
Comprendre les mécanismes de réaction et la sélectivité en catalyse organique avec la modélisation

Julien Pastor¹, Elixabete Rezabal¹, and Gilles Frison*^{†1}

¹Laboratoire de chimie moléculaire (LCM) – Ecole Polytechnique, CNRS : UMR9168 – 91128 Palaiseau Cedex, France

Résumé

L'utilisation de la catalyse organique en synthèse permet d'accéder à de nouvelles architectures moléculaires sans utilisation de catalyseurs organométalliques potentiellement toxiques et utilisant des métaux de transition dont la disponibilité et le prix posent question à moyen terme. Le développement de l'organocatalyse, respectueuse des principes de la chimie verte, est donc en plein essor depuis une dizaine d'année. Parmi les enjeux majeurs auxquels fait face cette catalyse, on trouve notamment le contrôle expérimental de l'activité et de la sélectivité des organocatalyseurs. La modélisation, en particulier par l'étude des mécanismes de réaction et de celle des interactions intra- et intermoléculaires au sein des complexes impliquant réactifs et catalyseur,[1] peut jouer un rôle crucial non seulement dans l'amélioration de la compréhension de l'activité et de la sélectivité des catalyseurs mais aussi dans l'émergence d'une chimie prédictive où la conception de nouveaux catalyseurs serait orientée par les informations obtenues *in silico*. Dans cette présentation, nous illustrerons cette approche pour différentes réactions organocatalysées.[2,3] En particulier, nous montrerons comment des méthodes de modélisation récentes, comme la méthode NCI, apportent des informations clés pour appréhender la réactivité et la sélectivité des catalyseurs. La question de la précision chimique, ou non, des méthodes de modélisation, en fonction de la stratégie de modélisation utilisée, sera également abordée.

P. H. Cheong, C. Y. Legault, J. M. Um, N. Çelebi-Ölçüm, K. N. Houk, *Chem. Rev.* **2011**, 111, 5042-5137.

D. Duvvuru, J.-F. Betzer, P. Retailleau, G. Frison, A. Marinetti, *Adv. Synth. Catal.* **2011**, 353, 483-493.

J. Stemper, K. Isaac, J. Pastor, G. Frison, P. Retailleau, A. Voituriez, J.-F. Betzer, A. Marinetti, *Adv. Synth. Catal.* **2013**, 355, 3613-3624.

Mots-Clés: catalyse, DFT, NCI, mécanisme de réaction, PCM

*Intervenant

[†]Auteur correspondant: gilles.frison@polytechnique.edu