine et le THF, en particulier aux angles de diffusion moyen et large ; les sections efficaces élastiques intégrales correspondantes ne sont pas vraiment affectés. Dans la référence de Sanz (2014), les résultats concernant les sections efficaces élastiques différentielles sont en accord avec l'expérience lorsque les excitations rotationnelles et la correction dipolaire ne sont pas incluses.

**Tableau 2.2** : Sections efficaces élastiques différentielles pour la diffusion d'électrons par le THF dans la plage d'énergie incidente de 10 eV à 10 KeV

Angle (°)	Energie (eV)							
	20	30	40	50	100	200	300	400
0	11,06216	12,59056	13,69543	14,50967	16,95419	19,81719	21,70701	23,05794
10	10,55165	11,70423	12,45003	12,92496	13,81014	13,81799	13,162	12,28488
20	9,21744	9,51066	9,51026	9,34761	8,01028	5,84913	4,44049	3,4779
30	7,50074	6,96452	6,37719	5,81944	3,86832	2,21173	1,49667	1,09548
40	5,80062	4,77703	3,96798	3,35258	1,82615	0,96736	0,64596	0,46661
50	4,31793	3,1648	2,40214	1,90394	0,9502	0,52563	0,35128	0,24957
60	3,08726	2,04046	1,444	1,10305	0,5744	0,33926	0,2223	0,15393
70	2,08356	1,25646	0,85463	0,65679	0,40329	0,24643	0,15576	0,10476
80	1,29847	0,72156	0,49884	0,41427	0,32574	0,19551	0,11798	0,07697
90	0,75948	0,41089	0,32644	0,31706	0,30055	0,16664	0,09526	0,0602
100	0,51111	0,33374	0,32728	0,34641	0,30998	0,15047	0,08106	0,04957
110	0,58466	0,49862	0,49658	0,4915	0,34372	0,14195	0,07192	0,04258
120	0,97372	0,8902	0,81617	0,73475	0,39364	0,13805	0,06592	0,03783
130	1,6231	1,46019	1,24806	1,04738	0,45223	0,13685	0,06193	0,03456
140	2,43201	2,12993	1,73644	1,39077	0,51232	0,13712	0,05926	0,03229
150	3,26907	2,8013	2,21484	1,72092	0,56721	0,13803	0,05749	0,03074
160	3,99483	3,37258	2,61608	1,99449	0,61107	0,13902	0,05638	0,02973
170	4,48653	3,75549	2,88271	2,17493	0,63933	0,13974	0,05577	0,02916
180	4,66035	3,89017	2,97611	2,23792	0,64909	0,14	0,05557	0,02897

Angle (°)	Energie (eV)						
	1000	2000	3000	4000	5000	7000	10000
0	26,79121	28,71433	29,52803	30,01435	30,36087	30,86703	31,43457
10	7,52748	3,73782	2,17785	1,41254	0,98651	0,55789	0,29778
20	1,19763	0,41451	0,20868	0,12626	0,08512	0,04681	0,02477
30	0,32097	0,10348	0,0511	0,03066	0,02055	0,01116	0,00578
40	0,12732	0,0394	0,01912	0,01132	0,0075	0,00399	0,00202
50	0,06324	0,01884	0,00897	0,00523	0,00342	0,00179	8,95E-04
60	0,03625	0,01042	0,00486	0,0028	0,00181	9,38E-04	4,63E-04
70	0,02302	0,00638	0,00293	0,00167	0,00107	5,49E-04	2,69E-04
80	0,0158	0,00423	0,00191	0,00108	6,89E-04	3,50E-04	1,71E-04
90	0,01154	0,00299	0,00133	7,45E-04	4,75E-04	2,40E-04	1,17E-04
100	0,00888	0,00223	7,58E-04	5,46E-04	3,46E-04	1,75E-04	8,46E-05
110	0,00713	0,00174	6,12E-04	4,20E-04	2,66E-04	1,34E-04	6,45E-05
120	0,00595	0,00142	5,13E-04	3,37E-04	2,13E-04	1,07E-04	5,15E-05
130	0,00514	0,0012	4,45E-04	2,82E-04	1,78E-04	8,89E-05	4,28E-05
140	0,00457	0,00105	4,00E-04	2,44E-04	1,54E-04	7,69E-05	3,70E-05
150	0,00418	9,43E-04	3,71E-04	2,19E-04	1,38E-04	6,88E-05	3,30E-05
160	0,00393	8,77E-04	3,55E-04	2,03E-04	1,28E-04	6,36E-05	3,05E-05
170	0,00379	8,39E-04	3,49E-04	1,94E-04	1,22E-04	6,07E-05	2,91E-05
180	0,00374	8,27E-04	29,52803	1,91E-04	1,20E-04	5,98E-05	2,87E-05

**Tableau 2.3** : sections efficaces élastiques différentielles pour la diffusion d'électrons par la pyrimidine dans la plage d'énergie incidente de 10 eV à 10 KeV

Angle (°)	Energie (eV)						
	20	30	40	60	80	100	200
0	11,09386	12,85592	14,19992	15,99	17,22098	18,21167	21,74801
10	10,57807	11,93529	12,88867	13,95389	14,49956	14,82304	15,18597
20	9,23136	9,65853	9,79318	9,54509	9,06512	8,55263	6,41037
30	7,50049	7,02075	6,49735	5,4992	4,6935	4,07061	2,40009
40	5,7847	4,76125	3,97188	2,9114	2,27932	1,87942	1,0469
50	4,27822	3,09993	2,34104	1,53268	1,15966	0,9605	0,57584
60	3,00888	1,93934	1,35055	0,84422	0,66443	0,58038	0,37854
70	1,95241	1,12459	0,74565	0,50052	0,44306	0,41605	0,27958
80	1,11195	0,56683	0,38659	0,34057	0,35276	0,34856	0,2245
90	0,53425	0,25126	0,22662	0,30392	0,34056	0,33455	0,19252
100	0,28436	0,19899	0,26094	0,36865	0,38431	0,35503	0,17379
110	0,40854	0,4265	0,48767	0,52061	0,46998	0,3984	0,16295
120	0,90491	0,91914	0,88701	0,74162	0,58447	0,45554	0,15685
130	1,7104	1,62108	1,41477	1,00682	0,71402	0,51851	0,15358
140	2,70506	2,43896	2,00528	1,28603	0,8446	0,58032	0,15197
150	3,73068	3,25554	2,58033	1,54697	0,96272	0,63498	0,15128
160	4,61845	3,9489	3,06092	1,7591	1,05654	0,67764	0,15106
170	5,21946	4,4131	3,37962	1,89737	1,11678	0,70471	0,15102
180	5,43185	4,57629	3,49116	1,94537	1,13754	0,71398	0,15102

Angle (°)	Energie (eV)							
	300	400	600	800	1000	3000	5000	10000
0	24,0935	25,7768	28,02641	29,45874	30,45132	33,86718	34,88745	50,51773
10	14,66115	13,8073	11,89243	10,13187	8,64496	2,50438	1,12399	0,006
20	4,94115	3,90713	2,59788	1,83984	1,36588	0,23565	0,09591	4,13E-04
30	1,65719	1,22813	0,75486	0,50901	0,36528	0,05777	0,0233	8,40E-05
40	0,7198	0,52733	0,31395	0,20593	0,14486	0,02169	0,00853	2,73E-05
50	0,3966	0,28454	0,16258	0,10383	0,07184	0,0102	0,0039	1,15E-05
60	0,25359	0,1762	0,09651	0,06026	0,04113	0,00553	0,00207	5,75E-06
70	0,17866	0,11992	0,06321	0,03871	0,0261	0,00333	0,00122	3,24E-06
80	0,13548	0,08789	0,04473	0,0269	0,01791	0,00217	7,84E-04	1,99E-06
90	0,10914	0,06848	0,0337	0,01989	0,01308	0,00151	5,39E-04	1,32E-06
100	0,0924	0,05614	0,02673	0,01549	0,01006	0,00111	3,93E-04	9,27E-07
110	0,08144	0,04799	0,02212	0,01258	0,00807	8,60E-04	3,02E-04	6,85E-07
120	0,07409	0,04245	0,01898	0,01061	0,00672	6,93E-04	2,42E-04	5,31E-07
130	0,0691	0,03862	0,01679	0,00924	0,00579	5,81E-04	2,02E-04	5,25E-07
140	0,06569	0,03595	0,01526	0,00828	0,00515	5,05E-04	1,75E-04	4,29E-07
150	0,0634	0,03413	0,01421	0,00762	0,0047	4,53E-04	1,56E-04	3,61E-07
160	0,06194	0,03294	0,01352	0,00719	0,00442	4,20E-04	1,45E-04	3,16E-07
170	0,06112	0,03227	0,01313	0,00695	0,00425	4,01E-04	1,38E-04	2,88E-07
180	0,06086	0,03205	0,013	0,00687	0,0042	3,95E-04	1,36E-04	2,72E-07

## 5. Libre parcours moyen élastique de l'électron

L'une des propriétés les plus fondamentales caractérisant la propagation d'une particule dans le milieu nucléaire est son libre parcours moyen. La connaissance du libre parcours moyen élastique est essentielle pour prévoir avec précision les effets des radiations sur la matière biologique, car il contribue aux distances entre les collisions (Negele et *al.*, 1981). De plus, le libre parcours moyen joue un rôle dans l'interprétation de presque toutes les expériences dans lesquelles un électron excité se déplace à travers un solide, par exemple la diffraction électronique à basse énergie, la spectroscopie d'isochromes de Bremsstrahlung, etc. (Penn et *al.*, 1987).

Le libre parcours moyen des électrons de basse énergie est un facteur important dans de nombreuses techniques d'analyse de surface. La relation entre le libre parcours moyen des électrons et leur énergie revêt une importance particulière, en particulier pour établir des facteurs élémentaires pour des applications quantitatives et pour utiliser l'émission angulaire pour obtenir des informations sur la profondeur des constituants (Wagner et *al.*, 1980). Le libre parcours moyen, entre deux événements de diffusion peut être simplement dérivé de la section efficace de diffusion totale.

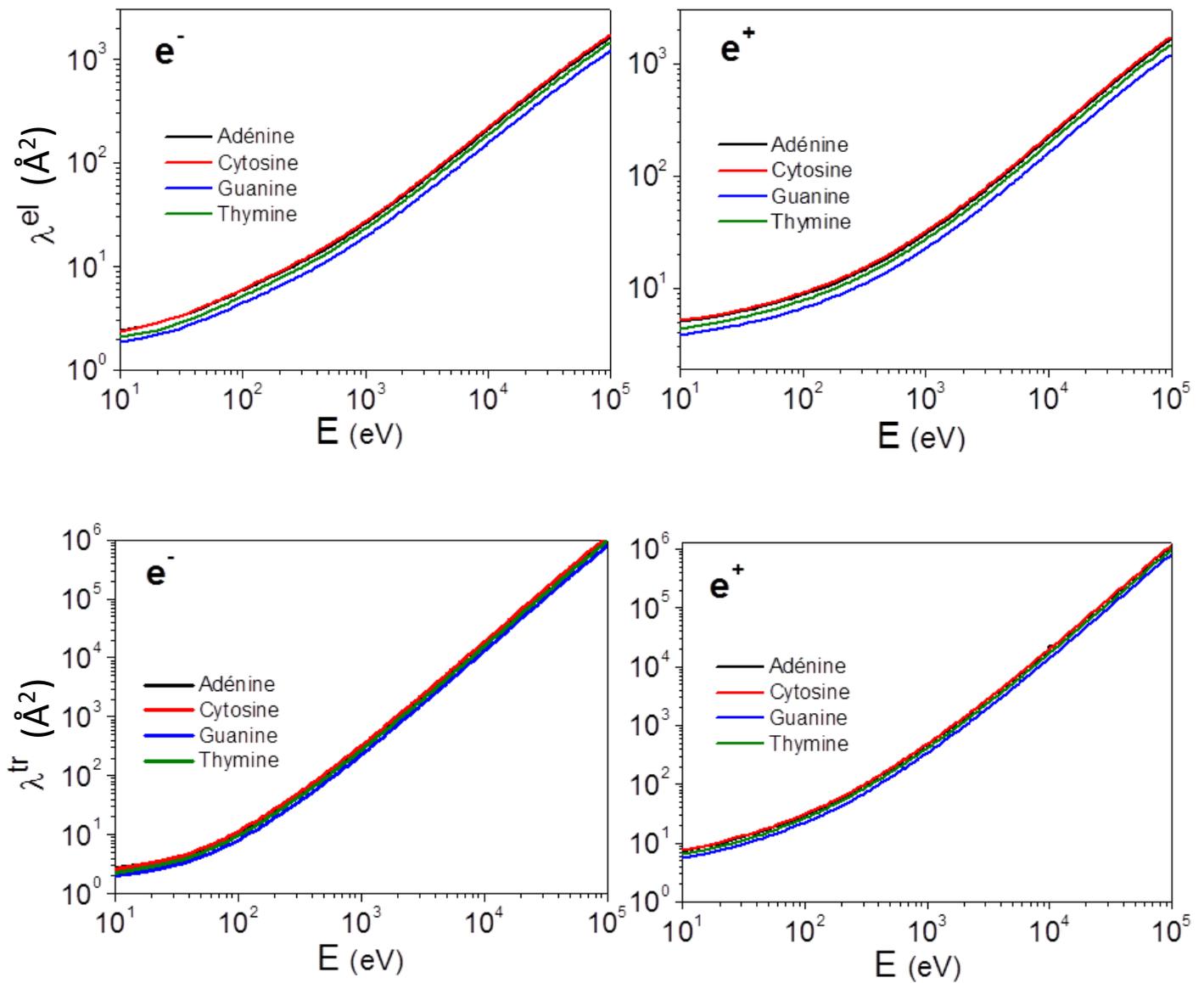
Le libre parcours moyen élastique des positrons ou des électrons et le libre parcours moyen élastique du transport sont calculés comme suit :

$$\lambda^{el} = \frac{1}{n\sigma^{el}} \quad , \quad \lambda^{tr} = \frac{1}{n\sigma^{tr}} \quad (27)$$

Avec  $\sigma^{el}$  et  $\sigma^{tr}$  sont dérivés des équations (20) et (24) respectivement ;  $n$  représente le nombre de biomolécules par  $\text{\AA}^3$  et les sections efficaces sont en  $\text{\AA}^2$ .

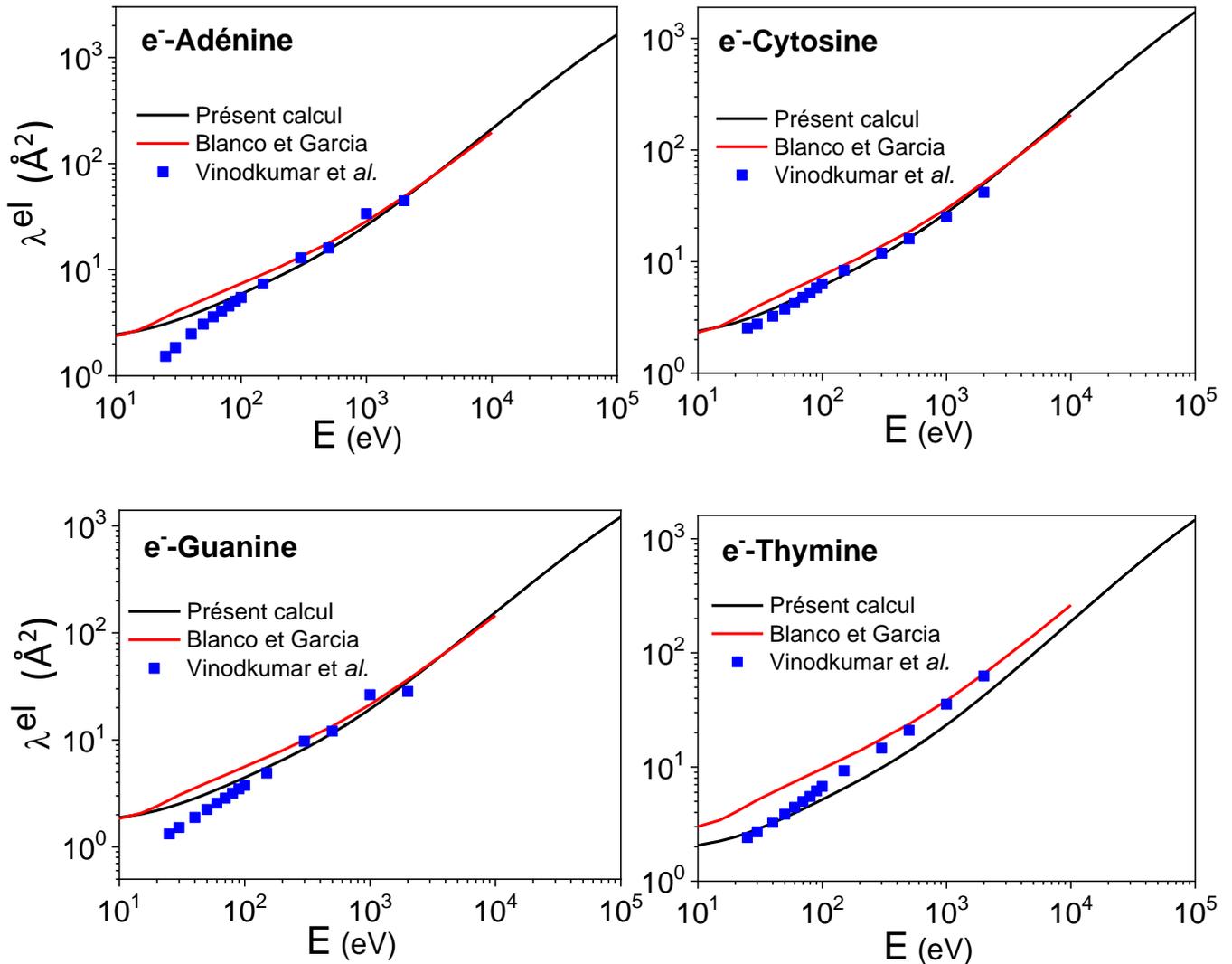
La figure 2.14 montre les résultats calculés du libre parcours moyen élastique des positrons ou des électrons et le libre parcours moyen élastique du transport pour les bases d'ADN.

A partir de cette figure, on peut noter qu'il est clair que le libre parcours moyen augmente de façon monotone. Lorsque l'énergie des électrons diminue, le libre parcours moyen diminue.



**Figure 2.14 :** Présent calcul du libre parcours moyen élastique des positrons et des électrons et le libre parcours moyen élastique du transport des positrons et des électrons pour les bases d'ADN.

La figure 2.15 représente le libre parcours moyen élastique des électrons pour les différentes bases d'ADN comparés avec le libre parcours moyen élastique des électrons qu'on a calculé à partir des sections efficaces élastique de Blanco et Garcia (2007), Vinodkumar et al. (2014) de point de vue qu'il n'y a pas de données dans la littérature.



**Figure 2.15 :** Présent calcul du libre parcours moyen élastique des électrons comparés au libre parcours moyen élastique de Blanco et Garcia (2007), Vinodkumar et al. (2014)

On peut noter à partir de cette figure que le libre parcours moyen n'est en désaccord avec notre libre parcours moyen que pour les énergies inférieures à 1KeV sauf pour la thymine où on remarque un désaccord important. Cependant, pour des énergies  $\geq 1\text{KeV}$ , ces divergences disparaissent. A très basses énergies, l'effet d'écran entre les atomes est important mais d'autres effets quantiques doivent être pris en compte. Lorsque l'énergie incidente augmente, l'effet d'écran diminue et disparaît complètement et les sections efficaces élastiques peuvent être facilement évaluées à l'aide de la règle d'additivité (AR) et le résultat repose sur la précision des sections efficaces élastiques atomiques.

## 6. Conclusion

La présente étude porte sur l'effet d'écran entre les atomes de la biomolécule où les sections efficaces des atomes sont calculées à l'aide de l'analyse des ondes partielles de Dirac à des énergies incidentes comprises entre 10 eV et 100 keV. Pour calculer les sections efficaces élastiques pour la diffusion des électrons et des positrons pour les biomolécules citées avant, nous avons appliqué un modèle atomique indépendant avec une correction d'écran géométrique pour chaque atome du reste de la molécule à l'aide de la procédure des règles d'additivité avec correction d'écran (SCAR). La validité du modèle actuel est discutée principalement à basse et moyenne énergie (supérieure à  $\sim 100$  eV) où l'effet d'écran est important. Les excitations rotationnelles et l'effet dipolaire sont négligés à ces énergies. À quelques KeV d'énergie incidente, l'effet d'écran entre les atomes disparaît rapidement ; par conséquent, notre modèle se réduit à un simple modèle atomique indépendant. Les détails de la présente étude sont présentés par opposition aux modèles existants utilisant la règle d'additivité avec correction d'écran (SCAR) et la section efficace atomique calculées à partir de l'équation de Schrödinger (Sanz 2014 ; Blanco et Garcia, 2004, 2007, 2009, 2013 ; Fuss et *al.*, 2013).

Contrairement aux travaux précédents qui utilisaient le même modèle d'additivité indépendant avec correction d'écran, nous avons apporté des améliorations en calculant les sections efficaces élastiques différentielles d'une manière simple, ce qui donne des sections efficaces élastiques en accord avec les données mesurées citées dans la littérature. De même, nos données concordent très bien avec la base de données Penelope (Salvat, et *al.*, 2015) pour le THF et la pyrimidine ; ce qui conduit à une deuxième amélioration importante lors de la comparaison de nos données avec les section efficaces élastiques des positrons calculés dans les références de Sanz (2014), Sanz et *al.* (2013) et Chiari et *al.* (2013) utilisant la même méthode IAM-SCAR où nous avons montré des différences de plus de 250% ; la validité de

nos données est justifiée par le calcul du rapport entre les sections efficaces élastiques des électrons et des positrons qui tend vers l'unité à haute énergie et qui a été trouvé en accord avec le rapport entre les sections efficaces élastiques des électrons et des positrons calculés à partir du rapport ICRU 77 (ICRU-77) pour différents matériaux; ainsi, notre modélisation des sections efficaces élastiques du positron peut être considérée comme une correction de l'IAM-SCAR cité dans les références de Blanco et Garcia pour le positron. De plus, nos sections efficaces élastiques atomiques des positrons et des électrons de la biomolécule ont été évalués au moyen de l'analyse des ondes partielles relativiste (Dirac) où l'interaction électrostatique est déterminée à partir des densités atomiques cohérentes de Dirac-Hartree-Fock. Nous avons montré à des énergies incidentes supérieures que ce traitement était supérieur au modèle IAM-SCAR habituel utilisant l'équation radiale de Schrödinger. Il est important de noter que le présent modèle a été appliqué à toutes les bases nucléiques constituant l'ADN et l'ARN pour l'électron et le positron.

Nous sommes convaincus de l'utilisation des sections efficaces élastiques avec les libres parcours moyens correspondants dans la plage d'énergie de 10 eV à 100 MeV. En ce qui concerne la distribution angulaire, nous avons vérifié la validité des sections efficaces élastiques différentielles et nous avons constaté qu'elle est valide à partir de 200 eV à 300 eV. Nos comparaisons approfondies avec sections efficaces élastiques différentielles expérimentales révèlent que la modèle IAM-SCAR ne convient pas aux basses énergies : moins de 200 eV, même avec l'inclusion de l'effet dipolaire et des excitations rotationnelles. À ces basses énergies, nous suggérons d'utiliser les mesures expérimentales existantes, même si elles sont soumises aux incertitudes causées par l'état de phase. Notre base de données est suggérée pour être utilisée dans les simulations de Monte Carlo pour le transport d'électrons et de positrons dans des milieux biologiques ou pour évaluer les sections efficaces et le libre parcours moyen élastique d'électrons et de positrons dans des molécules d'ADN et d'ARN. Cependant, il est important de noter que notre modélisation ne prend pas en compte l'état de phase ; nous avons considéré les biomolécules comme des molécules isolées sans interaction avec le milieu environnant. Une telle application nécessite des considérations supplémentaires sur la phase condensée, comme cela a été discuté en détail dans l'article de Nikjoo et *al.* (2016).

En conséquence, notre objectif est de produire des sections efficaces précises pour les biomolécules à des énergies d'électrons et de positrons incidentes faibles, intermédiaires et élevées.

## Références bibliographiques

- Aouina, N. Y., & Chaoui, Z. E. A. (2018 b). Electrons and positrons elastic collisions with pyrimidine and tetrahydrofuran. *Applied Radiation and Isotopes*, 140, 347-354.
- Aouina, N. Y., & Chaoui, Z. E. A. (2018 a). Simulation of positron and electron elastic mean free path and diffusion angle on DNA nucleobases from 10 eV to 100 keV. *Surface and Interface Analysis*, 50(10), 939-946.
- Ashley, J. C. (1990). Energy loss rate and inelastic mean free path of low-energy electrons and positrons in condensed matter. *Journal of electron spectroscopy and related phenomena*, 50(2), 323-334.
- Baek, W. Y., Bug, M. U., & Rabus, H. (2014). Differential elastic electron-scattering cross sections of pyrimidine in the energy range between 20 eV and 1 keV. *Physical Review A*, 89(6), 062716.
- Baek, W. Y., Bug, M., Rabus, H., Gargioni, E., & Grosswendt, B. (2012). Differential elastic and total electron scattering cross sections of tetrahydrofuran. *Physical Review A*, 86(3), 032702.
- Bederson, B., & Kieffer, L. J. (1971). Total Electron—Atom Collision Cross Sections at Low Energies—A Critical Review. *Reviews of Modern Physics*, 43(4), 601.
- Blanco, F., & García, G. (2004). Screening corrections for calculation of electron scattering differential cross sections from polyatomic molecules. *Physics Letters A*, 330(3-4), 230-237.
- Blanco, F., & García, G. (2007). Calculated cross sections for electron elastic and inelastic scattering from DNA and RNA bases. *Physics Letters A*, 360(6), 707-712.
- Blanco, F., & García, G. (2009). A screening-corrected additivity rule for the calculation of electron scattering from macro-molecules. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 42(14), 145203.
- Blanco, F., Munoz, A., Almeida, D., da Silva, F. F., Lima-Vieira, P., Fuss, M. C., ... & García, G. (2013). Modelling low energy electron and positron tracks in biologically relevant media. *The European Physical Journal D*, 67(9), 199.
- Bransden, B. H., Joachain, C. J., & Plivier, T. J. (2003). 2<sup>nd</sup> edition, *Physics of atoms and molecules*. Pearson Education India.
- Bug, M. U. (2014). Nanodosimetric particle track simulations in water and DNA media. (Doctoral dissertation, University of Wollongong).
- Bug, M. U., Baek, W. Y., Rabus, H., Villagrasa, C., Meylan, S., & Rosenfeld, A. B. (2017). An electron-impact cross section data set (10 eV–1 keV) of DNA constituents based on consistent experimental data: A requisite for Monte Carlo simulations. *Radiation Physics and Chemistry*, 130, 459-479.
- Bug, M. U., Baek, W. Y., Rabus, H., Villagrasa, C., Meylan, S., & Rosenfeld, A. B. (2017). An electron-impact cross section data set (10 eV–1 keV) of DNA constituents based on consistent experimental data: A requisite for Monte Carlo simulations. *Radiation Physics and Chemistry*, 130, 459-479.
- Burhing, W. (1965). Computational improvements in phase shift calculations of elastic electron scattering. *Zeitschrift für Physik*, 187(2), 180-196.
- Burke, P. G. (2011). *R-matrix theory of atomic collisions: Application to atomic, molecular and optical processes* (Vol. 61). Springer Science & Business Media.
- Chiari, L., Anderson, E., Tattersall, W., Machacek, J. R., Palihawadana, P., Makocheke, C., ... & Brunger, M. J. (2013a). Total, elastic, and inelastic cross sections for positron and electron collisions with tetrahydrofuran. *The Journal of chemical physics*, 138(7), 074301.
- Chiari, L., Zecca, A., Blanco, F., García, G., & Brunger, M. J. (2016). Experimental and theoretical cross sections for positron scattering from the pentane isomers. *The Journal of chemical physics*, 144(8), 084301.
- Chiari, L., Zecca, A., García, G., Blanco, F., & Brunger, M. J. (2013b). Low-energy positron and electron scattering from nitrogen dioxide. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 46(23), 235202.
- Chiari, L., Zecca, A., Girardi, S., Trainotti, E., García, G., Blanco, F., & Brunger, M. J. (2012). Positron scattering from O<sub>2</sub>. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(21), 215206.
- Colyer, C. J., Vizcaino, V., Sullivan, J. P., Brunger, M. J., & Buckman, S. J. (2007). Absolute elastic cross-sections for low-energy electron scattering from tetrahydrofuran. *New Journal of Physics*, 9(2), 41.

- Craggs, J. D., & Massey, H. S. W. (1959). The collisions of electrons with molecules. In *Atoms III—Molecules I/Atome III—Moleküle I* (pp. 314-415). Springer, Berlin, Heidelberg.
- Dampe, M., Milosavljević, A. R., Linert, I., Marinković, B. P., & Zubek, M. (2007). Differential cross sections for low-energy elastic electron scattering from tetrahydrofuran in the angular range 20°–180°. *Physical Review A*, 75(4), 042710.
- Dickinson, A. S. (1977). Differential cross sections for electron scattering by strongly polar molecules. *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, 10(5), 967.
- Drake, G. W. (Ed.). (2006). *Springer handbook of atomic, molecular, and optical physics*. Springer Science & Business Media. ISBN :978-0-387-20802-2.
- Fuss, M. C. (2013). *Electron interactions with molecules of biological interest*. (Doctoral dissertation, Universidad Autónoma de Madrid).
- Fuss, M., Muñoz, A., Oller, J. C., Blanco, F., Almeida, D., Limão-Vieira, P., Do, T. P. D., Brunger, M. J., & García, G. (2009). Electron-scattering cross sections for collisions with tetrahydrofuran from 50 to 5000 eV. *Physical Review A*, 80(5), 052709.
- Gauf, A., Hargreaves, L. R., Jo, A., Tanner, J., Khakoo, M. A., Walls, T., Winstead, C., & McKoy, V. (2012). Low-energy electron scattering by tetrahydrofuran. *Physical Review A*, 85(5), 052717.
- Gianturco, F. A., & Lucchese, R. R. (2004). Resonant capture of low-energy electrons by gas-phase glycine: a quantum dynamics calculation. *The Journal of Physical Chemistry A*, 108(34), 7056-7062.
- Gianturco, F. A., Lucchese, R. R., & Sanna, N. (1994). Calculation of low-energy elastic cross sections for electron-CF<sub>4</sub> scattering. *The Journal of chemical physics*, 100(9), 6464-6471.
- Gianturco, F. A., Meloni, S., Paoletti, P., Lucchese, R. R., & Sanna, N. (1998). Low-energy electron scattering from the water molecule: Angular distributions and rotational excitation. *The Journal of chemical physics*, 108(10), 4002-4012.
- Homem, M. G. P., Sugohara, R. T., Sanches, I. P., Lee, M. T., & Iga, I. (2009). Cross sections for elastic electron collisions with tetrahydrofuran. *Physical Review A*, 80(3), 032705.
- ICRU-77. (<http://www.icru.org/home/reports/elastic-scattering-of-electrons-and-positrons-icru-report-77>).
- Jablonski, A., Salvat, F., & Powell, C. J. (2004). Comparison of electron elastic-scattering cross sections calculated from two commonly used atomic potentials. *Journal of physical and chemical reference data*, 33(2), 409-451.
- Jablonski, A., Salvat, F., & Powell, C. J. (2005). Evaluation of elastic-scattering cross sections for electrons and positrons over a wide energy range. *Surface and Interface Analysis: An International Journal devoted to the development and application of techniques for the analysis of surfaces, interfaces and thin films*, 37(12), 1115-1123.
- Jain, A. (1986). Total (elastic+ absorption) cross sections for e-CH<sub>4</sub> collisions in a spherical model at 0.10–500 eV. *Physical Review A*, 34(5), 3707.
- Jain, A. (1987). Spherical-complex-optical-potential (SCOP) model for electron–monosilane (SiH<sub>4</sub>) collisions at 30–400 eV: Total (elastic+ absorption), momentum transfer, and differential cross sections. *The Journal of chemical physics*, 86(3), 1289-1300.
- Jain, A. (1988). Theoretical study of the total (elastic+ inelastic) cross sections for electron-H<sub>2</sub>O (NH<sub>3</sub>) scattering at 10-3000 eV. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(5), 905.
- Jensen, K. O., & Walker, A. B. (1993). Monte Carlo simulation of the transport of fast electrons and positrons in solids. *Surface science*, 292(1-2), 83-97.
- Mayol, R., & Salvat, F. (1997). Total and transport cross sections for elastic scattering of electrons by atoms. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 65(1), 55-154.
- Mozejko, P., & Sanche, L. (2003). Cross section calculations for electron scattering from DNA and RNA bases. *Radiation and environmental biophysics*, 42(3), 201-211.
- Mozejko, P., & Sanche, L. (2005). Cross sections for electron scattering from selected components of DNA and RNA. *Radiation Physics and Chemistry*, 73(2), 77-84.
- Negele, J. W., & Yazaki, K. (1981). Mean free path in a nucleus. *Physical Review Letters*, 47(2), 71.
- Nikjoo, H., Emfietzoglou, D., Liamsuwan, T., Taleei, R., Liljequist, D., & Uehara, S. (2016). Radiation track, DNA damage and response—a review. *Reports on Progress in Physics*, 79(11), 116601.
- Penn, D. R. (1987). Electron mean-free-path calculations using a model dielectric function. *Physical Review B*, 35(2), 482.

- Salvat, F. (2003). Optical-model potential for electron and positron elastic scattering by atoms. *Physical Review A*, 68(1), 012708.
- Salvat, F., & Fernández-Varea, J. M. (2009). Overview of physical interaction models for photon and electron transport used in Monte Carlo codes. *Metrologia*, 46(2), S112.
- Salvat, F., & Mayol, R. (1991). Accurate numerical solution of the Schrödinger and Dirac wave equations for central fields. *Computer Physics Communications*, 62(1), 65-79.
- Salvat, F., & Mayol, R. (1993). Elastic scattering of electrons and positrons by atoms. Schrödinger and Dirac partial wave analysis. *Computer physics communications*, 74(3), 358-374.
- Salvat, F., Jablonski, A., & Powell, C. J. (2005). ELSEPA—Dirac partial-wave calculation of elastic scattering of electrons and positrons by atoms, positive ions and molecules. *Computer physics communications*, 165(2), 157-190.
- Salvat, F., Jablonski, A., & Powell, C. J. (2005). ELSEPA—Dirac partial-wave calculation of elastic scattering of electrons and positrons by atoms, positive ions and molecules. *Computer physics communications*, 165(2), 157-190.
- Salvat, F., PENELOPE-2014, 2015. A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. Workshop Barcelona, Nuclear Energy Agency, Organization for Economic Co-operation and Development.
- Sanz, A. G. (2014). Interaction of electrons and positrons with molecular systems of biological interest (Doctoral dissertation, Universidad Autónoma de Madrid).
- Sanz, A. G., Fuss, M. C., Blanco, F., Mašín, Z., Gorfinkiel, J. D., McEachran, R. P., Brunger, M. J. & García, G. (2013). Cross-section calculations for positron scattering from pyrimidine over an energy range from 0.1 to 10000 eV. *Physical Review A*, 88(6), 062704.
- Sanz, A. G., Fuss, M. C., Blanco, F., Masin, Z., Gorfinkiel, J.D., Carelli, F., Sebastianelli, F., Gianturco, F.A., & García, G. (2014). Electron scattering cross section calculations for polar molecules over a broad energy range. *Applied Radiation and Isotopes*, 83, 57-67.
- Sanz, A. G., Fuss, M. C., Blanco, F., Masin, Z., Gorfinkiel, J.D., Carelli, F., Sebastianelli, F., Gianturco, F.A., & García, G. (2014). Electron scattering cross section calculations for polar molecules over a broad energy range. *Applied Radiation and Isotopes*, 83, 57-67.
- Sanz, A. G., Fuss, M. C., Muñoz, A., Blanco, F., Limão-Vieira, P., Brunger, M. J., ... & García, G. (2012). Modelling low energy electron and positron tracks for biomedical applications. *International journal of radiation biology*, 88(1-2), 71-76.
- Shadwick, B. A., Talman, J. D., & Norman, M. R. (1989). A program to compute variationally optimized relativistic atomic potentials. *Computer Physics Communications*, 54(1), 95-102.
- Shimizu, R., & Ze-Jun, D. (1992). Monte Carlo modelling of electron-solid interactions. *Reports on Progress in Physics*, 55(4), 487.
- Stepanek, J. (2003). Electron and positron atomic elastic scattering cross sections. *Radiation Physics and Chemistry*, 66(2), 99-116.
- Vinodkumar, M., Limbachiya, C., Barot, M., Barot, A., & Swadia, M. (2014). Electron impact total cross sections for components of DNA and RNA molecules. *International Journal of Mass Spectrometry*, 360, 1-7.
- Wagner, C. D., Davis, L. E., & Riggs, W. M. (1980). The energy dependence of the electron mean free path. *Surface and Interface Analysis*, 2(2), 53-55.
- Walker, D. W. (1971). Relativistic effects in low energy electron scattering from atoms. *Advances in Physics*, 20(85), 257-323.
- Zecca, A., Chiari, L., García, G., Blanco, F., Trainotti, E., & Brunger, M. J. (2011a). Total cross-sections for positron and electron scattering from  $\alpha$ -tetrahydrofurfuryl alcohol. *New Journal of Physics*, 13(6), 063019.
- Zecca, A., Chiari, L., García, G., Blanco, F., Trainotti, E., & Brunger, M. J. (2010). Total cross sections for positron and electron scattering from pyrimidine. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 43(21), 215204.
- Zecca, A., Chiari, L., Trainotti, E., Fursa, D. V., Bray, I., Sarkar, A., Ratnavelu, K., & Brunger, M. J. (2011b). Positron scattering from argon: total cross sections and the scattering length. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(1), 015203.

- Zecca, A., Karwasz, G. P., & Brusa, R. S. (1992). Absolute total-cross-section measurements for intermediate-energy electron scattering on CF<sub>4</sub>, CClF<sub>3</sub>, CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub>, CCl<sub>3</sub>F, and CCl<sub>4</sub>. *Physical Review A*, 46(7), 3877.
- Zecca, A., Karwasz, G., Brusa, R. S., & Szmytkowski, C. (1991). Absolute total cross sections for electron scattering on CH<sub>4</sub> molecules in the 1-4000 eV energy range. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 24(11), 2747.
- Zecca, A., Oss, S., Karwasz, G., Grisenti, R., & Brusa, R. S. (1987). Absolute total cross section measurements for intermediate energy electron scattering: III. Ne and Ar. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 20(19), 5157.
- Zecca, A., Perazzolli, C., & Brunger, M. J. (2005). Positron and electron scattering from tetrahydrofuran. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 38(13), 2079.

## Chapitre III

# *Collisions Elastiques et Inélastiques des Electrons et des Positrons avec l'ADN et L'eau*

## **1. Introduction**

Récemment, la compréhension des interactions des électrons avec la molécule d'ADN et ses composants a suscité un intérêt considérable (Caron et Sanche, 2005) en raison que l'ADN est le principal site endommagé par les rayonnements ionisants. Les interactions des rayonnements avec de l'ADN induisent une variété de dommages moléculaires tels que les cassures simple brin, les cassures double brin (Souici et *al.*, 2017), les dommages de base, les liens croisés entre les protéines et l'ADN et autres (Nikjoo, 2003) ou la formation de radicaux libres qui, par des réactions chimiques avec l'ADN peut également conduire à la rupture d'un brin (Brunger et *al.*, 2009).

Un facteur pouvant contribuer de manière significative à ces processus est l'effet de l'hydratation sur la formation et la réaction du rayonnement induit par ces radicaux dans et / ou autour de l'ADN (Swarts et *al.*, 1992).

L'ADN-B a besoin d'environ 30% en poids d'eau pour maintenir sa conformation native à l'état cristallin. La transformation dépend de divers facteurs tels que la séquence, la composition en ions, la concentration et l'activité de l'eau (Kulkarni et Mukherjee, 2017). La déshydratation partielle le convertit en ADN-A (avec un sillon majeur plus étroit et plus profond et un sillon mineur très large mais peu profond). La transition pour cette transformation se produit à environ 20 molécules d'eau par paire de bases, avec son point médian à environ 15 molécules d'eau par paire de bases (Brovchenko et *al.*, 2006).

Les électrons aux énergies de sous-ionisation et même de sous-excitation peuvent se lier et provoquer la fragmentation des acides nucléiques, des protéines et de leurs composants, tels que les bases nucléiques, le sucre et l'eau (Chiari et *al.*, 2013), il a été démontré que ces collisions, même à très basse énergie de quelques eV ou sous-eV, peut entraîner des mutations génotoxiques ou des activations oncogènes (Chiari et *al.*, 2013). Cependant, une quantité appréciable de dommages dû aux rayonnements (jusqu'à 50%) est causée par des espèces secondaires issues de l'ionisation primaire (Colyer et *al.*, 2011).

La collision des positrons avec les biomolécules est également un outil utile pour modéliser ces dommages. Elle a récemment suscité un vif intérêt pour les procédures de traitements et de diagnostics médical modernes, telles que les tomographies par émission de positrons (TEP), la posithérapie et d'autres applications thérapeutiques (Palihawadana et *al.*, 2013).

Le but de cette partie du travail est d'obtenir des paramétrisations analytiques pour un ensemble cohérent de données de sections efficaces à impact électronique de constituants de l'ADN pouvant être mises en œuvre de manière pratique dans des codes de simulation. Dans ces mesures, les sections efficaces de diffusion totale ainsi que les sections efficaces de diffusion élastique et inélastique ont été déterminées et la cohérence des données a été soigneusement étudiée.

## **2. Collisions élastiques**

Les interactions élastiques, bien qu'elles ne conduisent pas (pratiquement) à une perte d'énergie, sont très importantes pour la distribution spatiale des dépôts d'énergie. Les données sur les sections efficaces de collision élastiques des électrons avec les macromolécules sont actuellement très rares pour la plupart des espèces d'intérêt biologique telles que les polypeptides ou les acides nucléiques en raison des difficultés liées à leur mesure ou à leur calcul. Malgré l'intérêt qu'ils présentent pour l'étude des effets biologiques des rayonnements.

### **2.1 Calcul des sections efficaces élastiques atomiques et moléculaires**

Afin de fournir les sections efficaces élastiques des collision d'électrons et de positrons avec les atomes, nous avons utilisé, comme c'est mentionné au chapitre II, l'analyse des ondes partielles relativistes (Dirac) à des énergies incidentes comprises entre 10 eV et 100 KeV, dans laquelle l'interaction électrostatique est déterminée à partir de la densité électronique atomique cohérente de Dirac-Hartree-Fock et dans le cas de projectiles électroniques, l'interaction d'échange est décrite au moyen de l'approximation locale de Furness et de McCarthy. Ainsi, les effets d'échange électron-électron, qui sont présents dans les collisions électron-molécule, ne se produisent pas dans les interactions des positrons.

Pour calculer les sections efficaces élastiques totales pour la diffusion des électrons et des positrons avec tous les composants de la molécule d'ADN à savoir le désoxyribose, l'acide phosphorique, les bases nucléiques (adénine, guanine, cytosine et thymine) en plus le THF, la pyrimidine, la purine et l'eau, nous avons appliqué la méthode de la règle d'additivité avec correction d'écran (SCAR) qui a été intensivement décrite dans les références (Blanco et García, 2004, 2007, 2009 ; Blanco et *al.*, 2013, Sanz et *al.*, 2012).

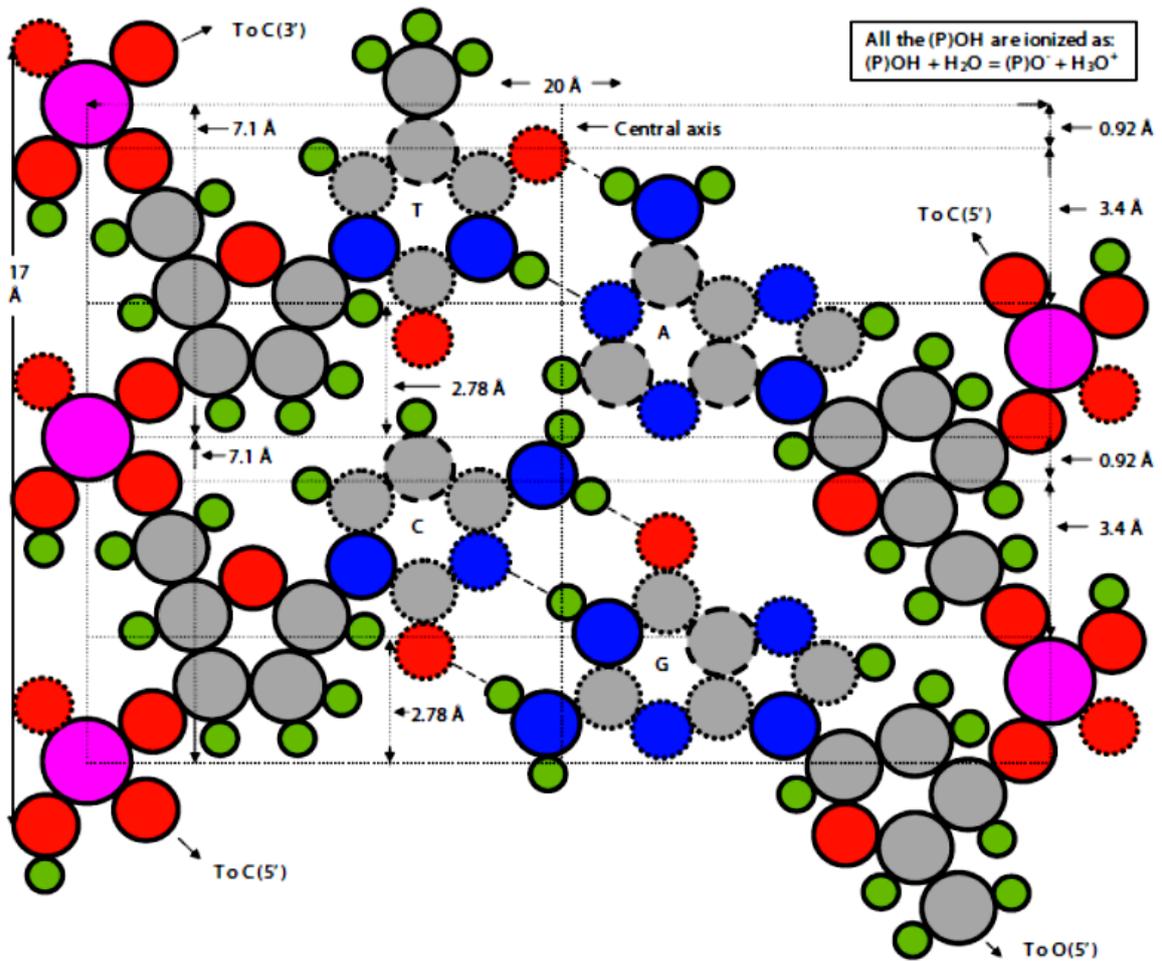
## **2.2 Calcul des sections efficaces élastiques moléculaires des macromolécules**

Par conséquent, pour calculer la section efficace élastique totale, nous avons appliqué deux modèles, la règle d'additivité avec correction d'écran (SCAR-Macro) sur un nucléotide contenant du désoxyribose, de l'acide phosphorique et une base (adénine, guanine, thymine ou cytosine) et en appliquant dans un second temps le modèle décrit par Marion dans la référence (Bug, 2014) en utilisant donc l'Eq (5.3) qui contient la somme des sections efficaces de diffusion totale du THF et du TMP, la section efficace de diffusion de l'eau et des fractions de sections efficaces de diffusion totale de pyrimidine et de purine.

