

Ecole Doctorale: Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement

Laboratoire: Chimie Moléculaire et Formulation (EA CMF 4478)

Discipline: Molécules et Matière Condensée

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : Mickaël AGACH

N° d'ordre : 40963

**JURY :**

Directeur de Thèse : Pr. Véronique NARDELLO-RATAJ

Rapporteurs : Pr. Dr. André LASCHEWSKY, Pr. Luc AVÉROUS

Membres : Pr. Isabelle PEZRON, Dr. Frédéric LEISING, Dr. Siniša MARINKOVIĆ

**TITRE DE LA THÈSE :**

Synthèse et étude des propriétés structurales, physico-chimiques et fonctionnelles d'oligoesters tensioactifs branchés à base d'acide succinique bio-sourcé et de glycérol

**RÉSUMÉ :**

L'acide succinique est un diacide polyvalent utilisé dans de nombreuses applications (biopolymères, solvants, plastifiants, antigels, etc.) et répertorié en 2010 comme l'une des 10 principales molécules bio-sourcées pouvant servir de blocs de construction moléculaire. Dans ce contexte, nous avons envisagé la synthèse et l'étude de nouveaux oligoesters amphiphiles agro-sourcés et branchés à base d'acide succinique bio-sourcé, de glycérol, d'acides gras et d'autres synthons agro-sourcés pour des applications tensioactives dans des domaines variés (cosmétique, détergence, etc.) en remplacement des tensioactifs pétro-sourcés. La stratégie mise en place s'inscrit dans une démarche d'éco-conception visant à obtenir des propriétés organoleptiques acceptables ainsi que des propriétés physico-chimiques et fonctionnelles (moussabilité, stabilité des mousses, mouillabilité, solubilisation micellaire) comparables à celles de composés de référence (PEG-7 glycéryl cocoate, huile de ricin hydrogénée PEG-40 et octyl-décyl polyglucoside). Les voies de synthèse ont été choisies dans la perspective d'un possible dimensionnement industriel et dans le respect des principes de la chimie verte (synthons agro-sourcés, économie d'atomes, catalyse, etc.)

Dans un premier temps, l'impact de la succinylation sur les propriétés physico-chimiques et fonctionnelles de tensioactifs non-ioniques dérivés des alcools gras éthoxylés, du monolaurate de glycérol et des alkyl polyxylosides, a été étudié, montrant que cet impact dépend de la polarité initiale des tensioactifs et que leur biodégradabilité en est améliorée. Dans un deuxième temps, des oligomères hydrophiles de poly(glycérol-acide succinique), PGS, non-toxiques et biodégradables, ont été synthétisés sans solvant ni catalyseur et caractérisés dans le but de développer de nouvelles têtes polaires bio-sourcées de tensioactifs. Ces études ont montré que les rapports molaires glycérol/acide succinique affectent drastiquement les propriétés des oligoesters PGS. Des modèles mathématiques ont été développés à partir des données obtenues par RMN <sup>13</sup>C quantitative afin d'extraire des informations structurales telles que le degré de polymérisation moyen en nombre,  $\overline{DP}_n$ . Dans un troisième temps, des oligomères d'acyles poly(glycérol-acide succinique) ont également été préparés et étudiés. Il a ainsi été montré que les dérivés lauroyles forment des mousses abondantes et stables, présentent un large éventail de temps de mouillage (de 140 à plus de 500 s) et d'excellentes propriétés de solubilisation micellaire par comparaison aux composés étalons commerciaux et aux dérivés possédant des chaînes acyles plus courtes ou plus longues. Enfin, afin d'améliorer les propriétés physico-chimiques et fonctionnelles des lauroyles PGS obtenus par synthèses catalysées en augmentant l'homogénéité des mélanges réactionnels, des comonomères (acide lactique, éthylène glycol, propylène glycol, 1,3-propanediol et 1,4-butanediol) servant de solvants copolymérisables ont été utilisés. Les produits synthétisés en présence de comonomères ont tous montré de meilleures propriétés que les lauroyles PGS des synthèses catalysées. Dans le cadre d'une législation de plus en plus stricte, ce type de macromolécules biodégradables et bio-sourcées constitue une plate-forme prometteuse ouvrant la voie à d'autres modifications chimiques dans le but de cibler d'autres applications potentielles, en particulier en tant que substitués pour les esters de polyglycérol gras, co-surfactifs dans les produits formulés, agents moussants ou solubilisants.

**Soutenance le 29/11/2012 à 11 Heures**

**Lieu : Bâtiment des Thèses**