

THESE DE DOCTORAT DE

NANTES UNIVERSITE

ECOLE DOCTORALE N° 596

Matière, Molécules, Matériaux et Géosciences

Spécialité : *Science des Matériaux*

Par

Aswadh SHYMA SAJEEVAN

Towards Soft Solid-State Li-Organic Batteries: Implementation of Lithiated *p*-Dihydroxyterephthalate-Based Positive Electrode Materials, Electrochemical Properties, and Recycling Strategy

Thèse présentée et soutenue à Nantes, le 13 February 2026

Unité de recherche : CNRS, UMR 6502, Institut des Matériaux de Nantes Jean Rouxel

Rapporteurs avant soutenance :

Jean-Claude LEPRÊTRE
Alexandru VLAD

Professeur des Universités, LEPMI, Université Grenoble Alpes, France
Professor, Institute of Condensed Matter and Nanosciences, UCLouvain, Belgium

Composition du Jury :

Président : Prénom Nom

(à préciser après la soutenance)

Examineurs : Nerea CASADO
Nara KIM
Guiomar HERNÁNDEZ

Assistant Professor, POLYMAT, Donostia-San Sebastián, Spain
Assistant Professor, Linköping University, Norrköping, Sweden
Assistant Professor, Uppsala University, Uppsala, Sweden

Dir. de thèse : Philippe POIZOT
Co-dir. de thèse : Stéven RENAULT

Professeur des Universités, IMN, Nantes Université, France
Maître de conférences, IMN, Nantes Université, France

Invité :

Stéven RENAULT

Maître de conférences, IMN, Nantes Université, France

Titre : Batteries Li-Organique à Électrolyte Solide Polymère : Intégration de Sels Lithiés de *p*-Dihydroxytéréphthalate, Propriétés Electrochimiques et Stratégie de Recyclage

Mots clés : Matériaux d'électrodes organiques, Électrolytes polymères, Recyclage des batteries, Batteries au lithium.

Résumé : Les matériaux d'électrode organiques offrent une voie prometteuse pour le développement de batteries plus durables, en réduisant la dépendance aux métaux critiques. Parmi eux, les dérivés du *p*-dihydroxytéréphthalate présentent des potentiels de fonctionnement élevés et des structures modulables. Cette thèse étudie comment leurs propriétés rédox, l'architecture des électrodes et leur compatibilité avec des électrolytes polymères solides peuvent être optimisées afin d'améliorer les performances des batteries lithium-organiques.

La première partie examine le (2,5-dilithium-oxy)-téréphthalate de zinc(II), qui adopte une structure lamellaire et présente une activité électrochimique monoélectronique stable à un potentiel de 3,4 V vs Li⁺/Li. La deuxième partie évalue les dérivés au magnésium et au zinc dans des cellules tout-solide souples utilisant des électrolytes à base de poly(ε-caprolactone-co-carbonate de triméthylène). À 60 °C, l'électrolyte polymère assure une conductivité ionique élevée et des performances comparables à celles observées avec les électrolytes liquides. La troisième partie se concentre sur le (2,5-dilithium-oxy)-téréphthalate de cuivre(II). Bien que le matériau massif présente une activité électrochimique limitée en raison de larges agrégats, la synthèse d'un composite à base de carbone à haute surface spécifique conduit à un système nanostructuré qui permet d'accéder à la pleine capacité faradique de cette structure organique mais au détriment d'une stabilité en cyclage suffisante. Enfin, la quatrième partie rapporte une étude pionnière sur le recyclage des électrodes à base de (2,5-dilithium-oxy)-téréphthalate de magnésium(II).

Title: Towards Soft Solid-State Li-Organic Batteries: Implementation of Lithiated *p*-Dihydroxyterephthalate-Based Positive Electrode Materials, Electrochemical Properties, and Recycling Strategy

Keywords : Organic electrode materials, Polymer electrolytes, Battery recycling, Lithium batteries

Abstract : Organic electrode materials offer a promising route toward sustainable lithium-based batteries by reducing reliance on scarce metals. Among these, *p*-dihydroxyterephthalate derivatives provide high operating potentials and tunable structures. This thesis investigates how their redox properties, electrode architecture, and compatibility with solid polymer electrolytes can be optimized for improved performance.

The first part examines zinc(II) (2,5-dilithium-oxy)-terephthalate, which forms a lamellar structure and shows stable one-electron activity near 3.4 V vs Li⁺/Li. The second part evaluates magnesium and zinc derivatives of this material in soft solid-state cells with poly(ε-caprolactone-co-trimethylene carbonate) based solid polymer

electrolytes. At 60 °C, the polymer electrolyte provides high ionic conductivity and delivers performance comparable to that observed with liquid electrolytes. The third part focuses on copper(II) (2,5-dilithium-oxy)-terephthalate. Although the bulk material shows limited electrochemical activity due to large aggregates, the synthesis of a composite based on high-surface area carbon yields a nanostructured system that enables access to the full faradaic capacity of this organic framework, albeit at the expense of adequate cycling stability. Finally, the fourth part reports a pioneering study on the recycling of magnesium-based (2,5-dilithium-oxy)-terephthalate electrodes.