### **2.2.1 La méthode des règles d'additivité avec correction d'écran pour les macromolécules (SCAR-Macro)**

En pratique, pour des très grandes molécules, l'application de la procédure SCAR peut devenir gênante en raison de la nécessité de spécifier avec précision la position spatiale de chaque atome. De plus, les calculs peuvent devenir un problème numérique pour les très grandes espèces en raison du très grand nombre de petites contributions provenant de chaque paire d'atomes (Blanco et García, 2009).

Pour le squelette de l'ADN, nous avons considéré les coordonnées du centre de gravité moléculaire à la place des coordonnées atomiques en utilisant une image illustrée dans la référence (Heyrovska, 2008) (figure 3.1) contenant une combinaison de toutes les molécules trouvées dans la dimension connue 34 : 20 Å des nucléotides de l'ADN.



**Figure 3.1 :** Structures atomiques des nucléotides de l'ADN avec les paires de bases Watson-Crick (T, A et C, G reliées par des liaisons H, comme indiqué) liées à des molécules de désoxyribose et de phosphate (Heyrovska, 2008).

Nous avons considéré dans notre calcul les quatre nucléotides (voir figure 1.8 chapitre I): désoxyadénosine monophosphate (DAMP), désoxycytidine monophosphate (dCMP), désoxyguanosine monophosphate (dGMP), désoxythymidine monophosphate (dTMP), répartis sur un volume cible de 14,1 Å en hauteur et 23 Å en largeur pour déterminer les coordonnées cartésiennes de chaque bloc de nucléotide cité ci-dessous dans le squelette de l'ADN-A (figure 2.1 chapitre II).

La section efficace élastique totale de chaque bloc individuel composant le nucléotide, est dérivée de ;

$$\sigma_{nucléotide}^{el} = s_1 \sigma_{désoxyribose}^{el} + s_2 \sigma_{acide\ posphorique}^{el} + s_3 \sigma_{base(A,T,C,G)}^{el} + N_{eau} \sigma_{eau}^{el} \quad (1)$$

Chaque fois que nous changerons la base, nous aurons un nucléotide différent (dAMP, dCMP, dTMP, dGMP). Les sections efficaces sont dans l'unité Å<sup>2</sup>.  $\sigma_{eau}^{el}$  est la section efficace totale élastique de l'eau multiplié par  $N_{eau}$  le nombre de molécules d'eau présentes dans un nucléotide. Différentes teneurs en eau ont été utilisées dans les simulations car le nombre de molécules d'eau dans la molécule d'ADN varie avec les conditions environnementales dans une cellule vivante. Selon diverses estimations, le nombre de molécules d'eau par nucléotide serait compris entre 5 et 12 (Schneider et al., 1998) ou 20 à 21 molécules d'eau par nucléotide, dont 12 à 15 sont étroitement liées à l'ADN (Schneider et al., 1998) à 12,5 molécules d'eau par nucléotide dans la première couche d'hydratation organisée dans la forme B de l'ADN, 8,3 molécules d'eau supplémentaires ont été observées dans la deuxième et la troisième couche d'hydratation, ce qui donne un total d'environ 20 molécules d'eau par nucléotide (Bug, 2014) ou encore plus de 8 molécules d'eau présents par nucléotide (Franklin et Gosling, 1953). La couche d'eau primaire autour de l'ADN-B est généralement estimée à environ 20 molécules d'eau par nucléotide (Brovchenko et al., 2006). Les recherches ont montré que le nombre de molécules d'eau par nucléotide doit être supérieur à 20 pour que l'ADN-B soit stable (Alexander, 2014). Falk et al. (1962) ont estimé par gravimétrie la teneur en eau liée à l'ADN solide à divers taux d'humidité. Ils ont rapporté que le nombre de molécules d'eau par nucléotide variait de 0 à 20 comme l'humidité relative variant de 0 à 92%.

Les coefficients d'écran  $s_1, s_2, s_3$  sont entre les blocs de chaque nucléotide. Ils sont obtenus à partir de

$$s_i = \sum \pm \frac{\varepsilon_i^{(N)}}{N!} \quad (2)$$

Avec

$$\varepsilon_i^{(k)} = \frac{N - k + 1}{N - 1} \sum_{j(\neq i)} \frac{\sigma_i^{el} \varepsilon_j^{(k-1)}}{\alpha_{ij}} \quad (k = 2 \text{ et } 3) \quad ; \quad \varepsilon_i^{(1)} = 1 \quad (3)$$

L'indice  $j$  s'étend sur tous les centres de gravité moléculaire sauf  $i$  ;  $\alpha_{ij} = \max(4\pi r_{ij}^2, \sigma_i^{el}, \sigma_j^{el})$  et  $r_{ij}$  est la distance entre les centres de gravité moléculaires  $i$  et  $j$ .

Dans cette simulation, Les sections efficaces de diffusion totales pour les électrons d'énergie  $E$  (en eV) de Bug (2014) ont été interpolées par la superposition de fonctions gaussiennes.

La section efficace élastique totale du nucléotide est donnée par Bug (2014)

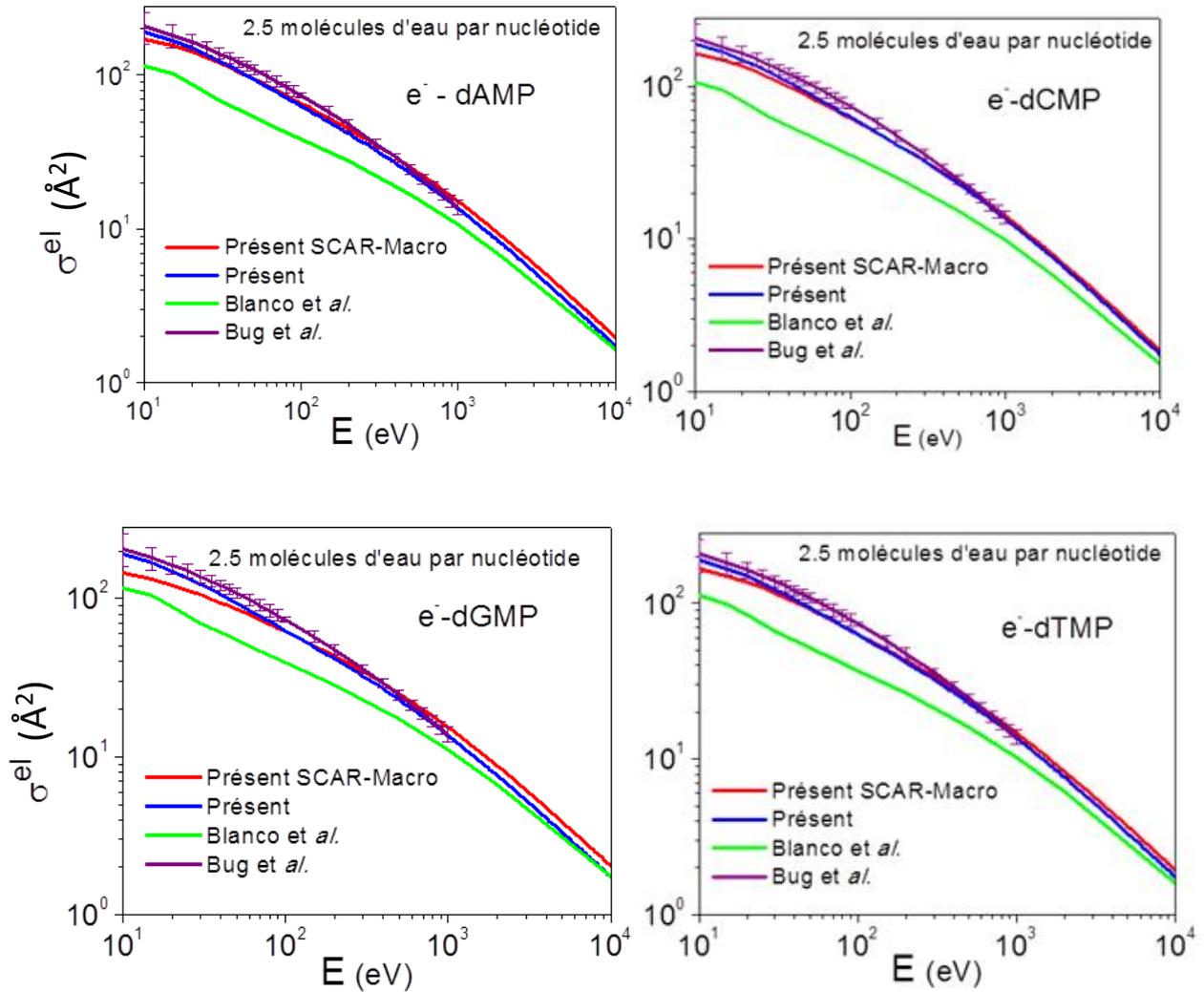
$$\sigma^{el}_{NT} = \sigma^{el}_{THF} + \sigma^{el}_{TMP} + \sigma^{el}_{NB} + N_{H_2O} \sigma^{el}_{H_2O} \quad (4)$$

Cette équation contient la somme des sections efficaces totales de diffusion  $\sigma_{THF}$  et  $\sigma_{TMP}$  pour les molécules du squelette de l'ADN,  $\sigma_{NB}$  des bases nucléiques et  $\sigma_{H_2O}$  de l'eau multipliée par le nombre moyen de molécules d'eau  $H_2O$  présentes dans un nucléotide.  $\sigma_{NB}$  contient les fractions de sections efficaces de diffusion totale de pyrimidine et de purine, telles que (Bug 2014)

$$\sigma^{el}_{NB} = 0.5\sigma^{el}_{PY} + 0.5\sigma^{el}_{PU} \quad (5)$$

### **3. Résultats et discussion**

Les sections efficaces élastiques totales du dAMP, dCMP, dGMP et du dTMP sont tracées en fonction de l'énergie du projectile de 10 eV à 100 KeV. La figure 2 et 3 représente la comparaison des sections efficaces élastiques totales des électrons et des positrons respectivement pour toutes ces cibles étudiées dans ce travail avec les résultats disponibles dans la littérature. A nos connaissances, aucune donnée expérimentale concernant les sections efficaces totales élastiques des électrons et aucune donnée théorique ou expérimentale concernant les sections efficaces totales élastiques des positrons n'est disponible dans la littérature.



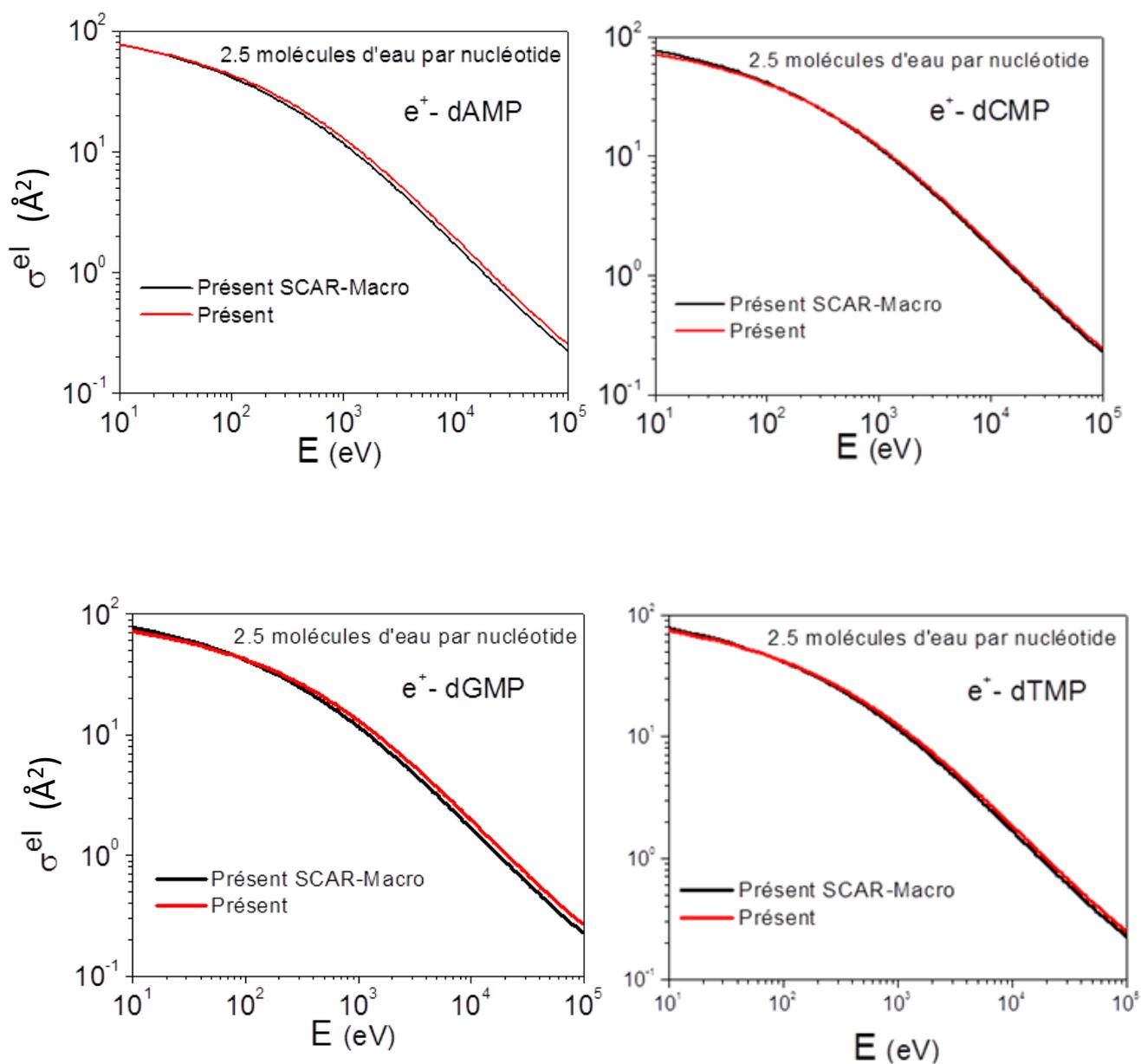
**Figure 3.2.** Sections efficace élastiques calculées pour la diffusion des électrons avec le dAMP, dCMP, dGMP et dTMP respectivement par rapport aux données théoriques de Blanco et García (2009) et Bug et al. (2017).

Les résultats théoriques pour les sections efficaces élastiques totales sont fournis par Blanco et Garcia (2009), ainsi que par Bug (2014) qui a utilisé un modèle atomique indépendant pour les sections efficaces élastiques totales, tandis que Blanco et Garcia (2009) ont utilisé la règle d'additivité avec correction d'écran pour les macromolécules (SCAR-M), une forme simplifiée de la règle de l'additivité avec correction d'écran pour le calcul des sections efficaces électron-molécule (SCAR) proposée pour le traitement de très grandes macromolécules.

En examinant la courbe, on constate que les résultats rapportés pour les sections efficaces totales de Blanco et Garcia (2009) sont inférieures pour des énergies incidentes faibles et se confondent progressivement avec les résultats actuels au-delà de 100 eV. La courbe montre clairement que les résultats actuels des sections efficace élastiques totales trouvent un excellent accord avec les résultats de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) sur l'ensemble des énergies (9–1000 eV). En réalité, les résultats de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) devrait légèrement surestimer les résultats actuels surtout pour le premier modèle (SCAR-Macro), la fonction du modèle n'est pas un ajustement optimal aux valeurs semi-empiriques, mais surestime légèrement les sections efficaces dans la région d'énergie de 50 à 100 eV.

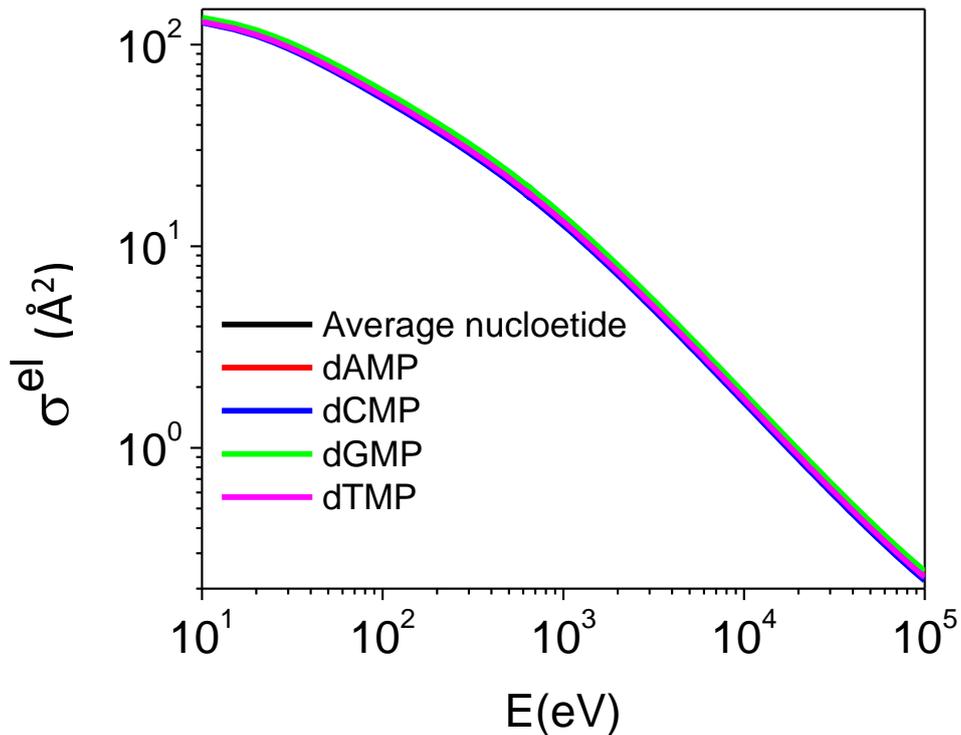
Cependant, il convient de noter que la fonction du modèle assure la cohérence avec la section efficace d'excitation. Au lieu de cela, ils sont en très bon accord. La raison de cet accord est attribuée au fait qu'ils ont obtenu leur section efficace totale en additionnant les sections efficaces élastiques totales obtenues avec IAM. Par conséquent, au lieu de surestimer légèrement, ils se confondent avec les résultats actuels. Les résultats actuels montrent une nature similaire avec les résultats du SCAR-M de Blanco et Garcia (2009), mais les résultats du SCAR-M sont beaucoup plus bas par rapport aux résultats actuels ainsi que ceux de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) inférieur à 100 eV.

Alors que le traitement SCAR réussit partiellement à prendre en compte les corrections d'écran géométriques pour moyennes à grandes énergies, il ne faut pas s'attendre à des résultats fiables à très basses énergies en raison de sa nature semi-classique (Blanco et García, 2007, 2009). Au-dessus de 100 eV, leurs résultats sont en très bon accord avec les résultats actuels ainsi que ceux de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014). Cet accord à hautes énergies au-delà de 100 eV est attendu car l'effet d'écran s'atténuera progressivement avec l'augmentation de l'énergie incidente. Blanco et García (2007) prévoyaient des erreurs de 10% dans leurs sections efficaces totales (Vinodkumar et *al.*, 2014).



**Figure 3.3 :** Les sections efficaces élastiques calculées pour la diffusion des positrons avec le dAMP, dCMP, dGMP et dTMP respectivement

D'après la bibliographie au moins consultée, aucune donnée expérimentale ou théorique concernant les sections efficaces totales élastiques de positrons n'est disponible dans la littérature. La figure 3.3 montre un accord qualitatif et quantitatif entre les résultats des deux modèles SCAR-Macro et le modèle décrit par Bug dans la référence (Bug, 2014) pour les quatre nucléotides.



**Figure 3.4 :** Les sections efficaces élastiques calculées pour la moyenne des nucléotides dAMP, dCMP, dGMP et dTMP

En fait, il est intéressant de noter que les valeurs respectives des sections efficaces élastiques pour la diffusion d'électrons ou de positrons pour les nucléotides dAMP, dCMP, dGMP et dTMP ne sont pas très éloignées (figure 3.4), pour cela dans le reste des résultats on va choisir l'un des nucléotides mentionnés ci-dessus. La figure 3.2 et 3.3 montrent un comportement similaire pour les quatre nucléotides pour une teneur en eau de 2.5 molécules d'eau par nucléotide.

## **4. Collisions inélastiques**

Lorsque des électrons rapides ou des positrons pénètrent dans un milieu matériel, ils subissent des collisions inélastiques qui réduisent leurs énergies cinétiques en produisant des excitations électroniques du milieu. La plupart de ces excitations impliquent des électrons dans la couche externe (moins étroitement liée) des atomes ; l'ionisation des couches internes d'électrons se produit avec des probabilités beaucoup plus petites. L'ionisation de la couche interne, cependant, est le mécanisme qui déclenche l'émission des rayons X caractéristiques et des électrons Auger. Par conséquent, des sections efficaces précises pour l'ionisation des couches internes d'atomes par un impact d'électron et de positron sont nécessaires aux études théoriques (par exemple, via la simulation de Monte Carlo) du transport couplé électron-photon (Bote et *al.*, 2009).

Les collisions inélastiques des électrons et des positrons sont généralement décrites en utilisant la première approximation de Born qui est utilisée pour le calcul des pertes en énergie des particules chargées qui traversent un milieu quelconque (Fano, 1963).

### **4.1 Calcul des sections efficaces inélastiques d'un nucléotide par l'algorithme complet de Penn (FullMC)**

#### **4.1.1 Formalisme diélectrique**

Selon la théorie diélectrique, une fonction diélectrique fournit une description complète de la réponse d'un milieu, en tant qu'ensemble d'électrons et d'atomes en interaction, à la perturbation provoquée par une charge ponctuelle externe. La section efficace différentielle pour la diffusion inélastique aux électrons est donnée par Pines et Nozières (1966) (Ding et Shimizu, 1996 ; Ding et *al.*, 2004)

$$\frac{d^2\lambda_{in}^{-1}}{d(\hbar\omega)dq} = \frac{1}{\pi a_0 E} \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\} \frac{1}{q} \quad (6)$$

où  $a_0$  est le rayon de Bohr,  $\hbar\omega$  et  $\hbar q$  sont la perte d'énergie et le moment de transfert de quantité de mouvement, respectivement, d'un électron d'énergie cinétique  $E$  pénétrant dans un solide de fonction diélectrique,  $\varepsilon(q, \omega)$ .  $\lambda_{in}$  est le libre parcours moyen inélastique des électrons. La fonction de la perte d'énergie, définie comme  $\text{Im} \{-1 / \varepsilon(q, \omega)\}$ , s'appelle la fonction de perte d'énergie qui détermine la probabilité de la diffusion inélastique, la distribution de perte d'énergie, et la distribution angulaire de collision (Ding et Shimizu, 1996 ; Ding et *al.*, 2004).

$$\text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\} = \int_0^\infty g(\omega_p) \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon_L(q, \omega, \omega_p)} \right\} d\omega_p \quad (7)$$

où  $\varepsilon_L(q, \omega, \omega_p)$  est la fonction diélectrique de Lindhard pour un gaz d'électrons libres avec l'énergie du plasmon  $\hbar\omega_p$  qui une fonction de la densité électronique locale.  $g(\omega_p)$  est le coefficient de dilatation et est lié à la fonction de perte d'énergie optique. (C'est-à-dire dans la limite optique  $q \rightarrow 0$ ) avec  $g(\omega_p) = (2/\pi\omega_p) \text{Im}\{-1/\varepsilon_{opt}(\omega_p)\}$ , où  $\varepsilon_{opt}(\omega) \equiv \varepsilon(0, \omega)$  est la fonction optique diélectrique.

Les données optiques pour des pertes d'énergies jusqu'à 10000 eV proviennent d'une base de données expérimentale établie par Palik (1998). L'avantage de cette modélisation de données optiques est d'inclure naturellement les canaux d'excitation électroniques complexes dans un solide réel grâce à l'utilisation de données optiques expérimentales (Zou et al., 2016).

La fonction diélectrique de perte d'énergie de Lindhard est composée de deux parties distinctes, à savoir l'excitation électronique unique d'une part  $\text{Im}\{-1/\varepsilon(q, \omega)\}_{et}$  et l'excitation des plasmons d'une autre part  $\text{Im}\{-1/\varepsilon(q, \omega)\}_{pl}$  comme (Zou et al., 2016, Mehnaz et al., 2019),

$$\text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\} = \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\}_{et} + \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\}_{pl} \quad (8)$$

Par conséquent, selon l'algorithme complet de Penn, la génération d'électrons secondaires à basse énergie a deux mécanismes distincts, soit par excitation électronique simple, soit par désintégration du plasmon. En tenant compte des contributions issues de la paire électron-trou et la création de plasmons de la fonction de perte diélectrique Lindhard, le libre parcours moyen inélastique différentiel pour le modèle de Penn est

$$\frac{d^2(\lambda_{in}^{-1})_P}{dq d\omega} = \frac{d^2(\lambda_{in}^{-1})_P^{eh}}{dq d\omega} + \frac{d^2(\lambda_{in}^{-1})_P^{pl}}{dq d\omega} \quad (9)$$

La partie paire électron-trou est donnée par

$$\begin{aligned} \frac{d^2(\lambda_{in}^{-1})_P^{eh}}{dq d\omega} &= \frac{\hbar}{\pi a_0 E} \frac{1}{q} \Theta(q - q_-(\omega, E)) \Theta(q_+(\omega, E) - q) \Theta(E \\ &\quad - (\hbar\omega + E_F)) \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\}_P^{eh} \end{aligned} \quad (10)$$

La contribution paire électron-trou est représentée par la fonction de perte d'énergie de la partie excitation d'électrons uniques donnée par

$$\text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\}_p^{eh} = \int_0^\infty d\omega_p g(\omega_p) \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon_L(q, \omega, \rho(\omega_p))} \right\} \Theta(q - q_-^{eh}(\omega, \omega_p)) \Theta(q_+^{eh}(\omega, \omega_p) - q). \quad (11)$$

La fréquence de plasmon  $\omega_p$  est utilisée comme une variable qui balaye la plage de perte d'énergie des données disponibles. Les limites de la paire de régions électron-trou dans le plan  $(q, \omega)$  sont définies comme suit (Nguyen-Truong, 2015)

$$q_{\pm}^{eh}(\omega, \omega_p) = \pm k_F(\rho(\omega_p)) + \sqrt{k_f^2(\rho(\omega_p)) + 2m\omega/\hbar} \quad (12)$$

La partie contribution de plasmon est donnée par

$$\begin{aligned} \frac{d^2(\lambda_{in}^{-1})_P^{pl}}{dq d\omega} &= \frac{\hbar}{\pi a_0 E} \frac{1}{q} \Theta(\omega - \omega_-^{pl}[E, \omega'_{pl}(q, \omega)]) \Theta(\omega_+^{pl}[E, \omega'_{pl}(q, \omega)] - \omega) \\ &\times \Theta(E - (\hbar\omega + E_F)) \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\}_p^{pl} \end{aligned} \quad (13)$$

où la fonction de perte d'excitation plasmon peut être évaluée directement en raison de l'existence de l'infini positif (Jensen et Walker, 1993). Elle est donnée par

$$\text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\}_p^{pl} = g(\omega'_{pl}(q, \omega)) \frac{(\pi q^2 / k_f^2(\omega'))}{|\partial F(\omega, \omega') / \partial \omega'|_{\omega' = \omega'_{pl}(q, \omega)}} \quad (14)$$

$\omega_+^{pl}$  est le point final de la ligne de plasmon où elle se confond avec la région paire électrons-trous, satisfaisant ainsi l'équation:

$$\omega_+^{pl} = \frac{\hbar}{2m} q_{pl}(\omega_+^{pl}, \rho) [2k_F(\rho) + q_{pl}(\omega_+^{pl}, \rho)] \quad (15)$$

$\hbar\omega_+^{pl}$  est la perte d'énergie minimale autorisée aux plasmons qui est déterminée à partir de la cinématique en résolvant l'équation suivante :

$$\omega_-^{pl} = \frac{\hbar}{2m} q_{pl}(\omega_-^{pl}, \rho) [2\sqrt{2mE} - q_{pl}(\omega_-^{pl}, \rho)] \quad (16)$$

### 4.1.2 Fonction diélectrique optique

La fonction diélectrique est bien décrite par la fonction diélectrique de Lindhard (Tung et al., 1979).

$$\varepsilon(q, \omega) = \varepsilon_L(q, \omega) = \varepsilon_L^r(q, \omega) + i \varepsilon_L^i(q, \omega) \quad (17)$$

Où la partie réelle et imaginaire sont donnée par (Shinotsuka et al., 2015)

$$\varepsilon_L^r = 1 + \frac{2}{\pi a_0 q} \frac{1}{Z} \left[ \frac{1}{2} + \frac{1}{8Z} F\left(Z - \frac{X}{4Z}\right) + \frac{1}{8Z} F\left(Z + \frac{X}{4Z}\right) \right] \quad (18)$$

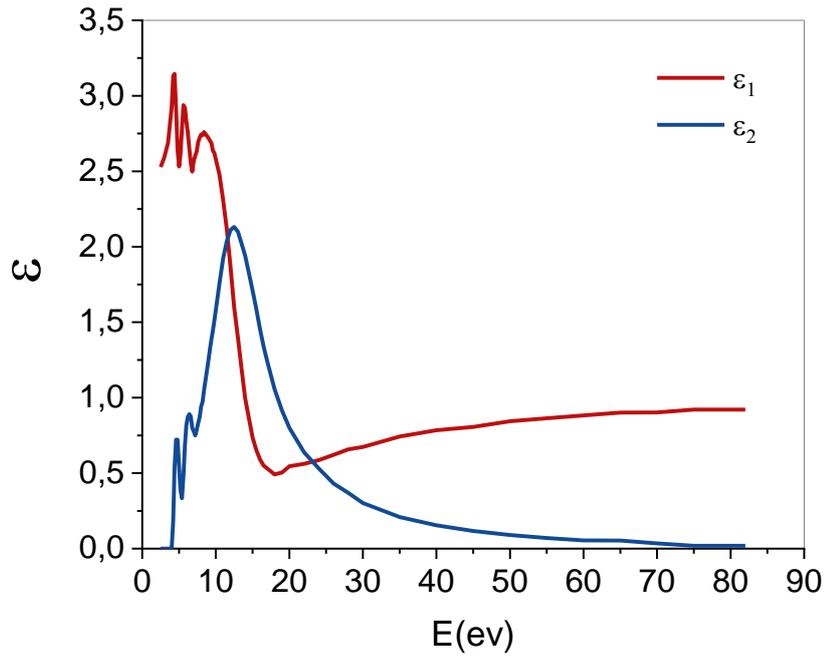
et

$$\varepsilon_L^i = \begin{cases} \frac{1}{8a_0 k_F} \frac{X}{Z^3} & \text{pour } 0 \leq X \leq 4Z(1 - Z) \\ \frac{1}{8a_0 k_F} \frac{X}{Z^3} \left[ 1 - \left( Z - \frac{X}{4Z} \right)^2 \right] & \text{pour } |4Z(1 - Z)| \leq X \leq 4Z(1 + Z) \\ 0 & \text{autrement.} \end{cases} \quad (19)$$

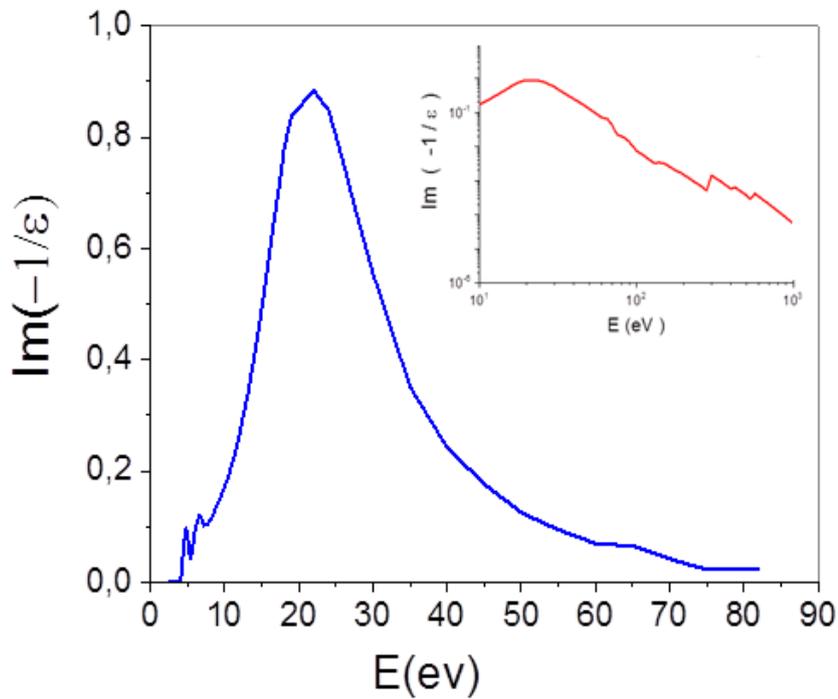
avec  $F(X) = (1 - X^2) \ln|(X + 1)/(X - 1)|$ ,  $X = \hbar\omega/E_F$  et  $Z = q/2k_F$ . L'énergie de Fermi est liée au vecteur d'onde  $k_F$  ainsi  $E_F = \hbar^2 k_F^2 / 2m$ . Notez que  $\varepsilon_L(q, \omega)$  varie avec la densité du gaz électronique  $\rho$  (Tung et al., 1979) à travers  $k_F = \sqrt[3]{3\pi^2 \rho}$ .

À partir de l'équation (12), la région située entre les deux paraboles  $X = 4Z(Z + 1)$  et  $X = 4Z(Z - 1)$  correspond aux excitations dues à la création d'une paire électron-trou. En dehors de cette zone, où  $\varepsilon_L^i(q, \omega) = 0$ , la contribution du libre parcours moyen inélastique différentiel est due aux plasmons. Ces derniers sont calculés à partir de la ligne de dispersion des plasmons qui est définit par  $\varepsilon_L^r(q, \omega) = 0$ .

En utilisant l'ensemble final des valeurs des constantes optiques  $n$  et  $k$ , l'indice de réfraction et le coefficient d'extinction, respectivement ; les constantes diélectriques  $\varepsilon_1 = n^2 + k^2$ ,  $\varepsilon_2 = 2kn$  et la fonction de perte d'énergie  $Im(-1/\varepsilon) = \varepsilon_2/(\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)$  ont été calculé dans la plage 0- 1000 eV (figures 3.5, 3.6). Les propriétés optiques de l'ADN à savoir les nucléotides (A-T) ( $C_{20}H_{27}N_7O_{13}P_2$ ) ou (C-G) ( $C_{19}H_{26}N_8O_{13}P_2$ ) (Inagaki et al., 1974 ; Isaacson, 1971) et de l'eau (Hayashi et Hiraoka, 2015) sont spécifiées par les constantes optiques  $n$  et  $k$  (figure 3.5).



**Figure 3.5 :** Constantes diélectriques de l'ADN déshydraté en fonction de l'énergie des photons (Inagaki *et al.*, 1974)



**Figure 3.6 :** Fonction de perte d'énergie de l'ADN déshydraté en fonction de l'énergie des photons (Inagaki *et al.*, 1974)

La courbe dans la figure 3.6 représente un maximum autour de 20 eV correspondant à un plasmon qui va dominer les interactions inélastiques des électrons ou les particules chargées dans l'ADN. Le graphique incrusté dans la figure 3.6 montre que les sections efficaces ont été calculé de 0 à 1KeV et qui sont utilisées par la suite dans le calcul MC.

### 4.1.3 Libre parcours moyen inélastique de l'électron et pouvoirs d'arrêt

Le libre parcours moyen inélastique des électrons détermine la probabilité d'apparition d'un événement de diffusion inélastique discret dans une simulation de Monte Carlo (Ding et Shimizu, 1996). Dans les collisions inélastiques d'un électron se déplaçant dans un milieu décrit par une fonction diélectrique linéaire  $\varepsilon(q, \omega)$ , le libre parcours moyen inélastique et la perte d'énergie moyenne par unité de longueur ou le pouvoir d'arrêt peuvent être facilement calculés à partir de la connaissance du différentiel du libre parcours moyen inélastique donné par (Ding et Shimizu, 1996)

$$\frac{d^2 \lambda_{in}^{-1}}{dq d\omega} = \frac{\hbar}{\pi a_0 E} \frac{1}{q} \text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\} \Theta(q - q_-(\omega, E)) \times \Theta(q_+(\omega, E) - q) \Theta(E - (\hbar\omega + E_F)) \quad (20)$$

avec  $\text{Im} \left\{ \frac{-1}{\varepsilon(q, \omega)} \right\}$  est la fonction de perte d'énergie.  $dq$  et  $d\omega$ , sont liés au transfert de quantité de mouvement  $\hbar q$  et à la perte d'énergie  $\hbar\omega$ , respectivement. Les limites  $q_{\pm} = (\sqrt{2m}/\hbar)(\sqrt{E} \pm \sqrt{E - \hbar\omega})$  représentent les moments de transferts supérieure et inférieure permises pour une énergie incidente donnée  $E$  et une perte d'énergie  $\hbar\omega$ .  $\hbar$  est la constante de Planck et  $a_0$  et le rayon de Bohr.  $\Theta$  est la fonction de pas utilisée pour définir l'espace énergie-moment.

$$\lambda_{in}^{-1} = \int_0^{E-E_F} d\omega \int_{q_-}^{q_+} dq \frac{d^2 \lambda_{in}^{-1}}{dq d\omega}$$

Le pouvoir d'arrêt fournit une estimation très utile des pertes d'énergie effective des électrons moyennées sur la longueur du trajet unitaire des trajectoires d'électrons. Il est donc important de comparer les pouvoir d'arrêt calculées par la fonction de perte d'énergie de la modélisation de Penn à la formule du pouvoir d'arrêt de Bethe (Ding et *al.*, 2004). En ce qui concerne la moyenne inélastique des électrons, les excitations de valence en libre parcours ou

les pics à faible perte dans  $\text{Im}\{-1/\varepsilon(\omega)\}$  dominent; les diffusions inélastiques dus à une perte d'énergie importante ont une contribution négligeable au libre parcours moyen inélastique des électrons. Cependant, ce n'est pas le cas pour le pouvoir d'arrêt, car  $\Delta E$  est pondéré (Nguyen-Truong, 2015). Un bon modèle de diffusion inélastique aux électrons devrait décrire le pouvoir d'arrêt de Bethe aux hautes énergies ainsi que les données expérimentales sur le libre parcours moyen des électrons inélastiques (Ding et Shimizu, 1996).

Le pouvoir d'arrêt des électrons peut également être obtenue de la même manière mais est pondérée par la perte d'énergie

$$-\frac{dE}{dS} = \int_0^{E-E_F} \hbar\omega d\omega \int_{-q}^{+q} dq \frac{d^2\lambda_{in}^{-1}}{dq d\omega} \quad (21)$$

La condition  $\hbar\omega \leq E - E_F$  assure le principe d'exclusion de Pauli.  $E_F$  est l'énergie de Fermi. Pour les électrons de valence dans des métaux simples, le milieu peut être considéré comme un gaz d'électrons libres.

## 4.2 Calcul des sections efficaces inélastiques d'un nucléotide

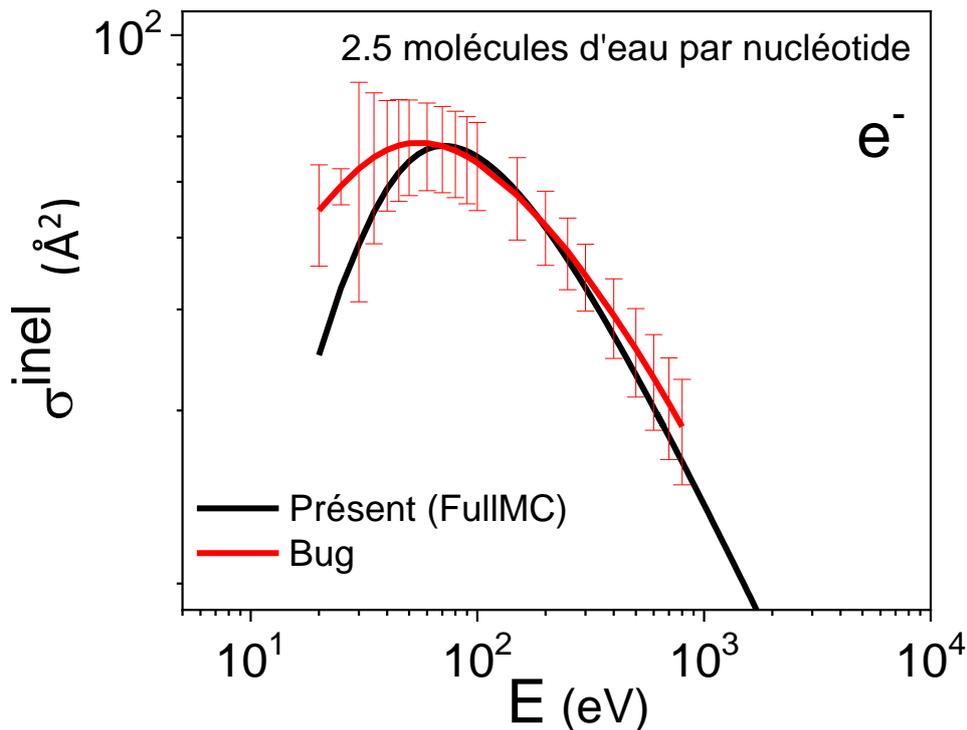
Aucune donnée n'a été trouvé pour les sections efficaces inélastiques totales d'un nucléotide. À partir des données de Bug (2014) et Bug et al. (2017) des différents constituants d'ADN obtenu à partir des fonctions de modèles évaluées, on a calculé les sections efficaces inélastiques totales des électrons pour un nucléotide en appliquant la formule suivante :

$$\sigma_{NT}^{inel} = \sigma_{THF}^{inel} + \sigma_{TMP}^{inel} + \sigma_{NB}^{inel} + N_{H_2O} \sigma_{H_2O}^{inel} \quad (22)$$

où

$$\sigma_{NB}^{inel} = 0.5\sigma_{PY}^{inel} + 0.5\sigma_{PU}^{inel} \quad (23)$$

La figure 3.7 montre une comparaison entre les sections efficaces inélastiques calculés par l'algorithme complet de Penn et le modèle décrit par Bug dans la référence (Bug, 2014). Les sections efficaces inélastiques du nucléotide et de l'eau nous ont été calculé et aimablement fournis par Ramdani. S (doctorante et membre du laboratoire d'optoélectronique et composants LOC).



**Figure 3.7 :** Sections efficaces inélastiques de la diffusion d'électrons pour un nucléotide par rapport aux données calculés à partir des données théoriques de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014).

Dans cette figure, on trouve une large différence entre nos données et celles de Bug en dessous de 50 eV atteignant une valeur maximale autour de 100 eV ce qui coïncide avec les prédictions du modèle BEB (15% supérieure aux données expérimentales) (Bug, 2014). Les incertitudes des sections efficaces d'ionisation des données de Bug n'ont pas été déterminées pour les énergies inférieures à 30 eV vue qu'aucune donnée expérimentale n'étant disponible d'une part, et le modèle BEB peut ne pas être précis aux énergies proches du seuil d'ionisation, d'autre part. Par la suite, les incertitudes des sections efficaces d'excitation de Bug ont également été omises dans la région d'énergie respective.

Les données existantes proviennent principalement de la théorie utilisant le formalisme diélectrique, qui décrit la réponse du matériau lors d'un transfert soudain d'énergie et de quantité de mouvement, et repose sur la fonction de perte d'énergie. Au-delà de 100 eV, on observe que nos données présentent un accord raisonnable avec les données de Bug (2014).

