«NOUVEAUX PROCÉDÉS DE RÉDUCTION DU CO2 EN CONSOMMABLES CHIMIQUES» PAR SOLÈNE SAVOUREY

Présentée par : Solène Savourey Discipline : chimie Laboratoire : Nanosciences et Innovation pour les Matériaux, la Biomédecine et l'Energie

Résumé :
L'utilisation des ressources fossiles a permis l'industrialisation de notre société, cependant, après 200 ans de consommation effrénée, notre dépendance nous oblige à faire face à plusieurs défis. 1) Capter et stocker/valoriser le CO2 pour limiter le relargage massif de CO2 dans l'atmosphère 2) Trouver une nouvelle source de carbone pour la synthèse de produits chimiques afin de réduire la pression mise sur les réserves de ressources fossiles 3) Développer des nouveaux moyens de stockage de l'énergie pour pouvoir se reposer sur les énergies renouvelables intermittentes. Le CO2 étant une source de carbone abondante et peu chère il peut être utilisé comme brique moléculaire pour la synthèse de produits chimiques et être ainsi valorisé. De plus il peut également être utilisé notamment via le couple CO2/MeOH pour le stockage de l'énergie.
Cependant peu de procédés utilisant le CO2 sont actuellement déployés à l'échelle industrielle car la barrière cinétique associée à la réduction du CO2 entraîne de faibles rendements faradiques et les produits accessibles directement à partir de celui-ci sont peu nombreux.
En s'inspirant de la Nature nous avons voulu, au cours de cette thèse, développer des réactions à partir de molécules facilement et directement accessibles à partir du CO2 afin de s'affranchir des limitations liés à ce dernier. Nous avons donc développé plusieurs réactions catalytiques à partir de l'acide formique et du monoxyde de carbone qui sont les principaux dérivés du CO2. Nous avons notamment étudié la réduction du CO2 en méthanol en utilisant l'acide formique comme réducteur et nous avons également

appliqué cette réactivité pour la méthylation des amines. Enfin nous avons également utilisé le CO comme relais pour la synthèse de liaison C–C à partir du CO2. Cette stratégie a été prouvée pour la synthèse d'alkylamines avec de longues chaînes alkyl à partir de CO et d'un réducteur.

Abstract :
Fossil resources have been extensively used for the past 200 years allowing a fast paced industrialization in our society. However we are facing today several challenges to preserve our way of life 1) CO2 should be captured and stored/used to avoid large quantity of CO2 to be released in the atmosphere 2) Bypass the use of fossil resource by using another source of carbon for the synthesis of chemicals 3) Develop efficient energy storage technologies to rely more on renewable intermittent energy sources. As CO2 is a cheap widely available resource, this waste could be used as well as a source of carbon for the synthesis of value added chemicals but also as a way to store energy in the tandem CO2/MeOH. However as it is an inert gas few processes using CO2 have been industrialized so far.
Inspired by Nature's way to use CO2 we decided to design new reactions from carbon monoxide and formic acid, two derivatives easily available from CO2 that could enable us to overcome the limitation we face with CO2. We therefore studied the transformation of CO2 to methanol using formic acid as an intermediate and a reductant and we subsequently used this reaction to perform the methylation of aromatic amines using formic acid. Finally we developed a new reaction of amines homologation with carbon monoxide allowing the formation of several C–C bonds.

INFORMATIONS COMPLÉMENTAIRES

Jean-Luc RENAUD, Professeur des Universités, à l'Université de Caen/Laboratoire de Chimie Moléculaire et Thio-organique (LCMT) - UMR 6507 - Caen - Rapporteur
Matthieu SOLLOGOUB, Professeur des Universités, à l'Université Pierre et Marie Curie /Institut Parisien de Chimie Moléculaire - Paris - Rapporteur
Hervé DESVAUX, Chercheur, au CEA/IRAMIS/Nanosciences et Innovation pour les Matériaux, la Biomédecine et l'Energie (NIMBE) - UMR 3685 - Gif/Yvette - Directeur de thèse
Thibault CANTAT, Chercheur, au CEA/IRAMIS/Nanosciences et Innovation pour les Matériaux, la Biomédecine et l'Energie (NIMBE) - UMR 3685 - Gif/Yvette - Co-Directeur de thèse
Sylvie CHARDON-NOBLAT, Directeur de Recherche CNRS, à l'Université Joseph Fourier de Grenoble/Département de Chimie Moléculaire - UMR 5250 Grenoble -

Examinateur

Emmanuelle SCHULZ, Directeur de Recherche CNRS, à l'Université Paris Sud 11 /Institut de Chimie Moléculaire et des Matériaux d'Orsay (ICMMO) - UMR 8182 - Orsay - Examinateur

Contact : DREDVal Service FED : theses@uvsq.fr