

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

Date de la soutenance : **19 février 2025**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Monsieur MERAD Jérémy**

Titre des travaux : « *Nouvelles approches synthétiques à la confluence de la photocatalyse et de l'organocatalyse* »



Résumé

Mes travaux de recherches se concentrent sur le développement de méthodes catalytiques en synthèse organique et s'articulent autour de deux thématiques principales : l'organocatalyse et la photocatalyse. Depuis mon recrutement en tant que Maître de Conférences au sein de l'Institut de Chimie et Biochimie Moléculaires et Supramoléculaires (ICBMS – UMR 5246) en 2018, j'ai initié des projets visant à combiner ces deux types de catalyse afin de concevoir des transformations inédites et de nouveaux modes d'activation en catalyse moléculaire. En appui du développement méthodologique, ces travaux incluent une part importante d'études mécanistiques permettant une compréhension fine des processus moléculaires mis en jeu dans ces transformations. L'utilisation d'entités chimique instables et hautement énergétiques – les radicaux cations – comme organocatalyseurs, constitue l'originalité de ces travaux de recherche.

Deux projets principaux sont actuellement activement développés sur ce thème. D'une part, nous tentons d'utiliser les radicaux cations comme organocatalyseurs en catalyse radicalaire covalente, un type de catalyse peu explorée mais très efficace pour augmenter rapidement la complexité moléculaire. Ces travaux ont déjà permis d'identifier une toute nouvelle famille d'organocatalyseurs radicalaires centrés sur le soufre et pouvant être produits simplement par catalyse photorédox ou irradiation directe d'un précurseur dicationique conçu à cet effet.

D'autre part, nous explorons le potentiel catalytique des radicaux cations pour l'alkylation C-H de substrats abondant tels que les alcools et les diols. Il a ainsi été démontré que le CO₂ peut être employé comme groupement directeur transitoire pour effectuer la monoalkylation C-H de diols acycliques avec un haut degré de chimiosélectivité. Des cascades radicalaires inédites ont aussi été conçues sur la base de cette découverte.

Ces derniers résultats ont ouvert la voie à une thématique émergente visant à combiner la catalyse photorédox et l'organocatalyse pour la remobilisation du CO₂ et son incorporation dans la structure de molécules d'intérêt. Ce projet sera décrit dans les grandes lignes dans la dernière partie de ce manuscrit.

Mots-clés : synthèse organique ; organocatalyse ; photocatalyse ; radicaux cations ; CO₂