Des études approfondies de l'influence de différents ensembles de données optiques, de divers algorithmes de dispersion ainsi que de différentes approches d'utilisation des corrections de Born sur les sections efficaces inélastiques, qui prennent en compte les effets de perturbation et d'échange, ont montré des variations allant jusqu'à 25% pour les énergies supérieures à 50 eV, augmentant jusqu'à 40% à 10 eV pour les différents ensembles de données optiques. Différents algorithmes de dispersion conduisent à des variations allant jusqu'à 30% au-dessus de 100 eV et des différences encore plus grandes d'un facteur de trois pour les énergies inférieures. Les corrections nées entraînent une réduction de 30 à 40% à 100 eV (Bug, 2014)

## **5. Influence de la teneur en eau sur l'ADN**

Contrairement à une solution d'ADN diluée, le nombre de molécules H<sub>2</sub>O par nucléotide ( $\Gamma$ ) est limité à une plage de  $2,5 \leq \Gamma \leq \sim 33$ , où  $\Gamma \leq 20$  correspond à des couches d'hydratation et  $\Gamma = 33$  correspond à une couche supplémentaire en vrac comme la couche d'eau. Les rendements de perte d'ADN plasmidique super enroulé et la formation de dommages à l'ADN simple brin et double brin sont comparés à différents niveaux d'humidité. Ainsi, en augmentant le niveau d'hydratation de l'ADN jusqu'à des concentrations qui produisent de l'eau en vrac, nous passons progressivement des effets directs aux effets indirects (Sanz, 2014).

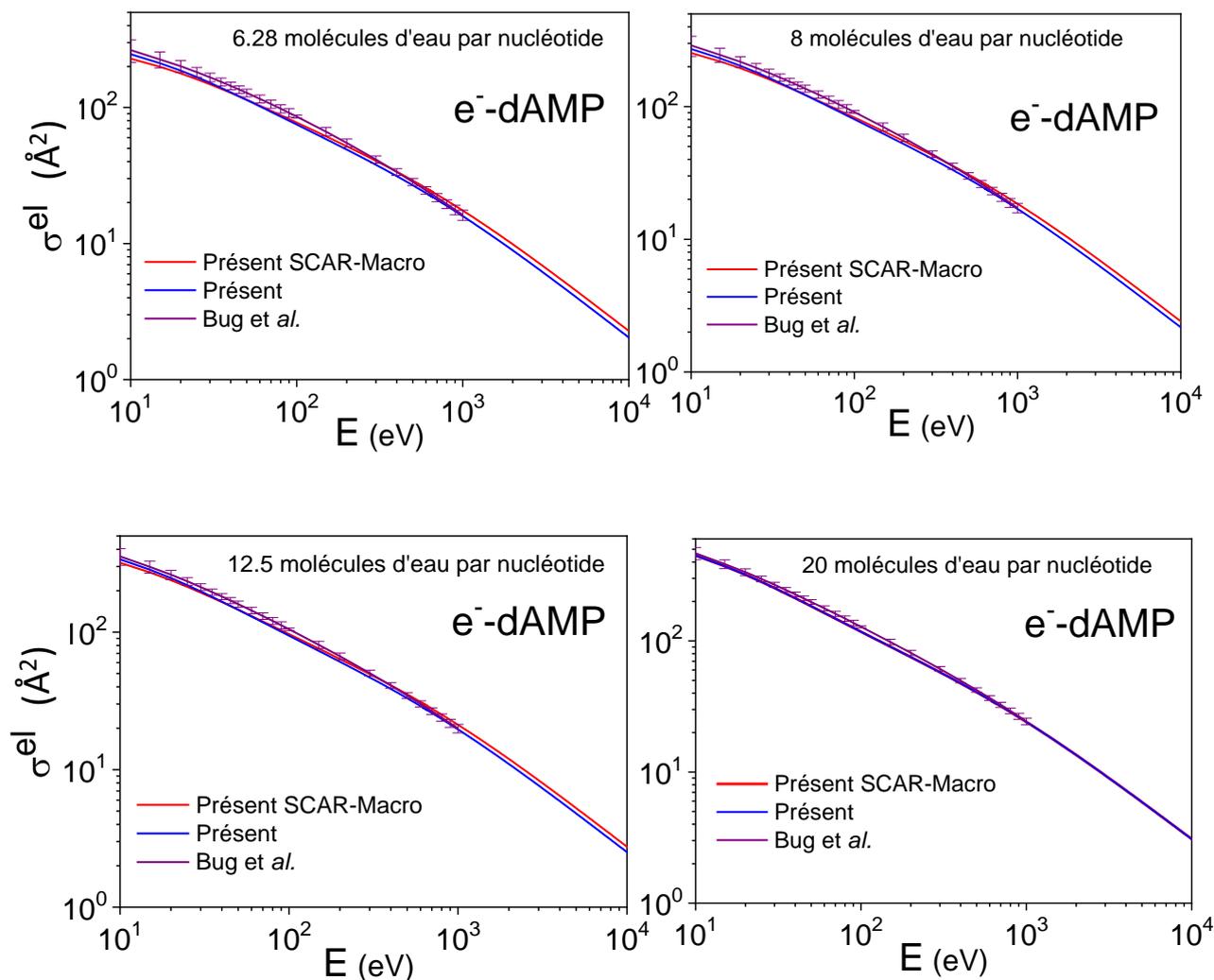
Différentes teneurs en eau ont été utilisées dans les simulations car le nombre de molécules d'eau dans la molécule d'ADN varie avec les conditions environnementales dans une cellule vivante. Pour pouvoir évaluer l'influence de la teneur en eau, comme décrit dans le chapitre I, des simulations avec 6.28, 8, 12.5 et 20 molécules d'eau par nucléotide ont été effectuées.

## **6. Résultats et discussion**

Les sections efficaces de diffusion élastique totales de Bug ont été obtenues par intégration numérique sur tous les angles de diffusion. La section efficace totale de diffusion élastique est très sensible à l'extrapolation de la section différentielle élastique aux grands angles, en particulier pour les molécules polaires telles que le THF ou le PY (Bug, 2014). Par exemple, la section efficace du THF augmente jusqu'à 30% lorsque la section différentielle élastique est extrapolée entre 0° et 5°. Il convient de noter que cet effet s'est produit même si la section différentielle élastique est « pondérée » par le sinus des angles de diffusion, selon lequel la contribution de la diffusion est moins importante que pour les angles de diffusion intermédiaires (Bug, 2014).

### 6.1 Sections efficaces élastiques

La figure 3.8 montre l'influence de la teneur en H<sub>2</sub>O sur le nucléotide (dAMP) pour la diffusion élastique d'électrons comparée aux données calculés à partir des données théoriques de Bug et *al.*, (2017) et Bug (2014).



**Figure 3.8 :** Influence de la teneur en molécules H<sub>2</sub>O/NT sur un nucléotide (dAMP) pour la diffusion élastique d'électrons par rapport aux données calculés à partir des données théoriques de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014)

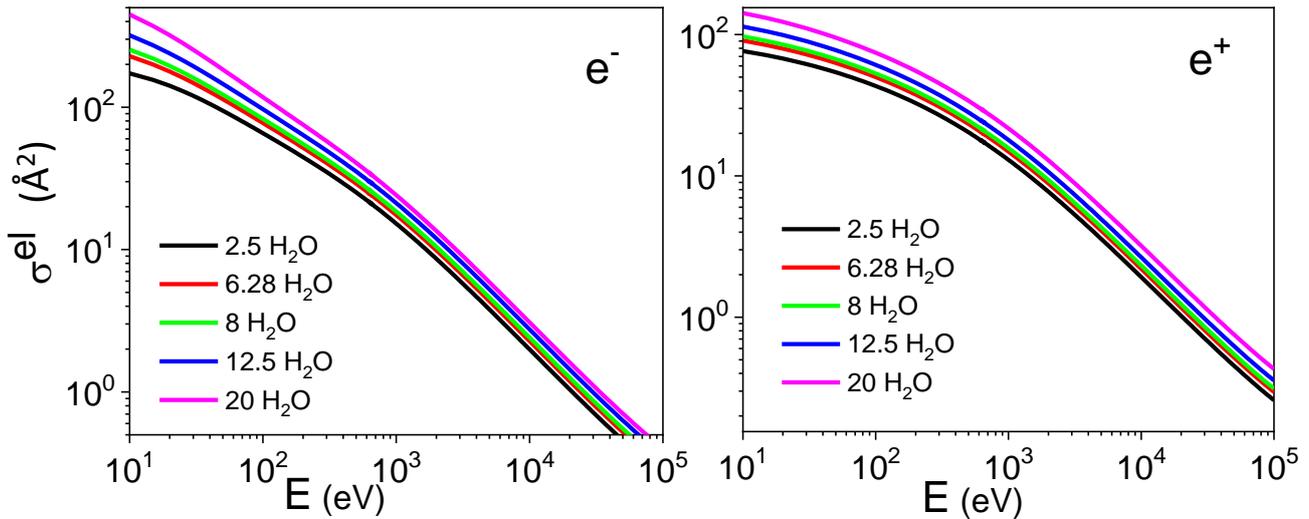
Les données théoriques des sections efficaces élastiques de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) sont incluses pour la comparaison. A partir de la littérature au moins consultée, aucune

donnée expérimentale concernant les sections efficaces élastiques totales n'est disponible dans la littérature.

En examinant les quatre courbes, on constate que les données de Bug sont légèrement supérieures à nos sections efficaces élastiques pour les deux modèles. Cette différence tend à se disparaître avec l'augmentation de la teneur en eau, ce qui est très claire avec une teneur en eau de 20 molécules H<sub>2</sub>O/NT. Cet accord est attendu car l'effet de l'effet d'écran s'atténue progressivement l'augmentation de l'énergie incidente et avec l'augmentation des molécules entrant en jeu.

Aux basses énergies, où les sections efficaces atomiques ne sont pas petites comparées aux distances interatomiques dans la molécule, l'approximation IAM échoue car les atomes ne peuvent plus être considérés comme des diffuseurs indépendants et la diffusion multiple au sein de la molécule n'est pas négligeable. Ces grandes sections efficaces atomiques de faible énergie se chevaucheraient à l'intérieur de la molécule si elles étaient visualisées géométriquement. En conséquence, les atomes se filtrent des électrons incidents et la section transversale moléculaire n'est plus la somme des atomes atomiques. Le rôle principal des corrections SCAR est de réduire les valeurs obtenues à partir de la règle d'additivité standard afin de rendre compte pour ces chevauchements géométriques.

La figure 3.9 montre clairement que pour des faibles énergies, il y a une large différence entre les différentes sections efficaces élastiques pour différents teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour la collision des électrons et des positrons. Cette différence remarquable est due au fait que l'effet d'écran à basses énergies entre les atomes est important. Au-delà de 1KeV, cet écart diminue d'une façon monotone.



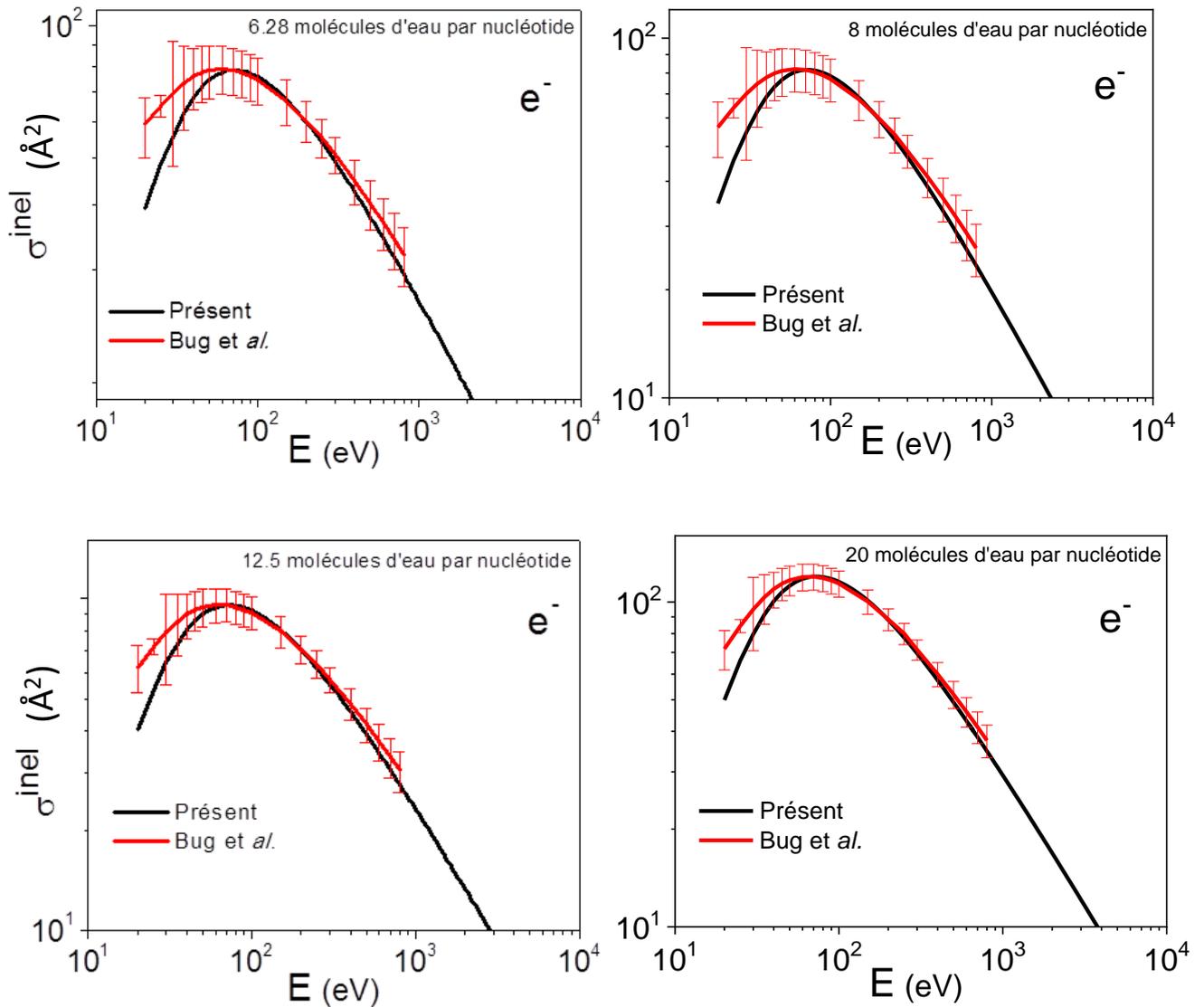
**Figure 3.9 :** Influence des différents teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT sur un nucléotide dans le cas de la diffusion élastique d'électrons et de positrons.

## 6.2 Sections efficaces inélastiques

La comparaison, qui n'est en aucun cas exhaustive, est suffisante pour fournir un éclairage important sur l'effet des différents teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT adoptées dans le calcul des sections efficaces inélastique dans le contexte de la méthodologie diélectrique. La discussion sera divisée en régions situées au-dessus et au-dessous du minimum des sections efficaces inélastique (100 eV).

Les calculs actuels utilisent la fonction diélectrique de Lindhard basés sur la méthodologie diélectrique aux données optiques étendues combinée avec la méthode SCAR-macro pour différents teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT. Pour les données de bug, aucune donnée n'a été trouvé pour les sections efficaces inélastiques totales d'un nucléotide, on a simplement utilisé les données de Bug (2014) et Bug et *al.* (2017) des différents constituants d'ADN obtenues et on a calculé les sections efficaces inélastiques totales des électrons pour un nucléotide en utilisant l'équation 24 et 25.

Sur la figure 3.10, nous comparons nos calculs aux données calculés à partir des données théoriques de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014). Les résultats sont présentés pour différents teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT.

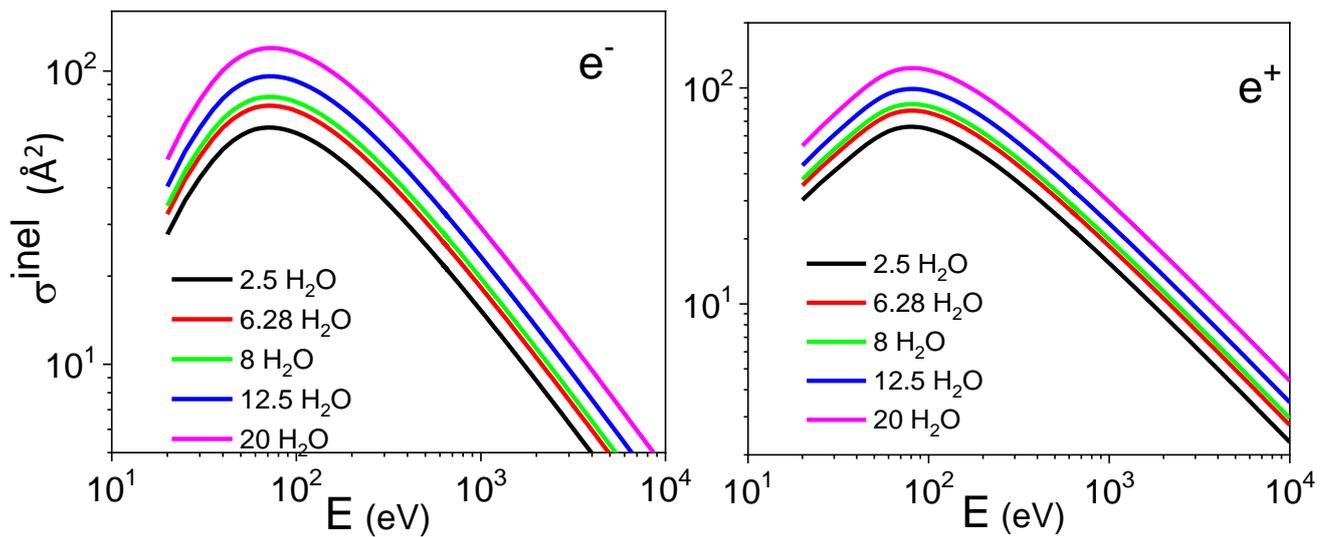


**Figure 3.10 :** Influence de la teneur en molécules  $H_2O/NT$  sur un nucléotide (dAMP) pour la diffusion inélastique d'électrons par rapport aux données calculés à partir des données théoriques de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014).

La figure 3.10 présente un comportement similaire à celui de la figure 3.7 où on trouve une large différence entre nos données et celles de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) (en dessous de 50 eV et par la suite les sections efficaces inélastiques atteignent une valeur maximale autour de 100 eV pour les différents teneurs en molécules  $H_2O/NT$ ). Comme c'est expliqué avant, les incertitudes des sections efficaces d'ionisation des données de Bug n'ont pas été déterminées

pour les énergies inférieures à 30 eV vue qu'aucune donnée expérimentale n'étant disponible d'une part, et le modèle BEB peut ne pas être précis aux énergies proches du seuil d'ionisation, d'autre part. Par la suite, les incertitudes des sections efficaces d'excitation de Bug (2014) ont également été omises dans la région d'énergie respective. Au-delà de 100 eV, nos données présentent un accord raisonnable avec les données de Bug (2014). Les résultats de Bug (2014) ont tendance à se confondre avec les résultats actuels avec le doublement de la teneur en molécules H<sub>2</sub>O/NT, ce qui révèle que la différence diminue progressivement.

La figure 3.11 montre clairement que pour des faibles énergies, il y a une large différence entre les différentes sections efficaces inélastiques pour différentes teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT pour la collision des électrons et des positrons atteignant une valeur maximale autour de 100 eV. Au-delà de 1KeV, cet écart diminue d'une façon uniforme pour différentes teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT avec l'augmentation de l'énergie.



**Figure 3.11 :** Influence des différentes teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT sur un nucléotide dans le cas de la diffusion inélastique d'électrons et de positrons.

### 6.3 Libre parcours moyen élastique et inélastique

Dans cette simulation, le milieu d'ADN est modélisé par un volume cylindrique de 28,2Å ° de hauteur et un diamètre de 23Å °. Ce dernier est supposé en répétant 22 fois les nucléotides. L'équation de base requise pour le libre parcours moyen élastique ou inélastique des électrons ou des positrons au sein d'un segment d'ADN de 11 paires de bases est calculée ainsi :

$$\lambda^{el} = \frac{1}{n\sigma_{nucléotide}^{el}} \quad \lambda^{inel} = \frac{1}{n\sigma_{nucléotide}^{inel}} \quad (24)$$

où  $n$  est le nombre de nucléotides par  $\text{Å}^3$  donné par;

$$n = \frac{22}{\pi r^2 h} \quad (25)$$

$\sigma_{nucléotide}^{inel}$  et  $\sigma_{nucléotide}^{el}$  sont les sections efficaces inélastiques et élastiques totale d'un nucléotide.

Le libre parcours moyen des électrons dans un volume de nucléotides peut aussi être calculé selon Bug (2014), ici la taille du volume cible est un segment d'ADN de 10 paires de bases modélisé par un volume cylindrique avec  $r_{trajet}$  est le rayon et  $h_{trajet}$  est la hauteur. Dans le cas de 10 paires de bases, il y a 20 molécules de THF, 20 de TMP, 10 de PY et 10 de PU. Le libre parcours moyen est donnée par

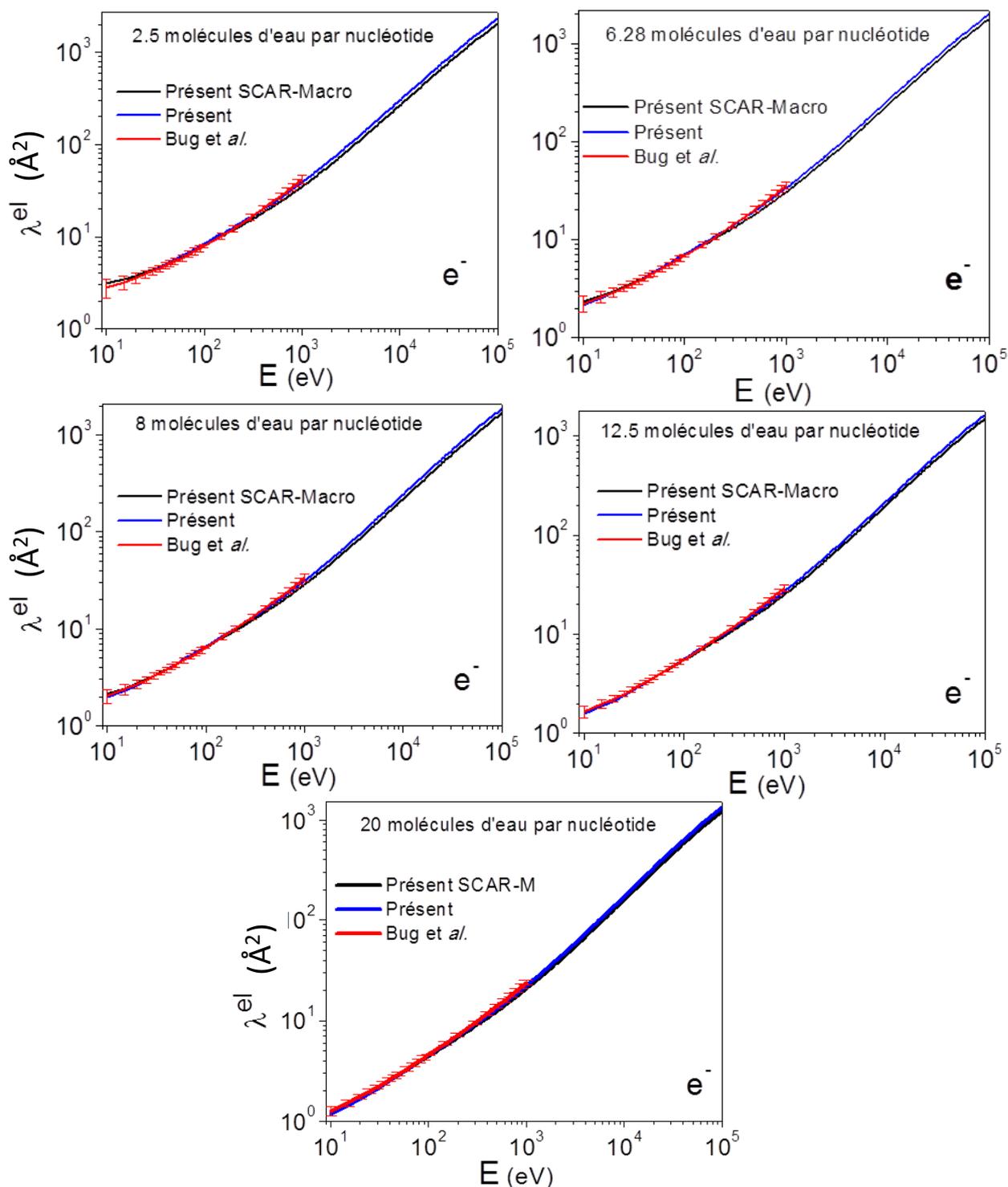
$$\lambda = \frac{1}{n_{NT}\sigma_{NT}} \quad (26)$$

où  $\sigma_{NT}$  la section efficace de diffusion totale d'un nucléotide (NT) et  $n_{NT}$  la densité pour les nucléotides dans un segment d'ADN de 10 paires de bases, elle est donnée par

$$n_{NT} = \frac{20}{\pi r_{trajet}^2 h_{trajet}} \quad (27)$$

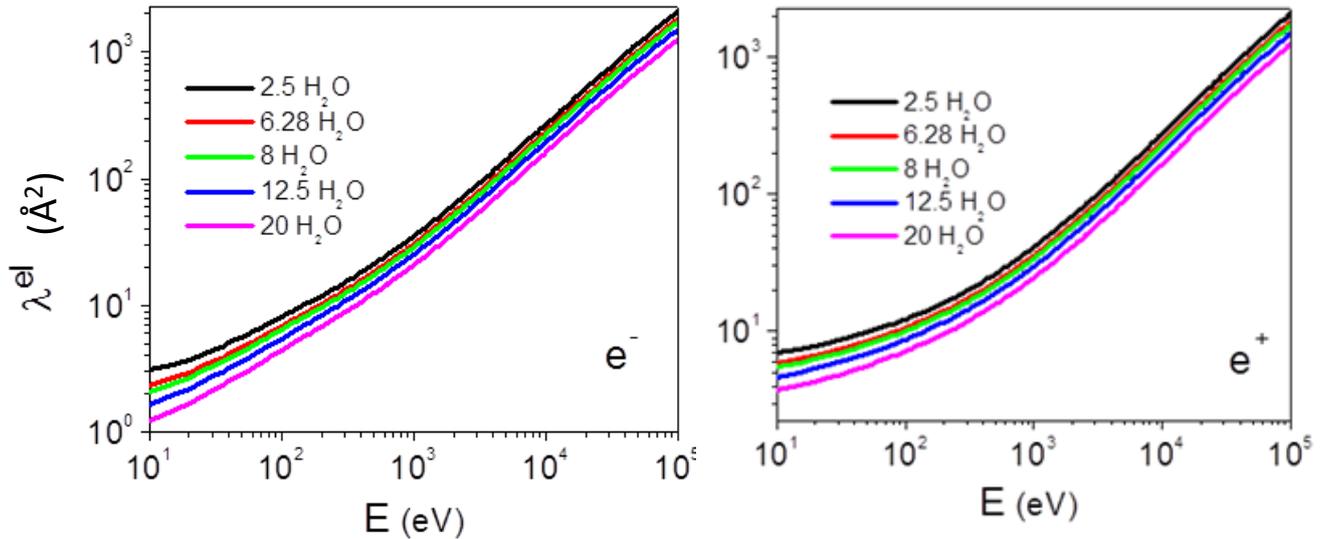
Les calculs du libre parcours moyen élastique et inélastique dans des matériaux d'intérêt biologique sont examinés dans la figure 3.12. Pour une comparaison significative, tous les résultats présentés dans la figure sont basés sur l'approximation SCAR-Macro et le modèle cité par Bug (2014). La figure montre qu'il existe un très bon accord entre nos résultats et ceux de

Bug, la petite différence tend à diminuer avec l'augmentation de la teneur en molécules H<sub>2</sub>O/NT.

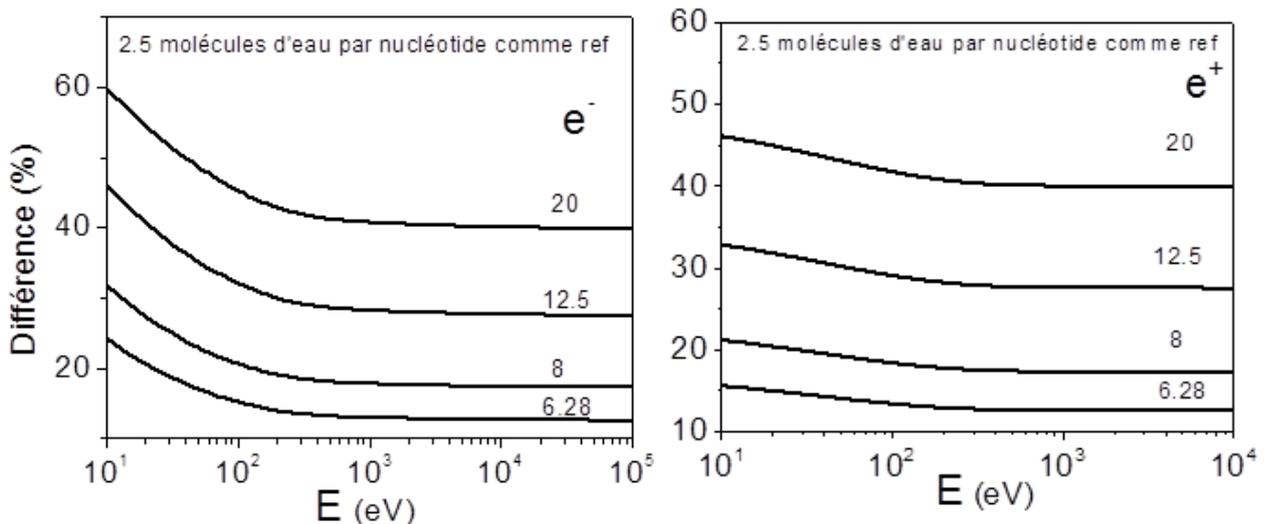


**Figure 3.12 :** Libre parcours moyen pour la diffusion des électrons pour différentes teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT par rapport aux données calculés à partir des données théoriques de Bug et al. (2017) et Bug (2014).

La figure 3.13 montre clairement que pour des faibles énergies, il y a une large différence entre les différentes sections efficaces élastiques pour différents teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT pour la collision des électrons et des positrons. Au-delà de 1KeV, cet écart diminue uniformément pour différents teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT avec l'augmentation de l'énergie. Ce qui justifié par la figure 3.12 en prenant 2.5 molécules H<sub>2</sub>O/NT comme référence.

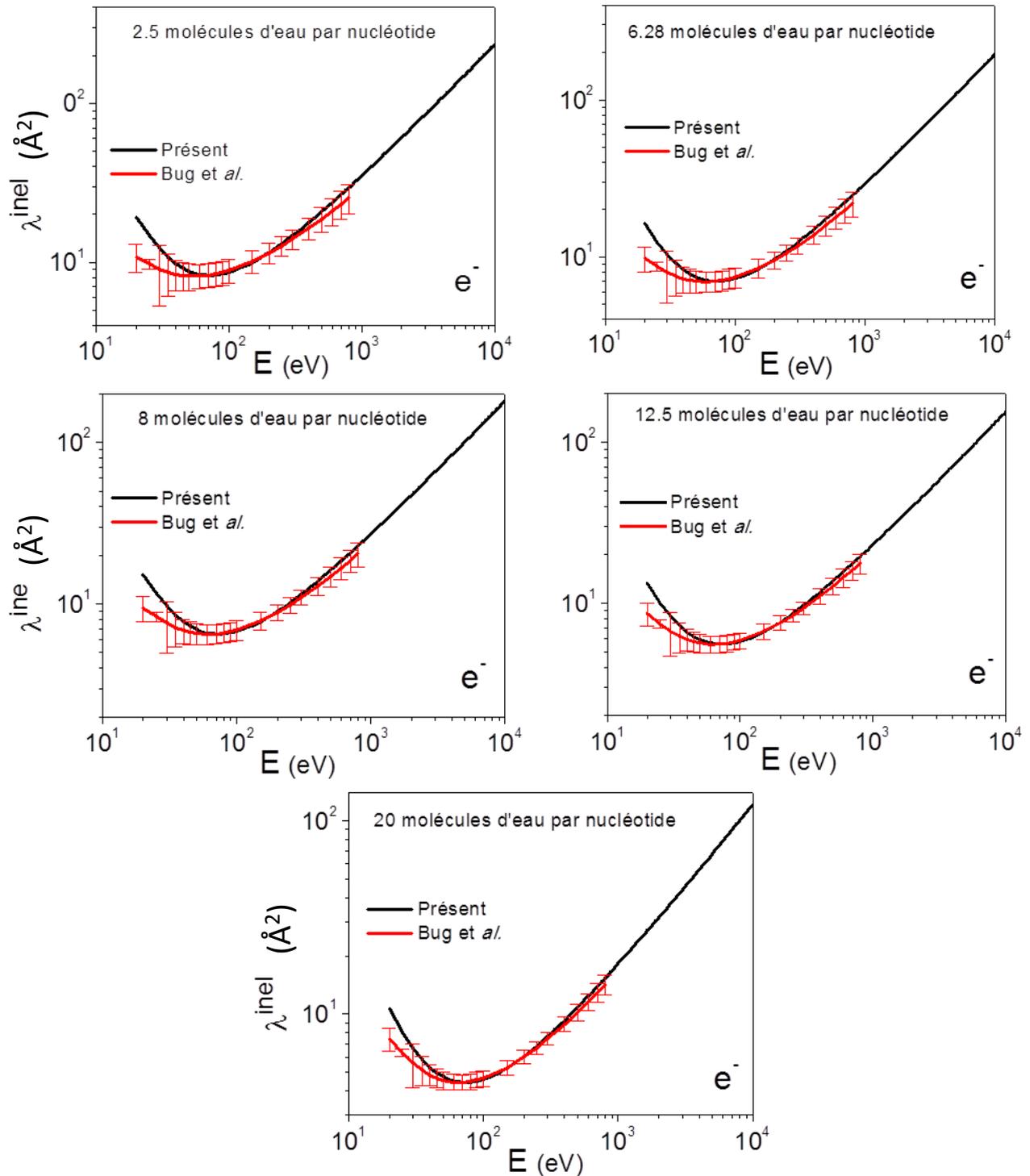


**Figure 3.13 :** Influence des différents teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT sur un nucléotide dans le cas de la diffusion inélastique d'électrons et de positrons.



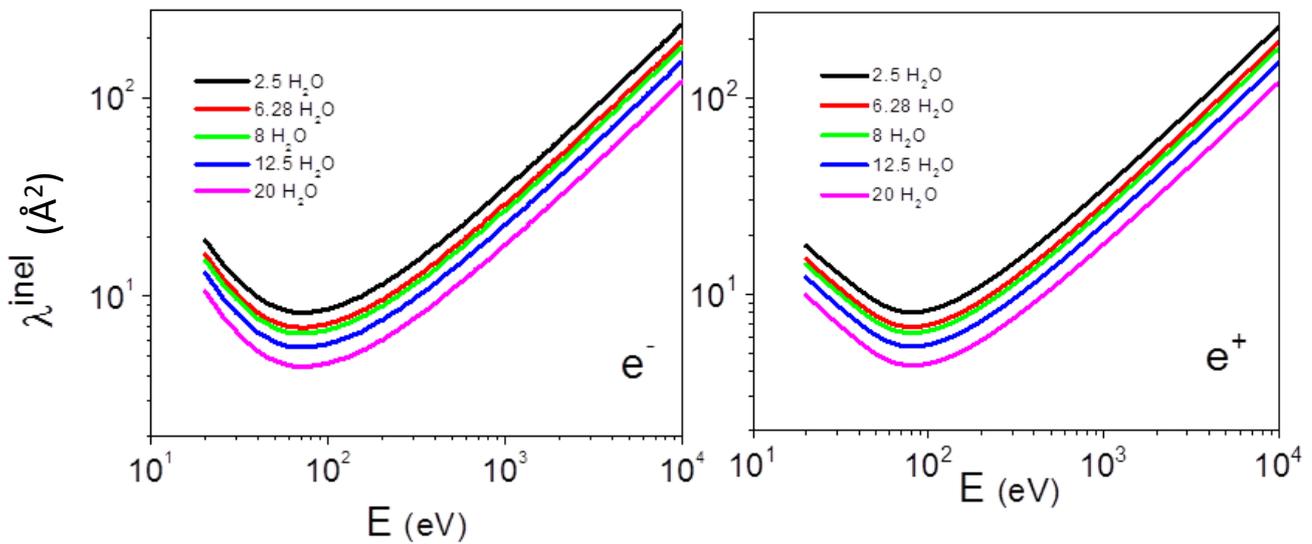
**Figure 3.14 :** Différences pour la diffusion des électrons et des positrons pour différents teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT

Sur la figure 3.14, nous comparons les calculs actuels utilisant la fonction diélectrique de Lindhard aux données calculées à partir des données théoriques de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) basées sur la méthodologie diélectrique. La contribution du plasmon et e – h (électron - trou) aux libre parcours moyen inélastique est explicitement montrée.

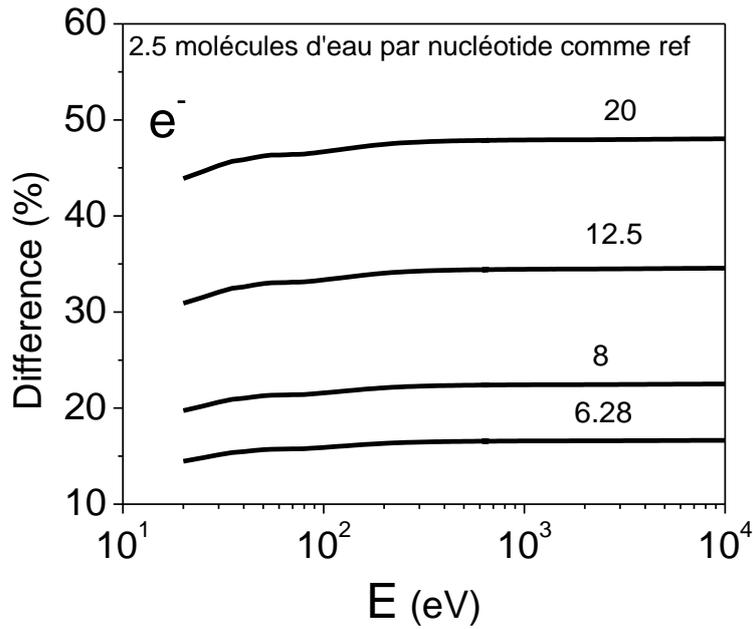


**Figure 3.15 :** Libre parcours moyen inélastique des électrons par rapport aux données calculés à partir des données théoriques de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) pour différentes teneurs en eau

Pour les énergies supérieures au minimum (100 eV) du libre parcours moyen inélastique, la seule contribution e – h surestime de manière significative les calculs semi-empiriques du libre parcours moyen inélastique des positrons. L'ajout de la contribution de plasmons entraîne une diminution substantielle, l'utilisation de la densité électronique de valence au lieu de la densité électronique totale provoque une augmentation de 10% du libre parcours moyen inélastique. La situation est différente en dessous du minimum car, dans la région à faible énergie (<100 eV), la dépendance en impulsion de la fonction de réponse diélectrique devient critique. En effet, cela donne un spectre dont la largeur est trop étroite et la hauteur trop grande. Même situation trouvée dans la figure 3.16 pour différentes teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT pour les collisions des électrons et des positrons. La différence augmente avec l'augmentation de la teneur en eau comme le montre la figure 3.17.



**Figure 3.16 :** Libre parcours moyen des électrons et des positrons pour différentes teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT



**Figure 3.17** : Différences pour la diffusion des électrons et des positrons pour différents teneurs en molécules H<sub>2</sub>O/NT

### 7. Libre parcours moyen total

L'équation de base requise pour le libre parcours moyen total des électrons ou des positrons dans un segment d'ADN de 11 paires de bases est

$$\lambda^{tot} = \frac{1}{n\sigma_{nucléotide}^{tot}} \quad (28)$$

où n est le nombre de nucléotides par Å<sup>3</sup> donné par;

$$n = \frac{22}{\pi r^2 h} \quad (29)$$

où  $\sigma_{nucléotide}^{tot}$  est la section efficace totale de chaque bloc individuel composant le nucléotide.

Les sections efficaces sont dans l'unité Å<sup>2</sup> dérivées de ;

$$\sigma^{tot} = \sigma_{nucléotide}^{tot} + N_{eau} \sigma_{eau}^{tot} \quad (30)$$

où

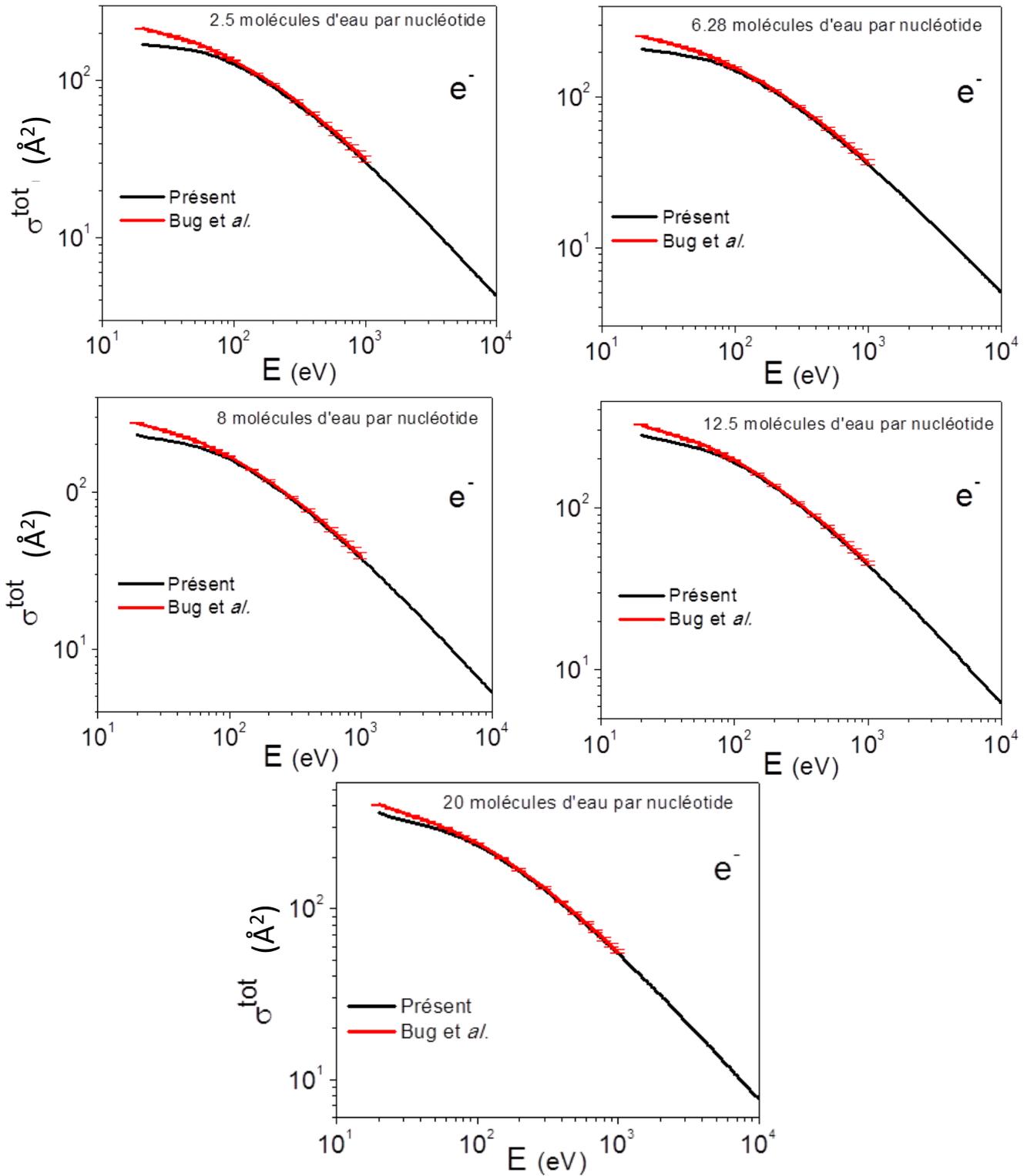
$$\sigma_{nucleotide}^{tot} = \sigma_{nucléotide}^{el} + \sigma_{nucléotide}^{inel} \quad (31)$$

$$\sigma_{eau}^{tot} = \sigma_{eau}^{el} + \sigma_{eau}^{inel} \quad (32)$$

## 8. Résultats et discussion

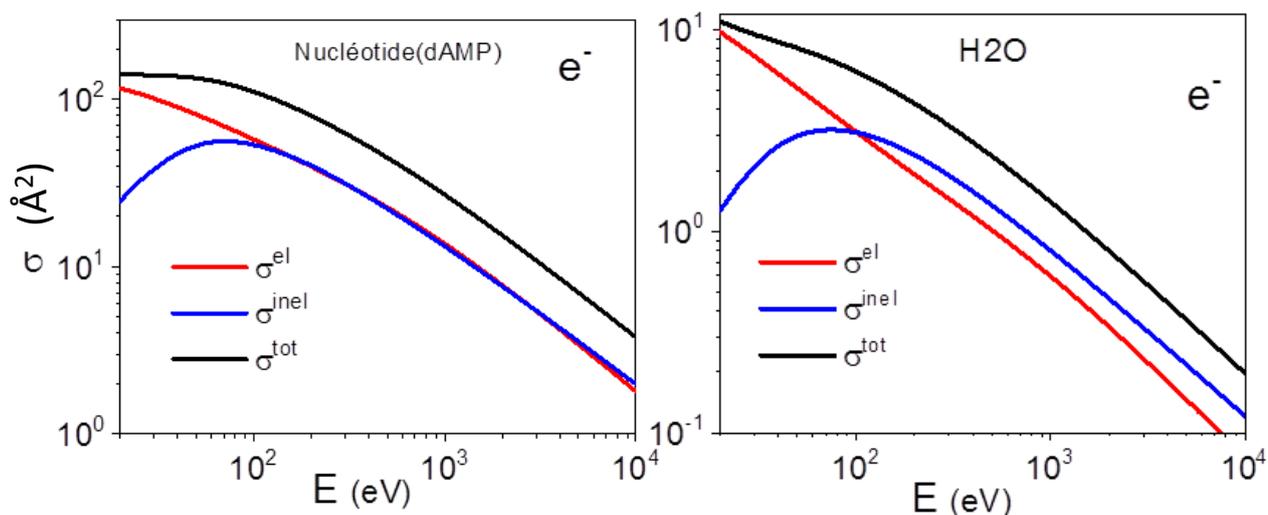
Pour les données de Bug, la première exigence de cohérence pour les sections efficaces totales est que la somme des données de sections efficaces totales pour l'ionisation, la diffusion élastique et l'excitation soit égale aux sections de diffusions élastiques totales. Pour répondre à cette exigence, les sections de diffusions élastiques totales de PY n'ont pas été ajustée de manière optimale aux données expérimentales ; les données expérimentales ont été remplacées dans la région énergétique 25–800 eV par les données théoriques calculées par la méthode du modèle de potentiel optique complexe sphérique (SCOP). Dans la région énergétique indiquée, les données SCOP sans la contribution des excitations en rotation sont jusqu'à 8% plus grandes que les données expérimentales, ce qui donne des valeurs plus cohérentes de la section de diffusion d'excitation. Ce qui est clairement montré dans la figure 3.18 où il y a un écart entre nos résultats et ceux de Bug pour des énergies inférieures à 100 eV. Cette différence diminue avec le doublement de la teneur en eau jusqu'à 20 molécules H<sub>2</sub>O/NT.

