

## ***Renewable Polymers for Adhesives from Levulinic Acid and Polyester Upcycling***

Diese Dissertation beschreibt die Entwicklung neuartiger Polymere und Oligomere ausgehend von Derivaten (1,4-pentandiol, 2-Methyltetrahydrofuran,  $\alpha$ -Angelicalacton) der bio-basierten Plattform Chemikalie Lävulinsäure. Mit 1,4-Pentandiol und diversen bio-basierten Disäuren konnten Polyester in nahezu quantitativer Ausbeute hergestellt werden. Bei diesen Polymeren konnten Schmelzpunkte unterhalb der Raumtemperatur festgestellt werden was von Vorteil in der Anwendung in Klebstoffformulierungen sein könnte. In daraus hergestellten Polyurethanen konnten Formgedächtnis Eigenschaften beobachtet werden. Aus 2-Methyltetrahydrofuran konnten dagegen durch eine Co-Polymerisation mit Propylenoxid Polyether hergestellt werden. Hierbei konnte die Bildung zyklischer Nebenprodukte durch Analyse des Reaktionsmechanismus und geeigneter Wahl des Katalysators und Reaktionsbedingungen unterdrückt werden. Zusätzlich wird die Synthese eines Monomers ausgehend von  $\alpha$ -Angelicalacton präsentiert. Dieses kann mittels Grubbs-Katalysatoren zu einem substituierten Polynorbornen polymerisiert werden. Zusätzlich zu den Polymerisationen wurde ein Konzept zum Upcycling von Polyestern entwickelt. In Gegenwart von Lewis Säuren und eines *in situ* generierten Komplex aus Ruthenium(II)salzen und Triphos Ligand war es möglich Polyester direkt zu den korrespondierenden Polyether-Polyolen zu Reduzieren.

This dissertation describes the development of novel polymers and oligomers based on derivatives (1,4-pentandiol, 2-methyltetrahydrofuran,  $\alpha$ -angelicalactone) of the bio-based platform chemical levulinic acid. With 1,4-pentandiol and various bio-based diacids, polyesters could be produced in almost quantitative yield. The polymers were found to have melting points below room temperature. This could be of advantage when used in adhesive formulations. Shape memory properties could be observed in the polyurethanes produced therefrom. In the case of 2-methyltetrahydrofuran it was possible to produce polyethers by co-polymerization with propylene oxide. Here, the formation of cyclic by-products could be suppressed by analyzing the reaction mechanism and selecting the appropriate catalyst and reaction conditions. In addition, the synthesis of a monomer starting from  $\alpha$ -angelicalactone is presented. This can be polymerized to a substituted polynorbornene using Grubbs catalysts. In addition to the polymerizations, a concept for upcycling polyesters was developed. In the presence of Lewis acids and an *in situ* generated complex of ruthenium (II) salts and triphos ligand, it was possible to reduce polyesters directly to the corresponding polyether polyols.