
Thèse 2022-2025

SIMULATIONS DYNAMIQUES DE PHOTOCHEMIE ET ATTOCHEMIE

DESCRIPTION : Thèse en chimie théorique : 3 ans à partir d'Octobre 2022.
Contrat doctoral financé par l'EUR LUMOMAT.

LIEU : Équipe **ModES** (Modélisation et Spectroscopie)
Laboratoire CEISAM, UMR 6230, Nantes Université, CNRS
<https://ceisam.univ-nantes.fr>

CONTACTS : Morgane Vacher morgane.vacher@univ-nantes.fr
Denis Jacquemin denis.jacquemin@univ-nantes.fr

CONTEXTE

Un processus à la fois fondamental et répandu en chimie est l'absorption de lumière pour exciter les électrons des molécules et potentiellement induire une réaction chimique. Après excitation d'un état électronique excité, la distribution des électrons et donc la réactivité de la molécule diffèrent considérablement de celles de l'état fondamental. Grâce à ce processus conceptuellement simple mais complexe, la photochimie a considérablement élargi le spectre de réactions possibles, par rapport à la chimie thermique. Les applications des procédés photo-induits couvrent presque tous les domaines allant de la médecine à l'informatique en passant par la conversion d'énergie. Cependant, l'utilisation pratique des procédés photo-induits est limitée par l'efficacité quantique du procédé recherché, ce dernier étant presque toujours en concurrence avec d'autres procédés. Un défi pour les chimistes aujourd'hui est donc de concevoir des systèmes moléculaires et des méthodes de contrôle optique plus efficaces pour chaque application souhaitée. Dans ce contexte, il est nécessaire de s'appuyer sur une connaissance approfondie de la photochimie du système d'intérêt. Des études théoriques complémentaires aux mesures expérimentales sont souvent nécessaires.

PROGRAMME DE RECHERCHE

L'objectif de cette thèse est d'étudier les processus photo-induits dans des molécules organiques à l'aide d'approches théoriques pour apprendre à contrôler leur photoréactivité de manière plus efficace. Le premier objectif est d'acquérir des connaissances approfondies sur les processus photochimiques. Pour faire le lien avec l'expérience, nous aurons recours à deux outils : le marquage isotopique et la spectroscopie aux rayons X. En utilisant ces outils en combinaison avec des simulations de dynamique moléculaire ab initio non adiabatique, nous étudierons la photochimie du cation de l'éthylène et du spyropyrane. Notre deuxième objectif est d'impacter la photo-réactivité à l'aide d'impulsions attosecondes. En raison du principe d'incertitude temps-énergie, les impulsions de durée extrêmement courte ont une grande largeur spectrale, potentiellement plus grande que la différence d'énergie entre les états électroniques excités. De telles impulsions attosecondes peuvent donc peupler plusieurs états électroniques excités de manière simultanée et cohérente ; c'est ce qu'on appelle un "paquet d'ondes électroniques". En raison des phénomènes d'interférence entre les états peuplés, la distribution électronique du paquet d'ondes n'est pas la simple moyenne des distributions électroniques des états individuels : un paquet d'ondes électronique cohérent a une nouvelle distribution électronique et peut donc être considéré comme un nouveau type d'état électronique initial. Le concept clé est d'induire une réaction chimique avec un paquet d'ondes électroniques et ainsi de contrôler le résultat d'une réaction photochimique en manipulant directement les particules qui forment les liaisons chimiques, c'est-à-dire, les électrons. Cette thèse inclura des interactions directes avec des collaborateurs expérimentaux basés à l'Institut Lumière Matière (Lyon, France) travaillant sur les mêmes réactions photochimiques.

PROFIL DU OU DE LA CANDIDAT(E)

Le ou la candidat(e) doit être titulaire d'un Master en chimie, chimie-physique, chimie théorique ou physique, ou équivalent obtenu en 2021 ou en 2022 et doit avoir une solide formation en chimie physique et théorique. Une expérience en calculs moléculaires ab initio ainsi que des compétences en programmation (Fortran, Python...) sont des atouts.