Pour les données de Bug, les sections efficaces totales du THF et du PY obtenus négligent les excitations rotationnelles en cohérence avec la résolution angulaire finie et énergétique des expériences et la connaissance insuffisante de la contribution des excitations rotationnelles. Aux basses énergies, la sous-estimation des sections efficaces totales expérimentales du PY par rapport au THF est probablement due à l'énergie finie et aux résolutions angulaires du dispositif de transmission linéaire. Comme discuté précédemment, cela conduit à une sous-estimation des sections efficaces totales lorsque le moment dipolaire est important. En raison du moment dipolaire plus important de PY, cette sous-estimation est plus significative que pour le THF. La justification d'utiliser les données théoriques SCOP sans la contribution d'excitations rotationnelles pour PY, au lieu des données tenant compte de ces processus, est qu'il existe des prédictions significativement différentes de l'ampleur des sections efficaces d'excitation rotationnelle lorsque des données théoriques d'auteurs différents sont comparées (Baek et al., 2013). De plus, il n'existe aucune donnée expérimentale pour appuyer les calculs théoriques.



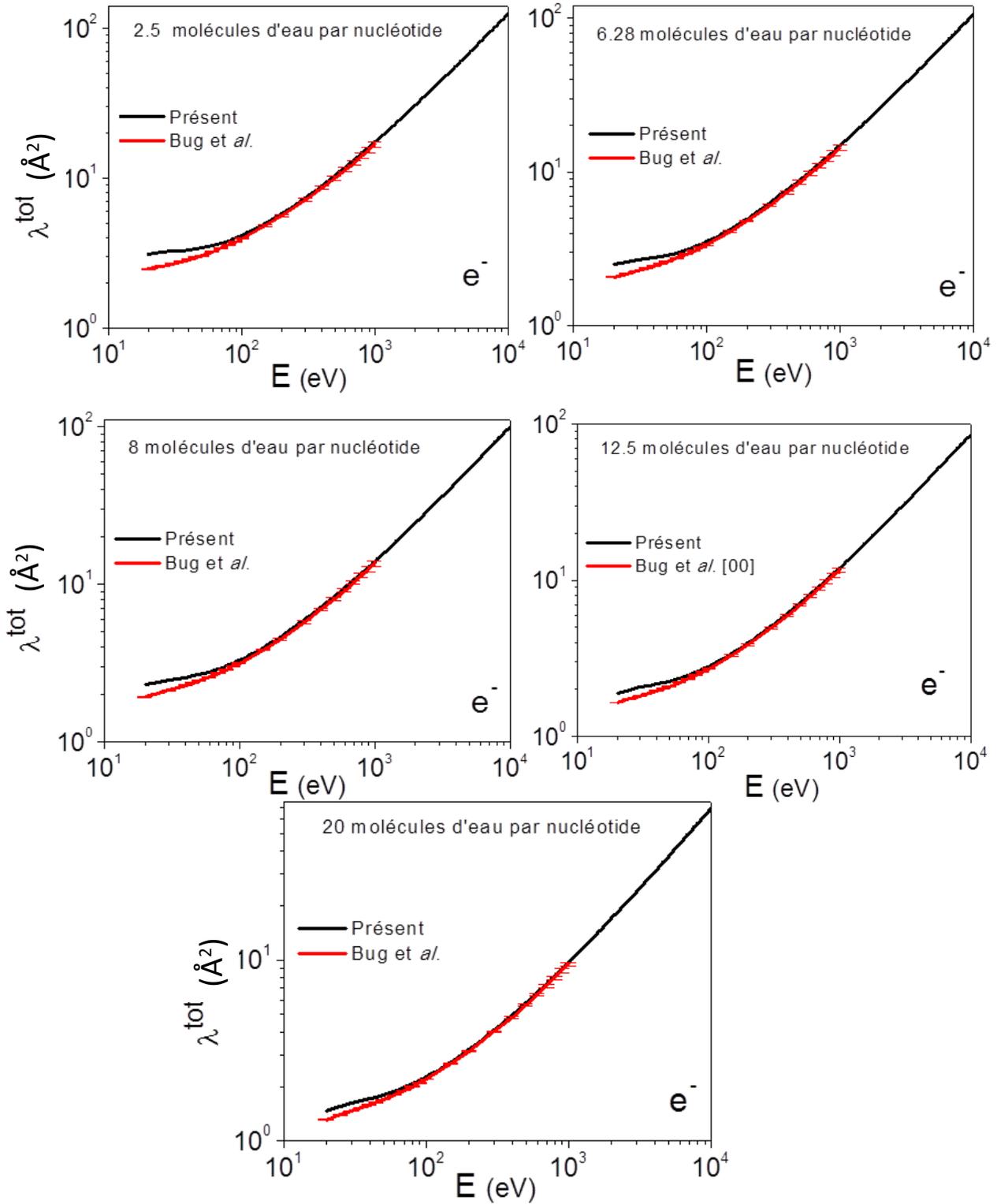
**Figure 3.18 :** Sections efficaces totales des électrons aux données calculés à partir des données théoriques de Bug et *al.* (2017) et Bug (2014) pour différentes teneurs en H<sub>2</sub>O

Dans la figure 3.19, les sections efficaces totales, sections efficaces élastiques et inélastiques pour le dAMP et l'eau présentent un comportement similaire mais les sections efficaces de diffusion totale et les sections efficaces de diffusion élastique totale du nucléotide possèdent une plus grande pente en fonction de l'énergie par rapport à l'eau. Cela conduit à des valeurs plus élevées pour les constituants de l'ADN à des énergies supérieures à 100 eV. Aux énergies inférieures, la situation s'inverse de sorte que les sections efficaces de diffusion inélastique totale du nucléotide possèdent une plus grande pente en fonction de l'énergie par rapport sections efficaces de diffusion élastique totale pour l'eau et le nucléotide. Les sections efficaces de diffusion des constituants de l'ADN sont généralement plus fortes que celles de l'eau, en raison de la plus grande polarisabilité dipolaire.



**Figure 3.19 :** Sections efficaces totales, sections efficaces élastiques et inélastiques pour le dAMP et l'eau.

Nous avons comparé dans la figure 3.20, le libre parcours moyen total calculé des données de Bug (2014) avec nos résultats. Un bon accord a été trouvé pour les énergies supérieures à 100 eV pour différentes teneurs en eau. Pour les énergies inférieures à 100 eV, on remarque la présence d'un écart est dû d'une part à l'utilisation des données théoriques SCOP dans le calcul de Bug comme c'est expliqué avant et d'autre part en raison de la plus grande polarisabilité dipolaire.



**Figure 3.20 :** Libre parcours moyen total des électrons comparé aux données calculés à partir des données théoriques de Bug et al. (Bug et al., 2017, Bug 2014)

## **9. Conclusion**

Afin de fournir les sections efficaces élastiques des collisions d'électrons et de positrons avec les macromolécules (nucléotides), on a amélioré la méthode SCAR en raison du très grand nombre de petites contributions provenant de chaque paire d'atomes où on a considéré les coordonnées du centre de gravité moléculaire à la place des coordonnées atomiques. La structure moléculaire de l'ADN peut être aussi représentée par une alternance de THF et TMP ; le support d'ADN est supposé être constitué de nucléotides uniformément répartis. Les nucléotides sont en outre supposés être égaux. Les sections efficaces totales d'une molécule polyatomique ont été obtenues à partir de la somme des sections efficaces totales de groupes moléculaires plus petits.

Le rôle principal des corrections SCAR est de réduire les valeurs obtenues à partir de la règle d'additivité standard afin de rendre compte pour les chevauchements géométriques.

La molécule d'ADN est principalement constituée de l'eau. Par conséquent, pour s'approcher du modèle réel, différentes teneurs en eau ont été utilisées dans cette simulation du point de vue que le nombre de molécules d'eau dans la molécule d'ADN varie avec les conditions environnementales dans une cellule vivante d'une part et pour maintenir la stabilité de l'ADN d'une autre part. Le nombre de molécules d'eau par nucléotide varie de 0 à 20 comme l'humidité relative varie de 0 à 92%.

On a trouvé que les valeurs respectives des sections efficaces élastiques pour la diffusion d'électrons ou de positrons pour les nucléotides dAMP, dCMP, dGMP et dTMP ne sont pas très éloignées pour cela dans le reste des résultats on va choisir l'un des nucléotides cités.

Une comparaison avec les sections efficaces élastiques d'interaction des électrons et des positrons avec les constituants de l'ADN et de l'eau disponible dans la littérature montre des différences significatives surtout avec les données Blanco et Garcia, du fait que le traitement SCAR réussit partiellement à prendre en compte les corrections d'écran géométriques pour moyennes à grandes énergies et que l'effet d'écran s'atténue progressivement avec l'augmentation de l'énergie incidente. Blanco et Garcia prévoyaient des erreurs de 10% dans leurs sections efficaces totales.

Pour les collisions inélastiques, les sections efficaces ont été calculées de 0 à 1 KeV et qui sont utilisées par la suite dans le calcul MC. Les propriétés optiques de l'ADN à savoir les nucléotides (A-T) ( $C_{20}H_{27}N_7O_{13}P_2$ ) ou (C-G) ( $C_{19}H_{26}N_8O_{13}P_2$ ) et de l'eau sont spécifiées par les constantes optiques  $n$  et  $k$ . La fonction de perte d'énergie de l'ADN déshydraté présente un

maximum autour de 20 eV correspondant à un plasmon qui va dominer les interactions inélastiques des électrons ou les particules chargées dans l'ADN.

Les calculs actuels utilisent la fonction diélectrique de Lindhard basée sur la méthodologie diélectrique aux données optiques étendues combinée avec la méthode SCAR-macro pour différentes teneurs en eau. Aucune donnée n'a été trouvée pour les sections efficaces inélastiques totales d'un nucléotide, on a simplement utilisé les sections efficaces inélastiques de Bug (2014) et Bug et *al.* (2017) du THF, TMP, PY et PU obtenues et on a calculé les sections efficaces inélastiques totales des électrons pour un nucléotide en utilisant l'équation 24 et 25 en faisant intervenir la teneur en eau mentionnée avant.

Les incertitudes des sections efficaces d'ionisation des données de Bug n'ont pas été déterminées pour les énergies inférieures à 30 eV vu qu'aucune donnée expérimentale n'étant disponible d'une part, et le modèle BEB peut ne pas être précis aux énergies proches du seuil d'ionisation, d'autre part. Par la suite, les incertitudes des sections efficaces d'excitation de Bug (2014) ont également été omises dans la région d'énergie respective, ceci explique bien le désaccord trouvé entre nos données et ceux de Bug pour des énergies inférieures à 100 eV mais au-delà de cette énergie, nos données présentent un accord raisonnable. Les résultats de Bug (2014) ont tendance à se confondre avec les résultats actuels avec le doublement de la teneur en eau, ce qui révèle que la différence diminue progressivement.

Dans cette simulation, le milieu d'ADN est modélisé par un volume cylindrique de  $28,2\text{Å}$  de hauteur et un diamètre de  $23\text{Å}$ . Ce dernier est supposé en répétant 22 fois les nucléotides. Le libre parcours moyen élastique ou inélastique des électrons ou des positrons au sein d'un volume de nucléotides est requis par l'équation base ou peut être aussi calculé selon Bug (2014), dans un segment d'ADN de 10 paires de bases modélisé par un volume cylindrique. Dans le cas de 10 paires de bases, il y a 20 molécules de THF, 20 de TMP, 10 de PY et 10 de PU.

Pour une comparaison significative, tous les résultats du libre parcours moyen élastique présentés sont basés sur l'approximation SCAR-Macro et le modèle cité par Bug (2014) où on a trouvé un très bon accord entre nos résultats et ceux de Bug, la petite différence tend à diminuer avec l'augmentation de la teneur en eau. Pour le libre parcours moyen inélastique la contribution des plasmons et électron-trou est explicitement montrée. L'ajout de la contribution des plasmons entraîne une diminution substantielle, l'utilisation de la densité électronique de valence au lieu de la densité électronique totale provoque une augmentation de 10% du libre parcours moyen inélastique.

Une comparaison a été faite entre le libre parcours moyen total calculé des données de Bug (2014) est un bon accord a été trouvé pour les énergies supérieure à 100 eV pour différentes teneurs en eau. Pour les énergies inférieures à 100 eV, on remarque la présence d'un écart qui est dû d'une part à l'utilisation des données théoriques SCOP dans le calcul de Bug et d'autre part en raison de la plus grande polarisabilité dipolaire.

## Références bibliographiques

- Alexander, K. (2014). The synthesis, detection and repair of nucleotides containing the 8-nitroguanine modification (Doctoral dissertation, University of Liverpool).
- Baek, W. Y., Arndt, A., Bug, M. U., Rabus, H., & Wang, M. (2013). Total electron-scattering cross sections of pyrimidine. *Physical Review A*, 88(3), 032702.
- Blanco, F., & García, G. (2004). Screening corrections for calculation of electron scattering differential cross sections from polyatomic molecules. *Physics Letters A*, 330(3-4), 230-237.
- Blanco, F., & García, G. (2007). Calculated cross sections for electron elastic and inelastic scattering from DNA and RNA bases. *Physics Letters A*, 360(6), 707-712.
- Blanco, F., & García, G. (2009). A screening-corrected additivity rule for the calculation of electron scattering from macro-molecules. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 42(14), 145203.
- Blanco, F., Munoz, A., Almeida, D., da Silva, F. F., Lima-Vieira, P., Fuss, M. C., ... & García, G. (2013). Modelling low energy electron and positron tracks in biologically relevant media. *The European Physical Journal D*, 67(9), 199.
- Bote, D., Salvat, F., Jablonski, A., & Powell, C. J. (2009). Cross sections for ionization of K, L and M shells of atoms by impact of electrons and positrons with energies up to 1 GeV: Analytical formulas. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 95(6), 871-909.
- Brovchenko, I., Krukau, A., Oleinikova, A., & Mazur, A. K. (2006). Water percolation governs polymorphic transitions and conductivity of DNA. *Physical review letters*, 97(13), 137801.
- Brunger, M. J., Buckman, S. J., & Zecca, A. (2009). Electron and positron scattering from biomolecules. In *Journal of Physics: Conference Series* (Vol. 194, No. 1, p. 012034). IOP Publishing.
- Bug, M. U. (2014). Nanodosimetric particle track simulations in water and DNA media. (Doctoral dissertation, University of Wollongong).
- Bug, M. U., Baek, W. Y., Rabus, H., Villagrasa, C., Meylan, S., & Rosenfeld, A. B. (2017). An electron-impact cross section data set (10 eV–1 keV) of DNA constituents based on consistent experimental data: A requisite for Monte Carlo simulations. *Radiation Physics and Chemistry*, 130, 459-479.
- Negele, J. W., & Yazaki, K. (1981). Mean free path in a nucleus. *Physical Review Letters*, 47(2), 71.
- Caron, L., & Sanche, L. (2005). Diffraction in resonant electron scattering from helical macromolecules: Effects of the DNA backbone. *Physical Review A*, 72(3), 032726.
- Chiari, L., Anderson, E., Tattersall, W., Machacek, J. R., Palihawadana, P., Makochekanwa, C., Sullivan, J. P., García, G., Blanco, F., McEachran, R. P. & Brunger, M. J. (2013). Total, elastic, and inelastic cross sections for positron and electron collisions with tetrahydrofuran. *The Journal of chemical physics*, 138(7), 074301.
- Colyer, C. J., Bellm, S. M., Blanco, F., García, G., & Lohmann, B. (2011). Elastic electron scattering from the DNA bases cytosine and thymine. *Physical Review A*, 84(4), 042707.
- Ding, Z. J., & Shimizu, R. (1996). A Monte Carlo modeling of electron interaction with solids including cascade secondary electron production. *Scanning: The Journal of Scanning Microscopies*, 18(2), 92-113.
- Ding, Z. J., Li, H. M., Goto, K., Jiang, Y. Z., & Shimizu, R. (2004). Energy spectra of backscattered electrons in Auger electron spectroscopy: comparison of Monte Carlo simulations with experiment. *Journal of applied physics*, 96(8), 4598-4606.
- Falk, M., Hartman, K. A., & Lord, R. C. (1962). Hydration of deoxyribonucleic acid. I. A gravimetric study. *Journal of the American Chemical Society*, 84(20), 3843-3846.
- Fano, U. (1963). Penetration of protons, alpha particles, and mesons. *Annual Review of Nuclear Science*, 13(1), 1-66.
- Franklin, R. E., & Gosling, R. G. (1953). The structure of sodium thymonucleate fibres. I. The influence of water content. *Acta Crystallographica*, 6(8-9), 673-677.
- Hayashi, H., & Hiraoka, N. (2015). Accurate measurements of dielectric and optical functions of liquid water and liquid benzene in the VUV region (1–100 eV) using small-angle inelastic x-ray scattering. *The Journal of Physical Chemistry B*, 119(17), 5609-5623.

- Heyrovská, R. (2008). Structures of the molecular components in DNA and RNA with bond lengths interpreted as sums of atomic covalent radii. *The open structural biology journal*, 2(1).
- Inagaki, T., Hamm, R. N., Arakawa, E. T., & Painter, L. R. (1974). Optical and dielectric properties of DNA in the extreme ultraviolet. *The journal of chemical physics*, 61(10), 4246-4250.
- Isaacson, M. (1972). Interaction of 25 keV electrons with the nucleic acid bases, adenine, thymine, and uracil. I. Outer shell excitation. *The Journal of Chemical Physics*, 56(5), 1803-1812.
- Jensen, K. O., & Walker, A. B. (1993). Monte Carlo simulation of the transport of fast electrons and positrons in solids. *Surface science*, 292(1-2), 83-97.
- Kulkarni, M., & Mukherjee, A. (2017). Understanding B-DNA to A-DNA transition in the right-handed DNA helix: Perspective from a local to global transition. *Progress in biophysics and molecular biology*, 128, 63-73.
- Mehnaz, M., Yang, L. H., Zou, Y. B., Da, B., Mao, S. F., & Ding, Z. J. (2019). A Comparative Study on Monte Carlo Simulations of Electron Emission from Liquid Water. arXiv preprint arXiv:1903.11235.
- Negele, J. W., & Yazaki, K. (1981). Mean free path in a nucleus. *Physical Review Letters*, 47(2), 71.
- Nguyen-Truong, H. T. (2015). Penn algorithm including damping for calculating the electron inelastic mean free path. *The Journal of Physical Chemistry C*, 119(14), 7883-7887.
- Nikjoo, H. (2003). Radiation track and DNA damage. *Iranian Journal of Radiation Research*, 1(1), 14-17.
- Palihawadana, P., Boadle, R., Chiari, L., Anderson, E. K., Machacek, J. R., Brunger, M. J., Buckman, S. J., & Sullivan, J. P. (2013). Positron scattering from pyrimidine. *Physical Review A*, 88(1), 012717.
- Palik, E. D. (Ed.). (1998). *Handbook of optical constants of solids (Vol. 3)*. Academic press.
- Sanz, A. G. (2014). Interaction of electrons and positrons with molecular systems of biological interest (Doctoral dissertation, Universidad Autónoma de Madrid).
- Sanz, A. G., Fuss, M. C., Blanco, F., Sebastianelli, F., Gianturco, F. A., & García, G. (2012). Electron scattering cross sections from HCN over a broad energy range (0.1–10 000 eV): Influence of the permanent dipole moment on the scattering process. *The Journal of chemical physics*, 137(12), 124103.
- Schneider, B., Patel, K., & Berman, H. M. (1998). Hydration of the phosphate group in double-helical DNA. *Biophysical journal*, 75(5), 2422-2434.
- Shinotsuka, H., Tanuma, S., Powell, C. J., & Penn, D. R. (2015). Calculations of electron inelastic mean free paths. X. Data for 41 elemental solids over the 50 eV to 200 keV range with the relativistic full Penn algorithm. *Surface and Interface Analysis*, 47(9), 871-888.
- Souici, M., Khalil, T. T., Muller, D., Raffy, Q., Barillon, R., Belafrites, A., ... & Fromm, M. (2017). Single-and double-strand breaks of dry DNA exposed to protons at Bragg-peak energies. *The Journal of Physical Chemistry B*, 121(3), 497-507.
- Swarts, S. G., Sevilla, M. D., Becker, D., Tokar, C. J., & Wheeler, K. T. (1992). Radiation-induced DNA damage as a function of hydration: I. Release of unaltered bases. *Radiation research*, 129(3), 333-344.
- Tung, C. J., Ashley, J. C., & Ritchie, R. H. (1979). Electron inelastic mean free paths and energy losses in solids II: Electron gas statistical model. *Surface Science*, 81(2), 427-439.
- Vinodkumar, M., Limbachiya, C., Barot, M., Barot, A., & Swadia, M. (2014). Electron impact total cross sections for components of DNA and RNA molecules. *International Journal of Mass Spectrometry*, 360, 1-7.
- Zou, Y. B., Mao, S. F., Da, B., & Ding, Z. J. (2016). Surface sensitivity of secondary electrons emitted from amorphous solids: Calculation of mean escape depth by a Monte Carlo method. *Journal of Applied Physics*, 120(23), 235102.

# Chapitre IV

## *Simulation Monte Carlo*

## 1. Introduction

Les techniques de simulation Monte Carlo ont fait une entrée lente dans le domaine de la radiothérapie à la fin des années 1970. Depuis, ils ont connu un essor considérable traduit par le nombre d'articles publiés. La puissance de calcul a toujours été un problème, de sorte qu'au départ, seuls des problèmes simples pouvaient être résolus (Seco et Verhaegen, 2013).

Au cours des deux dernières décennies, les codes de Monte Carlo ont été de plus en plus utilisés pour la modélisation en radiothérapie. L'avènement de ces codes a permis d'illuminer nombreux aspects de la microdosimétrie et du mécanisme des dommages causés par les rayonnements ionisants dans la cellule (Nikjoo et *al.*, 2001, 2016 ; Friedland et *al.*, 2017). Ces codes ont été continuellement modifiés pour inclure de nouvelles sections efficaces améliorées et de nouvelles techniques de calcul ainsi que de nouveaux modèles pour le noyau d'ADN.

À ce jour, un grand nombre d'ouvrages scientifiques ont été générés qui utilisent des calculs de Monte Carlo pour prédire les paramètres mesurables à partir d'expériences biologiques afin de comprendre le mécanisme des dommages en radiologie moléculaire (Parezke 1995, Goodhead 1994, Ward 1995) (Nikjoo et *al.*, 2003 ; Friedland et *al.*, 2017). Notre connaissance des distributions spatiales des dépôts d'énergie dans les structures biologiques repose principalement sur des études de structure de parcours dans l'eau. Ces données ont été utilisées dans la modélisation des effets cellulaires des rayonnements ionisants (Nikjoo et *al.*, 2001). Dans les dernières années, certains codes MC (GEANT4-DNA) ont commencé l'implémentation directe des sections efficaces des molécules biologiques (bases d'ADN et squelette sucre-phosphate)

La simulation Monte Carlo est une méthode importante pour l'étude des dommages de l'ADN induits par les rayonnements. De nombreuses études ont été menées pour établir un modèle détaillé pour l'étude quantitative des dommages de l'ADN (Tan et *al.*, 2004 ; Margis et *al.*, 2020). Dans la simulation, les données d'entrée nécessaires sont les différentes sections efficaces, telles que les sections efficaces élastique, inélastique, simple différentiel et double différentiel. D'autres variantes de calculs permettent le transport des électrons secondaires, inclues les sections efficaces d'ionisations et d'excitations ; Il existe, en général, deux types de mécanismes de dommages à l'ADN en radiobiologie. L'un concerne les dommages indirects causés par les radicaux d'eau et l'autre les dommages directs causés par l'excitation directe et / ou l'ionisation de divers sites de l'ADN (Nikjoo et *al.*, 2016).

Il a été récemment démontré que la diffusion résonante des électrons secondaires peut également entraîner des dommages à l'ADN, les réactions de ces électrons, même à des énergies bien inférieures aux seuils d'ionisation, induisent des rendements substantiels en cassures d'un ou deux brins dans l'ADN (Boudaifa et *al.*, 2000). Des expériences récentes mesurant les dommages causés à l'ADN par des électrons de faible énergie ont montré que le seuil de rupture d'un seul brin est  $<25$  eV et le seuil de rupture du double brin se situe entre 25 et 50 eV (Folkard et *al.*, 1993 ; Boudaifa et *al.*, 2002). D'autres études expérimentales ont utilisé des rayons X pour montrer que les petits événements de perte d'énergie et le regroupement des dommages qui leur sont associés sont très efficaces pour endommager l'ADN, entraînant la mort cellulaire (Goodhead et *al.*, 1979, LaVerne et *al.*, 1995 ; Nikjoo et *al.*, 2016).

Une connaissance détaillée des répartitions de perte d'énergie d'électrons dans l'ADN est nécessaire pour expliquer les mécanismes d'endommagement de l'ADN déshydraté, ce que l'on appelle les effets directs de l'endommagement par rayonnement (LaVerne et *al.*, 1995). Par ailleurs, il existe plusieurs études expérimentales et théoriques sur les effets indirects des dommages causés par les réactions chimiques des radicaux OH produits dans des solutions d'ADN humides (Chatterjee et *al.*, 1986). Ce qui remet en cause de manière fondamentale la notion traditionnelle selon laquelle les dommages génotoxiques causés par les électrons secondaires ne peuvent se produire qu'à des énergies supérieures à l'ionisation, ou lors de la solvataion lorsqu'elles deviennent une espèce chimique à réaction lente (Boudaifa et *al.*, 2002).

Les études sur les dommages directs causés à l'ADN nécessitent la connaissance des sections efficaces inélastiques pour l'excitation ou l'ionisation de l'ADN et de ses fragments.

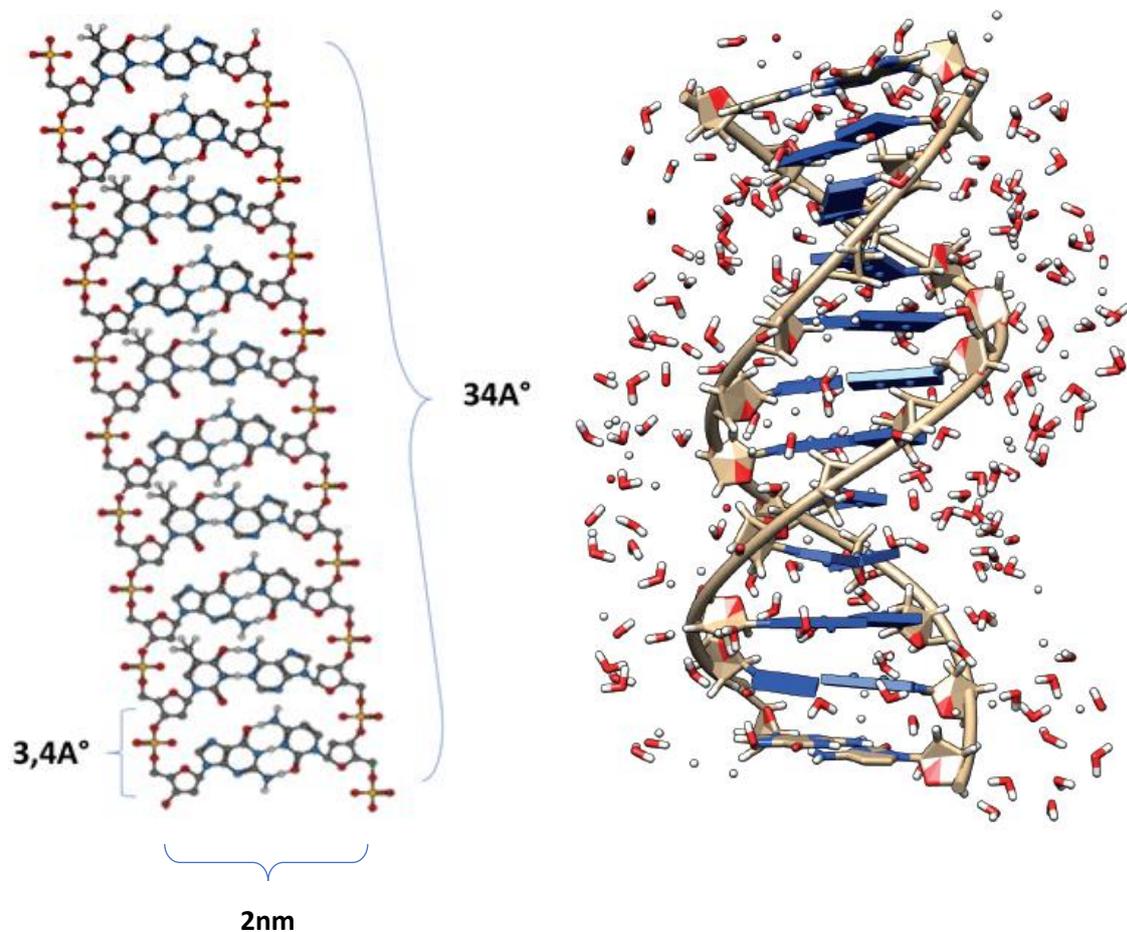
De manière générale, la méthode de Monte Carlo apporte une solution numérique à un problème que l'on peut décrire comme une évolution temporelle. En imitant la nature, les règles d'interaction sont traitées de manière aléatoire et répétitive, jusqu'à ce que les résultats numériques convergent utilement vers les moyennes, les moments et leurs variances estimés (Seco et Verhaegen, 2013). La méthode de Monte Carlo représente une tentative de modélisation de l'ADN par une simulation directe de la dynamique essentielle du système en question.

## 2. Modèles d'ADN

À l'échelle de centaines et de milliers de paires de bases, la double hélice de l'ADN est une chaîne polymère très flexible qui adopte de nombreuses conformations différentes en solution. Des modèles d'ADN plus ou moins sophistiqués ont été utilisés par différents groupes pour le calcul des dommages induits à l'ADN. Dans le code GEANT4-DNA, les modèles les plus récents et plus utilisés sont disponibles pour être modélisés dans le transport de différents types de radiations. Le modèle le plus simple est un segment linéaire d'ADN sous la forme d'un cylindre. Ce modèle a été principalement utilisé pour obtenir des fréquences de dépôts d'énergie dans des structures macromoléculaires sans hypothèse a priori du rôle de la structure atomique dans la détermination des réponses biologiques (Nikjoo et *al.*, 1999, 2001, 2003, 2016).

Un modèle plus réaliste utilisé dans notre étude et dans d'autres est le modèle volumique (Figure 4.1). Dans ce modèle, l'ADN se présente sous sa forme B d'un diamètre de 2 nm et est divisé en tranches de 0,34 nm. A son tour, chaque tranche est divisée en quatre volumes représentant les nucléotides entourés de molécules d'eau. Le nombre de molécules d'eau par nucléotide varie selon diverses estimations (détail de notre modèle voir chapitre III page 90). Ce modèle est basé sur des structures réelles expérimentalement mesurable des nucléotides. Des modèles atomiques sophistiqués de l'ADN sont disponibles depuis plusieurs années (Ninaber et *al.*, 1999). Ces structures peuvent maintenant être facilement générées en utilisant des programmes disponibles tels que « Newhelix » et « Curves » (Nikjoo et *al.*, 1999).

Les derniers modèles ont été affinés avec la distribution de molécules de solvant autour du squelette sucre-phosphate et des bases nucléiques (Nikjoo et *al.*, 1999). La modélisation de structures d'ADN d'ordre supérieur, de nucléosomes, de la chromatine et d'autres formes a été réalisée par plusieurs auteurs (Pomplun et *al.*, 1994). Néanmoins, des calculs MC tenant compte de ses dernières structures ne sont encore disponibles. La majorité de ces modélisations sont hypothétiques et ces structures d'ADN d'ordre supérieur doivent encore être confirmées expérimentalement (Nikjoo et *al.*, 1999, 2001, 2016 ; Friedland et *al.*, 2017).



**Figure 4.1** : Modèle de l'ADN

<https://inc.cnrs.fr/fr/cnrsinfo/leau-au-coeur-de-ladn>

### 3. Approche physique de la simulation Monte Carlo

La simulation Monte Carlo du transport d'électrons est basée sur une description stochastique du processus de diffusion. Lorsqu'un électron frappe une surface solide, il pénètre dans celui-ci, subissant un processus de diffusion compliqué. Cette pénétration d'électrons est approchée par une trajectoire classique en zigzag. L'endroit où l'électron change de direction est la position où l'électron est diffusé. Des valeurs particulières de l'angle de diffusion, de la perte d'énergie cinétique par l'électron, etc., dans un événement individuel sont réalisées par des nombres aléatoires, selon certaines formules décrivant le comportement de diffusion (Ninaber *et al.*, 1999).

L'électron incident subit des séries successives d'interactions élastiques et inélastiques diffusant des événements dans l'ADN. Comme résultat de ces derniers, la trajectoire originale des électrons est aléatoire. Notre modèle de simulation est basé sur trois points

1. Le premier point représente les conditions initiales incluant les constantes physiques pour la spécification de l'échantillon. Les tables de section efficaces sont alors préparées avant la simulation pour gagner du temps. Permettant ainsi au processus de programmation de suivre la trace de l'électron en prenant les données des tables dont il a besoin pendant que les calculs arithmétiques sont effectués. D'où la nécessité d'utilisation d'un espace mémoire très large pour les tabulations des sections efficaces comme des fonctions de matériel, énergie, perte d'énergie, et l'angle de diffusion
2. Le tirage des nombres aléatoires pour la détermination de la distribution, l'angle azimutal et la position du point d'impact.
3. L'effet de l'interaction inélastique qui se traduit par la perte d'énergie après chaque collision de ce type et l'angle de diffusion.

Fondamentalement la technique MC utilise les fonctions de densité de probabilité par l'injection d'un nombre aléatoire pour avoir l'énergie et la position de l'électron après chaque collision.

#### **4. Modèles de diffusion**

Les processus physiques à modéliser lors de la simulation du transport d'électrons à travers la matière sont la diffusion élastique par des noyaux atomiques, les collisions inélastiques avec des électrons atomiques provoquant une excitation ou une ionisation. Dans notre cas, on a supposé que le dépôt d'énergie se fait in situ et donc le transport des électrons secondaires n'est pas nécessaire ; i.e, la relaxation et les recombinaisons produisant des électrons Auger et rayon-X caractéristiques sont exclus dans notre calcul. Vu que l'énergie des électrons primaires considérés dans notre étude est faible (en général 1 keV) donc la production de Bremsstrahlung est peu probable. Par conséquent la génération de photon et par conséquent la production de paires électron-positron est nulle. Les électrons subissent un très grand nombre d'interactions coulombiennes avec les électrons et les noyaux atomiques du milieu (Reynaert et *al.*, 2006).

## 4.1 Diffusion élastique de l'électron

### 4.1.1 Section efficace élastique totale, libre parcours moyen et distribution angulaire

L'intégration de la section efficace différentielle sur tous les angles solides donne la section efficace élastique totale :

$$\sigma^{el} = \int_0^\pi 2\pi \frac{d\sigma}{d\theta} \sin\theta d\theta \quad (04)$$

qui se rapporte au libre parcours moyen élastique à travers

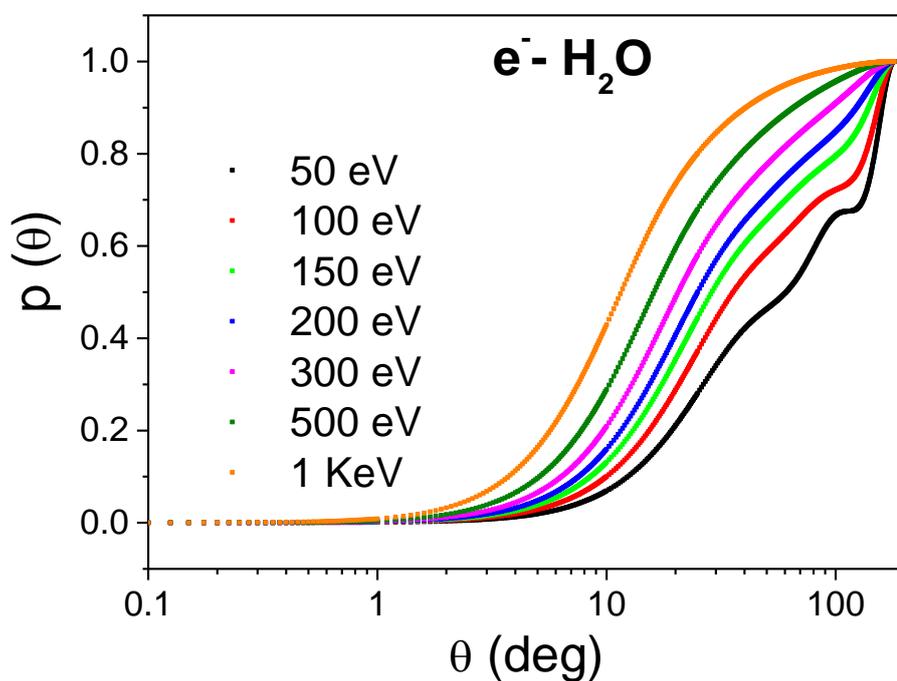
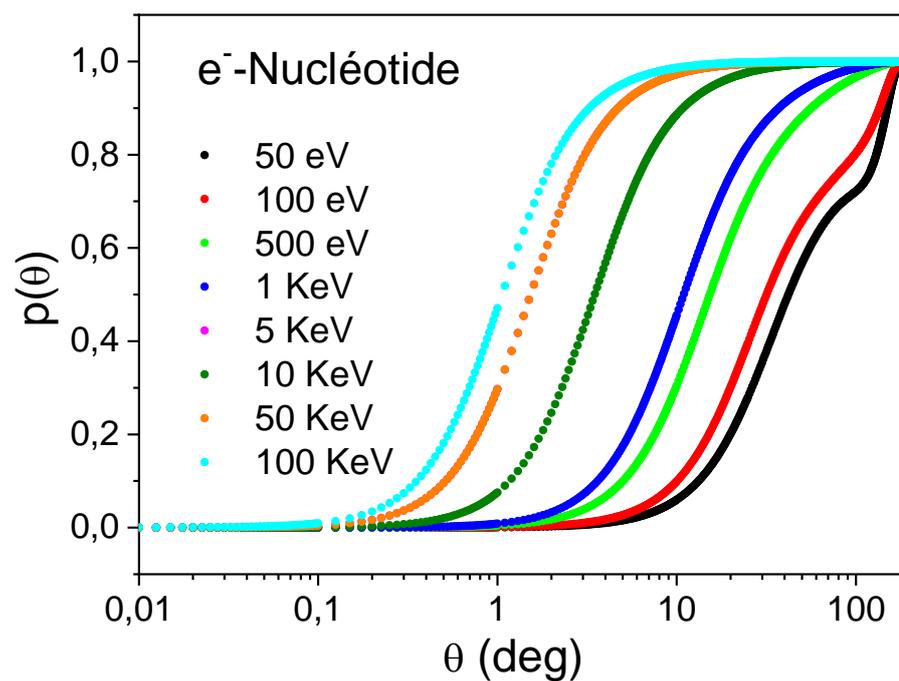
$$\lambda_{el}^{-1} = \frac{N_A \rho}{A} \sigma^{el} \quad (05)$$

Dans ce travail, comme mentionné au chapitre II, les sections efficaces atomiques déduites de l'équation d'onde relativiste de Dirac pour des énergies allant de 10 eV à 100 KeV sont appliquées pour calculer la diffusion élastique moléculaire d'électrons et de positrons. Dans le présent calcul, nous avons ignoré les effets de polarisation, qui peuvent être plus prononcés que l'effet relativiste pour des énergies inférieures à 100 eV (Aouina et Chaoui, 2018a ; Aouina et Chaoui, 2018b). La section efficace différentielle est calculés par le potentiel relativiste de Dirac–Hartree – Fock (DHF).

Les distributions angulaires sont calculées à partir de la connaissance des sections efficaces élastique différentielle et de ses sections efficaces élastiques intégral. Les valeurs de  $P(\theta)$  sont réparties dans la plage (0, 1) comme

$$P(\theta) = \frac{\int_0^\theta \frac{d\sigma}{d\theta} d\theta}{\int_0^\pi \frac{d\sigma}{d\theta} d\theta} \quad (06)$$

La probabilité qu'une particule se disperse dans un angle  $\theta$  est calculée à partir de la distribution angulaire  $P(\theta)$ . Dans la Figure 4.2, on a présenté les fonctions de distribution angulaire numérique pour le nucléotide (A-T) ( $C_{20}H_{27}N_7O_{13}P_2$ ) ou (C-G) ( $C_{19}H_{26}N_8O_{13}P_2$ ) et l'eau à différentes énergies 50 eV, 100 eV, 500 eV, 1 keV, 5 KeV, 10 keV, 100 keV pour le nucléotide et 50 eV, 100 eV, 150 eV, 200 eV, 300 eV, 500 eV et 1 KeV pour l'eau.

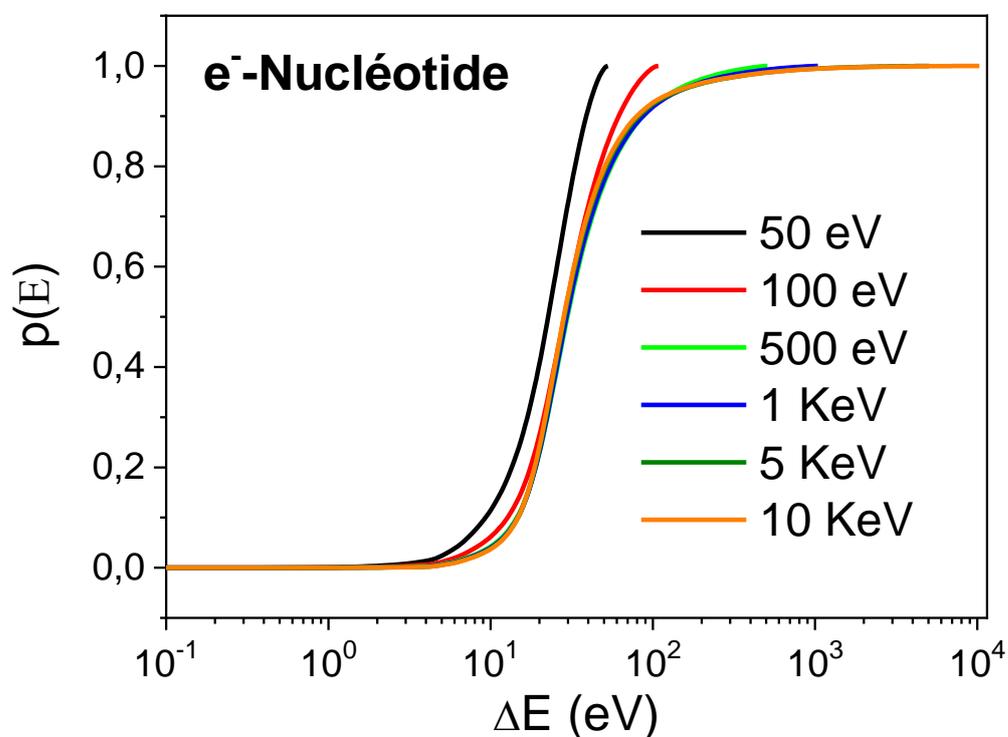


**Figure 4.2 :** Distributions angulaires numériques des collisions élastiques de l'électron avec le nucléotide (A-T) ( $C_{20}H_{27}N_7O_{13}P_2$ ) ou (C-G) ( $C_{19}H_{26}N_8O_{13}P_2$ ) et l'eau respectivement utilisées dans la simulation de Monte Carlo pour échantillonner l'angle de diffusion.

## 4.2 Diffusion inélastique de l'électron

### 4.2.1 Section efficace inélastique totale, Libre parcours moyen et distribution de la perte d'énergie

La Figure 4.4 montre les résultats des fonctions de densité de probabilités des collisions inélastiques pour le nucléotide et l'eau à différentes énergies 50 eV, 100eV, 500 eV, 1keV, 5 KeV et 10keV pour le nucléotide et 50 eV, 100 eV, 150 eV, 200 eV, 300 eV, 500 eV et 1 KeV pour l'eau.



