DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **03 novembre 2022**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Monsieur COMTE Denis**

Titre de la thèse : *« Petits agrégats moléculaires d'intérêt astrophysique »*

Résumé

Les observations de molécules complexes dans des environnements très différents de l'espace, depuis les régions de formation d'étoiles aux comètes, interrogent quant aux mécanismes qui ont conduit à leur formation. L'utilisation combinée du dispositif d'irradiation d'agrégats moléculaires de Lyon et de plusieurs méthodes théoriques permet l'étude statistique des mécanismes de relaxation de dimères moléculaires protonés suite à une excitation sur un temps court (femtoseconde) d'une des deux molécules de l'agrégat. Lors d'une collision unique à haute vitesse avec un atome, l'agrégat est placé dans une situation très éloignée de l'équilibre thermique et plusieurs mécanismes de relaxation sont observés. Les mesures des rapports de branchement et celles de la distribution d'énergie cinétique libérée pour un canal de relaxation donné permettent une étude quantitative de la compétition entre l'évaporation d'une molécule, la fragmentation d'une des deux molécules, et la formation d'une molécule plus complexe. Les résultats sont comparés pour différents dimères moléculaires protonés : le dimère de pyridine, le dimère de méthanol, le dimère de glycine et un dimère mixte composé d'un dipeptide de glycine et d'une molécule de glycine. A la différence du dimère de pyridine, les résultats obtenus avec le dimère de méthanol mettent en évidence la réaction unimoléculaire d'élimination de l'eau par l'agrégat parent. Les caractéristiques énergétiques de l'état fondamental du dimère, des produits de réaction, et des états de transitions ont été calculées avec la théorie de la fonctionnelle de la densité et utilisées pour comparer quantitativement les résultats expérimentaux à ceux de la théorie de l'espace de phase. Cela montre, d'une part, que les mesures expérimentales contraignent quantitativement les modèles théoriques et, d'autre part, que les résultats expérimentaux ne peuvent être interprétés quantitativement avec l'hypothèse d'une redistribution complète de l'énergie interne sur tous les modes de l'agrégat parent avant la dissociation. Cela souligne l'importance du temps de transfert d'énergie entre les molécules dans la compétition entre les différents canaux de relaxation. Dans le cas de la glycine, la formation du dipeptide et l'allongement de la chaîne peptidique ont été mis en évidence dans une réaction unimoléculaire. La mesure de la distribution de vitesse de la molécule d'eau éliminée par la réaction de polymérisation montre la présence de différents chemins de réaction pour lesquels le rôle du proton a été exploré par des calculs de théorie de la fonctionnelle de la densité. L'ensemble des résultats mettent en évidence la réaction unimoléculaire comme une nouvelle voie abiotique pour la formation de molécules organiques en phase gazeuse, soulignant l'intérêt des dimères moléculaires protonés pour la formation de molécules complexes en conditions astrophysiques.