

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES HDR

NANTES UNIVERSITE

Spécialité : Chimie Théorique

Par

Morgane VACHER

**Modélisation des propriétés dynamiques de processus photo-
induits de molécules**

Travaux présentés et soutenus à Nantes, le 21/10/2024

Unité de recherche : CEISAM, UMR 6230

Rapporteurs avant soutenance :

Valérie BRENNER

Directrice de recherche, CEA

Basile CURCHOD

Professeur, University of Bristol

Jean-Christophe TREMBLAY

Professeur, Université de Lorraine

Composition du Jury :

Président : Denis JACQUEMIN

Professeur, Nantes Université

Examinatrice : Eleonora LUPPI

Maître de Conférences, Sorbonne Université

Titre : Modélisation des propriétés dynamiques de processus photo-induits de molécules

Mots clés : photochimie, dynamique non-adiabatique, attoscience

Résumé : La photoexcitation de molécules est un phénomène fondamental et répandu en chimie et physique. Suite à l'absorption de la lumière et à la promotion vers un état électronique excité, la distribution des électrons et donc la réactivité de la molécule peuvent différer considérablement de celles de l'état fondamental. Une stratégie dynamique, qui simule l'évolution du paquet d'ondes au cours du temps, peut fournir une image complète des états électroniques et des structures nucléaires visités par le système après une excitation lumineuse. Mes activités de recherche s'inscrivent dans ce contexte général des dynamiques électroniques et nucléaires induites après l'absorption de lumière par des molécules. Depuis le début de ma carrière, j'ai simulé les dynamiques électroniques et nucléaires dans le contexte d'interactions entre lumière et molécules, avec de multiples angles de vue : science attoseconde,

(dé)cohérence électronique, chimiexcitation, photochimie, dynamique non-adiabatique, machine learning, couplage spin-orbite, spectroscopie aux rayons X. Les réactions photochimiques et leurs applications sont intrinsèquement limitées par le mouvement nucléaire sur une surface d'énergie potentielle unique à un moment donné. L'attochimie propose de lever ce verrou en induisant une réaction photochimique via un paquet d'ondes électroniques excité par une impulsion attoseconde. Ce domaine novateur a le potentiel d'élargir considérablement le champ des réactions chimiques possibles et d'améliorer significativement leur rendement et sélectivité. Le défi est cependant de contrôler les réactions par le biais de paquets d'ondes électroniques avant qu'une décohérence électronique significative ne se produise.

Title: Modeling the dynamical properties of photo-induced processes in molecules

Keywords : photochemistry, non-adiabatic dynamics, attoscience

Abstract: The photoexcitation of molecules is a fundamental and widespread phenomenon in chemistry and physics. Following absorption of light and promotion to an excited electronic state, the electron distribution and therefore the reactivity of the molecule can differ considerably from those in the ground state. A dynamical strategy, which simulates the evolution of the wavepacket over time, can provide a comprehensive picture of the electronic states and nuclear structures visited by the system after light excitation. My research activities fall within this general context of electronic and nuclear dynamics induced after light absorption in molecules. Since the beginning of my career, I have simulated electronic and nuclear dynamics in the context of interactions between light and molecules, from multiple angles: attosecond

science, electronic (de)coherence mechanisms, chimiexcitation, photochemistry, non-adiabatic dynamics, machine learning, spin-orbit coupling, X-ray spectroscopy. Photochemical reactions and their applications are intrinsically limited by nuclear motion on a single potential energy surface at a given time. Attochemistry proposes to overcome this limitation by inducing a photochemical reaction via an electron wavepacket excited by an attosecond pulse. This innovative field has the potential to considerably broaden the scope of possible chemical reactions and significantly improve their yield and selectivity. The challenge, however, is to control reactions via electron wavepackets before significant electron decoherence occurs.