

## Quelle structure électronique pour les molécules radicalaires ?

**Résumé:** La captation ou la perte d'un électron par une molécule au cours d'une transformation chimique est un processus extrêmement courant que l'on retrouve non seulement en électrochimie et dans les réactions d'oxydo-réduction, mais aussi par exemple dans les procédés de chimie verte s'appuyant sur la photocatalyse ou l'électrocatalyse. Ces processus passent le plus souvent par une espèce radicalaire qui va être l'intermédiaire clé pour comprendre la réactivité en jeu. Cependant, les méthodes DFT, outils de modélisation les plus utilisés actuellement en chimie quantique, si elles permettent de décrire convenablement la structure électronique de la plupart des molécules, buttent sur de nombreuses espèces radicalaires. En particulier, l'erreur de self-interaction en DFT conduit à une mauvaise description du site de piégeage d'un électron sur une molécule,[1] ce qui complique grandement la modélisation des réactions chimiques impliquant des radicaux.

Plusieurs approches peuvent être envisagées pour dépasser cette limite des méthodes DFT. Des méthodes très précises, toujours en développement au laboratoire,[2] si elles permettent d'obtenir des données de référence, sont cependant limitées aux molécules de petite taille. Une seconde approche, objet de ce stage, est le développement d'un outil basé sur l'apprentissage machine. Pour cela, les données déjà existantes au laboratoire seront complétées, en utilisant le logiciel de génération de molécules récemment développé,[3] pour disposer d'une base de données de structure électronique de molécules radicalaires. L'étudiant(e) sera en charge de la mise en place de cette base de données et du développement de l'outil d'apprentissage automatique à partir de ces données.

[1] (a) M. Katari, D. Carmichael, D. Jacquemin, G. Frison *Inorg. Chem.* **2019**, *58*, 7169-7179 ;  
(b) V. Riffet, D. Jacquemin, E. Cauët, G. Frison *J. Chem. Theory Comput.* **2014**, *10*, 3308-3318.

[2] (a) E. Giner, C. Angeli *J. Chem. Phys.* **2016**, *144*, 104104 ; (b) Y. Yao, E. Giner, J.H. Li, J. Toulouse, C.J. Umrigar *J. Chem. Phys.* **2020**, *153*, 124117.

[3] J. Leguy, T. Cauchy, M. Glavatskikh, B. Duval, B. Da Mota *J. Cheminform.* **2020**, *12*, 55.

**Profil recherché :** L'étudiant(e) de niveau master ou équivalent devra être dynamique et disposer de compétences solides en informatique et intelligence artificielle. Des connaissances minimales en chimie seront appréciées.

**Contact:** Gilles Frison, Laboratoire de Chimie Théorique, Sorbonne Université, 4 place Jussieu, Paris. [gilles.frison@sorbonne-universite.fr](mailto:gilles.frison@sorbonne-universite.fr)