

Procédé de préparation de poly(N-acylamides) et poly(N-acylamides) tels qu'obtenus

La présente invention concerne un procédé de préparation de poly(N-acylamides).

5 La présente invention concerne également les poly(N-acylamides) tels qu'obtenus, ainsi que leurs utilisations.

10 Dans la littérature, il existe divers procédés permettant la préparation de poly(N-acylamides), notamment à partir de diacides et de N-acylisocyanates. Toutefois, ces procédés impliquent souvent la génération de produits secondaires. Par ailleurs, de tels procédés ne sont pas faciles à mettre en œuvre.

Il existe donc un besoin de mettre au point un nouveau procédé de préparation de poly(N-acylamides) ne présentant pas les inconvénients mentionnés ci-dessus.

15 Un des buts de la présente demande est de fournir un procédé de préparation de poly(N-acylamides) facile à mettre en œuvre.

Un autre but de la présente demande est de fournir un procédé de préparation de poly(N-acylamides) permettant l'utilisation d'une variété de monomères.

20 La présente invention a également pour but de fournir un procédé de préparation ne générant pas de produits secondaires.

Un autre but de la présente invention est de fournir de nouveaux poly(N-acylamides).

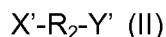
25 La présente invention a donc pour objet un procédé de préparation d'un poly(N-acylamide) par réaction entre :

- au moins un composé de formule (I) suivante :



et

- 30
- au moins un composé de formule (II) suivante :



dans lesquelles :

- 35
- R_1 et R_2 sont, indépendamment l'un de l'autre, choisis dans le groupe constitué de :

. un groupe alkylène linéaire ou ramifié, comprenant de 4 à 20 atomes de carbone, comprenant éventuellement des hétéroatomes, ledit groupe alkylène étant éventuellement substitué ;

. un groupe arylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, ledit groupe arylène étant éventuellement substitué ;

. un groupe hétéroarylène comprenant de 5 à 30 atomes, ledit groupe hétéroarylène étant éventuellement substitué ;

. un groupe cycloalkylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, ledit groupe cycloalkylène étant éventuellement substitué ;

. un groupe arylalkylène comprenant de 6 à 30 atomes de carbone, ledit groupe arylalkylène étant éventuellement substitué ;

- X, X', Y et Y' représentent, indépendamment les uns des autres, une fonction CN ou CO₂H,

à condition que :

- au moins l'un de X, X', Y et Y' représente une fonction CN ;
- au moins l'un de X, X', Y et Y' représente une fonction CO₂H ;
- lorsque R₁ représente un groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène, alors X et Y sont en position para ou méta l'un de l'autre sur respectivement ledit groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène, et
- lorsque R₂ représente un groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène, alors X' et Y' sont en position para ou méta l'un de l'autre sur respectivement ledit groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène.

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par poly(N-acylamide), un polyimide non cyclique, comprenant au moins une fonction imide.

Selon l'invention, les fonctions imide du poly(N-acylamide) sont celles formées par réaction entre les composés de formule (I) et (II). Le poly(N-acylamide) préparé selon l'invention présente donc l'unité récurrente de formule suivante : $-(C(=O)-NH-C(=O)-R_2-C(=O)-NH-C(=O)-R_1)-$, avec R₁ et R₂ tels que définis précédemment.

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, la condition « X et Y sont en position para ou méta l'un de l'autre sur le groupe arylalkylène », signifie que X et Y sont en position para ou méta sur le radical aryle du groupe arylalkylène.

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par « alkylène », un radical divalent dérivant d'un groupe alkyle linéaire dépourvu de deux atomes d'hydrogène, ledit groupe alkyle comprenant de 4 à 20 atomes de carbone. On peut notamment citer le butylène, le pentylène, l'octylène.

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par « arylène », un radical divalent dérivant d'un groupe aryle dépourvu de deux atomes d'hydrogène, ledit groupe aryle étant un radical monocyclique ou polycyclique monovalent aromatique comprenant de 5 à 30 atomes de carbone. On peut notamment citer le phénylène, le naphthalène, l'anthracène.

