

**Discipline : Optique et Lasers,
Physico-Chimie, Atmosphère**

COTUTELLE

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : Ivan VYALOV

N° d'ordre : 40686

JURY:

Directeur de Thèse : Idrissi A., Kiselev M.G.

Rapporteurs : Fedorov M.V., Soetens J.C.

Membres : Buntinx G., Jedlovszky P., Affouard F.

TITRE DE LA THESE :

Simulation par Dynamique Moléculaire de la Dissolution de la Cellulose dans les Fluides Supercritiques et les Melanges Cosolvants/Fluides Supercritiques.

RESUME:

La cellulose est le polymère naturel le plus abondant. Cependant son utilisation est limitée par sa faible dissolution due aux liaisons hydrogènes intra et inter moléculaires. Jusqu'à aujourd'hui, des solvants toxiques sont utilisés dans les procédés de dissolution de la cellulose. Par conséquent, de nouveaux solvants pour la dissolution de la cellulose ont été intensivement étudiés comme solutions de rechange de ces procédés polluants. Une des solutions est d'utiliser la technologie des fluides supercritiques. Malheureusement, la cellulose est insoluble dans le CO₂ dans les conditions supercritiques et il est donc important d'étudier un mélange binaire d'un co-solvant (organique ou liquide ionique) et le CO₂ pour le développement d'un nouveau procédé. Cependant, la méconnaissance du point fondamental des paramètres contrôlant le processus de dissolution dans ces fluides ralentit le développement de l'utilisation de cet outil propre et peu coûteux en énergie.

Nous avons donc utilisé la simulation de dynamique moléculaire pour caractériser le processus de dissolution de la cellulose dans ces fluides. Pour cela, nous nous sommes intéressés aux fluides supercritiques purs, puis aux mélanges des fluides supercritiques avec un co-solvant. La méthode d'intégration thermodynamique a été utilisée pour caractériser la thermodynamique des mélanges (énergie libre, énergie interne et entropie) et pour valider les modèles de potentiel intermoléculaire utilisés. Nous avons donc calculé l'énergie libre de solvatation du cellobiose (monomère de la cellulose) par la méthode de perturbation thermodynamique et analysé l'effet de la conformation sur le calcul de cette énergie en utilisant l'approche métadynamique.

Enfin nous avons analysé la dissolution de cinq polymorphes de la cellulose dans différents solvants et dans les mélanges CO₂ supercritique/acétone et éthanol. Nos résultats montrent que ces mélanges ne dissolvent pas la cellulose, cependant des changements structuraux de ces polymorphes ont été observés.

Les résultats de simulation de dynamique moléculaire suggèrent que l'ammoniac dans les conditions supercritiques dissout la cellulose.

**Soutenance le 09/12/2011 à Heures :10h
Lieu :Amphi 13 RDC du Bât Sup**