

Pablo ROSEIRO

3518 Avenue des Erables
Montréal, Québec H2K 3V7, Canada

Montréal, le 19 mars 2024

Objet : Candidature bourse de l'Association Française de Magnétisme Moléculaire

Madame, Monsieur,

Par cette lettre, je candidate au prix de thèse de l'Association Française de Magnétisme Moléculaire pour ma thèse intitulée "Le rôle des environnements à couche ouverte dans la spectroscopie d'architectures de spin complexes : études fonction d'onde", défendue le 8 septembre 2023.

Lors de cette thèse, j'ai étudié l'influence de l'environnement sur des architectures de spin complexes à travers un Hamiltonien modèle et deux études *ab initio*. Ces trois études se sont focalisées sur un nouveau phénomène que nous avons mis en évidence : la *spinmérie*. Nous nous sommes concentrés sur des architectures basées sur un ion métallique à transition de spin coordonné à plusieurs ligands à couche ouverte. En particulier, nous avons étudié la spectroscopie de composés diverdazyle de fer et de cobalt synthétisés et caractérisés expérimentalement par d'autres groupes.

Ce type de composé est susceptible de générer des états étant une superposition d'états de spin locaux. Ce comportement est attendu pour des centres métalliques où le couplage spin-orbite n'est pas négligeable. En l'absence de couplage spin-orbite, il est généralement impossible d'observer un mélange d'états de spin locaux différents (par exemple, un mélange entre un métal singulet et un métal triplet). Néanmoins, l'ajout de ligands radicalaires apporte des couches ouvertes supplémentaires, et donc des spins locaux supplémentaires. Le couplage des spins locaux de ces ligands et de ce métal à transition de spin génère ainsi des états de spin total.

Si deux états, résultant de couplages de spin différents mais portant le même spin total, sont suffisamment proches en énergie, il est possible que ces deux états se mélangent. Ce mélange permet une superposition locale de spins sur le métal et/ou sur les ligands, même en l'absence de couplage spin-orbite. Nous avons appelé ce phénomène la *spinmérie*. Il diffère du couplage spin-orbite en ce qu'il maintient le spin total à un bon nombre quantique. Son émergence, anticipée par l'algèbre de spin, ouvre de nouvelles considérations sur le champ du ligand et les comportements magnétiques. La *spinmérie* apparaît à l'interface entre deux concepts propres au magnétisme moléculaire : les modèles de spin et le couplage de spins. Nos études *ab initio* ont mis en évidence son émergence à travers la spectroscopie de deux complexes, et notre Hamiltonien modèle a souligné l'importance des interactions d'échange direct dans le contrôle de la *spinmérie*.

D'un point de vue appliqué, ce phénomène présente déjà des applications potentielles dans la conception de nouveaux spin-qubits moléculaires pour l'informatique quantique. Poursuivre dans cette direction nécessite beaucoup d'études supplémentaires, autant théoriques qu'expérimentales. Le LCQS a récemment entamé des collaborations avec des groupes expérimentaux afin d'essayer de mesurer et de contrôler expérimentalement la *spinmérie* (Mössbauer, RAMAN, effet LIESST...).

D'un point de vue fondamental, ce phénomène bouleverse le concept de spin gelés dans les composés de coordination, en particulier dans les diagrammes de Tanabé-Sugano où un "champ de ligand couche ouverte" semble se considérer. En outre, une meilleure compréhension de ce phénomène pourrait apporter une réponse à certaines données magnétiques non rationalisables dans la littérature.

De mon point de vue, la *spinmérie* est un phénomène passionnant qui apporte une nouvelle perspective aux composés magnétiques, émergeant de la combinaison entre des ligands radicalaires et un métal à transition de spin.

Pablo ROSEIRO