**Figure 4.3 :** Fonction de densités de probabilité en fonction de la perte d'énergie des collisions inélastiques de l'électron avec le nucléotide et l'eau respectivement

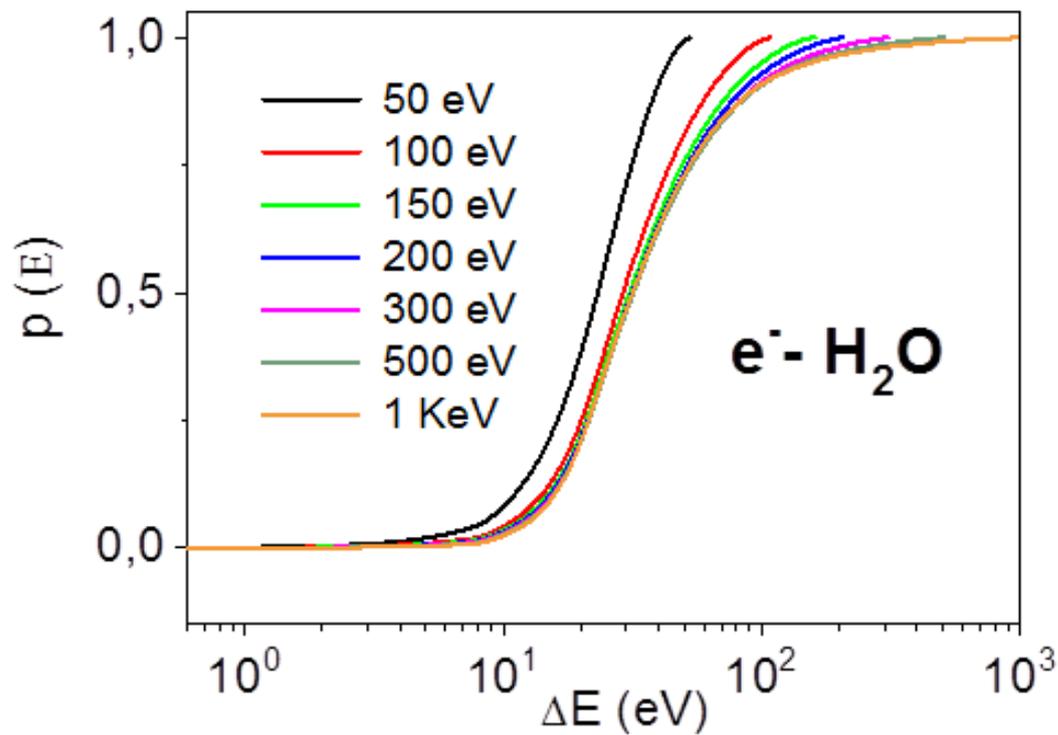
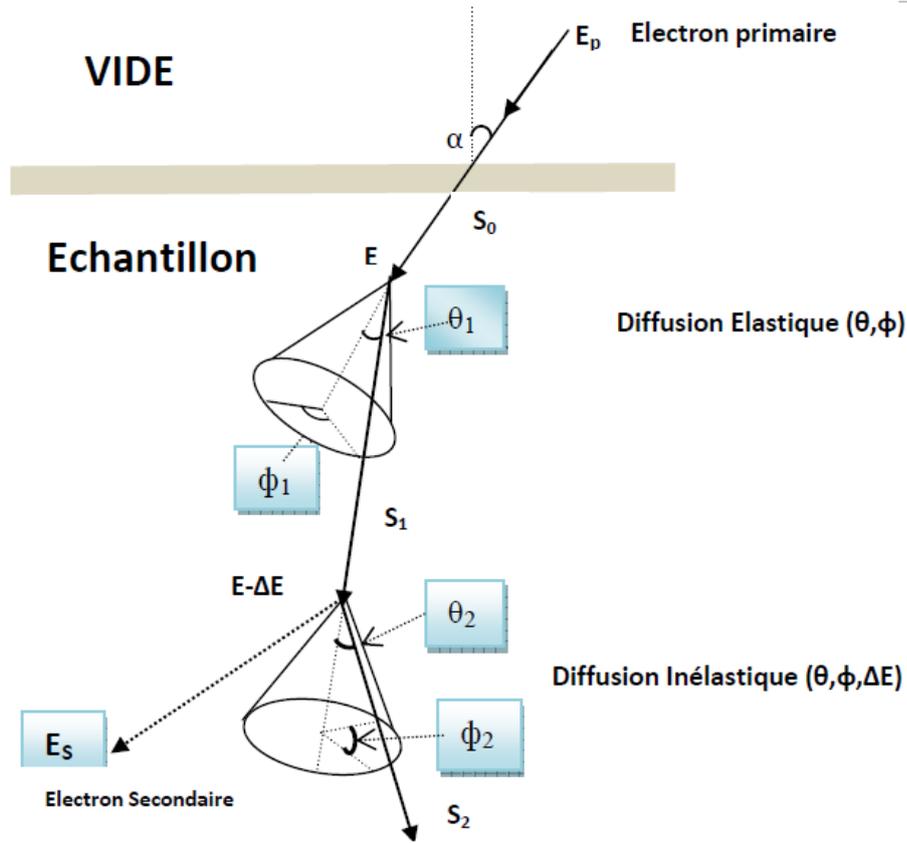


Figure 4.3 : Suite

## 5. Procédure et programmation de Monte Carlo

Le code MC actuel des trajectoires des électrons pénétrant dans un échantillon d'atomes des constituant de la molécule d'ADN est basé sur une description des processus de diffusion d'électrons individuels comme représenté schématiquement sur la Figure 4.4 (Ding et Shimizu, 1996)



**Figure 4.4 :** Schéma montrant le modèle discret pour la simulation Monte Carlo de la diffusion d'électrons (Ding et Shimizu, 1996).

Le problème est ensuite réduit à la détermination de valeurs de quantités physiques telles que la distance de collision, l'angle de diffusion, la perte d'énergie, etc., lors d'un événement de diffusion particulier. La technique de Monte Carlo choisit fondamentalement ces valeurs par des nombres aléatoires en fonction de leurs sections efficaces. Soit une fonction de distribution de probabilité  $P(x)$  pour une variable  $x$ , on peut dériver une fonction d'accumulation normalisée  $A(x)$  (Ding et *al.*, 1996),

$$A(x) = \int_{x_{min}}^x P(x') dx' / \int_{x_{min}}^{x_{max}} P(x') dx' \quad (10)$$

Soit  $P(s)$  la densité de probabilité correspondant à la loi de probabilité et  $s$  la longueur du chemin parcouru par un électron diffusant entre deux collisions successives obéisse au processus stochastique de Poisson

$$P(s) = \frac{1}{\lambda_{tot}} e^{-(s/\lambda_{tot})} \quad (11)$$

$\lambda_{tot}$  correspond donc au libre parcours moyen total de l'électron, en fonction du libre parcours moyen inélastique et du libre parcours moyen élastique, il s'exprime par la relation (Chaoui et Bichsel, 2006 ; Chaoui, 2008) :

$$\frac{1}{\lambda_{tot}} = \frac{1}{\lambda_{inel}} + \frac{1}{\lambda_{el}} \quad (12)$$

L'angle de diffusion  $\theta_0$  est la distance  $s_0$  sont calculé par la méthode MC (de façon aléatoire).

$$s_0 = -\lambda_{tot} \ln(R) \quad (15)$$

où R est un nombre aléatoire entre 0 et 1.

Après chaque collision l'électron perd une partie de son énergie en produisant une paire électron-trou. En suite  $s_{n+1}$  et  $\theta_{n+1}$  sont introduits aléatoirement, et ainsi de suite (Figure 4.4). Si l'électron échappe à la surface comme un électron rétrodiffusé, la direction et l'énergie sont enregistrées.

La procédure de simulation Full MC utilise des nombres aléatoires  $R_i$ , tous issus de distributions uniformes entre 0 et 1. Le libre parcours moyen est calculé en utilisant un premier nombre aléatoire  $R_1$  comme (Chaoui et Bichsel, 2006 ; Chaoui, 2008)

$$S_1 = -\lambda_{tot} \ln R_1 \quad (16)$$

Si  $S_1 < 0$  l'électron est rétrodiffusé.

Pour déterminer le type de la diffusion après le passage S, un autre nombre aléatoire  $R_2$  est injecté.

$$\begin{cases} si & R_2 < \lambda_{el}^{-1} / \lambda_{tot}^{-1} & la \text{ diffusion est élastique} \\ sinon & & la \text{ diffusion est inélastique} \end{cases} \quad (17)$$

L'angle de diffusion lors d'une collision élastique est échantillonné à partir de la fonction de densité de probabilité PDF en injectant un nombre aléatoire comme suit :

$$R_3 = \int_0^\theta \frac{d\sigma_{tot}^{el}}{d\Omega} \sin \theta' d\theta' / \int_0^\pi \frac{d\sigma_{tot}^{el}}{d\Omega} \sin \theta' d\theta' \quad (18)$$

Ou

$$R_3 = \int_0^\theta \frac{d\sigma_{tot}^{inel}}{d\Omega} \sin \theta' d\theta' / \int_0^\pi \frac{d\sigma_{tot}^{inel}}{d\Omega} \sin \theta' d\theta' \quad (19)$$

$$\left\{ \begin{array}{ll} \text{si } R_3 < \frac{\sigma^{el} \text{ nucléotide}}{\sigma_{tot}^{el}} & \text{la diffusion est élastique avec le nucléotide} \\ \text{Sinon} & \text{la diffusion est élastique avec l'eau} \end{array} \right. \quad (20)$$

$$\left\{ \begin{array}{ll} \text{si } R_3 < \frac{\sigma^{inel} \text{ nucléotide}}{\sigma_{tot}^{inel}} & \text{la diffusion est inélastique avec le nucléotide} \\ \text{Sinon} & \text{la diffusion est inélastique avec l'eau} \end{array} \right. \quad (21)$$

La section efficace totale élastique ou inélastique de chaque bloc individuel composé d'un nucléotide et un nombre de molécules d'eau, est dérivée de ;

$$\sigma_{tot}^{el} = \sigma_{nucléotide}^{el} + N_{eau} \sigma_{eau}^{el} \quad (22)$$

Et

$$\sigma_{tot}^{inel} = \sigma_{nucléotide}^{inel} + N_{eau} \sigma_{eau}^{inel} \quad (23)$$

$N_{H_2O}$  est le nombre de molécules d'eau présentes dans un nucléotide. Des simulations avec 6.28, 12.5 et 20 molécules d'eau par nucléotide ont été effectuées.

Lorsque la collision est inélastique, la perte d'énergie est déterminée par échantillonnage aléatoire dans l'expression suivante (Ding et Shimizu, 1996)

$$R_4 = \int_0^{\Delta E} \frac{d\lambda_{inel}^{-1}}{d(\Delta E')} d(\Delta E') / \int_0^{E-E_f} \frac{d\lambda_{inel}^{-1}}{d(\Delta E')} d(\Delta E') \quad (24)$$

On détermine l'angle azimutal à partir de l'initialisation de la distribution uniforme,  $\phi$  est l'angle sphérique compris entre 0 et  $2\pi$ . L'angle azimutal est supposé isotopique pendant la collision, il est calculé directement par l'injection d'un nombre aléatoire  $R_5$  (Chaoui et Bichsel, 2006)

$$\phi = 2\pi R_5 \quad (25)$$

L'angle de diffusion inélastique est calculé à partir du modèle classique de collision binaire en tant que (Ding et al., 1996)

$$\sin \theta = \left( \frac{\Delta E}{E} \right)^{1/2} \quad (26)$$

C'est une bonne approximation utilisée simplement pour accélérer les simulations. Dans le modèle Penn, l'angle de diffusion inélastique est calculé à partir d'un échantillonnage aléatoire

de la section efficace différentielle double en fonction de la perte d'énergie et de l'angle solide, exprimé en (Ding et Shimizu, 1996)

$$R_6 = \int_0^\theta \frac{d^2\lambda_{inel}^{-1}}{d\Omega d(\Delta E')} \sin \theta' d\theta' / \int_0^\pi \frac{d^2\lambda_{inel}^{-1}}{d\Omega d(\Delta E')} \sin \theta' d\theta' \quad (27)$$

## 6. Algorithme de la simulation Monte Carlo

L'algorithme dans la figure 4.5 illustre le transport d'électrons, ce code MC convient également pour le transport des positrons. Généralement, les interactions sont échantillonnées à partir d'un ensemble de données de sections efficaces. A cet effet, chaque section efficace d'interaction est transférée dans une distribution de probabilité. Ces distributions sont ensuite utilisées pour un échantillonnage aléatoire des paramètres requis.

Fondamentalement la technique de Monte Carlo utilise la fonction de densité de probabilités par l'injection d'un nombre aléatoire pour avoir l'énergie et la position de l'électron après chaque collision. Chaque particule incidente est suivie individuellement jusqu'à ce qu'elle quitte le volume spécifié, contenant la géométrie de la configuration modélisée, ou jusqu'à ce que leur énergie tombe en dessous d'un seuil spécifié. Ce dernier cas s'applique particulièrement aux électrons secondaires, qui sont alors supposés absorbés à leur position.

La simulation peut être effectuée beaucoup plus rapidement, en arrêtant une particule une fois que son énergie descend en dessous d'un certain seuil (Cut-off). Sur la base de la connaissance de sa physique, on peut estimer la longueur du chemin d'une particule, compte tenu de son énergie et du matériau qu'elle traverse. Si cette longueur de chemin est inférieure à la résolution spatiale requise, nous pouvons arrêter la particule et supposer que son énergie est absorbée localement. Cela peut être fait pour les photons et les électrons, mais les énergies de coupure typiques différeront pour les deux types de particules [Reynaert et al., 2006].

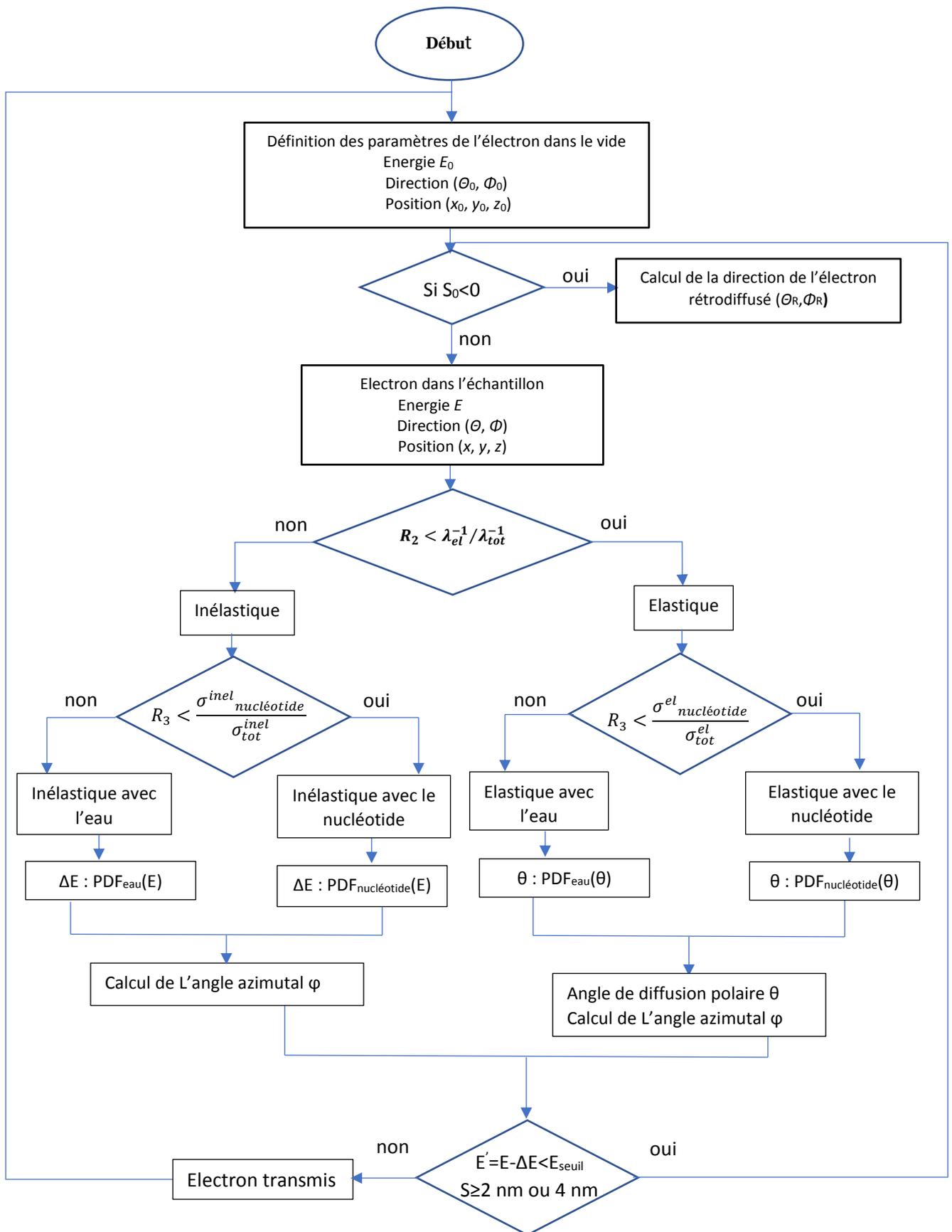
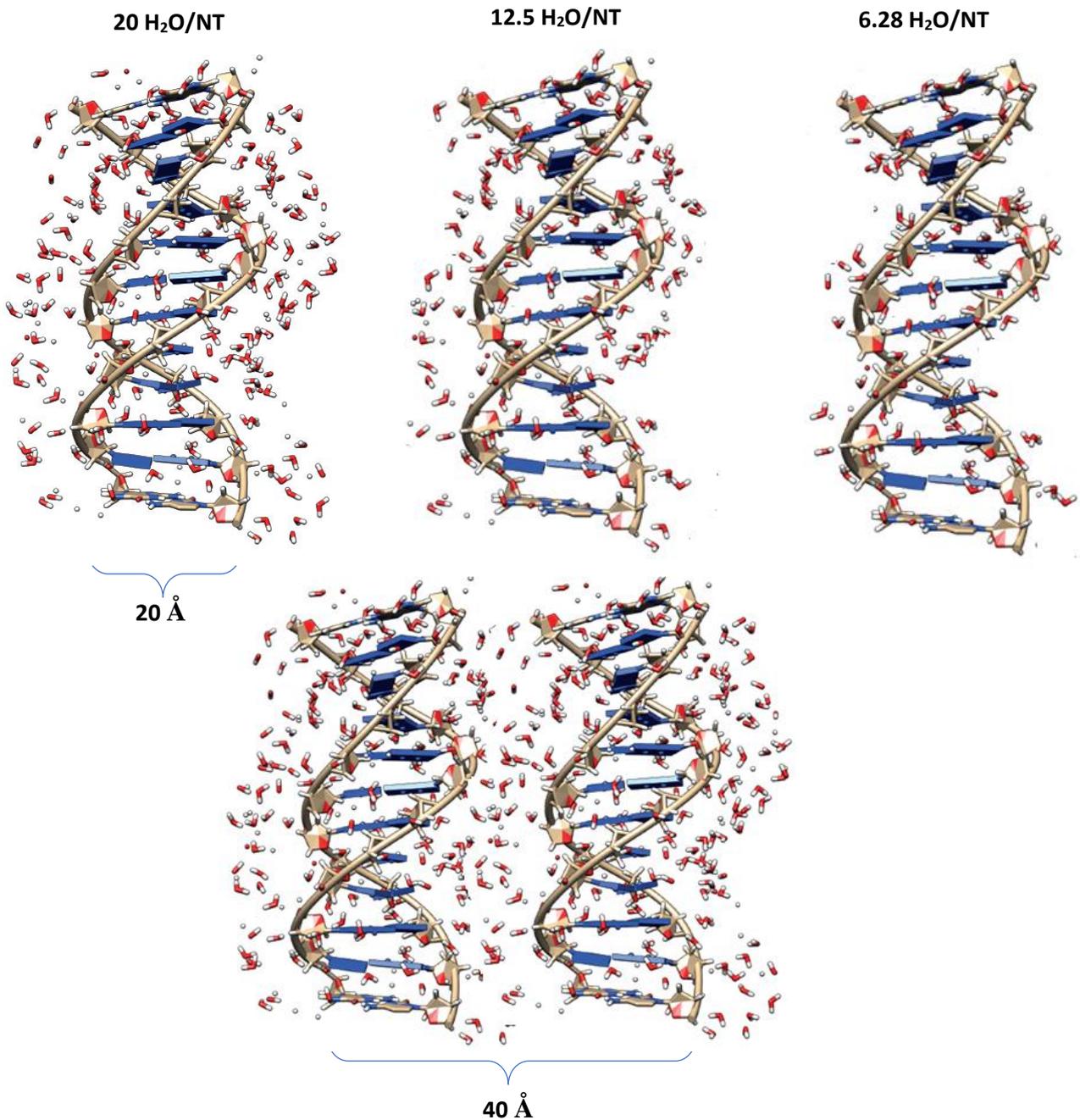


Figure 4.5 : Algorithme illustrant le transport d'électrons dans le code MC.

ΔE représente la perte d'énergie et PDF est la fonction de la densité de probabilité.

## 7. Résultats et discussion

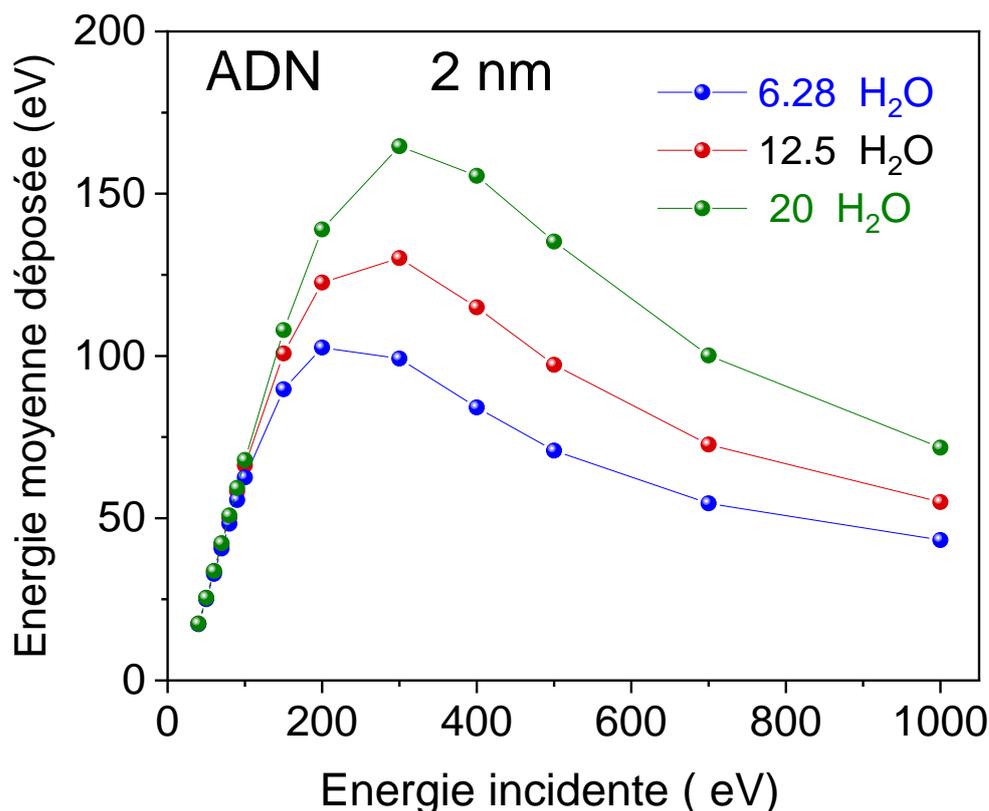
Comme décrit dans la section III.2.2.1, des simulations avec 6,28 ; 12,5 et 20 molécules d'eau par nucléotide ont été effectuées. La distribution des pertes énergétiques, la perte d'énergie la plus probable et la perte d'énergie moyenne des électrons dans l'ADN sont calculées pour un segment de 20 Å correspondant à un chromatide de 40, 60,80, 100, 140 Å. Nous montrons dans ce chapitre les résultats correspondant à 20 Å et 40 Å comme le montre la figure 4.6.



**Figure 4.6** : Différentes simulations de molécules d'eau par nucléotide dans un segment de 2 nm et 4nm

## 7.1 Energie déposée

L'influence de la teneur en eau sur l'ADN cible est significative, comme le montre l'évolution de la distribution de l'énergie moyenne déposée illustrée dans la figure 4.7 en fonction de l'énergie allant de 50 eV jusqu'à 1000 eV.

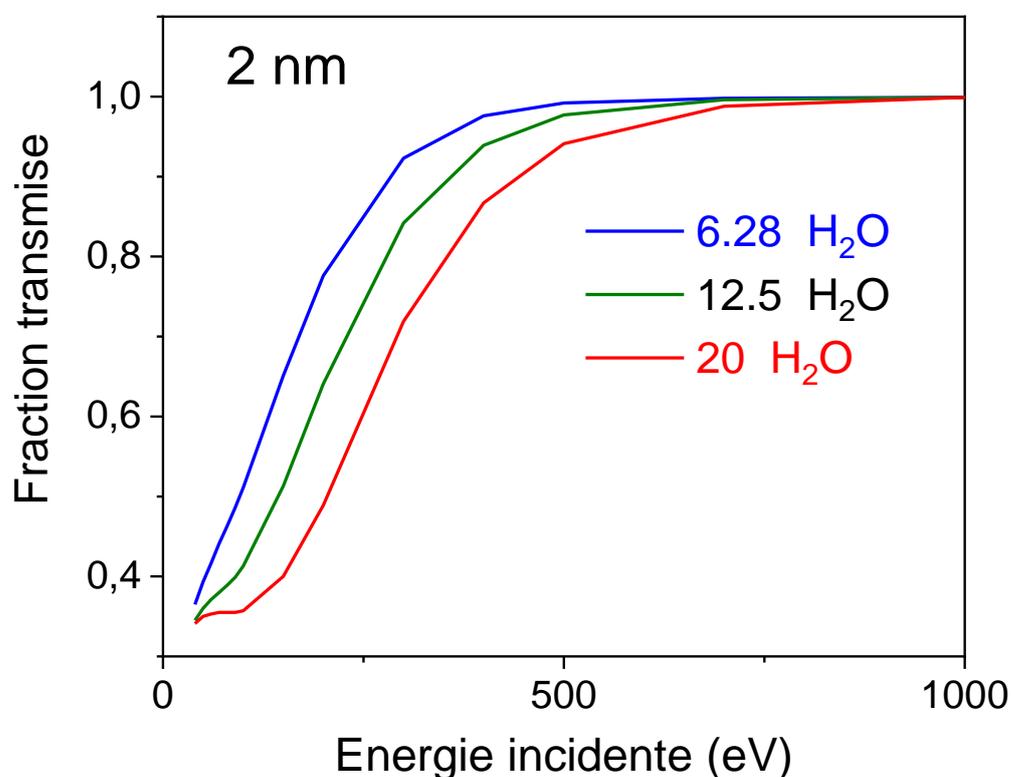


**Figure 4.7 :** Variation de l'énergie moyenne déposée des électrons en fonction de l'énergie incidente pour différentes teneurs en eau dans un segment d'ADN de 2 nm.

Le doublement de la teneur en eau à 20 molécules d'eau par nucléotide entraîne une augmentation de l'énergie moyenne déposée jusqu'à 170 eV pour une énergie incidente de 300 eV où l'écart augmente avec l'augmentation de l'énergie. De plus, la valeur maximale pour le milieu ADN ayant une teneur en eau plus élevée est légèrement décalée vers des énergies plus élevées. Dans ce cas, le maximum est décalé vers une énergie électronique légèrement supérieure de 200 eV. Au-delà de 400 eV, l'énergie moyenne déposée diminue avec l'augmentation de l'énergie incidente. La figure montre aussi que le maximum d'énergie déposée à différentes teneurs en eau est entre 100 eV et 170 eV pour des énergies incidentes

entre 200 et 300 eV ; L'énergie déposée de 100 eV correspond à une énergie incidente de 200 eV avec une teneur de 6.28 molécules H<sub>2</sub>O/NT, l'énergie déposée de 12,5 eV pour une énergie incidente de 300 eV avec une teneur de 12.5 molécules H<sub>2</sub>O/NT et 170 eV pour une énergie incidente de 200 eV avec une teneur de 20 molécules H<sub>2</sub>O/NT. On constate que les électrons perdent un maximum de leurs énergies initiales à 300 eV pour une teneur en eau de 20 molécules H<sub>2</sub>O/NT. Cette augmentation d'énergie déposée dans les molécules d'eau entrainera une augmentation des radicaux libres et par conséquent plus de dommages dans les nucléotides.

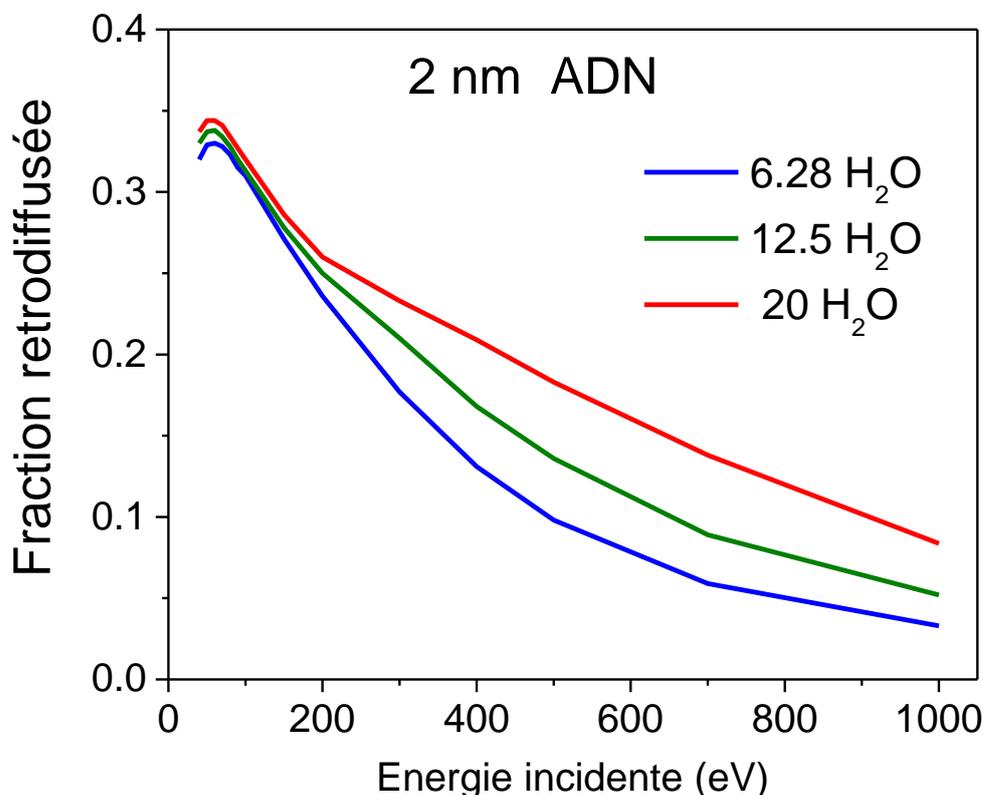
L'augmentation de la teneur en H<sub>2</sub>O/NT entraine une diminution de la fraction transmise des électrons comme le montre la figure 4.8 pour une épaisseur de 2nm. De même, la figure montre qu'à partir d'une énergie incidente de 700 eV, tous les électrons incidents sont transmis.



**Figure 4.8** : Fraction transmise en fonction de l'énergie incidente pour différentes teneurs en eau dans un segment d'ADN de 2 nm.

## 7.2 Fractions rétrodiffusées des électrons (backscattering fractions)

La figure 4.9 montre nos résultats MC concernant la fraction rétrodiffusée en fonction de l'énergie incidente pour différentes teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT.



**Figure 4.9** : Fraction rétrodiffusée des électrons en fonction de l'énergie incidente pour différentes teneurs en eau dans un segment d'ADN de 2 nm.

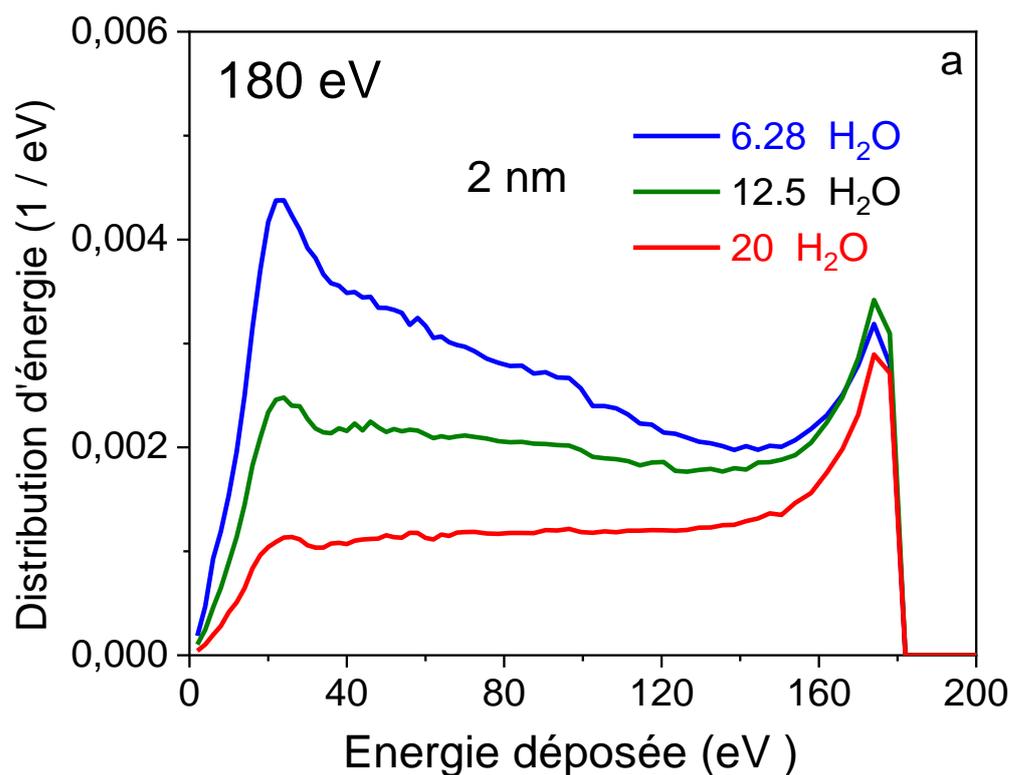
Dans cette figure, on observe que la probabilité de rétrodiffusion des électrons pour différentes teneurs en eau dans un segment d'ADN de 2 nm diminue avec l'augmentation de l'énergie incidente. En outre, la probabilité de rétrodiffusion des électrons est d'autant plus grande pour une teneur en eau de 20 H<sub>2</sub>O/NT tandis qu'elle est faible pour une teneur en eau de 6.28 molécules H<sub>2</sub>O/NT ce qui est bon accord avec les résultats trouvés dans la figure 4.8.

Cette diminution de la fraction rétrodiffusée avec l'augmentation de l'énergie incidente est expliquée par le fait que les électrons incidents de faibles énergies subissent de larges angles de diffusion par les deux types de molécules (H<sub>2</sub>O et NT) comme il peut être bien expliqué par l'aide de la figure 4.2.

Notons que l'effet de l'augmentation de la teneur de molécules H<sub>2</sub>O/NT n'est ressentie qu'à partir d'une énergie incidente de 180 eV ; En effet les électrons de faibles énergies incidentes sont rapidement rétrodiffusés au cours des premières collisions. Quand l'énergie incidente commence à augmenter, l'angle de diffusion des électrons a tendance à diminuer donnant la chance à l'électron de gagner en profondeur.

### 7.3 Perte d'énergie et perte d'énergie la plus probable

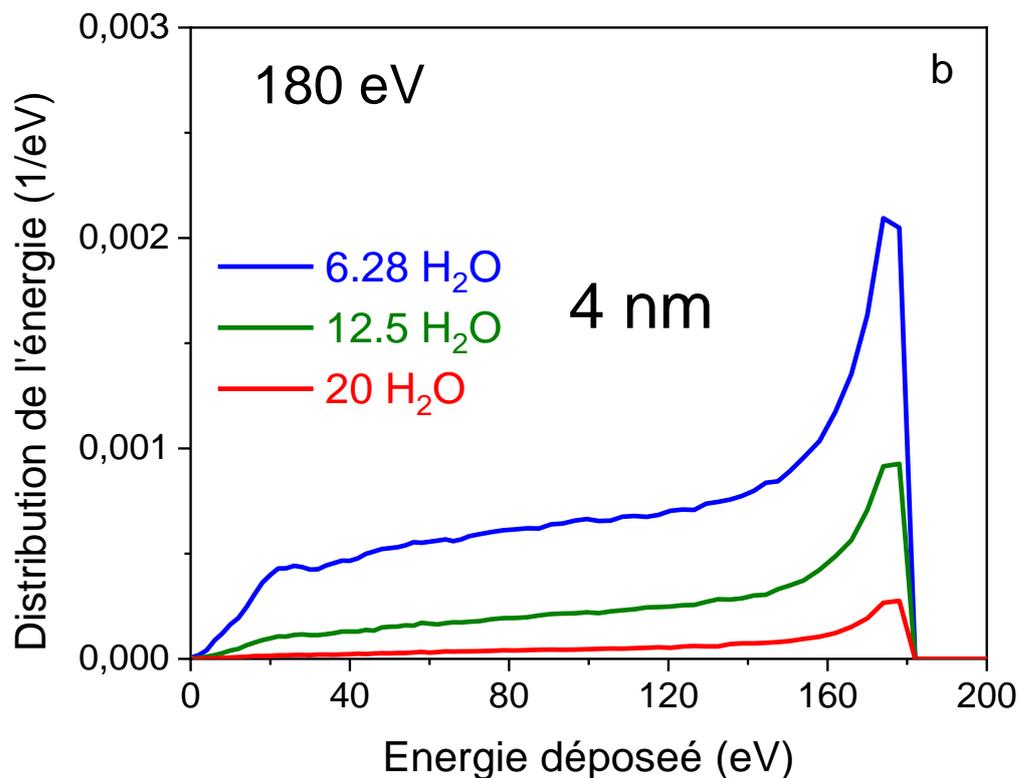
La distribution de la perte d'énergie est illustrée dans les figures 4.10. (a, b, c, d, e, f) pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour des énergies initiales de 180 eV, 500 eV et 1 KeV dans un segment d'ADN de 20 Å et 40 Å ; dans la figure 4.10, La distribution de la perte d'énergie déposée est illustrée pour différentes énergies initiales pour une teneur de 6,28 molécules H<sub>2</sub>O/NT.



**Figure 4. 10. (a) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 180 eV dans un segment d'ADN de 2 nm.

Sur la figure 4. 10 (a), la distribution de la perte d'énergie présente deux pics ; le premier représente l'énergie la plus probable à 22 eV, le deuxième à 180 eV correspondant au dépôt total de l'énergie de l'électron. Le pic de l'énergie la plus probable traduit le fait que beaucoup d'électrons subissent une collision à 22 eV et quitte le segment d'ADN de 2 nm. Cette valeur de perte d'énergie représente le pic des plasmons dans la réponse du spectre de la fonction perte d'énergie quand on excite l'ADN avec des énergies de 0 eV-80 eV comme expliqué dans la figure 3.6 (Voir Chapitre III ; Inagaki et *al.*, 1974). Il correspond aussi au pic de la réponse de la molécule H<sub>2</sub>O liquide à 23 eV (chapitre III ; Hayashi et Hiraoka, 2015).

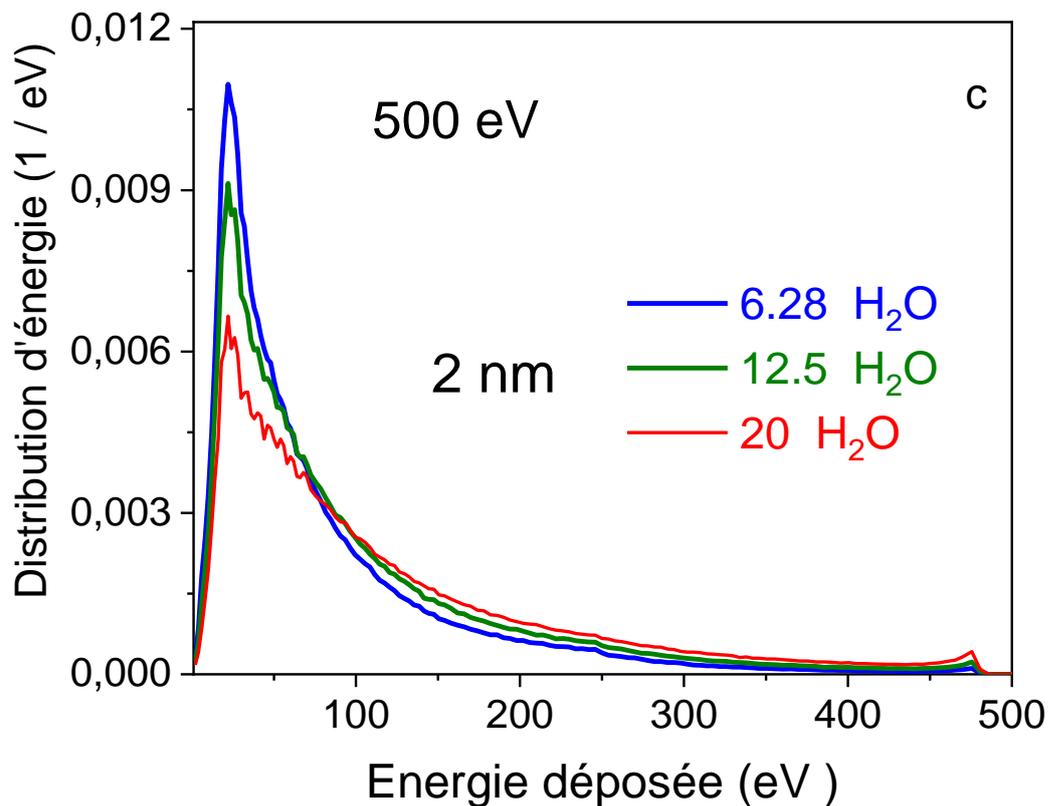
Quand l'épaisseur du segment d'ADN augmente à 4 nm, le pic du dépôt d'énergie la plus probable diminue considérablement donnant la chance à plus d'électrons de déposer totalement leurs énergies ; par conséquent le pic à 180 eV domine. L'effet de la teneur de molécules H<sub>2</sub>O/NT est important ; la différence entre énergies déposées est très apparente pour l'énergie la plus probable pour 2nm et pour l'énergie déposée totale quand l'épaisseur augmente à 4 nm.



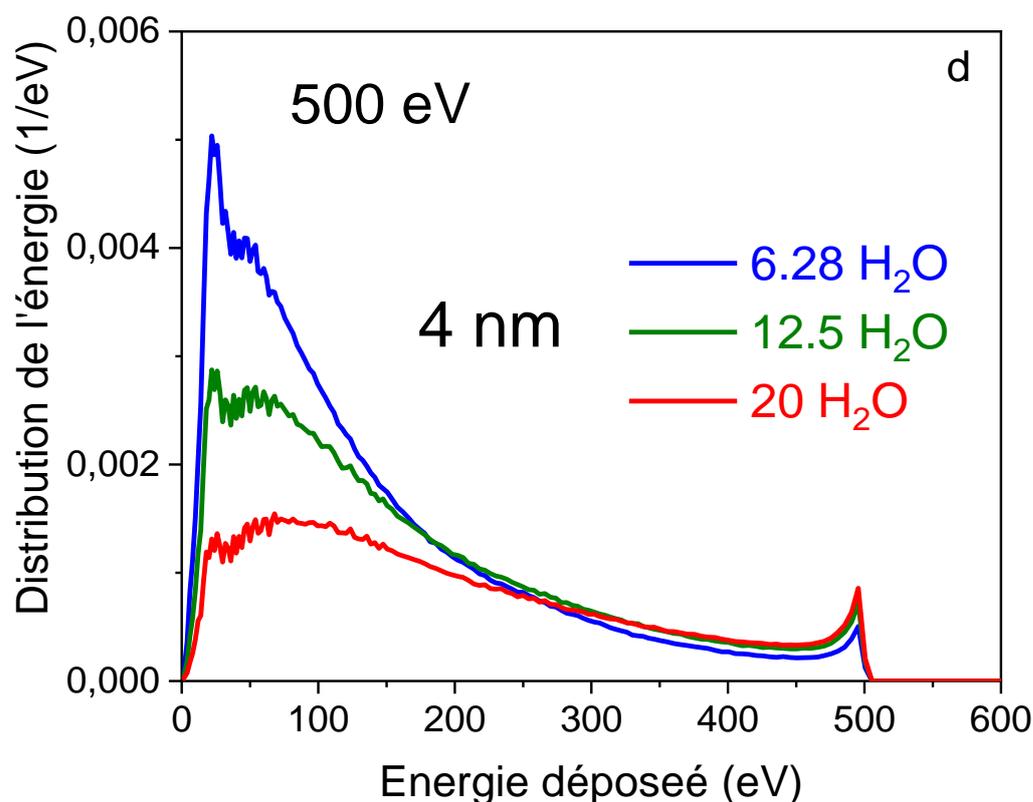
**Figure 4. 10. (b) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 180 eV dans un segment d'ADN de 4 nm.

Pour des électrons de 500 eV dans 2nm d'ADN, l'énergie la plus probable à 22 eV domine fortement donnant moins de chance pour ces électrons de déposer complètement leurs énergies de 500 eV ; pour 4 nm, le nombre d'électrons déposant totalement leurs énergies augmente particulièrement quand la teneur de molécules H<sub>2</sub>O/NT augmente; cependant le pic d'énergie la plus probable reste le plus dominant comparativement aux électrons de 180 eV dans 4 nm d'ADN ; ceci est dû au fait que ces électrons de 500 eV sont plus énergétiques et peuvent facilement traverser les 4 nm d'ADN.

Remarquons que pour 4nm, d'autres pics apparaissent et dominant ; ceci est expliqué par l'augmentation du nombre de collisions à 22 eV ; ceci traduit le phénomène de straggling entre les électrons dans un milieu mince permettant une quasi transmission.