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par « hétéroarylène », un radical divalent dérivant d'un groupe hétéroaryle dépourvu de deux atomes d'hydrogène, ledit groupe hétéroaryle étant un radical monocyclique ou bicyclique monovalent aromatique comprenant de 5 à 30 atomes, et notamment de 1 à 5 hétéroatomes choisis parmi l'azote, l'oxygène et le soufre. On peut notamment citer le pyrrolylène, le furanylène, le thiophénylène, la pyridinylène.

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par « arylalkylène », un radical arylène-alkylène dans lequel les groupes arylène et alkylène sont tels que définis ci-dessus. On peut notamment citer le benzylène.

Selon un mode de réalisation, la présente invention concerne un procédé de préparation d'un poly(N-acylamide) par réaction entre :

- au moins un composé de formule (I) seul ou un mélange de composés de formule (I) telle que définie ci-dessus, les groupes R_1 étant identiques ou différents ;

et

- au moins un composé de formule (II) seul ou un mélange de composés de formule (II) telle que définie ci-dessus, les groupes R_2 étant identiques ou différents.

Ainsi, le procédé de préparation de poly(N-acylamides) peut consister en la réaction entre :

- au moins un composé de formule (I) seul,

et

- au moins un composé de formule (II) seul.

Le procédé de préparation de poly(N-acylamides) peut également consister en la réaction entre :

- un mélange de composés de formule (I) telle que définie ci-dessus, les groupes R_1 étant identiques ou différents ;

et

- au moins un composé de formule (II) seul.

Le procédé de préparation de poly(N-acylamides) peut également consister en la réaction entre :

- au moins un composé de formule (I) seul.

et

- un mélange de composés de formule (II) telle que définie ci-dessus, les groupes R_2 étant identiques ou différents.

Le procédé de préparation de poly(N-acylamides) peut également consister en la réaction entre :

- un mélange de composés de formule (I) telle que définie ci-dessus, les groupes R_1 étant identiques ou différents ;

et

- un mélange de composés de formule (II) telle que définie ci-dessus, les groupes R_2 étant identiques ou différents.

Selon un mode de réalisation, dans les composés de formule (I) et (II), $X = X'$, $R_1 = R_2$ et $Y = Y'$. Ainsi, le procédé de préparation de poly(N-acylamide) correspond à la réaction entre un composé de formule (I) identique à un composé de formule (II). Ce mode de réalisation correspond notamment au cas où les composés (I) et (II) sont des composés mixtes, à savoir présentant à la fois une fonction CN et une fonction COOH.

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par composé mixte, un composé de formule (I) (ou (II)), pour lesquels l'un de X ou Y (X' ou Y') représente une fonction CN et l'un de X ou Y (X' ou Y') représente une fonction COOH. On peut citer par exemple, les composés de formule (III') telle que définie ci-après, comme composés mixtes.

Selon un mode de réalisation, le procédé de préparation de poly(N-acylamide) comprend la réaction entre :

- au moins un composé de formule (I) telle que définie ci-dessus,
- au moins un composé de formule (II) telle que définie ci-dessus, et
- au moins un composé de formule (IV) suivante :



dans laquelle R représente :

- un groupe alkyle linéaire ou ramifié comprenant de 1 à 20 atomes de carbone, éventuellement substitué ;
- un groupe aryle comprenant de 6 à 30 atomes de carbone, éventuellement substitué ;
- un groupe hétéroaryle comprenant de 5 à 30 atomes, éventuellement substitué ;
- un groupe arylalkyle comprenant de 6 à 30 atomes de carbone, éventuellement substitué,

et Z représente COOH ou CN.

Ainsi, les composés de formule (IV) sont des monomères monofonctionnels, comprenant une fonction réactive COOH ou CN.

Selon l'invention, l'emploi de composés de formule (IV) peut permettre de bloquer la formation de la chaîne principale au cours de la polymérisation, dans la mesure où les composés de formule (IV) comprennent une seule fonction réactive, et/ou d'apporter éventuellement des fonctions différentes non réactives, pour conférer des propriétés applicatives spécifiques (hydrophilie, hydrophobie...).

