

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

Date de la soutenance : **18 décembre 2023**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Monsieur PAYARD Pierre-Adrien**

Titre des travaux : « *Chimie-physique organique contemporaine : Outils innovants pour la modélisation des systèmes catalytiques complexes.* »



Résumé

Ce manuscrit décrit l'optimisation de nouveaux outils pour l'étude des mécanismes réactionnels et leurs applications à l'étude de quelques systèmes catalytiques complexes. L'optimisation de protocoles de calcul spécialement adaptés pour la RMN de complexes organométalliques est d'abord décrite. Ensuite, les stratégies développées par l'équipe pour caractériser et prédire l'activité des systèmes catalytiques « complexes », c'est-à-dire fortement influencés par leur environnement (solvant, surface, adjuvants) et dynamiques, est décrite.

L'apport des développements techniques susmentionnés est ensuite illustré à travers l'étude des mécanismes des étapes élémentaires fondamentales des réactions de couplages croisés catalysées par le nickel et le palladium. En particulier, les effets de l'environnement (sel, base, solvant) sur les étapes d'addition oxydante et de transmetalation sont évoqués. Dans un second temps, les avancées obtenues dans la compréhension des structures et de la réactivité de nanoparticules supportées, en particulier les effets d'alliages et d'interface avec la surface support, sont décrites.

Finalement, une description des projets de recherche en cours et à venir est proposée en deuxième partie, ainsi qu'un résumé du parcours scientifique.

This manuscript first describes the optimization of new tools for studying reaction mechanisms and their applications in the investigation of some complex catalytic systems.

The optimization of computational protocols tailored for the NMR of organometallic complexes is first outlined. Subsequently, the strategy developed by the group to model and characterize "complex" catalytic systems, i.e. strongly influenced by their environment (solvent, surface, additives), and dynamic systems is described.

The input of the aforementioned technical developments is then illustrated through the study of the mechanisms of some fundamental elementary steps in nickel and palladium-catalyzed cross-coupling reactions. In particular, the effects of the environment (salt, base, solvent) on oxidative addition and transmetalation steps are discussed. Furthermore, advances in understanding the structures and reactivity of supported nanoparticles, particularly the effects of alloys and interface interactions with the support surface, are illustrated.

Finally, a description of ongoing and future research projects is provided in the second part, along with a summary of the scientific journey.