

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

Date de la soutenance : **20 février 2024**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Monsieur RAYNAUD Jean**

Titre des travaux : « *Utiliser la catalyse pour construire, déconstruire et reconstruire des polymères - l'histoire de 2 éléments : Fe & B* »

Résumé



Ce récit de recherche est organisé autour de trois thèmes principaux : 1) catalyse pour la synthèse de polymères (construction) – 2) polymères dynamiques pour le stockage d'énergie (faire & défaire) – 3) catalyse et méthodologie de dépolymérisation chimique (recyclage).

1) Pour la catalyse appliquée à la polymérisation, des **catalyseurs à base de Fe** ont été développés pour la polymérisation de monomères apolaires omniprésents dans les applications à hauts tonnages (éthylène, α -oléfines, 1,3-diènes), mais également pour l'hydrosilylation dans le cadre des silicones. En plus de ces catalyseurs homogènes à base de fer, des versions inorganiques hétérogènes de catalyseurs au Fe ont également été conçues pour la polymérisation de l'éthylène notamment. Nous profitons de la réactivité ajustable au niveau du centre Fe, en fonction de l'état d'oxydation, pour l'activation du CO₂ dans le contexte de la synthèse de monomères et plus récemment de la fonctionnalisation post-polymérisation par extrusion réactive supercritique. Au-delà du Fer, nous travaillons également au développement de nouveaux catalyseurs pour l'oligomérisation/polymérisation (à base de Ti-, Ni-, Co-, Mn- & Cr), mais aussi pour la synthèse de polyuréthanes. De nombreuses applications industrielles, partenariats associés et brevets sont nés de ces recherches. Des articles, en fonction de la propriété intellectuelle, sont en cours de publication.

2) L'incorporation d'éléments du groupe principal dans les polymères permet la création de liaisons dynamiques qui peuvent être exploitées pour des applications de stockage d'énergie. Si le **bore** est sélectionné, des vitrimères de boronates peuvent être obtenus facilement, ou des polymères comportant des groupements boramine pouvant stocker et libérer du H₂. Si l'**azote** est sélectionné, des polymères hautement énergétiques basés sur des motifs tétrazènes peuvent être obtenus, ou des polymères contenant du (di)azobenzène peuvent récolter la lumière et la transformer en chaleur utilisable par isomérisation. Ces polymères hybrides dynamiques organiques/inorganiques constituent également un axe fondamental de mes recherches donnant lieu à des publications à fort impact.

3) Enfin et plus récemment, nous nous sommes intéressés au **recyclage chimique des polymères** : soit des polymères courant de fort tonnage comme les polyoléfines, mais aussi des polymères inorganiques comme les silicones ou des polymères de haute performance comme les polyaryléthers. C'est un sujet qui, à mon avis, devrait être l'une des pierres angulaires des futures recherches sur la chimie des polymères. Considérer les déchets polymères comme une nouvelle ressource/matière première pour l'industrie et l'économie circulaires fait partie d'une solution globale visant à minimiser le recours aux combustibles fossiles, aux ressources minières, et est complémentaire aux stratégies biosourcées durables.

Globalement, mes recherches, en collaboration avec de nombreux collègues de mon laboratoire mais aussi avec des laboratoires adjacents sur le campus, et des partenariats internationaux et industriels, se répartissent presque

à parts égales entre recherche appliquée avec des financements industriels et recherche fondamentale avec des financements académiques tels que des bourses ANR. La répartition entre brevets et publications reflète cette répartition. Les perspectives de ces recherches sont clairement orientées vers le développement de nouvelles chimies et catalyses pour la dépolymérisation chimique et le recyclage/upcyclage ainsi que l'éco-conception de polymères par catalyse durable.