Selon un autre mode de réalisation, la présente invention concerne un procédé de préparation d'un poly(N-acylamide) par réaction :

- au moins un composé de formule (I') suivante :



et

- au moins un composé de formule (II') suivante :



dans lesquelles R'_1 et R'_2 répondent respectivement aux définitions de R_1 et R_2 telles que mentionnées ci-dessus,

- à condition que lorsque R'_1 représente un groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène, les deux fonctions acide soient en position méta ou para l'une de l'autre sur respectivement sur ledit groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène ; et

- à condition que lorsque R'_2 représente un groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène, les deux fonctions nitrile soient en position méta ou para l'une de l'autre respectivement sur ledit groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène.

Selon l'invention, les composés de formule (I') correspondent à des composés de formule (I) dans laquelle X et Y représentent COOH, ou à des composés de formule (II) dans laquelle X' et Y' représentent COOH.

Selon l'invention, les composés de formule (II') correspondent à des composés de formule (I) dans laquelle X et Y représentent CN ou à des composés de formule (II) dans laquelle X' et Y' représentent CN.

Selon un autre mode de réalisation, la présente invention concerne un procédé de préparation d'un poly(N-acylamide) par réaction :

- au moins un composé de formule (I') seul ou un mélange de composés de formule (I') telle que définie ci-dessus, les groupes R'_1 étant identiques ou différents ;

et

- au moins un composé de formule (II') seul ou un mélange de composés de formule (II') telle que définie ci-dessus, les groupes R'_2 étant identiques ou différents.

Ainsi, le procédé de préparation de poly(N-acylamides) peut consister en la réaction entre :

- au moins un composé de formule (I') seul,

et

- au moins un composé de formule (II') seul.

Le procédé de préparation de poly(N-acylamides) peut également consister en la réaction entre :

7

- un mélange de composés de formule (I') telle que définie ci-dessus, les groupes R'_1 étant identiques ou différents ;

et

- au moins un composé de formule (II') seul.

5

Le procédé de préparation de poly(N-acylamides) peut également consister en la réaction entre :

- au moins un composé de formule (I') seul.

et

10

- un mélange de composés de formule (II') telle que définie ci-dessus, les groupes R'_2 étant identiques ou différents.

Le procédé de préparation de poly(N-acylamides) peut également consister en la réaction entre :

15

- un mélange de composés de formule (I') telle que définie ci-dessus, les groupes R'_1 étant identiques ou différents ;

et

- un mélange de composés de formule (II') telle que définie ci-dessus, les groupes R'_2 étant identiques ou différents.

20

Selon un autre mode de réalisation, la présente invention concerne un procédé de préparation d'un poly(N-acylamide) par réaction entre :

- au moins un composé de formule (III') suivante :

25



et :

- au moins un composé de formule (III') identique ou différent, telle que définie précédemment, ou
- au moins un composé de formule (I'), telle que définie précédemment, ou
- au moins un composé de formule (II'), telle que définie précédemment,

30

R'_3 étant choisi dans le groupe constitué de :

. un groupe alkylène linéaire ou ramifié, comprenant de 4 à 20 atomes de carbone, comprenant éventuellement des hétéroatomes, ledit groupe alkylène étant éventuellement substitué ;

35

8

. un groupe arylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, éventuellement substitué ;

. un groupe hétéroarylène comprenant de 5 à 30 atomes, éventuellement substitué ; et

5 . un groupe cycloalkylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, éventuellement substitué ;

. un groupe arylalkylène comprenant de 6 à 30 atomes de carbone, éventuellement substitué ;

10 à condition que lorsque R'₃ représente un arylène, hétéroarylène ou arylalkylène, la fonction nitrile et la fonction acide soient en position méta ou para l'une de l'autre sur respectivement ledit arylène, hétéroarylène ou arylalkylène.

15 Selon l'invention, les composés de formule (III') correspondent à des composés de formule (I) dans laquelle X représente CN et Y représente COOH, ou inversement, ou à des composés de formule (II) dans laquelle X' représente CN et Y' représente COOH, ou inversement.

20 Selon un mode de réalisation, la présente invention concerne un procédé de préparation d'un poly(N-acylamide) par réaction entre:

- au moins un composé de formule (III') suivante :



et :

25 - au moins un composé de formule (III') identique, à savoir des composés (III') pour lesquels R'₃ est identique.