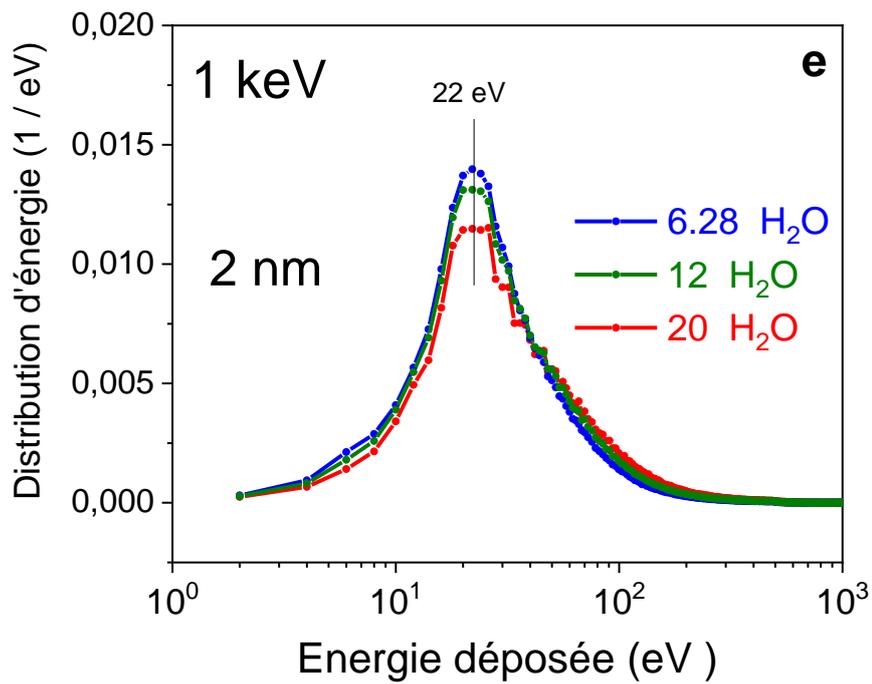


**Figure 4. 10. (c) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 500 eV dans un segment d'ADN de 2 nm.

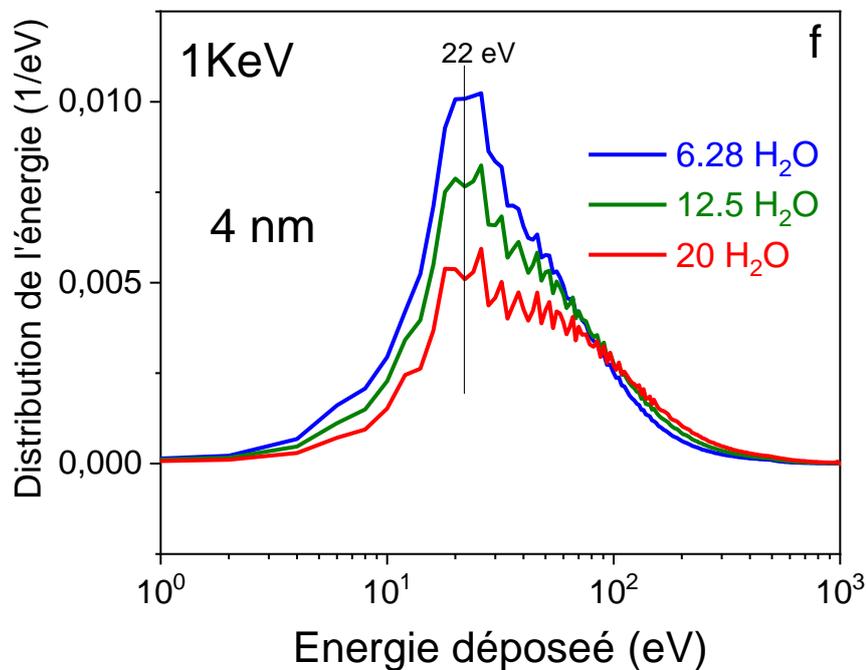


**Figure 4. 10. (d) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 500 eV dans un segment d'ADN de 4 nm.

Pour des électrons de 1 keV dans 2 nm d'ADN, il est très clair que presque tous les électrons subissent moins de collisions inélastiques mais fort probablement une collision de 22eV ; quand la teneur en H<sub>2</sub>O/NT augmente, l'énergie la plus probable domine toujours mais il permet plus de collisions prennent place et donc plus d'énergie déposée comme bien remarqué sur partie droite de la figure 4.10. (e). De même, pour 4 nm, les collisions à 22 eV dominant ; leur effet est clair sur la figure 4.9.(f) ou on remarque clairement des pics multiples de 22 eV ; quand la teneur de H<sub>2</sub>O/NT augmente, il est clair que l'énergie déposée augmente aussi et visible sur la partie droite de la courbe 4.10.(f).

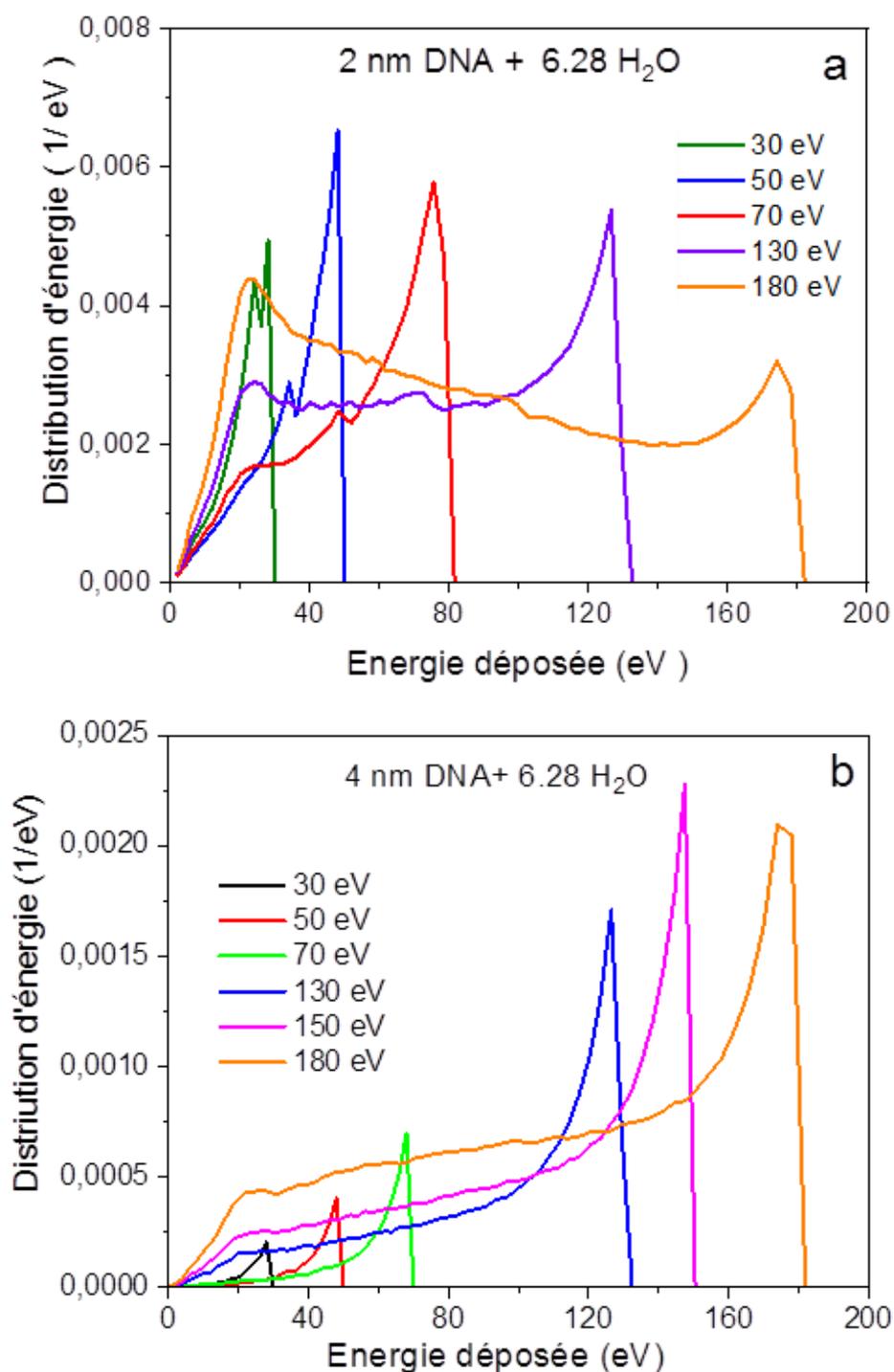


**Figure 4. 10. (e) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 1000 eV dans un segment d'ADN de 2 nm.



**Figure 4. 10. (f) :** La distribution d'énergie normalisée pour plusieurs teneurs de molécules H<sub>2</sub>O/NT pour 1000 eV dans un segment d'ADN de 4 nm.

Pour détailler et confirmer ces constatations, nous présentons sur la figure 4.11 (a, b, c, d) la distribution de la perte d'énergie en fonction d'une teneur constante des molécules H<sub>2</sub>O/NT de 6.28 pour les très basses et basses énergies dans 2nm et 4 nm d'ADN.

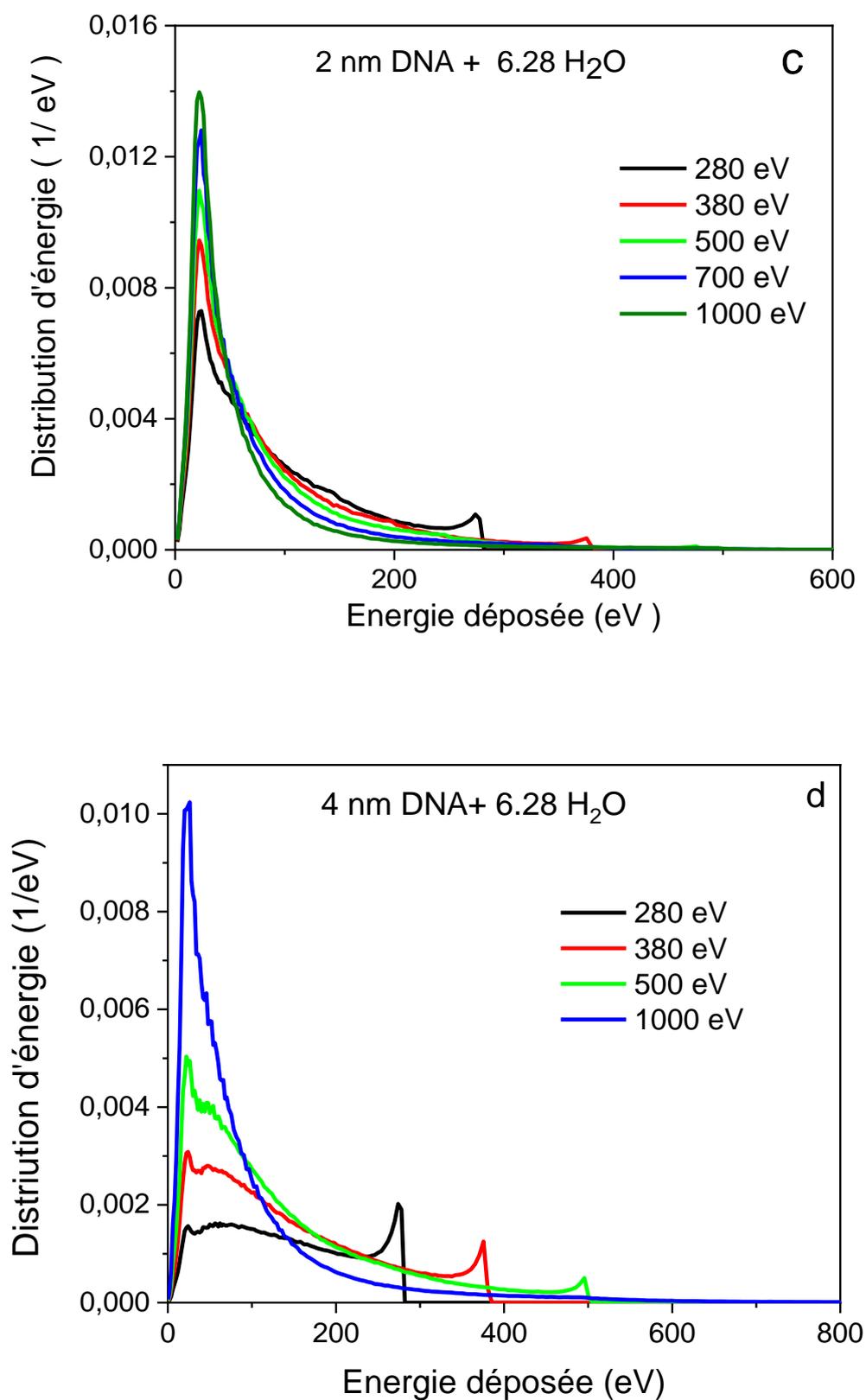


**Figure 4.11 (a, b) :** La distribution d'énergie déposée pour une teneur de 6.28 de molécules H<sub>2</sub>O/NT et des énergies initiales de 30 eV – 180 eV. (a) : 2nm ; (b) : 4nm

Pour les figures 4.11 (a, b), avec des énergies incidentes de 50 eV à 180 eV, remarquons que quand l'épaisseur de l'ADN passe de 2nm à 4nm, l'énergie totale déposée devient plus importante sans toute fois avoir un pic d'énergie probable du fait que l'énergie maximum est de  $E/2$  et donc ne permet pas des collisions avec 22 eV de perte d'énergie. Pour 2nm d'ADN, le pic de 22 eV commence à devenir important pour 150 et 180 eV du fait que : *i*) ces énergies permettent une probabilité plus importante et *ii*) la couche de 2 nm est très mince et donc ne permet pas beaucoup de collisions par rapport à la couche de 4nm.

Quand l'énergie initiale des électrons augmente (>200 eV), ce pic de 22 eV devient de plus en plus important ; plus important pour 2nm que pour 4 nm du fait que la fraction transmise est plus importante pour 2nm que pour 4nm comme discuté sur les figures 4. (8-9) concernant la fraction transmise et rétrodiffusée. Il est aussi clair dans ce cas, que l'énergie totale déposée augmente avec l'épaisseur ; elle est plus importante pour 280 eV dans 4 nm que dans 2nm ; elle est moins importante quand l'énergie augmente comme bien illustré sur les figures 4.10.(c) et (d) pour 380 eV.

En conclusion, la perte d'énergie dans l'ADN est principalement gouvernée par l'énergie la plus probable quand le segment d'ADN est mince ; quand l'épaisseur de l'ADN augmente, ce pic commence à diminuer donnant la chance aux électrons de déposer totalement leurs énergies. La teneur en H<sub>2</sub>O/NT a principalement le même rôle que l'augmentation de l'épaisseur de la couche d'ADN.



**Figure 4.11 (c, d) :** La distribution d'énergie déposée pour une teneur de 6.28 de molécules H<sub>2</sub>O/NT et des énergies initiales de 280 eV – 1000 eV. (c) : 2nm ; (d) : 4nm

## 8. Conclusion

Nous avons modélisé le transport d'électrons dans un segment d'ADN de 2 nm et 4 nm pour différentes teneurs de molécules d'eau, en tenant compte de la distribution des pertes énergétiques, la perte d'énergie la plus probable et la perte d'énergie moyenne des électrons. Dans notre cas, on a supposé que le dépôt d'énergie se fait in-situ et donc le transport des électrons secondaires n'est pas nécessaire. La relaxation et les recombinaisons produisant des électrons Auger et rayon-X caractéristiques sont exclus dans notre calcul. Vu que l'énergie des électrons primaires considérés dans notre étude est faible (en général 1 keV) donc la production de Bremsstrahlung est peu probable. Par conséquent la génération de photon et par conséquent la production de paires électron-positron est nulle.

Cependant, chaque cellule, comme c'est le cas pour le corps humain, est principalement constituée de l'eau. Par conséquent, il y a une probabilité beaucoup plus élevée de rayonnement interagissant avec l'eau qui constitue la majeure partie du volume de la cellule. L'influence de la teneur en eau est significative, une augmentation d'énergie déposée dans les molécules d'eau entraînera une augmentation des radicaux libres et par conséquent plus de dommages dans les nucléotides. De même, cette augmentation de la teneur en H<sub>2</sub>O/NT entraîne une diminution de la fraction transmise des électrons pour une épaisseur de 2nm et qu'à partir d'une énergie incidente de 700 eV, tous les électrons incidents sont transmis. En outre, la probabilité de rétrodiffusion des électrons est d'autant plus grande. Notons que l'effet de l'augmentation de la teneur de molécules H<sub>2</sub>O/NT n'est ressentie qu'à partir d'une énergie incidente de 180 eV ; En effet les électrons de faibles énergies incidentes sont rapidement rétrodiffusés au cours des premières collisions.

L'énergie la plus probable est trouvée de 22 eV pour un segment d'ADN de 2m et 4 nm, traduit par le fait que beaucoup d'électrons subissent une collision à 22 eV et quitte le segment d'ADN de 2 nm. Par contre, ce pic du dépôt d'énergie la plus probable diminue considérablement avec l'épaisseur du segment d'ADN, donnant la chance à plus d'électrons de déposer totalement leurs énergies. Cette valeur de perte d'énergie représente le pic des plasmons dans la réponse du spectre de la fonction perte d'énergie quand on excite l'ADN avec des énergies de 0 eV-80 eV. Il correspond aussi au pic de la réponse de la molécule H<sub>2</sub>O liquide à 23 eV. Pour une épaisseur de 4nm, il y a un doublement du pic de 22 eV due à l'augmentation du nombre de collisions à 22 eV ; ceci traduit le phénomène de straggling entre les électrons dans un milieu mince permettant une quasi transmission.

En conclusion, avec l'augmentation de l'énergie incidente ( $>200$  eV) presque tous les électrons subissent moins de collisions inélastiques mais fort probablement une collision de 22 eV ; quand la teneur en H<sub>2</sub>O/NT augmente, l'énergie déposée augmente. De même quand l'épaisseur de l'ADN augmente l'énergie totale déposée devient plus importante.

La distribution résultante des énergies déposées dans une petite cible telle que l'hélice d'ADN conduit à un spectre correspondant dans la gravité des dommages produits. Jusqu'à présent, la plupart des informations sur les spectres probables de la complexité des lésions d'ADN proviennent d'études de Monte Carlo qui tentent de modéliser la relation entre l'énergie déposée dans l'ADN et les dommages induits.

## Références bibliographiques

- Aouina, N. Y., & Chaoui, Z. E. A. (2018 a). Simulation of positron and electron elastic mean free path and diffusion angle on DNA nucleobases from 10 eV to 100 keV. *Surface and Interface Analysis*, 50(10), 939-946.
- Aouina, N. Y., & Chaoui, Z. E. A. (2018 b). Electrons and positrons elastic collisions with pyrimidine and tetrahydrofuran. *Applied Radiation and Isotopes*, 140, 347-354
- Boudaïffa, B., Cloutier, P., Hunting, D., Huels, M. A., & Sanche, L. (2000). Resonant formation of DNA strand breaks by low-energy (3 to 20 eV) electrons. *Science*, 287(5458), 1658-1660.
- Boudaïffa, B., Cloutier, P., Hunting, D., Huels, M. A., & Sanche, L. (2002). Cross sections for low-energy (10–50 eV) electron damage to DNA. *Radiation research*, 157(3), 227-234.
- Chaoui, Z. E. A. (2008). Electron energy loss modelling in small volumes: A Monte Carlo study. *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, B*, 266(23), 4976-4979.
- Chaoui, Z. E. A., & Bichsel, H. (2006). Straggling of fast electrons. *Surface and Interface Analysis: An International Journal devoted to the development and application of techniques for the analysis of surfaces, interfaces and thin films*, 38(4), 664-667.
- Chatterjee, A., Koehl, P., & Magee, J. L. (1986). Theoretical consideration of the chemical pathways for radiation-induced strand breaks. *Advances in Space Research*, 6(11), 97-105.
- Ding, Z. J., & Shimizu, R. (1996). A Monte Carlo modeling of electron interaction with solids including cascade secondary electron production. *Scanning: The Journal of Scanning Microscopies*, 18(2), 92-113.
- Folkard, M., Prise, K. M., Vojnovic, B., Davies, S., Roper, M. J., & Michael, B. D. (1993). Measurement of DNA damage by electrons with energies between 25 and 4000 eV. *International journal of radiation biology*, 64(6), 651-658.
- Friedland, W., Schmitt, E., Kundrat, P., Dingfelder, M., Baiocco, G., Barbieri, S., & Ottolenghi, A. (2017). Comprehensive track-structure based evaluation of DNA damage by light ions from radiotherapy-relevant energies down to stopping. *Scientific reports*, 7(1), 1-15.
- Goodhead, D. T., Thacker, J., Cox, R., & Wilkinson, R. E. (1979). Effectiveness of 0- 3 keV carbon ultrasoft X-rays for the inactivation and mutation of cultured mammalian cells. *International Journal of Radiation Biology and Related Studies in Physics, Chemistry and Medicine*, 36(2), 101-115.
- Hayashi, H., & Hiraoka, N. (2015). Accurate measurements of dielectric and optical functions of liquid water and liquid benzene in the VUV region (1–100 eV) using small-angle inelastic x-ray scattering. *The Journal of Physical Chemistry B*, 119(17), 5609-5623.
- <https://inc.cnrs.fr/fr/cnrsinfo/leau-au-coeur-de-ladn>
- Inagaki, T., Hamm, R. N., Arakawa, E. T., & Painter, L. R. (1974). Optical and dielectric properties of DNA in the extreme ultraviolet. *The journal of chemical physics*, 61(10), 4246-4250.
- Isaacson, M. (1972). Interaction of 25 keV electrons with the nucleic acid bases, adenine, thymine, and uracil. I. Outer shell excitation. *The Journal of Chemical Physics*, 56(5), 1803-1812.
- LaVerne, J. A., & Pimblott, S. M. (1995). Electron energy-loss distributions in solid, dry DNA. *Radiation research*, 141(2), 208-215.
- Margis, S., Magouni, M., Kyriakou, I., Georgakilas, A. G., Incerti, S., & Emfietzoglou, D. (2020). Microdosimetric calculations of the direct DNA damage induced by low energy electrons using the Geant4-DNA Monte Carlo code. *Physics in Medicine & Biology*, 65(4), 045007.
- Nikjoo, H. (2003). Radiation track and DNA damage. *Iranian Journal of Radiation Research*, 1(1), 14-17.
- Nikjoo, H., Emfietzoglou, D., Liamsuwan, T., Taleei, R., Liljequist, D., & Uehara, S. (2016). Radiation track, DNA damage and response—a review. *Reports on Progress in Physics*, 79(11), 116601.
- Nikjoo, H., O'Neill, P., Terrissol, M., & Goodhead, D. T. (1999). Quantitative modelling of DNA damage using Monte Carlo track structure method. *Radiation and environmental biophysics*, 38(1), 31-38.
- Nikjoo, H., Uehara, S., Khvostunov, I. G., Cucinotta, F. A., & Goodhead, D. T. (2001). Monte Carlo track structure for radiation biology and space applications. *Physica Medica*, 17, 38-44.
- Ninaber, A., & Goodfellow, J. M. (1999). DNA conformation and dynamics. *Radiation and environmental biophysics*, 38(1), 23-29.

- Pomplun, E., & Terrissol, M. (1994). Low-energy electrons inside active DNA models: a tool to elucidate the radiation action mechanisms. *Radiation and environmental biophysics*, 33(4), 279-292.
- Reynaert, N., van der Marck, S., & Schaart, D. Monte Carlo Treatment Planning—An Introduction, Nederlandse Commissie Voor Stralingsdosimetrie.
- Seco, J., & Verhaegen, F. (Eds.). (2013). Monte Carlo techniques in radiation therapy. CRC press.
- Tan, Z., Xia, Y., Liu, X., Zhao, M., Ji, Y., Li, F., & Huang, B. (2004). Cross sections of electron inelastic interactions in DNA. *Radiation and environmental biophysics*, 43(3), 173-182.

# *Conclusion générale*

Dans cette thèse, nous avons étudié les collisions d'électrons et de positrons avec des molécules biologiques à savoir les bases nucléiques (adénine, cytosine, guanine et thymine), le sucre phosphate, le tétrahydrofurane (THF), la pyrimidine (PY), la purine (PU) et le triméthylphosphate (TMP) en utilisant des méthodes théoriques.

Les sections efficaces des atomes, qui constituent les biomolécules citées ci-dessus, sont calculées à l'aide de l'analyse des ondes partielles de Dirac à des énergies incidentes comprises entre 10 eV et 100 keV. Pour les sections efficaces élastiques moléculaires, nous avons appliqué la méthode SCAR (une correction d'écran géométrique) où l'effet d'écran est important à basse et moyenne énergie (supérieure à ~ 100 eV). À quelques KeV d'énergie incidente, l'effet d'écran entre les atomes disparaît rapidement ; par conséquent, notre modèle se réduit à un simple modèle atomique indépendant. Nous avons apporté des améliorations pour calculer les sections efficaces élastiques différentielles d'une manière simple, ce qui donne des sections efficaces élastiques en accord avec les données mesurées citées dans la littérature.

Nous avons montré des différences de plus de 250% entre nos sections efficaces des collisions élastiques des positrons avec le THF et la PY et les données de Sanz (2014), Sanz et *al.* (2013) et Chiari et *al.* (2013) utilisant la même méthode IAM-SCAR. La validité de nos données est justifiée par le calcul du rapport entre les sections efficaces élastiques des électrons et des positrons qui tend vers l'unité à haute énergie et qui a été trouvé en accord avec le rapport entre les sections efficaces élastiques des électrons et des positrons calculés à partir du rapport ICRU 77 (ICRU-77) pour différents matériaux; ainsi, notre modélisation des sections efficaces élastiques du positron peut être considérée comme une correction de l'IAM-SCAR cité dans les références de Blanco et Garcia pour le positron. D'une autre part, nos données concordent très bien avec la base de données Penelope (Salvat, et *al.*, 2015). Notre base de données est suggérée pour être utilisée dans les simulations de Monte Carlo pour le transport d'électrons et de positrons dans des milieux biologiques ou pour évaluer les sections efficaces et le libre parcours moyen élastique d'électrons et de positrons dans des molécules d'ADN et d'ARN.

En ce qui concerne la déviation angulaire, nous avons vérifié la validité des sections efficaces élastique différentielles et nous avons constaté qu'il était valide à partir de 200 eV à 300 eV.

Pour fournir les sections efficaces élastiques des collisions d'électrons et de positrons avec les macromolécules, qui sont les nucléotides car le support d'ADN est supposé être constitué de nucléotides uniformément répartis, on a amélioré la méthode SCAR (SCAR-

macro) en raison du très grand nombre de petites contributions provenant de chaque paire d'atomes où on a considéré les coordonnées du centre de gravité moléculaire à la place des coordonnées atomiques. La structure moléculaire de l'ADN peut être aussi représentée par une alternance de THF et TMP et des fractions de PY et de PU. Les sections efficaces totales d'une molécule polyatomique ont été obtenues à partir de la somme des sections efficaces totales de groupes moléculaires plus petits.

Pour s'approcher du modèle réel, différents teneurs en eau ont été utilisés dans cette simulation du point de vue que la molécule d'ADN est principalement constituée d'eau. Le nombre de molécules d'eau par nucléotide varie de 0 à 20.

Pour les collisions inélastiques, les sections efficaces ont été calculées de 0 à 1 KeV en utilisant la fonction diélectrique de Lindhard basée sur la méthodologie diélectrique aux données optiques étendues combinée avec la méthode SCAR-macro pour différents teneurs en eau et qui sont utilisées par la suite dans le calcul MC. Les propriétés optiques de l'ADN à savoir les nucléotides (A-T) ( $C_{20}H_{27}N_7O_{13}P_2$ ), C-G ( $C_{19}H_{26}N_8O_{13}P_2$ ) et de l'eau sont spécifiées par les constantes optiques. La fonction de perte d'énergie de l'ADN déshydraté (2.5 molécules  $H_2O/NT$ ) présente un maximum autour de 20 eV correspondant à un plasmon qui va dominer les interactions inélastiques des électrons ou les particules chargées dans l'ADN.

Aucune donnée n'a été trouvée pour les sections efficaces inélastiques totales d'un nucléotide, on a simplement utilisé les sections efficaces inélastiques de Bug (2014) et Bug et *al.* (2017) du THF, TMP, PY et PU obtenues et on a calculé les sections efficaces inélastiques totales des électrons pour un nucléotide en faisant intervenir la teneur en eau. Un désaccord a été trouvé entre nos données et ceux de Bug pour des énergies inférieures à 100 eV mais au-delà de cette énergie, nos données présentent un accord raisonnable, ce désaccord peut être expliqué

Pour le libre parcours moyen inélastique, l'ajout de la contribution des plasmons entraîne une diminution substantielle. Un bon accord a été trouvé pour les énergies supérieures à 100 eV pour différents teneurs en eau. Pour les énergies inférieures à 100 eV, on remarque la présence d'un écart qui est dû d'une part à l'utilisation des données théoriques SCOP dans le calcul de Bug et d'autre part en raison de la plus grande polarisabilité dipolaire.

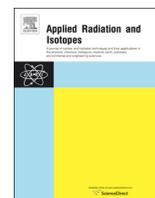
Les collisions d'interactions des positrons et des électrons avec les constituants d'ADN sont efficacement simulées par les codes de Monte Carlo (MC), qui nécessitent d'énormes tables de données. La présente étude fournit des résultats détaillés sur les interactions élastiques entre les particules chargées avec les constituants d'ADN nécessaires à la méthode MC. En effet, les sections efficaces élastiques et inélastiques des électrons et des positrons, libres moyens

élastiques et inélastiques et les distributions angulaires élastiques  $P(\theta)$  sont calculées de 10 eV à 100 keV.

Dans notre thèse, nous avons aussi modélisé le transport d'électrons dans un segment d'ADN de 2 nm et 4 nm pour différents teneurs de molécules d'eau, en tenant compte de la distribution des pertes énergétiques, la perte d'énergie la plus probable et la perte d'énergie moyenne des électrons. On a supposé que le dépôt d'énergie se fait in-situ et donc le transport des électrons secondaires n'est pas nécessaire. L'influence de la teneur en eau est significative, une augmentation d'énergie déposée dans les molécules d'eau entraînera une augmentation des radicaux libres et par conséquent plus de dommages dans les nucléotides. De même, cette augmentation de la teneur en  $H_2O/NT$  entraîne une diminution de la fraction transmise des électrons pour une épaisseur de 2nm et qu'à partir d'une énergie incidente de 700 eV, tous les électrons incidents sont transmis. En outre, la probabilité de rétrodiffusion des électrons est d'autant plus grande. Notons que l'effet de l'augmentation de la teneur de molécules  $H_2O/NT$  n'est ressentie qu'à partir d'une énergie incidente de 180 eV ; En effet les électrons de faibles énergies incidentes sont rapidement rétrodiffusés au cours des premières collisions.

L'énergie la plus probable est trouvée de 22 eV pour un segment d'ADN de 2m et 4 nm, cette valeur de perte d'énergie représente le pic des plasmons dans la réponse du spectre de la fonction perte d'énergie quand on excite l'ADN avec des énergies de 0 eV-80 eV. Il correspond aussi au pic de la réponse de la molécule  $H_2O$  liquide à 23 eV. Pour une épaisseur de 4nm, il y a un doublement du pic de 22 eV due à l'augmentation du nombre de collisions à 22 eV ; ceci traduit le phénomène de straggling entre les électrons dans un milieu mince permettant une quasi transmission. La distribution résultante des énergies déposées dans une petite cible telle que l'hélice d'ADN conduit à un spectre correspondant dans la gravité des dommages produits.

Enfin, il convient de noter que, bien que cette procédure de simulation fournisse une masse de données très importante dans l'étude des interactions avec tous les constituants d'ADN et son entourage immédiat qui l'eau, elle ne prend pas en compte les effets dommageables induits par d'autres espèces secondaires, telles que les radicaux chargés ou neutres. Par conséquent, un autre objectif majeur des modèles d'interaction de rayonnement au niveau moléculaire est de prendre en compte le rôle des radicaux et des produits générés à partir des molécules environnantes entourant l'ADN, telles que  $H_2O$  et  $O_2$ . En outre, cette simulation doit être élargie pour inclure les collisions des électrons et des positrons avec les histones et ses acides aminés à savoir la lysine et l'arginine.



## Electrons and positrons elastic collisions with pyrimidine and tetrahydrofuran

Nabila Yasmina Aouina<sup>a</sup>, Zine-El-Abidine Chaoui<sup>a,b,\*</sup>

<sup>a</sup> Laboratory of Optoelectronic and Devices, University Ferhat Abbas Setif1, Algeria

<sup>b</sup> Physics Department, Faculty of Sciences, University Ferhat Abbas Setif1, Algeria



### HIGHLIGHTS

- Calculate ECS in nucleobases in low and high  $e^-$  and  $e^+$  energies.
- Improves ECS at high energy in comparison to existing data or using the IAM-SCAR.
- Correct existing positron ECS cited in literature using IAM-SCAR model.
- Provide a compilation of ECS, EMFP, TECS and TMFP.

### ARTICLE INFO

#### Keywords:

Positron and electron elastic cross section  
Interaction collision  
Tetrahydrofuran and pyrimidine nucleobases  
Elastic mean free path  
Transport mean free path

### ABSTRACT

The present study shows results of theoretical calculations for positrons and electrons elastic scattering from pyrimidine and tetrahydrofuran over a broad energy range. The work has been motivated by the fact that very few experimental data exist for most of the nucleobases in particular for positrons. Concerning the theoretical tool, we have made improvements on the method using the independent atom-screened additivity rule by calculating differential elastic cross sections and its integrals in a straightforward manner. Moreover, elastic scattering of electrons and positrons by atoms of the biomolecule was evaluated by means of relativistic (Dirac) partial wave analysis. Results concerning the total elastic cross sections (ECS) for electrons and positrons are shown and discussed in comparison to existing experimental and theoretical data. As central result, our electron ECS from pyrimidine and tetrahydrofuran are in good agreement with existing experimental data in the range 10 eV to 1 keV. Another important improvement concerns our data for positron; as it will be shown in the present study, our positron ECS can be considered as a correction of existing data in the literature using the independent atom screened additivity rule. Parameterization of our electron and positron total ECS, elastic mean free paths, first elastic transport cross sections and first elastic transport mean free paths are provided for pyrimidine and tetrahydrofuran in the energy range 10 eV to 100 keV.

### 1. Introduction

In the last decade, electron interactions with biomolecules have been a subject of a considerable interest in a wide variety of fields of study as well as Physics and Medicine, both theoretically and experimentally (Palihawadana et al., 2013; Ferraz et al., 2013). This is the result of present widespread use of ionizing radiation in medical practice for both imaging and therapy, throughout the world and understanding physicochemical phenomena in various environments (Nikjoo et al., 2016a). Positron interactions with biomolecules has also entered a new phase of research and they are being used in an increasing number of contemporary applications in technology and

medicine (Ferraz et al., 2013). These include their use in the treatment of tumors and medical imaging via positron emission tomography (PET) (Anderson et al., 2014). Experimental studies in the case of positron scattering encounter similar problems plus some additional difficulties due to the significantly reduced incident positron fluxes (Sanz, 2014). From the theoretical point of view, despite the fact that no exchange effects are present, positron collisions are harder to model than the equivalent scattering of electrons. This is mainly due to the occurrence of positronium formation and the strong correlation-polarization interaction. This is reflected in the data available in the literature for positron collisions, which is much scarcer than in the electron case (Sanz, 2014).

\* Corresponding author at: Laboratory of Optoelectronic and Devices, University Ferhat Abbas Setif1, Algeria.

E-mail address: [zchaoui@univ-setif.dz](mailto:zchaoui@univ-setif.dz) (Z.-E.-A. Chaoui).

<https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2018.08.005>

Received 20 February 2018; Received in revised form 4 July 2018; Accepted 8 August 2018

Available online 09 August 2018

0969-8043/ © 2018 Elsevier Ltd. All rights reserved.

First experimental studies on the electron-scattering cross sections of DNA constituents were carried out mainly on tetrahydrofuran (THF), which is commonly used as substitute for deoxyribose composing the backbone of the DNA (Baek et al., 2014). With the ability of low-energy electrons to attach to DNA and induce single and double strand breakage, electron interactions with THF have received considerable attention from the electron scattering communities in recent years (Duque et al., 2015) and have been widely studied experimentally. Up to now only few cross sections for positron interactions with THF can be found in the literature.

THF is an organic compound. It is classified as a heterocyclic compound (CH<sub>2</sub>)<sub>4</sub>O, specifically cyclic ether with an exposed oxygen atom available for hydrogen bonding. This particularity in its structure makes it one of the most polar of the simple ethers and an interesting species to investigate from a more fundamental perspective (Chiari et al., 2013a).

Currently, there has also been great interest in studying other biological molecules, such as pyrimidine (PY) which is called heterocyclic compound, because it is made out of different kinds of atoms in the shape of a ring and it is also an aromatic organic planar compound (Katritzki and Pozharski, 2000).

PY (C<sub>4</sub>H<sub>4</sub>N<sub>2</sub>) with the composition is one of the three diazines, six membered heterocyclic with two atoms at positions 1 and 3 in the ring (Katritzki and Pozharski, 2000). Cytosine (C<sub>4</sub>H<sub>5</sub>N<sub>3</sub>O), thymine (C<sub>5</sub>H<sub>6</sub>N<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) and uracil (C<sub>4</sub>H<sub>4</sub>N<sub>2</sub>) are all examples of pyrimidine; each with different chemical groups. It has also some interesting physico-chemical properties that make it an appealing molecule to study from a fundamental perspective. These include a relatively large dipole polarizability and dipole moment, and electron charge cloud with a significant spatial extension (Palihawadana et al., 2011).

To calculate ECS for electron and positron scattering from biomolecules cited below, we have applied an independent atom model with a geometrical screening correction for each atom from the rest of the molecule by means of the screen corrected additivity rule procedure. In that case and to provide the elastic scattering of electrons and positron by atoms, we have used the relativistic (Dirac) partial wave analysis at incident energies between 10 eV and 100 keV. At low and intermediate energies (says less than 1 keV), the screening effect of all atoms contributing to the elastic collision is very strong; when the incident energy increases, the screening decreases and disappears completely at higher energies. At very high energy (greater than keV), the ECS can be easily evaluated by means of the additivity rule and the result rely on the accuracy of the atomic ECS. At very low energies, screening between atoms is important but other quantum effects should be considered. R-Matrix method (Burke, 2011) is more appropriate for few eV incident energies. Effects such rotational and vibrational excitations affect the differential ECS at very low energies; a useful approach known as ePOLYSCAT (Gianturco et al., 1994; Sanna and Gianturco, 1998) can be used to calculate the state-to-state rotationally elastic and inelastic differential cross section or alternatively POLYDCS (Gianturco and Lucchese, 2004) to calculate the differential elastic cross section (DECS) for polar molecules like PY. Rotational excitations cross sections decrease rapidly with increasing incident electron energy; At 100 eV incident electron energy, rotational excitation cross sections calculated in ref (Sanz et al., 2014) affect the electron DECS calculated from PY by 15% and drop to less than 5% at 150 eV. For polar molecules with important dipole moment, a first order corrective term to the DECS can be included in the model (Sanz et al., 2014, 2012) using the correction suggested by Dickinson (Dickinson, 1977). For energies greater than 60 eV, the dipole correction introduces small effect on the DECS in PY and THF in particular at medium and large scattering angles; the corresponding integral ECS are not truly affected. In Ref. Sanz et al. (2014), results concerning the DECS agree with experiment when rotational excitations and dipole correction are not included. In our theoretical model we calculate the ECS, rotational excitations and dipole correction are not considered.

The present study focuses on the effect of the screening between atoms of the biomolecule where atomic cross sections are calculated using Dirac partial wave Analysis. The validity of the present model will be discussed mainly at low and intermediate energy (above ~ 100 eV) where screening is important. Rotational excitations and dipole effect are neglected at these energies. At few keV incident energies, screening effect between atoms vanishes rapidly; consequently, our model reduces to a simple independent atomic model. In the following, details of the present study will be given in contrast of existing models using screening additivity rule and atomic cross section calculated from Schrödinger equation (Sanz, 2014; Blanco and García, 2004, 2007, 2009; Blanco et al., 2013; Fuss, 2013).

In the next section we review equations required to calculate positron and electron total ECS from PY and THF molecules; The resulting ECS are presented and compared to experimental and theoretical data available in the literature. Parameterization with simple analytic fitting expressions of our elastic and transport cross sections with their corresponding mean free paths are also provided; they can be used for Monte Carlo simulations of the transport of positrons and electrons in biomolecules. We end by concluding on the differences observed between the electron and positron elastic scattering.

## 2. Theory and computation

In order to calculate ECS for electron and positron scattering from biomolecules cited below, we have used a corrected form of the independent atom method which reduces to the problem of collision with individual atoms by assuming that each atom of the molecule scatters independently. It must be noted that this treatment makes no use of molecular symmetry considerations but requires only data on atomic total cross sections and atomic positions in the biomolecule. This correction is described by an introduction of the screening effect of all atoms of the biomolecule. The method takes into account the geometry of the molecule (atomic and bond lengths) by using screening coefficients which adjust both the differential and integral cross sections, especially for lower energies and intermediate energies. This method has been extensively used in Refs. Sanz (2014), Blanco and García (2004, 2007, 2009), Blanco et al. (2013) and Fuss (2013) but as it will be shown in the following, our model differs in the derivation of the elastic differential cross section.

The additivity rule for a molecule composed of N atoms leads to the total ECS given as;

$$\sigma^{el} = \sigma_1^{el} + \sigma_2^{el} + \dots + \sigma_N^{el} = \sum_{i=1,N} \sigma_i^{el} \quad (1)$$

where  $\sigma_i^{el}$  is the total ECS of each atom  $i$  of the molecule.

Introducing screening coefficients  $s_i$  to the additivity rule results in;

$$\sigma^{el} = s_1 \sigma_1^{el} + s_2 \sigma_2^{el} + \dots + s_N \sigma_N^{el} = \sum_{i=1,N} s_i \sigma_i^{el} \quad (2)$$

which can be written as;

$$\int_0^\pi \frac{d\sigma^{el}}{d\theta} d\Omega = s_1 \int_0^\pi \frac{d\sigma_1^{el}}{d\theta} d\Omega + s_2 \int_0^\pi \frac{d\sigma_2^{el}}{d\theta} d\Omega + \dots + s_N \int_0^\pi \frac{d\sigma_N^{el}}{d\theta} d\Omega \quad (3)$$

where  $\Omega = 2\pi \sin\theta d\theta$  with  $\theta = [0 - \pi]$ , the polar angle; Coefficients  $s_i$  depend only on the atomic total ECS, therefore;

$$\int_0^\pi \frac{d\sigma^{el}}{d\theta} d\Omega = \int_0^\pi (s_1 \frac{d\sigma_1^{el}}{d\theta} + s_2 \frac{d\sigma_2^{el}}{d\theta} + \dots + s_N \frac{d\sigma_N^{el}}{d\theta}) d\Omega \quad (4)$$

The differential ECS is given as

$$\frac{d\sigma^{el}}{d\theta} = s_1 \frac{d\sigma_1^{el}}{d\theta} + s_2 \frac{d\sigma_2^{el}}{d\theta} + \dots + s_N \frac{d\sigma_N^{el}}{d\theta} \quad (5)$$

We have checked that the integral of the left side of Eq. (5) leads exactly to the value of the total ECS given in the left side of Eq. (2).

Note that using the same screen corrected additivity rule model, different expression of the DECS of the whole molecule has been derived in Refs. Blanco and García (2004, 2007). Other details will be given in the next sections.

The positron or electron total elastic transport cross section  $\sigma^{tr}$  of the biomolecule is therefore calculated on the knowledge of the atomic elastic transport cross section  $\sigma_i^{tr}$  of each atom  $i$  as;

$$\sigma^{tr} = s_1\sigma_1^{tr} + s_2\sigma_2^{tr} + \dots + s_N\sigma_N^{tr} = \sum_{i=1,N} s_i\sigma_i^{tr} \tag{6}$$

The atomic elastic transport cross section  $\sigma_i^{tr}$  is calculated as;

$$\sigma_i^{tr} = \int_0^\pi \frac{d\sigma_i^{el}}{d\theta} (1-\cos\theta) d\Omega \tag{7}$$

Consequently, positron or electron total elastic mean free path and total elastic transport mean free path are calculated respectively, as;

$$\lambda^{el} = \frac{1}{n\sigma^{el}}; \quad \lambda^{tr} = \frac{1}{n\sigma^{tr}} \tag{8}$$

where  $\sigma^{el}$  and  $\sigma^{tr}$  are derived from Eqs. (2) and (6), respectively;  $n$  stand for the number of biomolecules per  $\text{\AA}^3$  and the cross sections in unit  $\text{\AA}^2$ .

Note that the total ECS given by Eq. (1) is identical to that used in Refs Blanco and García (2004, 2007) based on the same screen corrected additivity rule but the DECS given as Eq. (4) is completely different from Eqs. (5)–(8) in Ref. Sanz et al. (2012) or similarly Eqs. (13)–(15) in Ref. Blanco and García (2007)). The main difference is due to the fact that in Ref. Blanco and García (2007) the differential ECS of the biomolecule is approximated by two separate contributions corresponding to incident charged particle suffering appreciable deviations and strong forward directionality. Eqs. (5)–(8) in Ref. Blanco and García (2007) are derived after some estimation on the relevance of these contributions.

