

AVIS DE SOUTENANCE DE THÈSE

Yaidel TOLEDO GONZALEZ

CANDIDAT(E) au DOCTORAT CHIMIE,
à **L'UNIVERSITÉ DE PAU ET DES PAYS DE L'ADOUR**
SOUTIENDRA PUBLIQUEMENT sa THÈSE

le **07 décembre 2022 à 10h00**
à **L'UNIVERSITÉ DE PAU ET DES PAYS DE L'ADOUR**
Amphithéâtre IPREM

SUR LE SUJET SUIVANT :

Modélisation moléculaire pour l'étude des propriétés catalytiques de foldamères hélicoïdaux à base d'urée.

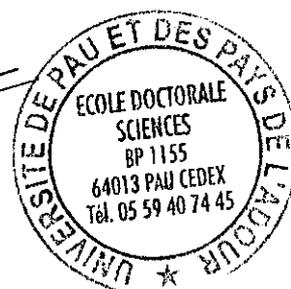
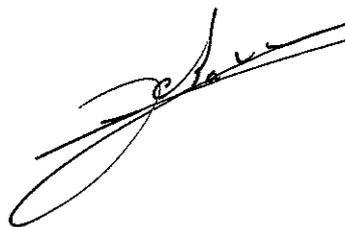
JURY :

Philippe CARBONNIERE, Professeur des Universités, UNIVERSITÉ DE PAU ET DES PAYS DE L'ADOUR
Aurelien DE LA LANDE, Directeur de Recherche, UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY
Gilles GUICHARD, Directeur de Recherche, UNIVERSITÉ DE BORDEAUX
Céline LEONARD, Professeur des Universités, UNIVERSITÉ DE MARNE LA VALLEE
Antonia MIELGO, Maître de Conférences, HDR, UNIVERSITÉ DU PAYS BASQUE - BILBAO
Antonio MONARI, Professeur des Universités, UNIVERSITÉ PARIS CITÉ
Jean-Marc SOTIROPOULOS, Directeur de Recherche, UNIVERSITÉ DE PAU ET DES PAYS DE L'ADOUR

Pau, le 25 novembre 2022

Le Président et,
Par délégation, la Vice-Présidente de la Commission de la
Recherche

P.D. Isabelle BARAILLE



Directeurs de thèse
P. CARBONNIERE et J-M. SORTIROPOULOS (IPREM)

Résumé :

Les catalyseurs de type oligomères bioinspirés à base d'urée de formes hélicoïdales (foldamères d'urée) se sont avérés être des alternatives robustes aux catalyseurs asymétriques organométalliques. Ces catalyseurs organiques permettent des réactions qui conduisent à la formation de liaisons C-C avec une énantiosélectivité extrêmement élevée et des charges aussi faibles que des rapports molaires catalyseur chiral/substrats de 1:10 000. Cependant, malgré les connaissances acquises sur la performance catalytique de ces foldamères d'urée, le mécanisme réactionnel à l'échelle atomistique dans lequel il intervient, ainsi que l'identification des paramètres structuraux qui font leur excellente énantiosélectivité ne sont pas encore bien compris. L'objet de cette thèse est de participer à élucider ces aspects par les outils de la modélisation moléculaire au niveau quantique. Cette étude se focalise sur l'étude d'une réaction type catalysée par ces foldamères : l'addition conjuguée d'un composé 1,3-dicarbonyl pronucléophile à des nitroalcènes. À cette fin, l'étude est réalisée en trois parties : i) Une analyse de reconnaissance moléculaire des composants du système à partir d'une procédure d'optimisation globale qui a révélé la modalité d'encrage la plus probable des deux réactifs sur le foldamère. ii) La modélisation du profil énergétique de ces structures qui a révélé l'excellente énantiosélectivité du catalyseur ainsi que la chiralité des molécules formées en excellent accord avec les données expérimentales. Ainsi et en retour, ces observations conduisent à valider le mécanisme d'encrage proposé préalablement. iii) L'identification des paramètres électroniques et structuraux à la base de l'éntiocontrôle et en conséquence des propositions d'amélioration des performances par "design moléculaire". Les résultats présentés ici se veulent d'une part servir de base théorique à l'amélioration des propriétés catalytiques de ces foldamères et d'autre part sur un plan plus méthodologique à une modalité d'investigation théorique pour des processus catalytiques à portée éminemment sociétale puisque qu'elle renvoie à la proposition de solution pour l'environnement (par exemple la synthèse de polymères biosourcée) et l'énergie (par exemple le stockage chimique de l'hydrogène).