Ce mode de réalisation correspond à la réaction entre un composé de formule (III') sur lui-même.

30

Selon un mode de réalisation, la présente invention concerne un procédé de préparation d'un poly(N-acylamide) par réaction entre:

- au moins un composé de formule (III') suivante :



et :

- au moins un composé de formule (III') différent, à savoir un composé (III') pour lesquels R'_3 est différent.

5 Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, les composés de formules (I), (II), (IV), (I'), (II') et (III') sont des monomères permettant de préparer des poly(N-acylamides). Il s'agit également de réactifs utilisés dans le procédé de l'invention.

Selon un autre mode de réalisation, la présente invention concerne un procédé de préparation d'un poly(N-acylamide) par réaction entre:

- 10
- au moins un composé de formule (III') telle que définie précédemment, et
 - au moins un composé de formule (I') et au moins un composé de formule (II'), telle que définie ci-dessus.

15 Dans le cadre du procédé selon l'invention, on peut mettre en œuvre un mélange de plusieurs acides carboxyliques, et/ou plusieurs composés nitriles.

Dans le cadre de l'invention et sauf mention contraire, on entend par composé nitrile, un composé comprenant une fonction nitrile CN.

Dans le cadre de l'invention et sauf mention contraire, on entend par acide carboxylique, un composé comprenant une fonction acide COOH.

20

Dans le cadre du procédé selon l'invention, on peut mettre en œuvre un mélange de plusieurs composés de formule (I) (ou (I')), dans lesquels les groupes R_1 (ou R'_1) sont de natures différentes.

25 Dans le cadre du procédé selon l'invention, on peut mettre en œuvre un mélange de plusieurs composés de formule (II) (ou (II')), dans lesquels les groupes R_2 (ou R'_2) sont de natures différentes.

Dans le cadre du procédé selon l'invention, on peut mettre en œuvre un mélange de plusieurs composés de formule (III'), dans lesquels les groupes R'_3 sont de natures différentes.

30

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, les expressions « comprenant de x à y » signifient que les bornes x et y sont incluses. Par exemple, « un nombre entier compris de 4 à 20 » signifie que le nombre entier est supérieur ou égal à 4 et inférieur ou égal à 20.

35 Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par poly(N-acylamide), un polyimide non cyclique, comprenant au moins une fonction imide.

Dans le cadre de l'invention, la réaction permettant la préparation de poly(N-acylamide) est une polycondensation, notamment entre au moins un composé de formule (I) (ou de formule (I')) et au moins un composé de formule (II) (ou de formule (II')).

Selon l'invention, les groupements R'_1 , R'_2 , R_1 , R_2 , R'_3 , et R indépendamment les uns des autres, peuvent être substitués par au moins une fonction non réactive dans le procédé de l'invention. En particulier, les groupements R_1 , R_2 , R'_1 , R'_2 , R'_3 et R peuvent être substitués par au moins une fonction notamment choisie parmi : alkyle comprenant de 1 à 10 atomes de carbone, sulfonate, sulfonamide, phosphonate, phosphate, éther, ester, amine tertiaire, urée, carbamate, alkylène comprenant de 1 à 10 atomes de carbone, cétone et phénol.

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par « fonction non réactive » dans le procédé de l'invention, une fonction qui ne peut pas réagir avec l'une des fonctions CN ou CO_2H des composés de départ, notamment des composés de formule (I), (II), (II'), (I') ou (III').

Selon l'invention, les groupes R_1 et R_2 , indépendamment les uns des autres, peuvent être substitués par au moins une fonction CN ou CO_2H . Ainsi, le procédé selon l'invention peut être effectué en présence de diacides ou polyacides, et de dinitriles ou polynitriles.

Selon l'invention, les composés de formule (I') peuvent être des polyacides, lorsque R'_1 est substitué par au moins une fonction CO_2H . En particulier, lorsque R'_1 est substitué par une fonction CO_2H , le composé (I') est un triacide.

Selon l'invention, les composés de formule (II') peuvent être des polynitriles, lorsque R'_2 est substitué par au moins une fonction CN. En particulier, lorsque R'_2 est substitué par une fonction CN, le composé (I') est un trinitrile.

