



Université Claude Bernard



DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **22 octobre 2020**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Monsieur OUALI Madjid**

Titre de la thèse : « *Transformation catalytique en phase aqueuse de molécules issues de la biomasse* »

Résumé



La synthèse du 1,4-butanediol (BDO) ou du 1,5-pentanediol (1,5-PDO) à partir de ressources renouvelables, constitue un véritable défi pour une chimie durable. La transformation de molécules issues de la biomasse à travers la réaction d'hydrogénation de l'acide succinique (SUC) ou d'hydrogénolyse de l'alcool tétrahydrofurfurylique (THFA), est une des voies possibles pour l'obtention sélective de ces diols. Ces réactions sont réalisées à partir de solutions aqueuses (5% en masse) dans des conditions opératoires (120-180 °C ; 80-150 bar H₂) en présence d'un catalyseur hétérogène à base d'un métal noble (Pd, Pt, Rh) et d'un métal promoteur (Re, Mo) supportés sur deux oxydes métalliques (TiO₂ ou ZrO₂) commerciaux ou synthétisés par le procédé sol-gel non-hydrolytique (SGNH). A partir de SUC, des rendements en BDO de l'ordre de 90% ont été obtenus à 160 °C sous 150 bar H₂, en présence des catalyseurs ReO_x-Pd supportés sur ZrO₂ (commerciale ou SGNH) de phase monoclinique (M) et en présence des catalyseurs Pd supportés sur oxydes mixtes ReO_x-TiO₂ SGNH. Cependant, une forte lixivitation du Re (ca. 40-60%) est observée en milieu réactionnel sous atmosphère inerte. L'utilisation de la ZrO₂ SGNH de phase tétragonale (T) conduit à des catalyseurs beaucoup moins actifs. La phase T de ces supports est transformée en phase M au cours de la préparation du catalyseur en milieu aqueux. Cette phase est stabilisée par introduction dans le support de dopants (Y ou Mo). A partir du THFA, le meilleur rapport conversion (ca.60%)-sélectivité en 1,5-PDO (> 90%) est obtenu à 120 °C sous 80 bar H₂, en présence des catalyseurs ReO_x-Rh supportés sur (TiO₂ ou ZrO₂ (M)) commerciaux. Dans les deux réactions, des résultats prometteurs ont été obtenus en substituant le Re par du Mo dans les catalyseurs bimétalliques.

Mots clés : acide succinique, alcool tétrahydrofurfurylique, 1,4-butanediol, 1,5-pentanediol, hydrogénation, hydrogénolyse, sol-gel non-hydrolytique, catalyseurs hétérogènes.