

**DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT**

**(Arrêté du 25 mai 2016)**

Date de la soutenance : **7 décembre 2018**

Nom de famille et prénom de l’auteur : **Raphaël SILVA COSTA**

Titre de la thèse : « Nouvelles approches pour la synthèse de systèmes polyazotés de type HEDM / New approach toward the synthesis of polynitrogen-based compound classified as HEDM».



**Résumé**

Les recherches menées au cours de cette thèse ont pour but de converger vers la synthèse de molécules énergétiques, possédant un squelette polyazoté, destinées à la propulsion spatiale ou militaire. En effet, les systèmes propulsifs utilisés à l’heure actuelle reposent sur des technologies, certes fiables, mais souffrant de limites de performance voire d’incompatibilité quant à la réglementation européenne REACH. Il devient nécessaire, pour que les lanceurs européens conservent leur première position mondiale dans le domaine de la mise en orbite de satellites publics ou privés, de se doter de nouveaux propergols plus performants. C’est ainsi que nous avons orienté ce travail vers la synthèse de composés appartenant à la famille des « HEDM » (High Energetic Density Material), composés possédant en rupture technologique avec les solutions actuelles, et dont le développement est attendu à l’horizon 2050.

Dans le cadre de cette thèse, deux cibles d’intérêt ont été identifiés, ces cibles sont : l’anion pentazolate, molécule strictement azotée aromatique de formule N5-, et le cyclopentazane, molécule inédite à ce jour, de formule N5H5. Dans une première partie nous avons étudié la synthèse de la synthèse et l’étude de divers arylpentazoles, ainsi que des voies d’oxydation et de réduction de ces précurseurs menant à l’obtention de l’anion pentazolate Puis, dans un second temps nous nous sommes intéressés aux synthèses et aux études de stabilités de composés polyazotés de type triazane et azimine. Ces composés ont ensuite été utilisés à des réactions de cycloadditions [3+2] menant à la synthèse du cyclopentazane. Enfin, nous avons regardé les différents modes de complexation possible entre ces composés polyazotés et des complexes métalliques.

Mots clés

Propulsion spatiale, HEDM, Composés polyazotés, Arylpentazole, Anion Pentazolate, Cyclopentazane, Azimines, Oxydation, Cycloaddition, Electrochimie.

**Abstract**

The research carried during this PhD aims to synthesis new compounds with polynitrogen-backbone suitable for spacecraft or military propulsion. Indeed, the actual spacecraft uses a technology which is reliable, but with some limitation with their energetic efficiency and to satisfy the REACH regulation. It is necessary, for the Europeans launcher to stay at the first position in public or private satellites launch world wild, to find new and more efficient propellant. So, this work was focused on the synthesis of “HEDM” (High Energetic Density Material) compounds, which possess much higher propulsive features than the actual propellants. This could lead to a breakthrough in spacecraft propulsion in the next 30 years.

For this PhD work two compounds of interest were identified: the pentazolate anion, which is an all nitrogen aromatic compound with a formula of N5-, and the cyclopentazan, which is an original polynitrogen compound with a formula of N5H5. First, we focused our work on the synthesis of various arylpentazoles followed by oxidative or reductive ways which lead to the pentazolate anion. Secondly, we synthesised and the studied the stability of polynitrogen-based compound, triazanes and azimines. Those compounds were then used in trials of cycloadditions which will lead to the cyclopentazan. Finally, we studied various way of complexing our polynitrogen-compound with various metallic complexes.

Keywords

Space propulsion applications, HEDM, Polynitrogen compounds, Arylpentazole, Pentazolate anion, Cyclopentazan, Azimines, Oxidation, Cycloaddition, Electrochemistry.