Selon l'invention, les composés de formule (III') peuvent être des composés plurifonctionnels, lorsque R'_3 est substitué par au moins une fonction CN et/ou au moins une fonction COOH . En particulier, lorsque R'_3 est substitué par une fonction CN, le composé (III') est un dinitrile comprenant une fonction COOH . En particulier, lorsque R'_3 est substitué par une fonction COOH , le composé (III') est un diacide comprenant une fonction CN.

Selon un mode de réalisation, R_1 (R'_1) représente un groupe butylène.

Selon un autre mode de réalisation, R_1 (R'_1) représente un groupe octylène.

Selon un mode de réalisation, R_2 (R'_2) représente un groupe butylène.

Selon un autre mode de réalisation, R_2 (R'_2) représente un groupe octylène.

Selon un mode de réalisation, R_1 (R'_1) représente un groupe arylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, en particulier un groupe phénylène.

5 Selon un mode de réalisation, R_1 (R'_1) représente un groupe arylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, ledit groupe arylène étant substitué par une fonction CO_2H . En particulier, R_1 (R'_1) représente un phénylène substitué par une fonction CO_2H .

Selon un mode de réalisation, R_2 (R'_2) représente un groupe arylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, en particulier un groupe phénylène.

10

Selon un mode de réalisation, R'_3 représente un groupe alkylène linéaire, comprenant de 4 à 20 atomes de carbone, et de préférence R'_3 est un butylène.

Selon un mode de réalisation, R'_3 représente un groupe arylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, notamment un phénylène.

15

Le procédé selon l'invention peut conduire à des poly(N-acylamides) étant de nature aliphatique, de nature (hétéro)aromatique ou étant à la fois de nature (hétéro)aromatique et aliphatique, et notamment dans des proportions identiques ou différentes.

20

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par poly(N-acylamide de « nature aliphatique », un poly(N-acylamide) préparé à partir de composés non (hétéro)aromatiques, et notamment à partir de composés présentant des groupes alkylènes linéaires ou ramifiés, ou des groupes cycloalkylènes.

25

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par poly(N-acylamide de « nature (hétéro)aromatique », un poly(N-acylamide) préparé à partir de composés aromatiques ou hétéroaromatiques, à savoir à partir de composés ne comprenant pas de groupes aliphatiques.

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, le terme (hétéro)aromatique englobe un hétéroarylène et un arylène.

30

Le procédé selon l'invention peut conduire à des poly(N-acylamides) pouvant être de nature aliphatique, notamment lorsque dans les composés de formule (I) et (II), R_1 et R_2 représentent des groupes alkylènes.

35

Le procédé selon l'invention peut conduire à des poly(N-acylamides) pouvant être de nature aliphatique, notamment lorsque dans les composés de formule (I'), (II') et/ou (III'), R'_1 , R'_2 et/ou R'_3 représentent des groupes alkylènes.

Le procédé selon l'invention peut conduire à des poly(N-acylamides) pouvant être de nature (hétéro)aromatique, notamment lorsque dans les composés de formule (I) et (II), R_1 et R_2 représentent des groupes (hétéro)arylènes.

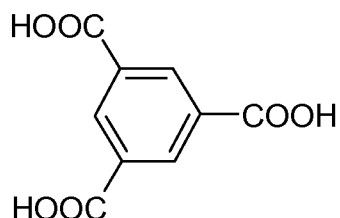
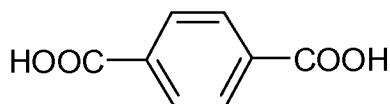
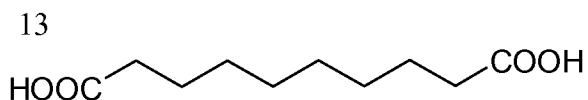
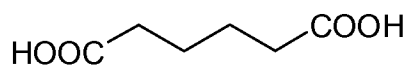
Le procédé selon l'invention peut conduire à des poly(N-acylamides) pouvant être de nature (hétéro)aromatique, notamment lorsque dans les composés de formule (I'), (II') et/ou (III'), R'_1 , R'_2 et/ou R'_3 représentent des groupes (hétéro)arylènes.

