

DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **05 septembre 2025**

Nom de famille et prénom de l'auteur. e : **Monsieur Quentin PESSEMESSE**

Titre de la thèse : une vision mécanistique des équilibres dynamiques dans les systèmes catalytiques polymétalliques: de la surface à l'agrégat

Résumé



Dans cette thèse, des méthodes de modélisation de chimie quantique sont utilisées pour étudier les mécanismes de réaction qui impliquent des structures polymétalliques. Ces structures sont très dynamiques, ce qui signifie qu'elles existent dans des équilibres complexes entre un grand nombre de structures différentes. Un échantillonnage minutieux de la surface d'énergie libre de ces systèmes est nécessaire pour parvenir à une compréhension des mécanismes. La relation alliage-activité des nanoparticules bimétalliques de métaux du groupe 10 alliés au gallium (~30 atomes) est d'abord explorée à l'aide d'une méthodologie d'échantillonnage Blue Moon. Les descripteurs dynamiques extraits de ces simulations sont liés à la réactivité de ces catalyseurs hétérogènes importants. La structure dynamique des carbures de métaux de transition et de métaux du groupe principal est ensuite explorée à l'aide d'une approche par métadynamique, montrant que le carbone diffuse facilement des conditions de couplage deshydrogénatif du méthane. Cela a des implications importantes pour la structure de ces catalyseurs. Enfin, une approche rationnelle de la réactivité des clusters d'hydrure de cuivre démontre que, contrairement aux mécanismes classiques, des équilibres dynamiques complexes entre clusters de tailles différentes sont responsables de leur réactivité de transfert d'hydrure. Les effets des ligands sur la stabilité de ces clusters sont ensuite explorés pour comprendre comment lier leur réactivité aux descripteurs spectroscopiques. Cette thèse souligne l'importance des études détaillées des équilibres dynamiques pour comprendre la réactivité des catalyseurs polymétalliques.

Mots-clés : Dynamique Moléculaire, Chimie Quantique, Mécanisme, Organométallique, Catalyse