The screening coefficients  $0 \leq s_i \leq 1$  reduce the contribution of each atom to the total cross section. Calculation of  $s_i$  coefficients just requires data on the position and total cross section  $\sigma_i^{el}$  of each atom in the molecule (Blanco and García, 2004). For a given electron or positron incident energy, screening coefficients  $s_i$  are calculated in the first place. The explicit expressions are given (Blanco and García, 2004, 2007, 2009; Blanco et al., 2013) as;

$$s_i = 1 - \frac{\varepsilon_i^{(2)}}{2!} + \frac{\varepsilon_i^{(3)}}{3!} - \frac{\varepsilon_i^{(4)}}{4!} + \dots \pm \frac{\varepsilon_i^{(N)}}{N!} \tag{9}$$

where

$$\varepsilon_i^{(k)} = \frac{N-k+1}{N-1} \sum_{j(\neq i)} \frac{\sigma_i^{el} \varepsilon_j^{(k-1)}}{\alpha_{ij}}; \quad (k = 2, \dots, N); \quad \varepsilon_i^{(1)} = 1 \tag{10}$$

The  $j$  index runs over all  $N$  atoms except atom  $i$ ;  $\alpha_{ij} = \max(4\pi r_{ij}^2, \sigma_i^{el}, \sigma_j^{el})$  and  $r_{ij}$  is the distance between centers of atoms  $i$  and  $j$ . Contribution of coefficients  $s_i$  in the evaluation of the ECS can be interpreted as the effect of the geometric configuration of atoms in the molecule with their corresponding cross sections seen as surfaces by the incident charged particle which may overlap depending on the distance between centers of atoms. Since all atoms contribute depending to their cross section and positions inside the molecule, each screening coefficient  $s_i$  used in each term  $s_i\sigma_i^{el}$  represents an average of contributions of all atoms (excluding atom  $i$ ) in the elastic collision.

In our present model, elastic scattering cross sections of electron by atoms are computed using the relativistic (Dirac) partial wave analysis. In Refs. Sanz (2014), Blanco and García (2004, 2007, 2009), Blanco et al. (2013) and Fuss (2013) the screen corrected additivity rule is applied using atomic cross sections calculated for very low and high energies from a Schrödinger partial wave analysis. The robustness of the Dirac partial wave analysis is discussed in details with extensive comparisons with experimental differential and total ECS in Refs. Salvat (2003) and Salvat et al. (2005).

The local central interaction spherical potential  $V(r)$  used in

calculations of elastic scattering of electrons and positrons from free atoms is given as;

$$V(r) = V_{st}(r) + V_{ex}(r) + V_{cp}(r) - iW_{abs}(r) \tag{11}$$

The real part represents the elastic scattering of the incident electrons or positrons while the imaginary part, represents the inelastic processes that are considered as “absorption” from the incident beam (Salvat, 2003). Note that the present screen corrected additivity rule can be extended to calculate the total cross section by including both, the real and imaginary parts of the potential in Eq. (11). When considering elastic collisions of electrons and positrons from free atoms, the real part of the interaction potential is used as;

$$\begin{cases} V(r) = V_{st}(r) + V_{cp}(r) + V_{ex}(r) & \text{for electrons} \\ V(r) = -V_{st}(r) + V_{cp}(r) & \text{for positrons} \end{cases} \tag{12}$$

For electron scattering, the potential is represented by the sum of the electrostatic interaction potential  $V_{st}(r)$  derived from a Hartree-Fock calculation of the atomic charge distribution (Salvat, 2003; Salvat et al., 2005), the exchange potential  $V_{ex}(r)$  (used only for electron scattering) (Salvat et al., 2005) to account for the indistinguishability of the incident and target electrons (Salvat, 2003) and  $V_{cp}(r)$  the correlation–polarization potential (needed only for slow projectiles, with incident energies  $E$  less than about 10 keV) (Salvat et al., 2005).

For positron scattering, the real part has only two terms:  $V_{st}(r)$  and  $V_{cp}(r)$ . For projectiles energies up to few MeV, the nucleus can be represented as a point charge. Spherically symmetrical electronic densities  $\rho(r)$  of free atoms are generated by means of the multi-configuration Dirac-Fock code of Desclaux (Salvat, 2003; Salvat et al., 2005). The electrostatic interaction potential  $V_{st}(r)$  of the projectile at a distance  $r$  from the nucleus of the target atom is given by Salvat (2003) and Salvat et al. (2005);

$$V_{st}(r) \equiv \frac{Z_0 Z e^2}{r} - Z_0 e^2 \left( \frac{1}{r} \int_0^r \rho(r') 4\pi r'^2 dr' + \int_r^\infty \rho(r') 4\pi r' dr' \right) \tag{13}$$

where  $Z_0 e$  is the charge of the projectile.

The exchange potential of Furness and McCarthy which is derived directly from the formal expression of the nonlocal exchange interaction (Salvat, 2003) is considered for the case of electrons as;

$$V_{ex}(r) = \frac{1}{2} [E - V_{st}(r)] - \frac{1}{2} \{ [E - V_{st}(r)]^2 + 4\pi a_0 e^4 \rho(r) \}^{1/2} \tag{14}$$

When the projectile is far from the atom, the polarization potential energy can be approximated by means of the Buckingham potential which is also valid for positrons (Salvat et al., 2005):

$$V_{cp}(r) = -\frac{\alpha_d e^2}{2(r^2 + d^2)^2} \tag{15}$$

where  $\alpha_d$  is the dipole polarizability of the target atom and  $d$  is a phenomenological cut-off parameter that serves to prevent the polarization potential from diverging at  $r = 0$  (Salvat et al., 2005);

$$d^4 = \frac{1}{2} \alpha_d a_0 Z^{-1/3} b_{pol}^2 \tag{16}$$

where  $b_{pol}$  as an adjustable energy-dependent parameter (Salvat et al., 2005).

$$b_{pol}^2 = \max\{(E-50\text{eV})/(16\text{eV}), 1\} \tag{17}$$

The differential elastic cross-section for each atom  $i$  is given as (Salvat et al., 2005);

$$\frac{d\sigma_i^{el}}{d\theta} = |F_l(\theta)|^2 + |G_l(\theta)|^2 \tag{18}$$

where

$$F_l = \frac{1}{2iK} \{ (l+1) [\exp(2i\delta_{l+}) - 1] + l [\exp(-2i\delta_{l-}) - 1] \} P_l(\cos\theta) \tag{19}$$

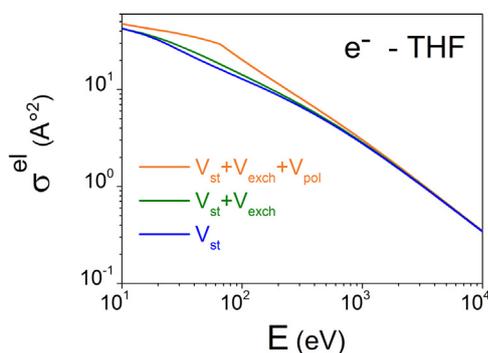


Fig. 1. Present electron ECS from THF considering different definitions of the interaction potential.

$$G_l = \frac{1}{2iK} \{ \exp(-2i\delta_{l-}) - \exp(-2i\delta_{l+}) \} P_l^1 \left( \cos\theta \right) \quad (20)$$

and  $\delta_{l-}$ ,  $\delta_{l+}$  are the phase shifts of order  $l$ .  $k$  stands for the momentum of the projectile.

The total ECS for an atom  $i$  is then calculated from the differential ECS as;

$$\sigma_i^{el} = \int_0^\pi \frac{d\sigma_i^{el}}{d\theta} d\Omega \quad (21)$$

Consequently, the atomic elastic transport cross section  $\sigma_i^{tr}$  is calculated using Eq. (7).

### 3. Results and discussion

Results of electron ECS from THF are shown in Fig. 1. The different set of data result from the inclusion of different interaction potentials in the present model. For electron energies greater than few keV, the effect of exchange and polarization is meaningless. The effect is more pronounced when the electron energy decreases from 1 keV.

Cross section including exchange and polarization interaction potential in each atom are higher than cross section including exchange and without polarization potentials. Similar effects have been noted for the case of PY. In order to assess the validity of the effect of the interaction potential, a comparison with experimental ECS is needed.

In Figs. 2 and 3, we show comparisons of our electron ECS from THF and PY to theoretical and experimental data available in the literature. Note that from these figures, in particular the inset in Figs. 2 and 3, an overall level of agreement is noted in comparisons of our results to the measured ECS data of Bug et al. (2017) and Bug (2014). We have used an interaction potential including the exchange potential without polarization. It is important to note that in our independent atom-screened

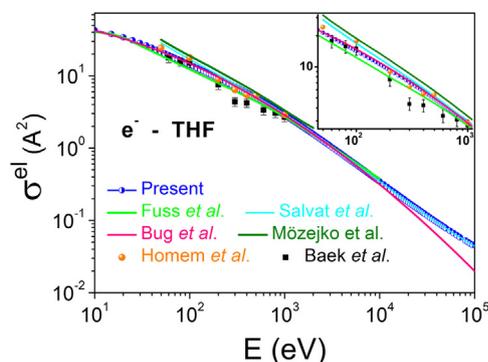


Fig. 2. Present electron ECS from THF including data of Ref. Bug et al. (2017), penelope data base Refs. Salvat (2015), Homem et al. (2009), Baek et al. (2012), Mozejko and Sanche, 2005) and Fuss et al. (2009).

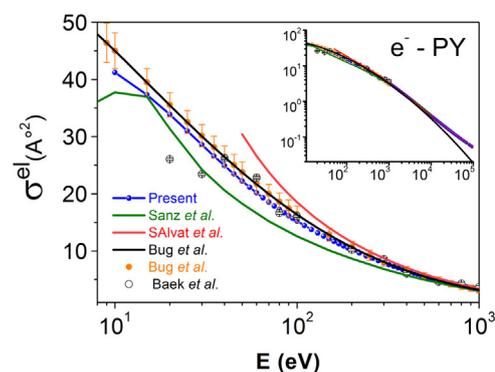


Fig. 3. Present electron ECS from PY including data of Ref. Bug et al. (2017) and Bug (2014), penelope data base Refs. Salvat (2015), Baek et al. (2014) and Sanz et al. (2014).

additivity model, the exchange and/or polarization potential included in the interaction potential is of each atom; a more general approach beyond the present model will be with an inclusion of exchange and/or polarization potential calculated from the whole molecule.

For both biomolecules and electron incident energies up to 3 keV, present results differ by less than 10% from ECS data of Bug et al. (2017) and Bug (2014); For lower energies, the screening between atoms of the molecule is much pronounced and lead, as shown in both figures, to better agreement with measured data of Refs. Bug et al. (2017) and Bug (2014). ECS data (Bug et al., 2017; Bug, 2014) represent integration of experimental differential ECS up to 1 keV and interpolation and extrapolation at keV energies based on partial wave model; They differ in the integration procedure from Baek et al. (2014) measured data.

For higher energies, our model reduces to a simple independent atomic model since screening will have no effect and decreases with increasing incident energies. Consequently, modeling of the ECS will rely, as it will be discussed in the following, on the validity of the atomic ECS at high incident energies. Note that from 1 keV incident energy, our results differ by less than 4% than Penelope data (Salvat, 2015) resulting from Dirac partial wave analysis for the atomic case and by means of additivity approximation using incoherent sum of scattered intensities for the case of molecules. At high energies, Bug et al. data are based on the screened Rutherford cross section for their extrapolation procedure. On Fig. 2, for electron incident energy from 50 eV to 1 keV, our results differ by less than 15% in comparison with Homem et al. (2009) data; at few hundred eV, they differ up to 50% from Baek et al. (2012) data. The data of Mozejko and Sanche (2005) are almost 40% higher than all the data presented on Fig. 2. The theoretical data of Fuss et al. (2009) differs from our results and Bug et al. (2017) data for electron incident energies up to 1 keV from both molecules. The difference is significant for PY. It is important to note that Fuss et al. (2009) data, tabulated up to 10 keV, are calculated using a screening additivity rule of Refs. Sanz (2014), Blanco and García (2004, 2007, 2009), Blanco et al. (2013) and Fuss, 2013). Details of the cross section calculations including the screening additivity rule are given in details by Blanco and García in Refs. Blanco and García (2004, 2007); the differential ECS is calculated from Schrödinger equation and then modified depending on the estimation on the relevance of electron scattering with appreciable deviations and strong forward directionality. In addition to the effect of screening, at very low incident energies, dipole effect and/or rotational excitations are included (Blanco and García, 2007, 2009; Blanco et al., 2013; Fuss, 2013). For energies up to 200 eV, we suggest to use measured (Bug et al., 2017) cross sections.

As mentioned above, the atomic cross section used in our model for biomolecules are calculated using relativistic Dirac partial wave analysis (Salvat et al., 2005; Bug et al., 2017; Bug, 2014; Salvat, 2015;

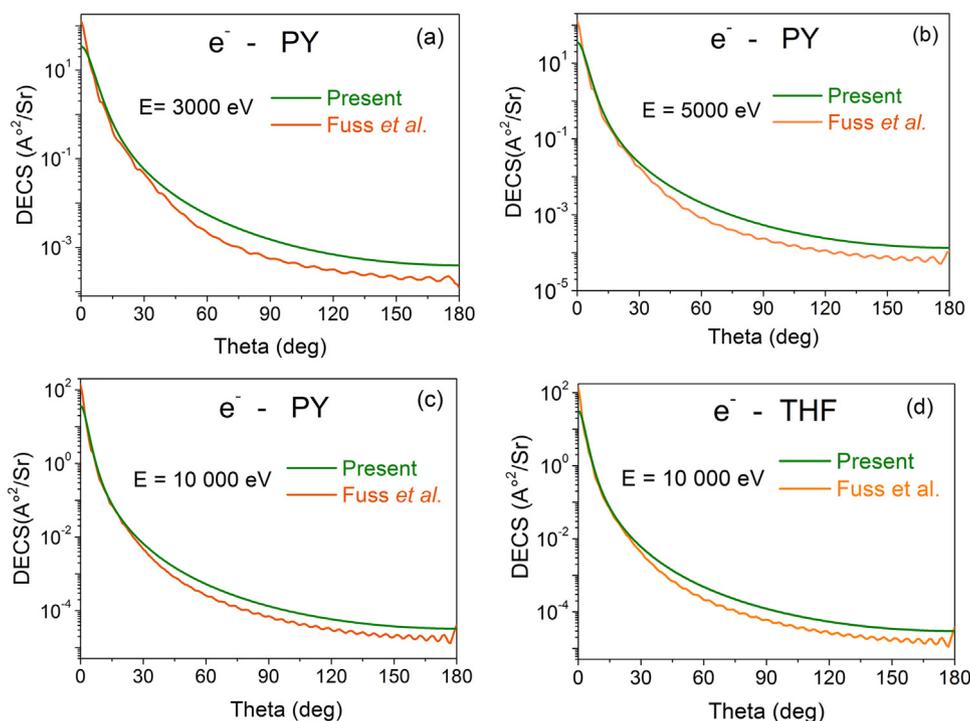


Fig. 4. a, b, c, d: Present electron differential ECS calculated using atomic differential ECS resulting from relativistic Dirac equation are compared to those calculated by Fuss (2013) using atomic differential ECS from Schrödinger equation. (a): PY- 3 keV; (b): PY-5 keV; (c): PY-10 keV and (d): THF-10 keV.

Homem et al., 2009; Baek et al., 2012; Mozejko and Sanche, 2005; Fuss et al., 2009; ICRU- 77). The radial functions are determined using robust numerical methods. Bühring's power series method (Bühring, 1965) is used. This method of solution has many advantages (Salvat, 2003; Salvat et al., 2005; ICRU- 77.; Stepanek, 2003; Salvat and Mayol, 1991; Salvat and Mayol, 1993; Shadwick et al., 1989) comparison to the Numerov or Runge–Kutta methods that are adopted to solve the Schrödinger radial equations. In fact, truncation errors are completely avoided in the solutions of the radial functions and the spacing of the grid of points where the interaction potential is tabulated has no effect on the accuracy of the numerical procedure. However, in the numerical methods usually used to solve the Schrödinger radial equation, the density of the grid must be dense enough and increased for increasing energies to maintain the truncation error constant. An example of comparison is given in Fig. 4(a, b, c and d) at 3 keV , 5 keV , 10 keV for PY and at 10 keV for THF, respectively. Our electron differential ECS calculated using atomic differential ECS resulting from relativistic Dirac equation are compared to those of Ref. Fuss (2013) calculated using atomic differential ECS from Schrödinger equation. Consequently, since our aim is to produce accurate ECS from biomolecules for low, intermediate and high incident electron and positron energies, we have adopted the atomic ECS calculated from relativistic Dirac partial wave analysis. The stability of the convergence in the partial wave analysis ensure the use of the atomic ECS even at MeV incident energies. Our data for 10 keV shown in Fig. 4(c and d) are very stable. We are also comparing our electron differential ECS to experimental data of Bug et al. (2017) and Bug (2014); work is in progress. In the present study we focus mainly on the integral ECS with comparisons with existing data.

Results concerning positron ECS (10 eV to 100 keV) are shown in Figs. 5, 6 for THF and PY, respectively. For positrons, due to the lack of experimental data and following the same conclusions as for electron, we have neglected the polarization potential and adopted a positron model considering only the static potential in the interaction potential.

Our positron ECS are compared to the data of Chiari et al. (2013a) for THF and the data of Sanz et al. (2013) for PY. ECS used in Penelope

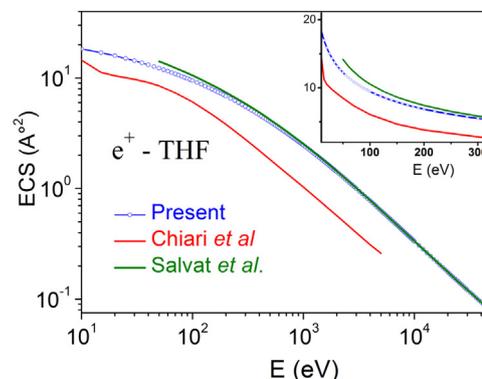


Fig. 5. Present positron ECS from THF. Included for comparison are the data of Chiari et al. (2013a) and penelope data (Salvat, 2015).

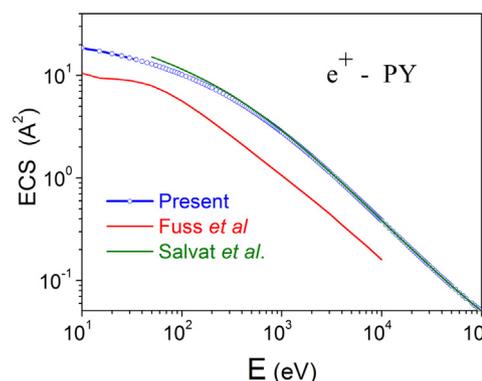


Fig. 6. Present positron ECS from PY. Included for comparison are the data of Sanz et al. (2013) and penelope data (Salvat, 2015).

data base (Salvat, 2015) are also included in Figs. 5, 6. It is important to note that, in the present energy range, positron ECS are very rare. Few positron ECS from some nucleobases are published in limited energy ranges (Zecca et al., 1987, 1991, 2005, 2008, 2010, 2011a, 2011b; Chiari et al., 2012, 2013b, 2016).

In Figs. 5 and 6, at 50 eV positron incident energy, our ECS differ from 55% of those used in Penelope data base (Salvat, 2015). This difference decreases rapidly with increasing positron energy and is almost 30% for both molecules at 300 eV. At energies higher than 1 keV, the difference is less than 5%. On the contrary, as shown on Figs. 5 and 6, the present results deviate considerably from the data of Chiari et al. (2013a) for THF and the data of Sanz (2014) and Sanz et al., (2013) for PY. The data of Chiari et al. (2013a), Sanz (2014) and Sanz et al. (2013) are using the screening additivity rule model described in Refs. Blanco and García (2004, 2007) applied for positron. In the energy range 300 eV to 5 keV, the THF data of Chiari et al. (2013a) differs from 240% of the present results and those used in Penelope data base (Salvat, 2015). For PY data of Sanz et al. (2013) the difference is much important even at 10 keV positron incident energy.

At high positron incident energies, effects such screening between atoms, dipole effect and rotational excitations are negligible; the static potential in the interaction potential is the only dominant part taken into account in the solution of the radial function. Consequently, modeling of ECS from biomolecules reduces to a simple independent atomic model and therefore the four set of data shown on Fig. 5 or on Fig. 6 should agree within the uncertainty of the atomic ECS.

On the other hand, these large differences shown on Figs. 5–6 are not explained by the fact that data of Chiari et al. (2013a), Sanz (2014) and Sanz et al. (2013) are based on the use of Schrödinger radial equation and our results on the relativistic Dirac equation. The same remark was pointed out by Bug et al. (2017) concerning the positron total cross section from THF of Chiari et al. (2013a). Nevertheless, the ratio of electron to positron ECS is a key quantity used to assess quantitatively the validity of the calculated ECS. An example of the ratio of electrons to positrons ECS calculated from THF is shown on Fig. 7.

At low incident energies, electron ECS are higher than those for positron from THF and PY. For energies up to 2 keV, the ratio of ECS of electrons to positron, shown in the inset of Fig. 7, is increasing considerably with decreasing incident energies. At 2 keV incident energy, a 9% difference is noted from THF and 10% for PY. At 5 keV it is 5% and less than 2% at 10 keV for both molecules.

For increasing incident energies, this ratio decreases and tends to unity. At high energies, since exchange and other low energy effects are negligible, positron and electron ECS are quite similar; therefore, it is obvious that the value of the ratio tends to unity. Note that, with the help of Fig. 1, the effect of the exchange potential for electrons is not dominant in the ratio of electron to positron ECS. The main difference can be explained by the difference between the static potential used in

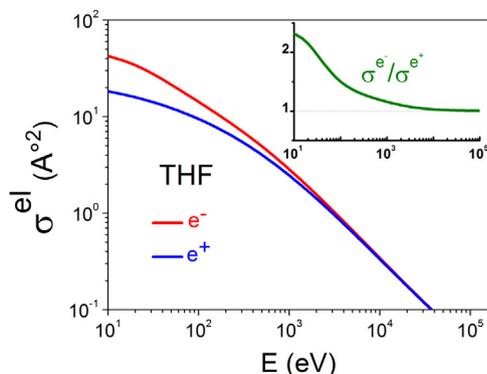


Fig. 7. Present electron and positron ECS from THF. The inset represents the ratio of electron to positron ECS in the range 10 eV to 100 keV.

the interaction potential of electron and positron. Using the data of Sanz (2014), Sanz et al. (2013) for PY, the ratio is almost high in the full energy range considered in their study from 1 eV to 10 keV; it is 2.75 at 5 keV and 2.68 at 10 keV. In ICRU 77 report (ICRU-77), for all elements of the periodic table, this ratio decreases with energy and tends to unity at incident energies of the order of few keV. At 10 keV incident energy (ICRU-77), it is 1.06 for Au (high Z material), 1.05 for Al and 1.02 for C atoms (low Z materials); in our case, it is 1.02 for THF and 1.03 for PY.

We end this session by presenting a compilation of our ECS, elastic transport cross sections, elastic mean free paths and elastic transport mean free paths for electron and positron incident energies in the range 10 eV to 100 keV in collision with THF (0.889 g/cm<sup>3</sup>) and PY (1.02 g/cm<sup>3</sup>) molecules. To make feasible their implementation as a data base for Monte Carlo simulations and Boltzmann transport equation, a simple and accurate fitting procedure is applied to parameterize these transport quantities given as;

$$Y = \sum_{i=0}^6 A_i \cdot X^i \quad (22)$$

where  $X = \log(E)$  and  $Y = \log(\sigma^{el}, \sigma^{tr}, \lambda_{el} \text{ or } \lambda_{tr})$ .  $E$  is the electron or positron incident energy in eV; the cross sections  $\sigma^{el}$  and  $\sigma^{tr}$  are in Å<sup>2</sup> and the mean free paths  $\lambda_{el}$  and  $\lambda_{tr}$  are in Å. The calculated parameters  $A_i$  corresponding to these transport quantities are given in Table 1 (a, b, c, d) for electron and positron in collision with THF and PY, respectively. Note that these transport quantities depend on the phase of the biomolecule.

#### 4. Summary and conclusions

We have reported on electron and positron ECS from PY and THF. In contrast to previous work using the same independent atom-screened additivity model, we have made improvements by calculating differential ECS given Eq. (5) and its integral Eq. (2) in a straightforward manner resulting in ECS in agreement with measured data cited in the literature. Similarly, our data agree very well with Penelope data base (Salvat, 2015) for both biomolecules; which leads to a second important improvement when comparing our data to positron ECS calculated in Refs. Sanz (2014), Chiari et al. (2013a) and Sanz et al. (2013) using the same IAM-SCAR method where we have shown differences of more than 250%; the validity of our data is justified by calculating the ratio of electron to positron ECS which is found to tend to unity at high energy in agreement with ratios calculated from ICRU 77 report (ICRU-77) for different high and low Z materials; thus, our modeling of positron ECS can be considered as correction of earlier IAM-SCAR ECS for positron. Moreover, our atomic electrons and positrons ECS of the biomolecule were evaluated by means of relativistic (Dirac) partial wave analysis where the electrostatic interaction is determined from Dirac-Hartree-Fock self-consistent atomic electron densities. We have shown at higher incident energies that this treatment is superior than the usual IAM-SCAR model using the Schrödinger radial equation. Examples of our results shown in the present study, presented as analytic expressions fitting our data in the range 10 eV to 100 keV from THF (0.889 g/cm<sup>3</sup>) and PY (1.02 g/cm<sup>3</sup>) molecules, concerns ECS, elastic transport cross sections, elastic mean free paths and elastic transport mean free paths. It is important to note that the present model has been applied to all the nucleobases constituting the DNA and RNA molecules for electron and positron. We are confident on the use of ECS with their corresponding mean free paths in the energy range 10 eV to 100 MeV. Concerning the angular deflection, we checked the validity of the differential ECS and found to be valid starting from 200 eV to 300 eV. Our extensive comparisons to experimental differential ECS reveal that the independent atom-screened additivity model is not suited at low energies says less than 200 eV even with the inclusion of dipole effect and rotational excitations. At these low energies we suggest to use existing

**Table 1a**

Parameters used in Eq. (22) to calculate ECS  $\sigma^{el}$ , elastic transport cross section  $\sigma^{tr}$ , elastic mean free path  $\lambda_{el}$  and elastic transport mean free path  $\lambda_{tr}$  for electron incident energies in the range 10 eV to 100 keV in collision with THF.

e <sup>-</sup> - THF	$\sigma^{el}$	$\sigma^{tr}$	$\lambda_{el}$	$\lambda_{tr}$
A <sub>0</sub>	0709 ± 0064	1.412 ± 0.0322	1.421 ± 0064	0.717 ± 0.0322
A <sub>1</sub>	2981 ± 0158	0.392 ± 0.079	- 2981 ± 0158	- 0.392 ± 0.079
A <sub>2</sub>	- 3306 ± 0153	0.067 ± 0.077	3306 ± 0153	- 0.067 ± 0.077
A <sub>3</sub>	1637 ± 0075	- 0.414 ± 0.038	- 1637 ± 0075	0.414 ± 0.038
A <sub>4</sub>	- 0445 ± 0020	0.141 ± 0.01	0445 ± 0020	- 0.141 ± 0.01
A <sub>5</sub>	0061 ± 0003	- 0.02 ± 0.001	- 0061 ± 0,003	0.02 ± 0.001
A <sub>6</sub>	- 0,0033 ± 1,48E-4	0.001 ± 0.7276E-4	00033 ± 1,48E-4	- 0.001 ± 0.7276E-4

**Table 1b**

Parameters used in Eq. (22) to calculate ECS  $\sigma^{el}$ , elastic transport cross section  $\sigma^{tr}$ , elastic mean free path  $\lambda_{el}$  and elastic transport mean free path  $\lambda_{tr}$  for positron incident energies in the range 10 eV to 100 keV in collision with THF.

e <sup>+</sup> - THF	$\sigma^{el}$	$\sigma^{tr}$	$\lambda_{el}$	$\lambda_{tr}$
A <sub>0</sub>	1.43 ± 0.02	1.948 ± 0.0257	0.70 ± 0.02	0.18047 ± 0.02574
A <sub>1</sub>	- 0.132 ± 0.049	- 1.78161 ± 0.063	0.132 ± 0.049	1.78161 ± 0.063
A <sub>2</sub>	- 0.061 ± 0.047	1.674 ± 0.06126	0.061 ± 0.047	- 1.674 ± 0.06126
A <sub>3</sub>	0.063 ± 0.023	- 0.9628 ± 0.030	- 0.063 ± 0.023	0.9628 ± 0.030
A <sub>4</sub>	- 0.043 ± 0.006	0.24641 ± 0.008	0.043 ± 0.006	- 0.24641 ± 0.008
A <sub>5</sub>	0.0086 ± 8.366E-4	- 0.03145 ± 0.0011	- 0.0086 ± 8.366E-4	0.03145 ± 0.0011
A <sub>6</sub>	- 5.406E-4 ± 4.568E-5	0.00163 ± 5.823E-5	5.406E-4 ± 4.568E-5	- 0.00163 ± 5.823E-5

**Table 1c**

Parameters used in Eq. (22) to calculate ECS  $\sigma^{el}$ , elastic transport cross section  $\sigma^{tr}$ , elastic mean free path  $\lambda_{el}$  and elastic transport mean free path  $\lambda_{tr}$  for electron incident energies in the range 10 eV to 100 keV in collision with PY.

e <sup>-</sup> - PY	$\sigma^{el}$	$\sigma^{tr}$	$\lambda_{el}$	$\lambda_{tr}$
A <sub>0</sub>	0.81367 ± 0.0683	1.385 ± 0.0407	1.296 ± 0.0683	0.724 ± 0.0407
A <sub>1</sub>	2.652 ± 0.1684	0.2037 ± 0.010	- 2.652 ± 0.1684	- 0.2037 ± 0.010
A <sub>2</sub>	- 2.995 ± 0.1634	0.418 ± 0.097	2.995 ± 0.1634	- 0.418 ± 0.097
A <sub>3</sub>	1.5163 ± 0.0803	- 0.619 ± 0.0474	- 1.5163 ± 0.0803	0.619 ± 0.0474
A <sub>4</sub>	- 0.422 ± 0.021	0.1975 ± 0.0125	0.422 ± 0.021	- 0.1975 ± 0.0125
A <sub>5</sub>	0.0591 ± 0.0028	- 0.027 ± 0.0017	- 0.0591 ± 0.0028	0.027 ± 0.0017
A <sub>6</sub>	- 0.0032 ± 1.574E-4	0.0015 ± 0.9205E-5	0.0032 ± 1.57E-4	- 0.0015 ± 0.9205E-5

**Table 1d**

Parameters used in Eq. (22) to calculate ECS  $\sigma^{el}$ , elastic transport cross section  $\sigma^{tr}$ , elastic mean free path  $\lambda_{el}$  and elastic transport mean free path  $\lambda_{tr}$  for positron incident energies in the range 10 eV to 100 keV in collision with PY.

e <sup>+</sup> - PY	$\sigma^{el}$	$\sigma^{tr}$	$\lambda_{el}$	$\lambda_{tr}$
A <sub>0</sub>	1.474 ± 0,0246	2.203 ± 0.0338	0.635 ± 0.0246	- 0.094 ± 0.0338
A <sub>1</sub>	- 0.23 ± 0.061	- 2.47 ± 0.0833	0.23 ± 0.061	2.47 ± 0.0833
A <sub>2</sub>	0.0063 ± 0.06	2.356 ± 0.0806	- 0.0063 ± 0.06	- 2.356 ± 0.0806
A <sub>3</sub>	0.06 ± 0.03	- 1.276 ± 0.04	- 0.06 ± 0.03	1.276 ± 0.04
A <sub>4</sub>	- 0.05 ± 0.0077	0.321 ± 0.010	0.05 ± 0.0077	- 0.321 ± 0.010
A <sub>5</sub>	0.01 ± 0.001	- 0.0406 ± 0.0014	- 0.01 ± 0.001	0.0406 ± 0.0014
A <sub>6</sub>	- 6.58E-4 ± 0.569E-5	0.0021 ± 7.66E-5	6.58E-4 ± 0.569E-5	- 0.0021 ± 7.66E-5

experimental measurements even though they are subjected to uncertainties caused by the phase state. Our data base is suggested to be used in Monte Carlo simulations for the transport of electron and positron in biological media or to evaluate the ECS and the elastic mean free path of electron and positron in DNA and RNA molecules. However, it is important to note that our modeling do not take into account the phase state; we have considered the biomolecules as isolated molecules without interaction with the surrounding medium. Such application requires further considerations about the condensed phase as extensively discussed in (Nikjoo et al., 2016b).

**Acknowledgments**

This study has been partially supported by the following research project and institutions: Direction generale des enseignements et de la

formation superieur,Algeria (CNEPRU, project D01220140090).

**References**

Anderson, E.K., Boadle, R.A., Machacek, J.R., Chiari, L., Makochekanwa, C., Buckman, S.J., Brunger, M.J., García, G., Blanco, F., Ingolfsson, O., Sullivan, J.P., 2014. Low energy positron interactions with uracil-Total scattering, positronium formation, and differential elastic scattering cross sections. *J. Chem. Phys.* 141, 034306.

Baek, W.Y., Bug, M., Rabus, H., Gargioni, E., Grosswendt, B., 2012. Differential elastic and total electron scattering cross sections of tetrahydrofuran. *Phys. Rev.* A86, 032702.

Baek, W.Y., Bug, M.U., Rabus, H., 2014. Differential elastic electron-scattering cross sections of pyrimidine in the energy range between 20 eV and 1 keV. *Phys. Rev.* A89, 062716.

Blanco, F., García, G., 2004. Screening corrections for calculation of electron scattering differential cross sections from polyatomic molecules. *Phys. Lett. A* 330, 230–237.

Blanco, F., García, G., 2007. Calculated cross sections for electron elastic and inelastic scattering from DNA and RNA bases. *Phys. Lett. A* 360, 707–712.

- Blanco, F., García, G., 2009. A screening-corrected additivity rule for the calculation of electron scattering from macro-molecules. *J. Phys.* B42, 145203.
- Blanco, F., Munoz, A., Almeida, D., da Silva, F.F., Limao-Vieira, P., Fuss, M.C., Sanz, A.G., García, G., 2013. Modelling low energy electron and positron tracks in biologically relevant media. *Eur. Phys. J. D* 67, 199.
- Bug, M.U., 2014. Thesis: Nanodosimetric particle tracksimulations in water and DNA media.
- Bug, M.U., Baek, W.Y., Rabus, H., Villagrasa, C., Meylan, S., Rosenfeld, A.B., 2017. An electron-impact cross section data set (10 eV to 1 keV) of DNA constituents based on consistent experimental data: a requisite for Monte Carlo simulations. *Radiat. Phys. Chem.* A130, 459–479.
- Bühning, W., 1965. Computational improvements in phase shift calculations of elastic electron scattering. *Z. Phys.* 187, 180–196.
- Burke, P.G., 2011. R-Matrix Theory of Atomic Collisions: Application to Atomic and Optical Processes. Springer.
- Chiari, L., Zecca, A., Girardi, S., Trainotti, E., García, G., Blanco, F., McEachran, R.P., Brunger, M.J., 2012. Positron scattering from O<sub>2</sub>. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 45, 215206.
- Chiari, L., Anderson, E., Tattersall, W., Machacek, J.R., Paliawadana, P., Makochekanwa, C., Sullivan, J.P., García, G., Blanco, F., McEachran, R.P., Brunger, M.J., Buckman, S.J., 2013a. Total, elastic, and inelastic cross sections for positron and electron collisions with tetrahydrofuran. *J. Chem. Phys.* 138, 074301.
- Chiari, L., Zecca, A., García, G., Blanco, F., Brunger, M.J., 2013b. Low-energy positron and electron scattering from nitrogen dioxide. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 46, 235202.
- Chiari, L., Zecca, A., Blanco, F., García, G., Brunger, M.J., 2016. Experimental and theoretical cross sections for positron scattering from the pentane isomers. *J. Chem. Phys.* 144, 084301.
- Dickinson, A.S., 1977. Differential cross sections for electron scattering by strongly polar molecules. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 10, 967–981.
- Duque, H.V., Do, T.P.T., Lopes, M.C.A., Konovalov, D.A., White, R.D., Brunger, M.J., Jones, D.B., 2015. The role of electron-impact vibrational excitation in electron transport through gaseous tetrahydrofuran. *J. Chem. Phys.* 142, 124307.
- Ferraz, J.R., dos Santos, A.S., de Souza, G.L.C., Zenelato, A.I., Alves, T.R.M., Lee, M.-T., Brescansin, L.M., Lucchese, R.R., Machado, L.E., 2013. Cross sections for electron scattering by formaldehyde and pyrimidine in the low and intermediate-energy ranges. *Phys. Rev.* A87, 032717.
- Fuss, M., Munoz, A., Oller, J., Blanco, F., Almeida, D., Limao-Vieira, P., Do, T.P.D., Brunger, M.J., García, G., 2009. Electron-scattering cross sections for collisions with tetrahydrofuran from 50 to 5000 eV. *Phys. Rev.* A 80, 052709.
- Fuss, M.C., 2013. Thesis: Electron interactions with molecules of biological interest.
- Gianturco, F.A., Lucchese, R.R., 2004. Resonant capture of low-energy electrons by gas-phase glycine: a quantum dynamics calculation. *J. Phys. Chem. A* 108, 7056–7062.
- Gianturco, F.A., Lucchese, R.R., Sanna, N., 1994. Calculation of low energy elastic cross sections for electron CF<sub>4</sub> scattering. *J. Chem. Phys.* 100, 6464–6471.
- Homem, M.G.P., Sugohara, R.T., Sanches, I.P., Lee, M.T., Iga, I., 2009. Cross sections for elastic electron collisions with tetrahydrofuran. *Phys. Rev.* A80, 032705.
- ICRU- 77. <<http://www.icru.org/home/reports/elastic-scattering-of-electrons-and-positrons-icru-report-77>>.
- Katritzki, A.R., Pozharski, A.F., 2000. Handbook of Heterocyclic Chemistry, 2nd ed. Pergamon, New York.
- Mozejko, P., Sanche, L., 2005. Cross sections for electron scattering from selected components of DNA and RNA. *Radiat. Phys. Chem.* A73, 77–84.
- Nikjoo, H., Taleei, R., Liamsuwan, T., Liljequist, D., Emfietzoglou, D., 2016a. Perspectives in radiation biophysics: from radiation track structure simulation to mechanistic models of DNA damage and repair. *Radiat. Phys. Chem.* 128, 3–10.
- Nikjoo, H., Emfietzoglou, D., Liamsuwan, T., Taleei, R., Liljequist, D., Uehara, S., 2016b. Radiation track, DNA damage and response-a review. *Rep. Prog. Phys.* 79, 116601.
- Paliawadana, P., Sullivan, J., Brunger, M., Winstead, C., McKoy, V., García, G., Blanco, F., Buckman, S., 2011. Low-energy elastic electron interactions with pyrimidine. *Phys. Rev.* A84, 062702.
- Paliawadana, P., Boadle, R., Chiari, L., Anderson, E.K., Machacek, J.R., Brunger, M.J., Buckman, S.J., Sullivan, J.P., 2013. Positron scattering from pyrimidine. *Phys. Rev.* A88, 012717.
- Salvat, F., 2003. Optical-model potential for electron and positron elastic scattering by atoms. *Phys. Rev.* A68, 012708.
- Salvat, F., PENELOPE-2014, 2015. A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. Workshop Barcelona, Nuclear Energy Agency, Organization for Economic Co-operation and Development.
- Salvat, F., Mayol, R., 1991. Accurate numerical solution of the Schrödinger and Dirac wave equations for central fields. *Comput. Phys. Comm.* 62, 65–79.
- Salvat, F., Mayol, R., 1993. Elastic scattering of electrons and positrons by atoms. Schrödinger and Dirac partial wave analysis. *Comput. Phys. Comm.* 74, 358–374.
- Salvat, F., Jablonski, A., Powell, C.J., 2005. ELSEPA—Dirac partial-wave calculation of elastic scattering of electrons and positrons by atoms, positive ions and molecules. *Comput. Phys. Comm.* 165, 157.
- Sanna, N., Gianturco, F.A., 1998. Differential cross sections for electron/positron scattering from polyatomic molecules. *Comput. Phys. Comm.* 114, 142–167.
- Sanz, A.G., 2014. Thesis: Interaction of electrons and positrons with molecular systems of biological interest.
- Sanz, A.G., Fuss, M.C., Blanco, F., Sebastianelli, F., Gianturco, F.A., García, G., 2012. Electron scattering cross sections from HCN over a broad energy range (0.1–10000 eV): influence of the permanent dipole moment on the scattering process. *J. Chem. Phys.* 137, 124103.
- Sanz, A.G., Fuss, M.C., Blanco, F., Mašín, Z., Gorfinkiel, J.D., McEachran, R.P., Brunger, M.J., García, G., 2013. Cross-section calculations for positron scattering from pyrimidine over an energy range from 0.1 to 10000 eV. *Phys. Rev.* A88, 062704.
- Sanz, A.G., Fuss, M.C., Blanco, F., Masin, Z., Gorfinkiel, J.D., Carelli, F., Sebastianelli, F., Gianturco, F.A., García, G., 2014. Electron scattering cross section calculations for polar molecules over a broad energy range. *Appl. Radiat. Isot.* 83, 57–67.
- Shadwick, B.A., Talman, J.D., Norman, M.R., 1989. A program to compute variationally optimized relativistic atomic potentials. *Comput. Phys. Comm.* 54, 95–102.
- Stepanek, J., 2003. Electron and positron atomic elastic scattering cross sections. *Radiat. Phys. Chem.* A 66, 99–116.
- Zecca, A., Oss, S., Karwasz, G., Grisenty, R., Brusa, R.S., 1987. Absolute total cross section measurements for intermediate energy electron scattering: III. Ne and Ar. *J. Phys. B* 20, 5157–5164.
- Zecca, A., Karwasz, G.P., Brusa, R.S., Szmytkowski, C., 1991. Absolute total cross sections for electron scattering on CH<sub>4</sub> molecules in the 1–4000 eV energy range. *J. Phys. B* 24, 2747–2754.
- Zecca, A., Perazzolli, C., Brunger, M.J., 2005. Positron and electron scattering from tetrahydrofuran. *J. Phys. B* 38, 2079.
- Zecca, A., Chiari, L., Sarkar, A., Brunger, M.J., 2008. Positron scattering from 3-hydroxy-tetrahydrofuran. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 41, 085201.
- Zecca, A., Chiari, L., García, G., Blanco, F., Trainotti, E., Brunger, M.J., 2010. Total cross sections for positron and electron scattering from pyrimidine. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 43, 215204.
- Zecca, A., Chiari, L., García, G., Blanco, F., Trainotti, E., Brunger, M.J., 2011a. Total cross-sections for positron and electron scattering from  $\alpha$ -tetrahydrofurfuryl alcohol. *New J. Phys.* 13, 063019.
- Zecca, A., Chiari, L., Trainotti, E., Fursa, D.V., Bray, I., Sarkar, A., Chattopadhyay, S., Ratnavel, K., Brunger, M.J., 2011b. Positron scattering from argon: total cross sections and the scattering length. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 45, 015203.

## RESEARCH ARTICLE

# Simulation of positron and electron elastic mean free path and diffusion angle on DNA nucleobases from 10 eV to 100 keV

Nabila Yasmina Aouina<sup>1</sup> | Zine-El-Abidine Chaoui<sup>1,2</sup> 

<sup>1</sup>Laboratory of Optoelectronic and Devices, University Ferhat Abbas Setif1, Algeria

<sup>2</sup>Physics Department, Faculty of Sciences, University of Setif1, Setif, Algeria

### Correspondence

Zine-El-Abidine Chaoui, Laboratory of Optoelectronic and Devices, University Ferhat Abbas Setif1, Algeria.

Email: zchaoui@univ-setif.dz

### Funding information

Direction generale des enseignements et de la formation superieur, Grant/Award Number: CNEPRU ,project CNEPRU D01220140090

Positron and electron interaction collisions in living cells are efficiently simulated by Monte Carlo (MC) codes where huge data tables are needed. Present study provides detailed results of charged particles elastic interactions needed in MC on DNA nucleobases (adenine, thymine, cytosine and guanine, deoxyribose, and phosphoric acid). Indeed, electron and positron elastic cross sections, elastic mean free paths, and elastic angular distributions  $P(\theta)$  are calculated from 10 eV to 100 keV using a corrected form of the independent atom method taking into account the geometry of the biomolecule. Our calculated results are compared with theoretical data available in the literature in absence of experimental data, in particular for positron. Moreover, our numerical results are presented in analytic format modeled to be used for fast sampling in the MC simulation of elastic collisions; particularly, we provide a useful analytic expression for sampling the elastic diffusion angle. For positron collisions on adenine, the relative error between numerical and analytic elastic diffusion angles is not exceeding 2% in the energy full range 10 eV to 100 keV.

### KEYWORDS

angular distribution for elastic collision in DNA nucleobases, charged particles interaction with DNA nucleobases, cross section for Monte Carlo simulations,  $e^-$  and  $e^+$  ECS and EMFP from DNA nucleobases, fast sampling in elastic collisions

## 1 | INTRODUCTION

The study of electron interactions with biomolecules in particular, complex biosystems such as DNA, RNA, proteins, and its molecular subunits, has gained a considerable interest due to its prominent features.<sup>1,2</sup> Ionizing radiation is widely used. It has been recognized that an appreciable amount of radiation damage is caused by secondary electrons that play a primordial role in biomedical applications. Low-energy electrons can cause damage by resonant formation<sup>3,4</sup> or directly through series of sequential reactions leading to direct single- and double-strand breaks by the process of dissociative electron attachment or to the formation of free radicals<sup>5</sup> and molecular products. Electron collisions have also the capacity to induce cellular mutation or necrosis.<sup>6</sup> The direct interaction can break the backbone of the DNA while the resonances will dissociate it into neutral and anionic fragments; such electron interactions promote cytotoxic, mutagenic, and carcinogenic lesions.<sup>7</sup>

In addition to electron collisions, positrons can also potentially provoke damages in biomolecular systems, eg, by the liberation of significant numbers of secondary low-energy electrons, as the positrons thermalize within the biological medium, through processes such as direct ionization. Positrons can be created by positron-electron pair production or by nuclear  $\beta^+$  decay that can be triggered by the interaction of high-energy photons with the electromagnetic field of an atomic nucleus. Positron mechanisms are used in modern medical diagnostics and treatment procedures, such as positron emission tomography, positron therapy, and other applications of fluorodeoxyglucose for therapy. Positron scattering with biomolecules becomes important to investigate metabolic activity in the human body; its scattering measurements from biomolecules are not abundant. This motivated experimental and theoretical modeling to provide cross sections for the different possible interactions<sup>8-14</sup> and in particular needed for Monte Carlo (MC) simulations. The main collisions are elastic and inelastic including ionizations and excitations. Recently, there have been significant interests in the

modeling of inelastic cross sections and their corresponding inelastic mean free paths in biological media.<sup>15-18</sup> Molecular elastic collisions can be modeled using different theoretical approaches,<sup>19</sup> but most of them can be considered as approximations. Accurate approximate models are based on spherical potential of the molecule with inclusion of low-energy effects. The present study fits into this framework and tries to provide accurate approximate elastic models for DNA nucleobases for MC simulations.