Le procédé selon l'invention peut conduire à des poly(N-acylamides) pouvant être de nature aliphatique et (hétéro)aromatique. C'est le cas lorsque dans les composés de formule (I) et (II), R_1 et R_2 sont de nature différente, à savoir lorsque R_1 est de nature aliphatique et R_2 est de nature (hétéro)aromatique, ou inversement. C'est également le cas lorsque dans les composés de formule (I') et (II'), R'_1 et R'_2 sont de nature différente, à savoir lorsque R'_1 est de nature aliphatique et R'_2 est de nature (hétéro)aromatique, ou inversement. De plus, c'est également le cas lorsque l'on fait réagir un composé de formule (III') dans lequel R'_3 est de nature aliphatique, avec un composé de formule (III') différente, dans lequel R'_3 est de nature (hétéro)aromatique.

Le procédé selon l'invention peut conduire à des poly(N-acylamides) pouvant être de nature aliphatique et (hétéro)aromatique, notamment lorsque dans les composés de formule (I) et (II), au moins l'un de R_1 et R_2 représente un groupe arylalkylène, ou bien lorsque dans les composés de formule (I'), (II') et/ou (III'), au moins l'un de R'_1 , R'_2 ou R'_3 représente un groupe arylalkylène.

Selon l'invention, parmi les composés de formule (I'), on peut citer l'acide sébacique, l'acide adipique, l'acide téréphtalique, l'acide benzène 1,3,5-tricarboxylique, l'acide pimélique, l'acide subérique, l'acide azélaïque, l'acide dodécanedioïque, l'acide 1,3-cyclohexane dicarboxylique, l'acide 1,2 phénylène diacétique, l'acide 1,3 phénylène diacétique, l'acide 1,2 cyclohexane diacétique, l'acide 1,3 cyclohexane diacétique, l'acide 4,4' benzophénone dicarboxylique, l'acide 2,5 naphtalène dicarboxylique, l'acide 2,2,6,6-tétra (β -carboxyéthyl)cyclohexanone, l'acide 3,5,3',5' biphényl tétracarboxylique, l'acide 1,3,5,7 naphtalène tétracarboxylique, l'acide 2,4,6 pyridine tricarboxylique, l'acide 3,5,3',5' bipyridine tétracarboxylique, l'acide 3,5,3',5' benzophénone tétracarboxylique, l'acide 1,3,6,8 acridine tétracarboxylique.

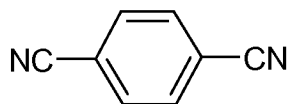
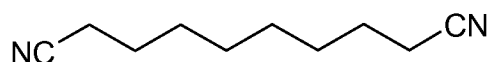
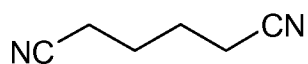
En particulier, parmi les composés de formule (I'), on peut citer l'un des composés suivants :



Selon l'invention, parmi les composés de formule (II'), on peut citer l'adiponitrile, le sébaconitrile, le téréphtalonitrile.

5

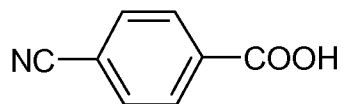
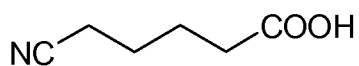
En particulier, parmi les composés de formule (II'), on peut citer l'un des composés suivants :



10

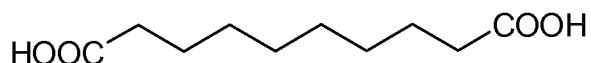
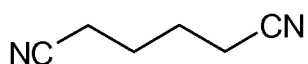
Selon l'invention, parmi les composés de formule (III'), on peut citer l'acide cyano-5-valérique, l'acide 4-cyanobenzoïque.

En particulier, parmi les composés de formule (III'), on peut citer l'un des composés suivants :



15

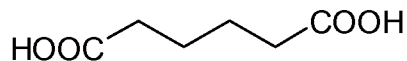
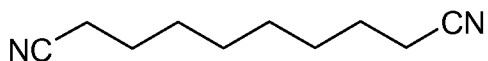
Selon un mode de réalisation, la réaction est réalisée en présence des composés de formule (I') et (II') suivants :



20

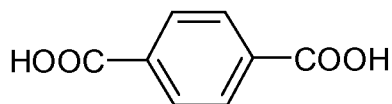
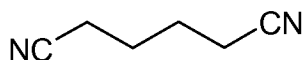
14

Selon un autre mode de réalisation, la réaction est réalisée en présence des composés de formule (I') et (II') suivants :



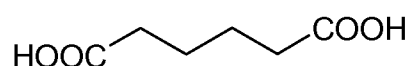
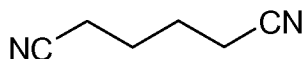
5

Selon un autre mode de réalisation, la réaction est réalisée en présence des composés de formule (I') et (II') suivants :



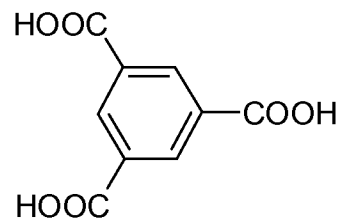
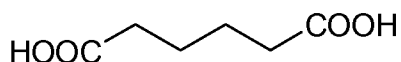
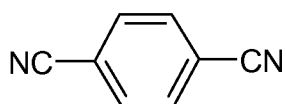
10

Selon un autre mode de réalisation, la réaction est réalisée en présence des composés de formule (I') et (II') suivants :



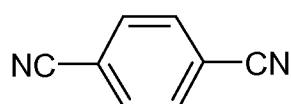
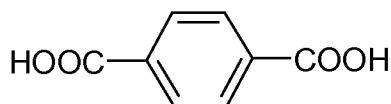
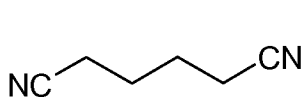
15

Selon un autre mode de réalisation, la réaction est réalisée en présence des composés de formule (I') et (II') suivants :



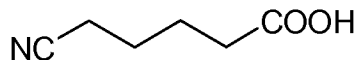
20

Selon un autre mode de réalisation, la réaction est réalisée en présence des composés de formule (I') et (II') suivants :



25

Selon un mode de réalisation, la réaction est réalisée en présence d'un composé de formule (III') suivant :



5 Ce composé correspond à un composé de formule (III') dans laquelle R'_3 représente $-(CH_2)_4-$.

10 Le procédé selon l'invention peut avantageusement conduire à des poly(N-acylamides) linéaires, branchés ou sous la forme de réseaux réticulés, selon la nature et/ou la quantité stœchiométrique des réactifs utilisés.

Le procédé selon l'invention peut conduire à des poly(Nacylamides) branchés ou sous forme de réseaux réticulés, selon différents paramètres tels que le nombre de fonctions présentes sur les monomères, le type de fonctions présentes sur les monomères, le rapport stœchiométrique entre les monomères, le rapport
15 stœchiométrique entre les fonctions présentes sur les monomères ou encore selon le taux d'avancement de la réaction.

Selon un mode de réalisation, lorsque le nombre de fonctions CN et/ou CO_2H est strictement supérieur à 2 dans au moins un des composés de formule (I), (II), (I'), (II') ou (III'), alors le procédé conduit à des poly(N-acylamides) branchés ou réticulés. Ce mode
20 de réalisation correspond notamment au cas où l'un des groupes R_1 , R_2 , R'_1 , R'_2 ou R'_3 est substitué par une fonction CN ou CO_2H .

Selon un mode de réalisation, lorsque le nombre de fonctions CN et/ou CO_2H est inférieur ou égal à 2 dans tous les composés de formule (I), (II), (I'), (II') ou (III'), alors le procédé conduit à des poly(N-acylamides) linéaires. Ce mode de réalisation correspond
25 notamment au cas où tous les groupes R_1 , R_2 , R'_1 , R'_2 ou R'_3 ne sont pas substitués par une fonction CN ou CO_2H .

Selon un mode de réalisation, lorsque le procédé est réalisé entre un composé de formule (I') dans lequel R_1 n'est pas substitué par un groupe CO_2H , et un composé de formule (II') dans lequel R_2 n'est pas substitué par un groupe CN, alors un poly(N-acylamide) linéaire est obtenu.
30

Selon un autre mode de réalisation, lorsqu'on utilise un composé polyacide, correspondant notamment à un composé de formule (I') dans lequel R_1 est notamment substitué par un groupe CO_2H , le procédé selon l'invention conduit à un poly(N-acylamide) branché ou sous forme de réseau réticulé.