DNA molecules have attracted more attention due to their potential use for radiation biological effects. DNA components are very sensitive to high energy radiation damage that can occur to primary, secondary, or reactive processes.<sup>7</sup> DNA is an important biomolecule due to its role of storing all the information regarding the structure and function of every living cell. This information is stored as a code made up of four chemical bases: adenine (C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>N<sub>5</sub>), guanine (C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>N<sub>5</sub>O), cytosine (C<sub>4</sub>H<sub>5</sub>N<sub>3</sub>O), and thymine (C<sub>5</sub>H<sub>6</sub>N<sub>2</sub>O<sub>2</sub>). DNA bases pair up with each other, adenine with thymine, and cytosine with guanine, to form units called base pairs. DNA molecules are polymers constructed from monomers called nucleotides. These have a very simple structure, consisting of three components: sugar, phosphate, and base. Single-stranded DNA molecules are simply chains of nucleotides where two consecutive nucleotides are bound together by a strong covalent bond along a sugar-phosphate "backbone."

The molecular structure of the DNA backbone can also be represented by alternating tetrahydrofuran (THF) (C<sub>4</sub>H<sub>8</sub>O) and trimethyl phosphate (TMP) (CH<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>) where THF is a precursor of the deoxyribose and TMP provides a representation of trimethyl ester of the phosphoric acid. Pyrimidine (PY) and purine (PU) are precursors of the nucleobases. This type of DNA model is mainly motivated by the fact that accurate experimental measurements of THF and TMP are now achievable and even at very low energies.<sup>20,21</sup> It is possible to model the complex structure of the DNA backbone by considering it as a set of smaller molecules, which are themselves analogues of the constituent biomolecules. In the present study, we are interested by calculating electron and positron elastic cross sections (ECS) for adenine, thymine, guanine, cytosine, and sugar phosphate where measurements are very rare and even inexistent for some DNA bases. Furthermore, one of our major concerns is to provide tabulated ECS for positron in the energy range 10 eV to 100 keV.

In the next section of this paper, we summarize the necessary equations for atomic and molecular ECS followed by a section of results and discussions on electron and positron ECS from different nucleobases. In Section 4, we present our modeling to the ECS, EMFP, and the angular distribution  $P(\theta)$  needed in MC simulations of electron and positron elastic collisions from DNA nucleobases. An analytic model, useful for fast sampling of the diffusion angle in single elastic collision for both charged particles, will also be suggested. We end with some remarks and conclusions.

## 2 | DECS AND ECS

Differential elastic cross sections (DECS) for electron and positron scattering from biomolecules cited below have been calculated using a corrected form of the independent atom method that reduces to

the problem of collision with individual atoms by assuming that each atom of the molecule scatters independently. It requires only data on atomic total cross sections and atomic positions in the biomolecule. This correction is described by introduction of the screening effect of all atoms of the biomolecule. In contrast to the SCAR model,<sup>10-14,22</sup> our model uses the same screening coefficients  $s_i$  but differs substantially in the derivation of the DECS.

For a molecule composed of  $N$  atoms, introducing screening coefficients  $s_i$ <sup>22</sup> to the additivity rule results in

$$\sigma^{el} = \sum_{i=1,N} s_i \sigma_i^{el}, \quad (1)$$

where  $\sigma_i^{el}$  is the total ECS of each atom  $i$  of the molecule.

The screening coefficients  $0 \leq s_i \leq 1$  reduce the contribution of each atom to the total cross section. Calculation of  $s_i$  coefficients requires data on the position and total cross section  $\sigma_i^{el}$  of each atom in the molecule. For a given electron or positron incident energy, screening coefficients  $s_i$  are calculated in the first place. The explicit expressions are given<sup>22</sup> as

$$s_i = \sum \pm \frac{\epsilon_i^{(N)}}{N!}, \quad (2)$$

where  $\epsilon_i^{(k)} = \frac{N-k+1}{N-1} \sum_{j(\neq i)} \frac{\sigma_j^{el} \epsilon_j^{(k-1)}}{\alpha_{ij}} (k = 2, \dots, N)$ ;  $\epsilon_i^{(1)} = 1$ .

The  $j$  index runs over all  $N$  atoms except atom  $i$ ,  $\alpha_{ij} = \max(4\pi r_{ij}^2, \sigma_i^{el}, \sigma_j^{el})$ , and  $r_{ij}$  is the distance between centers of atoms  $i$  and  $j$ . Contribution of coefficients  $s_i$  in the evaluation of the ECS can be interpreted as the effect of the geometric configuration of atoms in the molecule with their corresponding cross sections seen as surfaces by the incident charged particle that may overlap depending on the distance between centers of atoms.

To evaluate in the DECS, Equation (1) can be written as

$$\int_0^\pi \frac{d\sigma^{el}}{d\theta} d\Omega = s_1 \int_0^\pi \frac{d\sigma_1^{el}}{d\theta} d\Omega + s_2 \int_0^\pi \frac{d\sigma_2^{el}}{d\theta} d\Omega + \dots + s_N \int_0^\pi \frac{d\sigma_N^{el}}{d\theta} d\Omega, \quad (3)$$

where  $\Omega = 2\pi \sin \theta d\theta$  with  $\theta = [0 - \pi]$ , the polar angle; coefficients  $s_i$  depend only on the atomic total ECS, therefore,

$$\int_0^\pi \frac{d\sigma^{el}}{d\theta} d\Omega = \int_0^\pi \left( s_1 \frac{d\sigma_1^{el}}{d\theta} + s_2 \frac{d\sigma_2^{el}}{d\theta} + \dots + s_N \frac{d\sigma_N^{el}}{d\theta} \right) d\Omega. \quad (4)$$

The differential ECS is given as

$$\frac{d\sigma^{el}}{d\theta} = s_1 \frac{d\sigma_1^{el}}{d\theta} + s_2 \frac{d\sigma_2^{el}}{d\theta} + \dots + s_N \frac{d\sigma_N^{el}}{d\theta}. \quad (5)$$

We have checked that the integral of the left side of Equation (5) leads exactly to the value of the total ECS given in the left side of Equation (1). In other studies,<sup>10-14,22</sup> the DECS of the biomolecule is approximated by two separate contributions corresponding to incident charged particle suffering appreciable deviations and strong forward directionality; they are derived after some estimation on the relevance of these contributions.

Electron and positron DECS and ECS of the different atoms composing the DNA bases (H, C, O, N, and P) are calculated from relativistic (Dirac) partial wave analysis at incident energies between 10 eV to 100 keV.<sup>23,24</sup> The DECS for each atom  $i$  needed in Equation (5)

is given as

$$\frac{d\sigma_i^{el}}{d\theta} = |F_l(\theta)|^2 + |G_l(\theta)|^2, \quad (6)$$

where

$$F_l = \frac{1}{2iK} \{ (l+1)[\exp(2i\delta_{l+}) - 1] + l[\exp(-2i\delta_{l-}) - 1] \} P_l(\cos\theta), \quad (7)$$

$$G_l = \frac{1}{2iK} \{ \exp(-2i\delta_{l-}) - \exp(-2i\delta_{l+}) \} P_l^1(\cos\theta), \quad (8)$$

and  $\delta_{l-}, \delta_{l+}$  are the phase shifts of order  $l$ ;  $k$  stands for the momentum of the projectile.

The total ECS for an atom  $i$  needed in Equation (1) is then calculated from the atomic DECS as

$$\sigma_i^{el} = \int_0^\pi \frac{d\sigma_i^{el}}{d\theta} d\Omega. \quad (9)$$

The electrostatic interaction  $V_{st}(r)$  is determined from the Dirac-Hartree-Fock self-consistent atomic electron density and in the case of electron projectiles<sup>23,24</sup>:

$$V_{st}(r) \equiv \frac{Z_0 Z e^2}{r} - Z_0 e^2 \left( \frac{1}{r} \int_0^r \rho(r') 4\pi r'^2 dr' + \int_r^\infty \rho(r') 4\pi r' dr' \right), \quad (10)$$

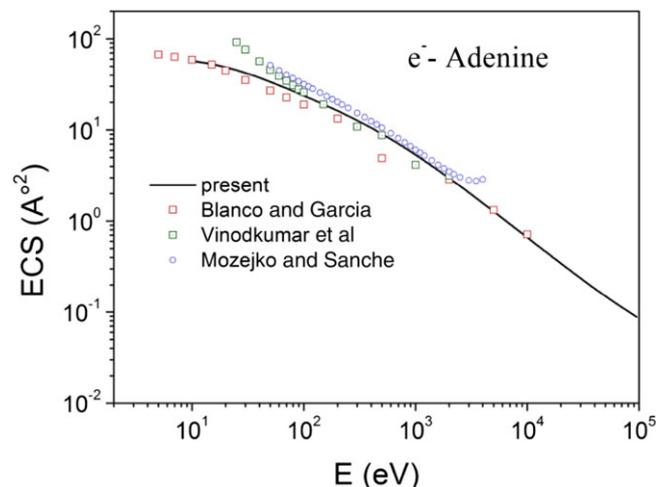
where  $Z_0 e$  is the charge of the projectile.

The exchange interaction is described by means of the local-approximation of Furness and McCarthy<sup>23</sup> and is considered for the case of electrons as

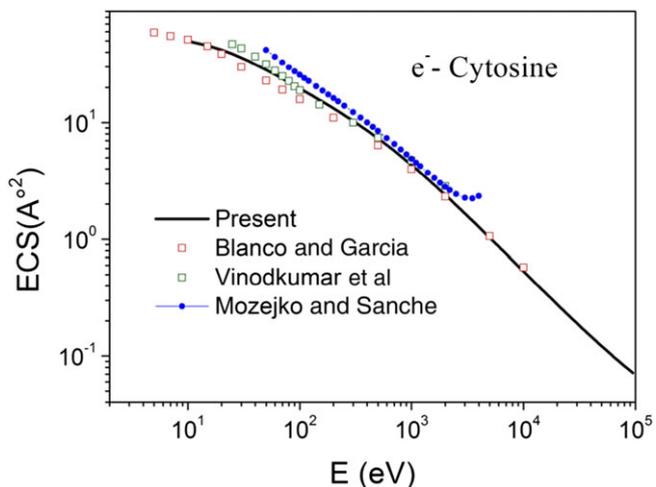
$$V_{ex}(r) = \frac{1}{2} [E - V_{st}(r)] - \frac{1}{2} \{ [E - V_{st}(r)]^2 + 4\pi a_0 e^4 \rho(r) \}^{1/2}. \quad (11)$$

For positrons, the inclusion of the atomic polarization correlation effect has been found to increase considerably the ECS of the molecules; therefore, only the static potential is considered.

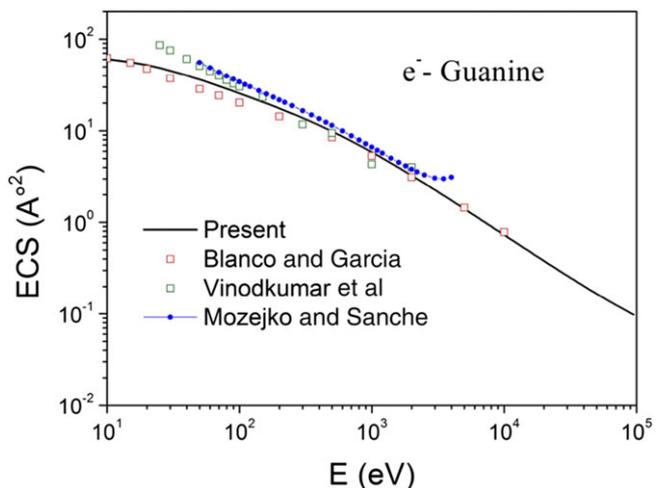
Results of our electron ECS are shown in Figures 1–4 from adenine, cytosine, guanine, and thymine in the full energy range



**FIGURE 1** Present elastic cross sections (ECS) of electron on adenine compared with theoretical ECS of Blanco and Garcia,<sup>22</sup> theoretical ECS of Vinodkumar et al,<sup>26</sup> and theoretical ECS of Mozejko and Sanche<sup>25</sup>

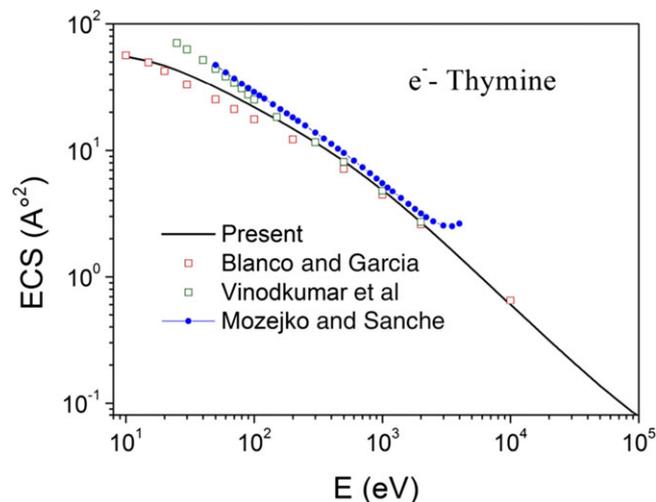


**FIGURE 2** Present elastic cross sections (ECS) of electron on cytosine compared with theoretical ECS of Blanco and Garcia,<sup>22</sup> theoretical ECS of Vinodkumar et al,<sup>26</sup> and theoretical ECS of Mozejko and Sanche<sup>25</sup>



**FIGURE 3** Present elastic cross sections (ECS) of electron on guanine compared with theoretical ECS of Blanco and Garcia,<sup>22</sup> theoretical ECS of Vinodkumar et al,<sup>26</sup> and theoretical ECS of Mozejko and Sanche<sup>25</sup>

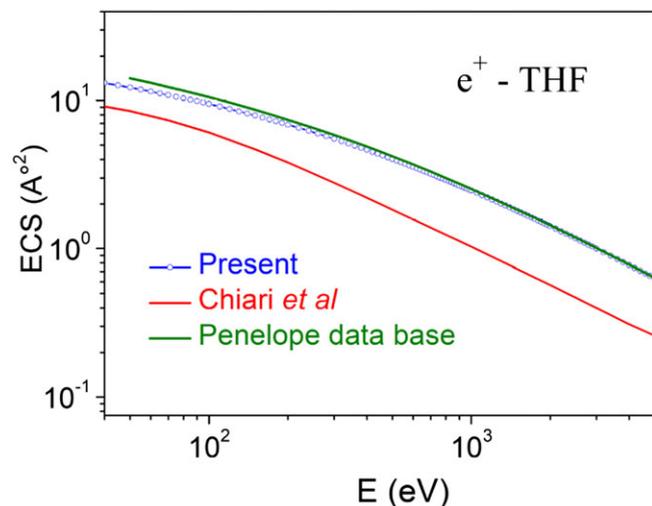
10 eV to 100 keV. Included for comparisons are theoretical data of Mozejko and Sanche,<sup>25</sup> theoretical ECS of Vinodkumar et al<sup>26</sup> and the theoretical ECS of Blanco and Garcia.<sup>22</sup> The data of Mozejko and Sanche are higher than our ECS. They are based on the independent atom method including a static-polarization potential for incident energies ranging from 50 eV to 4000 eV; atomic cross sections are calculated from Schrödinger equation using Numerov method. The relative difference from our ECS is about 34%. It is most probably due to the inclusion of the polarization potential for atoms composing the different bases. Similar differences of 35% have been pointed out in Bug et al<sup>21</sup> in comparison with experimental ECS from THF. The data of Vinodkumar et al<sup>26</sup> are based on the method used by Jain<sup>27</sup> that uses Schrödinger equation and spherical potential for the molecule including exchange and polarization. In Figures 1–4, the corresponding ECS are in disagreement with our ECS only for energies lower than 100 eV; at lower energies, they are higher than our ECS



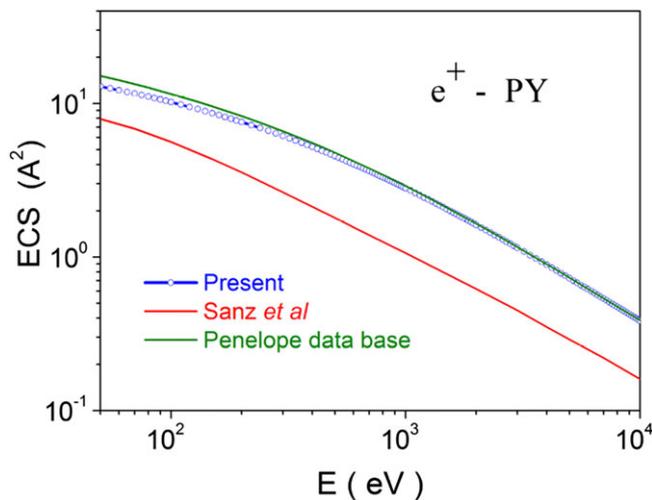
**FIGURE 4** Present elastic cross sections (ECS) of electron on thymine compared with theoretical ECS of Blanco and Garcia,<sup>22</sup> theoretical ECS of Vinodkumar et al,<sup>26</sup> and theoretical ECS of Mozejko and Sanche<sup>25</sup>

and lower than those of Mozejko and Sanche.<sup>25</sup> Calculated ECS of Blanco and Garcia<sup>22</sup> are different from our electron ECS. They are based on the same screen additivity rule used in the present study but use Schrödinger equation and differ, as pointed above, in the derivation of the DECS. Appreciable differences have also been found for positrons.

As shown on Figures 5 and 6, for energies up to 1 keV, our data differ from Penelope ECS data base<sup>28</sup> that are based on incoherent scattering model without interference scattering between the different atoms of the molecule; this effect is translated here in our results by inclusion of the screening effect. However, the present positron ECS and those used in Penelope ECS data base<sup>28</sup> deviate 240% from the data of Chiari et al<sup>10</sup> for THF and the data of Sanz et al<sup>12,14</sup> for PY. For PY, the difference is much important even at 10 keV positron incident energy. At high positron or electron incident energies, effects such screening between atoms, dipole effect, and rotational



**FIGURE 5** Present positron elastic cross sections (ECS) on tetrahydrofuran (THF). Included for comparison are the theoretical ECS data of Chiari et al<sup>10</sup> and theoretical ECS of Penelope data base<sup>28</sup>



**FIGURE 6** Present positron elastic cross sections (ECS) from pyrimidine (PY). Included for comparison are the theoretical ECS data of Sanz et al<sup>12</sup> and theoretical ECS of Penelope data<sup>28</sup>

excitations are negligible; the static potential in the interaction potential is the only dominant part taken into account in the solution of the radial function. Therefore, the molecular ECS reduces to the simple independent atomic model as confirmed from the agreement found in Figures 5, 6 when comparing our ECS with Penelope ECS data. Thus, our modeling of positron ECS can be considered as a correction of IAM-SCAR of references.<sup>10,12,14</sup>

Concerning our positron results from DNA bases, tabulated ECS data are presented in Table 1 from adenine, thymine, guanine, cytosine, deoxyribose, and phosphoric acid for positron incident energies ranging from 10 to 100 keV.

### 3 | ECS, EMFP, AND ANGULAR DISTRIBUTIONS $P(\theta)$ FOR MC SIMULATIONS

Knowledge of elastic mean free path is essential to predict accurately radiation effects in biological matter since it contributes to distances between collisions; at lower incident energies, it dominates the inelastic mean free path. The ECS is added to the total cross section and used in Monte Code to sample the collision type. The angular distribution is used to sample the elastic diffusion angle in MC simulation. In the following, we present our models of ECS, EMFP, and elastic angular distributions in order to use them efficiently in MC codes to describe electron and positron elastic collisions on DNA bases of our interest.

Positron or electron total EMFP is calculated as

$$\lambda^{\text{el}} = \frac{1}{n\sigma^{\text{el}}}; \quad (12)$$

$\sigma^{\text{el}}$  in unit  $\text{Å}^2$  is derived from Equation (1);  $n$  stands for the number of biomolecules per  $\text{Å}^3$ . As an example, for thymine  $n = 0.0058736$ .

To make feasible the implementation of our ECS and EMFP for electron and positron incident energies in the range 10 to 100 keV as a data base for MC simulations, we suggest a simple and accurate fitting procedure as

**TABLE 1** Positron ECS ( $\lambda^2$ ) from DNA bases (adenine, thymine, guanine, cytosine, deoxyribose, and phosphoric acid) in the energy range 10 eV to 100 keV

E, eV	Adenine	Thymine	Guanine	Cytosine	Deoxyribose	Phos_Acid
10	27.82	25.89	29.59	23.08	27.36	15.96
30	22.63	20.89	24.15	18.61	21.87	12.95
50	19.85	18.24	21.23	16.25	18.97	11.39
70	17.95	16.44	19.23	14.65	17.02	10.35
100	15.91	14.52	17.07	12.94	14.97	9.235
150	13.59	12.37	14.63	11.02	12.69	7.983
200	11.99	10.88	12.92	9.703	11.13	7.115
300	9.820	8.89	10.62	7.929	9.076	5.939
500	7.335	6.63	7.964	5.913	6.760	4.576
700	5.903	5.34	6.428	4.757	5.442	3.774
1000	4.594	4.16	5.017	3.702	4.241	3.021
2000	2.677	2.43	2.938	2.159	2.483	1.864
3000	1.901	1.72	2.091	1.535	1.769	1.367
4000	1.478	1.34	1.627	1.194	1.378	1.086
5000	1.211	1.10	1.334	0.978	1.130	0.903
7000	0.892	0.812	0.984	0.721	0.834	0.679
10 000	0.642	0.585	0.709	0.519	0.601	0.498
20 000	0.338	0.308	0.374	0.273	0.317	0.269
30 000	0.233	0.213	0.258	0.189	0.219	0.187
40 000	0.181	0.165	0.200	0.146	0.170	0.146
50 000	0.149	0.136	0.164	0.120	0.140	0.120
70 000	0.112	0.102	0.124	0.091	0.105	0.0914
100 000	0.0842	0.0771	0.097	0.0683	0.0802	0.0692

Abbreviation: ECS, elastic cross sections.

$$Y = \sum_{i=0}^6 A_i \cdot X^i, \quad (13)$$

where  $X = \log(E)$  and  $Y = \log(\sigma^{el})$  for the ECS or  $Y = \log(\lambda_{el})$  for the EMFP.  $E$  is the electron or positron incident energy in electron volt; the cross sections  $\sigma^{el}$  is in  $\text{Å}^2$ , and the mean free paths  $\lambda_{el}$  is in  $\text{Å}$ . As an example, the calculated parameters  $A_i$  are given in Table 2 for electron and positron in the range 10 eV to 100 keV on thymine ( $1.23 \text{ g/cm}^3$ ). Note that the EMFP depends on the density of the biomolecule; it is phase dependent.

Distributions of the angular deflection are calculated from the knowledge of the DECS and its integral ECS. Values of  $P(\theta)$  are distributed in the range  $[0, 1]$  as

$$P(\theta) = \frac{\int_0^\theta \frac{d\sigma}{d\theta} d\theta'}{\sigma_0^{el}}. \quad (14)$$

The probability that a particle scatters in an angle  $\theta$  is calculated from the distribution of the angular deflection  $P(\theta)$ . To allow fast sampling, we have elaborated a new analytic model based on Wentzel EDCS,<sup>29</sup> which optimize the data base of our numerical angular distributions in the energy range 10 eV to 100 keV. The following model improves considerably our previous models.<sup>30,31</sup>

Our generalization to the Wentzel DECS, which includes a scattering potential in an exponential form to reproduce the effect of the screening, is given as

**TABLE 2** Parameters used in Equation (13) to calculate ECS ( $\sigma^{el}$ ) and EMFP ( $\lambda_{el}$ ) for electron and positron incident energies in the range 10 to 100 keV on thymine

Thymine	$\sigma_{\text{elastic}}^e$	$\lambda_{\text{elastic}}^e$	$\sigma_{\text{elastic}}^{e+}$	$\lambda_{\text{elastic}}^{e+}$
$A_0$	$0.777 \pm 0.0590$	$1.454 \pm 0.0589$	$1.534 \pm 0.0214$	$0.6967 \pm 0.02145$
$A_1$	$2.952 \pm 0.145$	$2.952 \pm 0.145$	$-0.0153 \pm 0.0529$	$0.0153 \pm 0.0529$
$A_2$	$-3.183 \pm 0.140$	$-3.183 \pm 0.140$	$-0.2043 \pm 0.0513$	$0.2043 \pm 0.0513$
$A_3$	$1.573 \pm 0.068$	$1.573 \pm 0.068$	$0.16284 \pm 0.0252$	$-0.16284 \pm 0.0252$
$A_4$	$-0.429 \pm 0.018$	$-0.429 \pm 0.018$	$-0.07512 \pm 0.0667$	$0.07512 \pm 0.0667$
$A_5$	$0.059 \pm 0.0024$	$0.059 \pm 0.0024$	$0.01335 \pm 9.054E-4$	$0.01335 \pm 9.054E-4$
$A_6$	$-0.0032 \pm 1.333E-4$	$-0.00319 \pm 1.333E-4$	$-8.064E-4 \pm 4.943E-5$	$8.064E-4 \pm 4.943E-5$

Abbreviation: ECS, elastic cross sections; EMFP, elastic mean free paths.

$$\frac{d\sigma^W(\theta)}{d\theta} = F \frac{\sin\theta}{(1 - \cos\theta + A)^B} \quad (15)$$

$F = \frac{\pi e^4}{2} \left(\frac{ZZ'}{E}\right)^2$ ;  $A(E)$  and  $B(E)$  are function of the incident energy 10 to 100 keV.

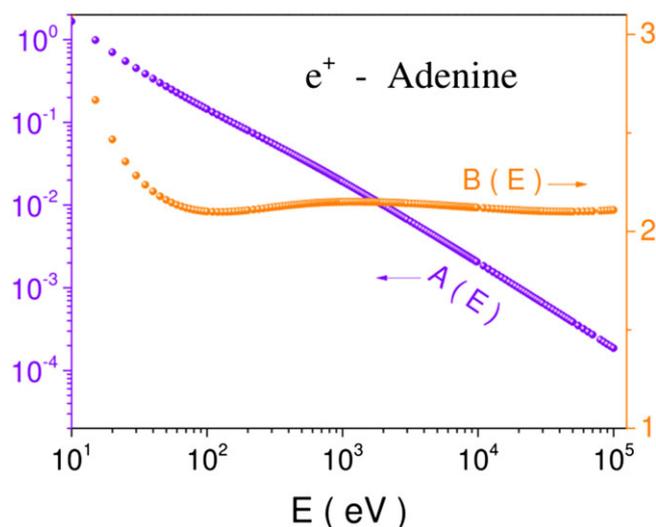
Therefore, the ECS integrated from  $[0, \pi]$  leads to the following expression:

$$\sigma_0^W = F \frac{1}{1-B} [(2+A)^{1-B} - (A)^{1-B}]. \quad (16)$$

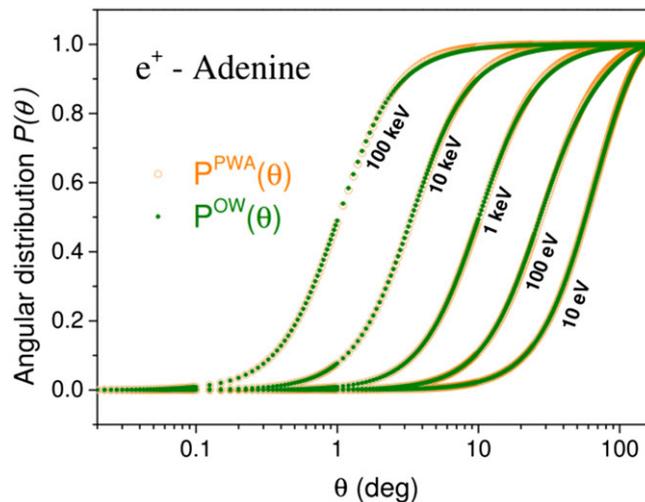
Using Equation (8) to (10), the diffusion angle can be derived as

$$\cos\theta = (1+A) - (rd) \cdot [(A+2)^{(1-B)} - (A)^{(1-B)}] + (A)^{(1-B)} \frac{1}{(1-B)}. \quad (17)$$

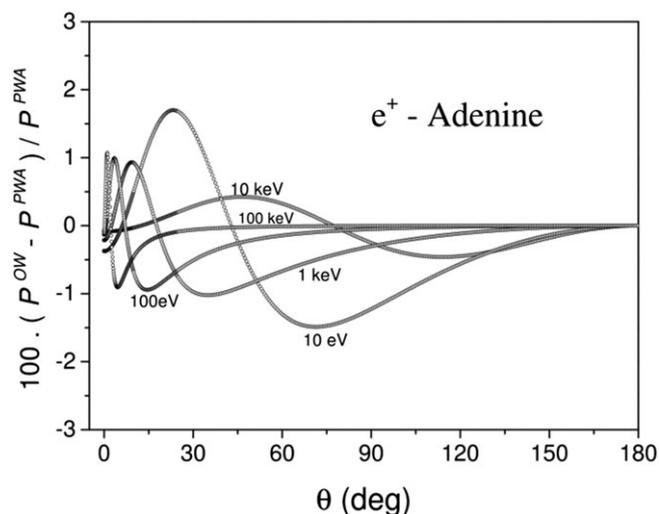
where  $(rd)$  are random numbers generated during MC simulations. To obtain optimized vectors  $A(E)$  and  $B(E)$  for each incident energy  $E$  in any given  $Z$  medium, we have used robust optimization algorithms<sup>30,31</sup> to cover the full energy range of our interest. Our partial wave analysis elastic angular deflections  $P^{PWA}(\theta)$  given Equation (14) are calculated numerically using our ECS and DECS given Equation (1) and Equation (5), respectively. These numerical distributions are used as input in our optimization procedure to produce  $A(E)$  and  $B(E)$  and then calculate the optimized analytic elastic angular deflection  $P^{OW}(\theta)$ . Values of the optimized parameters  $A$  and  $B$  for adenine used in our optimized Wentzel analytic model are shown in Figure 7 for positron in the range 10 to 100 keV. The corresponding optimized analytic  $P^{OW}(\theta)$  angular distributions, aimed to be used in MC simulation to sample the diffusion angle, are shown in Figure 8. They are compared with our numerical angular distributions  $P^{PWA}(\theta)$  of reference calculated in the present study. Their relative differences are shown in Figure 9. Note that, for positron energies from 10 to 100 keV on adenine, the relative error does not exceed 2%. We note that we have applied our optimized Wentzel model for all DNA bases and water



**FIGURE 7** Values of the optimized parameters  $A$  and  $B$  used in our optimized Wentzel analytic model given as Equation (17) to sample positron elastic diffusion angles from adenine in the range 10 eV to 100 keV



**FIGURE 8** Angular distributions of elastic collisions of positron from adenine used in Monte Carlo simulation to sample the diffusion angle. Present optimized analytic angular distributions optimized Wentzel (OW) compared with numerical angular distributions of reference calculated from partial wave analysis (PWA)



**FIGURE 9** Relative error (%) of present optimized analytic angular distributions optimized Wentzel (OW) compared with numerical angular distributions of reference calculated from partial wave analysis (PWA). For positron energies from 10 eV to 100 keV in adenine, the relative error do not exceed 2%.

(vapor and liquid) for electron and positron incident energies up to 100 MeV; the electron and positron data bases can be implemented with ease in MC codes to simulate detailed elastic collisions on DNA target surrounded by water.

## 4 | SUMMARY AND DISCUSSIONS

We have presented cross-section data on elastic collisions on DNA bases (adenine, thymine, guanine, cytosine, deoxyribose, and phosphoric acid) for electrons and positrons in the energy range 10 eV to 100 keV. For electron, the present ECS do not really agree with theoretical data of Mozejko and Sanche<sup>25</sup>; the relative difference

is estimated to 33% for all the bases. We think that it is mainly because of the atomic polarization potential included in their Schrodinger equation. Meanwhile, our ECS agree well with those of Vinodkumar et al<sup>26</sup> for energies greater than 100 eV. It is important to note that we do not expect our DECS to be accurate for lower energies less than 100 eV; other contributions such as dipole effect and rotational excitations should be included. However, we are confident on the validity of the ECS for both charged particles even for energies as low as 10 eV; we have obtained very good agreement when comparing (not shown here in the present study) our ECS for electron on THF and PY with several experimental<sup>20,21</sup> and theoretical data. On the other, our results differ from SCAR model cited in the literature<sup>10,12-14,22</sup> even though we have used the same screening coefficients that take into account the geometrical positions of atoms forming the nucleobases. For positrons, we have shown relative differences as important as 250% for PY and THF and even at 10 keV; therefore, the total cross section will also increase allowing small mean free paths for the charged particle and hence an increase in the collision number. Similar statement has been pointed out in Bug et al.<sup>21</sup>

To make useful the present calculated data base for nucleobases, we have calculated the EMFP and the angular distributions  $P(\theta)$  for both charged particles in the energy range 10 eV to 100 keV. Moreover, we presented new models that use the present numerical ECS, EMFP, and  $P^{PWA}(\theta)$  data base in analytic format suited for fast MC sampling where large data base is needed to model accurately electrons and positrons in DNA complex structures such as GEANT4-DNA<sup>32</sup> or PARTRAC.<sup>1</sup> Detailed results have been presented for the case of positron on adenine where we have shown a relative error between numerical and analytic diffusion angles not exceeding 2% in the energy full range 10 eV to 100 keV.

## ACKNOWLEDGEMENTS

This study has been partially supported by the following research project and institutions: Direction Generale des Enseignements et de la Formation Superieur (CNEPRU, project CNEPRU D01220140090).

## ORCID

Zine-El-Abidine Chaoui  <http://orcid.org/0000-0001-7452-3515>

## REFERENCES

- Friedland W, Schmitt E, Kunderat P, et al. Comprehensive track-structure based evaluation of DNA damage by light ions from radiotherapy-relevant energies down to stopping. *Sci Rep*. 2017;7:45161.
- Nikjoo H, Emfietzoglou D, Liamsuwan T, Taleei R, Liljequist L, Uehara S. Radiation track, DNA damage and response—a review. *Rep Prog Phys*. 2016;79(11):116601.
- Boudaïffa B, Cloutier P, Hunting D, Huels MA, Sanche L. Resonant formation of DNA strand breaks by low-energy (3 to 20 eV) electrons. *Science*. 2000;287(5458):1658-1660.
- Boudaïffa B, Cloutier P, Hunting D, Huels MA, Sanche L. Cross sections for low-energy (10-50 eV) electron damage to DNA. *Radiat Res*. 2002;157(3):227-234.
- Valko M, Leibfritz D, Moncol J, Cronin MT, Mazur M, Telser J. Free radicals and antioxidants in normal physiological functions and human disease. *Int J Biochem Cell Biol*. 2007;39(1):44-84.
- Julie R, Nidhi B, Jiang Q, Weiling Z, Cristina F. Effects of ionizing radiation on biological molecules—mechanisms of damage and emerging methods of detection. *Antioxid Redox Signal*. 2014;21(2):260-292.
- Sanche L. Role of secondary low energy electrons in radiobiology and chemoradiation therapy of cancer. *Chem Phys Lett*. 2009 and references therein;474(1-3):1-6.
- Chiari L, Zecca A, Blanco F, Garcia G, Brunger MJ. Experimental and theoretical cross sections for positron scattering from the pentane isomers. *J Chem Phys*. 2016;144(8):084301.
- Zecca A, Chiari L, Garcia G, Blanco F, Trainotti E, Brunger MJ. Total cross-sections for positron and electron scattering from  $\alpha$ -tetrahydrofurfuryl alcohol. *New J Phys*. 2011;13(6):063019.
- Chiari L, Anderson E, Tattersall W, et al. Total elastic and inelastic cross sections for positron and electron collisions with tetrahydrofuran. *J Chem Phys*. 2013;138(7):074301.
- J. Franz, F. A. Gianturco, Low-energy positron scattering from gas-phase pyrimidine: a quantum treatment of the dynamics and a comparison with experiments. *Phys Rev*. A88, 042711 (2013), 88, 4.
- A. G. Sanz, M. C. Fuss, F. Blanco, Z. Mašín, J. D. Gorfinkiel, R. P. McEachran, M. J. Brunger and G. Garcia, Cross-section calculations for positron scattering from pyrimidine over an energy range from 0.1 to 10000 eV. *Phys Rev*. A88, (2013). 062704, 88, 6.
- Chiari L, Zecca A, Blanco F, Garcia G, Brunger MJ. Cross sections for positron and electron collisions with an analog of the purine nucleobases: indole. *Phys Rev A*. 2015;91(1):012711.
- A. G. Sanz, Thesis: Interaction of electrons and positrons with molecular systems of biological interest (2014).
- Garcia-Molina R, Abril I, Kyriakou I, Emfietzoglou D. Inelastic scattering and energy loss of swift electron beams in biologically relevant materials. *Surf Interface Anal*. 2017;49(1):11-17.
- Emfietzoglou D, Kyriakou I, Abril I, et al. Electron inelastic mean free paths in biological matter based on dielectric theory and local-field corrections. *Nucl Instrum Meth B*. 2009;267(1):45-52.
- Abril I, Garcia-Molina R, Denton CD, Kyriakou I, Emfietzoglou D. Energy loss of H and He beams in DNA: calculations based on a realistic energy loss function of the target. *Radiat Res*. 2011;175(2):247-255.
- Emfietzoglou D, Kyriakou I, Garcia-Molina R, Abril I. Inelastic mean free paths of low energy electrons in condensed media: beyond the standard models. *Surf Interface Anal*. 2017;49(1):4-10.
- Liljequist D, Liamsuwan T, Nikjoo H. Elastic scattering cross section models used for Monte Carlo simulation of electron tracks in media of biological and medical interest. *Int J Radiat Biol*. 2012;88(1-2):29-37.
- M. U. Bug, Thesis: Nanodosimetric particle track simulations in water and DNA Media (2014).
- M. U. Bug, W. Y. Baek, H. Rabus, C. Villagrasa, S. Meylan, A. B. Rosenfeld, An electron-impact cross section data set (10 eV–1 keV) of DNA constituents based on consistent experimental data: a requisite for Monte Carlo simulations. *Radiat Phys Chem*, A130, (2017). 459–479, 130
- Blanco F, Garcia G. Calculated cross sections for electron elastic and inelastic scattering from DNA and RNA bases. *Physics Letters a*. 2007;360(6):707-712.
- Salvat F. Optical-model potential for electron and positron elastic scattering by atoms. *Phys Rev*. 2003;A68:012708.
- Salvat F, Jablonski A, Powell CJ. ELSEPA—Dirac partial-wave calculation of elastic scattering of electrons and positrons by atoms, positive ions and molecules. *Comput Phys Commun*. 2005;165(2): 157-190.
- Mozejko P, Sanche L. Cross section calculations for electron scattering from DNA and RNA bases. *Radiat Environ Biophys*. 2003;42(3): 201-211.
- Vinodkumar M, Limbachiyab C, Barot M, Barot A, Swadia M. Electron impact total cross sections for components of DNA and RNA molecules. *Int J Mass Spectrom*. 2014;360:1-7.

27. Jain A. Electron-CH<sub>4</sub> scattering is investigated in a wide energy range (0.1–500 eV) by using a previously proposed spherical model. *Phys Rev A*. 1986;34(5):3707-3722.
28. Salvat F. PENELOPE-2014: A code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport. Workshop Barcelona, nuclear energy agency. *Organ Econ Co-Oper Dev*.
29. Wentzel G. *Z Phys*. 1927;40:590.
30. Chaoui Z. Improved elastic scattering model of electrons in limited media. *Appl Phys Lett*. 2006;88(2):024105.
31. Chaoui Z. A simplified positron elastic scattering model for Monte Carlo calculations. *J Phys Condens Matter*. 2006;18(45):10303-10312.
32. Meylan S, Incertie S, Karamitros M, et al. Simulation of early DNA damage after the irradiation of a broblast cell nucleus using Geant4-DNA. *Sci Rep*. 2017;7(1):11923.

**How to cite this article:** Aouina NY, Chaoui Z. Simulation of positron and electron elastic mean free path and diffusion angle on DNA nucleobases from 10 eV to 100 keV. *Surf Interface Anal*. 2018;1–8. <https://doi.org/10.1002/sia.6510>

يركز هذا العمل على حساب إجمالي المقاطع العرضية المشتتة للإلكترون والبوزيترون مع جزيئات متعددة الذرات أكبر مثل نيوكليوتيدات الحمض النووي DNA بسبب وجود صعوبات في قياسها أو حسابها بشكل موثوق. لذلك، لحساب إجمالي المقاطع العرضية المرنة، قمنا بتطبيق قاعدة الإضافة المصححة للشاشنة (SCAR-Macro) من 10 eV إلى 100 KeV من خلال النظر في مركز الثقل الجزيئي على نيوكليوتيد يحتوي على الديوكس ريبوز وحمض الفوسفوريك وقاعدة (الأدينين والغوانين)، ثمين). يوفر هذا العمل المسارات المرنة المتوسطة الحرارة لتصادم الإلكترون والبوزيترون مع العمود الفقري للحمض النووي من أجل تطوير فهم أفضل للتأثيرات البيولوجية للإشعاعات المؤينة. سنناقش في هذا العمل تأثير محتوى الماء على نتائجنا مع العلم أن الأخير هو العامل الرئيسي في تحديد بنية حمض الديوكسي الريبوي النووي. يتم محاكاة اصطدامات تفاعل البوزيترون والإلكترون في الخلايا الحية بكفاءة بواسطة رموز مونت كارلو (MC) حيث توجد حاجة إلى جداول بيانات ضخمة. توفر الدراسة الحالية نتائج مفصلة للتفاعلات المرنة للجزيئات المشحونة المطلوبة في MC على أنوية DNA. في الواقع، يتم حساب المقاطع العرضية المرنة وغير المرنة للإلكترونات والبوزيترونات، المسارات الحرة المرنة وغير المرنة، والتوزيعات الزاوية، والطاقة المودعة وفقدان الطاقة.

**مفاتيح الكلمات:** المقطع العرضي المرن للبوسترون والإلكترون، المسار الحر المرن وغير المرن، النقل المتوسط، المسار الحر، التوزيع الزاوي للتصادم في نوكلويد الحمض النووي، المقطع العرضي لمحاكاة مونت كارلو Monte Carlo

## Résumé

Ce travail porte sur le calcul des sections efficaces de diffusion totale d'électrons et de positons avec des molécules polyatomiques telles que les nucléotides d'ADN, du fait qu'il est difficile de les mesurer ou de les calculer de manière fiable. Par conséquent, pour calculer les sections efficaces élastiques totales, nous avons appliqué la règle d'additivité avec correction d'écran (SCAR-Macro) de 10 eV à 100 KeV en considérant le centre de gravité moléculaire d'un nucléotide contenant du désoxyribose, de l'acide phosphorique et une base (adénine, guanine, thymine ou cytosine). Ce travail fournit les libres parcours moyens élastiques et inélastiques de collisions d'électrons et de positons avec le squelette de l'ADN afin de mieux comprendre les effets biologiques des rayonnements ionisants. Nous discuterons dans ce travail l'influence de la teneur en eau sur notre résultat, sachant que ce dernier est le principal facteur déterminant la structure de l'acide désoxyribonucléique (ADN). Les collisions d'interactions positons et d'électrons dans les cellules vivantes sont efficacement simulées par les codes de Monte Carlo (MC), qui nécessitent d'énormes tables de données. La présente étude fournit des résultats détaillés sur les interactions élastiques entre particules chargées nécessaires à la MC. En effet, les sections efficaces élastiques et inélastiques des électrons et des positons, libres moyens élastiques et inélastiques, les distributions angulaires, énergie déposée et perte d'énergie sont calculées.

**Mots clés :** Sections efficaces élastiques des positons et des électrons, libre parcours moyen élastique et inélastique, libre parcours moyen de transport, distribution angulaire pour la collision élastique pour un nucléotide d'ADN, simulations de Monte Carlo.

## Abstract

This work focuses on the calculation of total electron and positron scattering cross sections with larger polyatomic molecules such as DNA nucleotides due to the fact that there are difficulties of measuring or calculating them reliably. Therefore, to calculate the total elastic cross sections, we have applied the screen corrected additivity rule (SCAR-Macro) from 10 eV to 100 KeV by considering molecular center of gravity on a nucleotide containing deoxyribose, phosphoric acid and a base (adenine, guanine, thymine or cytosine). This work provides elastic mean free paths of electron and positron collisions with the DNA backbone in order to develop a better understanding of the biological effects of ionizing radiations. We will discuss in this work the influence of water content on our result knowing that the latter is the major factor determining the structure of deoxyribonucleic acid (DNA). Positron and electron interaction collisions in living cells are efficiently simulated by Monte Carlo (MC) codes where huge data tables are needed. Present study provides detailed results of charged particles elastic interactions needed in MC on DNA nucleobases. Indeed, the elastic and inelastic cross sections of electrons and positons, elastic and inelastic mean free paths, angular distributions, energy deposited and energy loss are calculated.

**Keywords:** Positron and electron elastic cross section, interaction collision, elastic and inelastic mean free path, transport mean free path, angular distribution for elastic collision in DNA nucleotide, cross section for Monte Carlo simulations.