De la même façon, lorsqu'on utilise un composé polynitrile, correspondant notamment à un composé de formule (II') dans lequel R_2 est notamment substitué par un groupe CN, le procédé selon l'invention conduit à un poly(N-acylamide) branché ou sous forme de réseau réticulé.

5

Selon l'invention, la réaction de polycondensation peut être effectuée en solution, en masse solide ou en masse fondue. La réaction peut également être réalisée en présence d'un réactif liquide

10

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par réaction réalisée « en solution », une réaction qui est réalisée en présence d'un solvant.

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par réaction réalisée « en masse fondue », une réaction qui est réalisée en l'absence de solvant, et en présence d'au moins un réactif qui présente une température de fusion inférieure à la température de la réaction.

15

Dans le cadre de l'invention, et sauf mention contraire, on entend par réaction réalisée « en masse solide », une réaction qui est réalisée en l'absence de solvant, et en présence de réactifs qui présentent une température de fusion supérieure à la température de la réaction.

20

Typiquement, si la réaction est réalisée en solution, le solvant utilisé doit être compatible avec les conditions réactionnelles, et plus particulièrement sa température d'ébullition (à la pression de travail) doit être supérieure ou égale à la température de la réaction, et le solvant ne doit pas pouvoir réagir avec les réactifs utilisés. En particulier, le solvant ne doit pas comprendre de fonctions hydroxyles, amines, acides carboxyliques, nitriles...

25

De préférence, la réaction est réalisée en masse fondue ou en masse solide.

30

Le procédé selon l'invention est avantageusement mis en œuvre à une température supérieure à la température de fusion du monomère qui présente la température de fusion la plus basse. Ainsi, la réaction peut être effectuée soit à une température supérieure à la température de fusion d'au moins un composé de formule (I) ou à celle d'au moins un composé de formule (II).

35

De préférence, la réaction est réalisée à une température comprise de 150°C à 300°C, préférentiellement de 180°C à 300°C. En particulier, la réaction de polycondensation est réalisée à 270°C ou à une température comprise de 180°C à 200°C.

Selon l'invention, la réaction peut être réalisée pendant plusieurs heures. De préférence, la réaction est réalisée de 2 à 20 heures, préférentiellement de 3 à 14 heures.

En particulier la réaction est réalisée pendant 4 heures.

5 Selon un mode de réalisation, la réaction est chauffée pendant 7 heures à 180°C, puis pendant 7 heures à 200°C.

Selon un mode de réalisation, la réaction est chauffée à 270°C pendant 4 heures.

Selon l'invention, la réaction peut être réalisée à pression atmosphérique.

10

Selon l'invention, le procédé peut être réalisé en présence d'un catalyseur. En particulier, le procédé est réalisé en présence d'un catalyseur choisi parmi l'acide orthophosphorique, le chlorure ferrique, notamment chlorure ferrique hexahydrate, le chlorure d'aluminium, les phosphates, les borophosphates, l'acide sulfurique, l'acide sulfonique, les acides benzène sulfoniques, les acides toluène sulfonique tels que l'acide para toluène sulfonique, les acides naphthalène sulfoniques, la silice, l'alumine, l'argile et la silice/alumine. De préférence, la réaction est effectuée en présence d'acide orthophosphorique ou de chlorure ferrique hexahydrate.

15

20 La quantité de catalyseur mise en œuvre peut être comprise de 0,1 à 5% molaire, de préférence entre 0,5% et 3% molaire, et préférentiellement de 1% à 2% molaire.

Selon l'invention, la réaction peut être réalisée dans un ratio molaire r compris de 0,7 : 1 à 1 : 0,7, plus préférentiellement de 0,9 : 1 à 1 : 0,9 entre les fonctions acide CO_2H et nitrile CN ($r = \text{CO}_2\text{H} : \text{CN}$) des composés de départ, notamment des composés de formule (I) et (II), et ce quel que soit leur répartition sur les composés. Le ratio molaire peut varier selon les propriétés du poly(N-acylamide) désirées. Typiquement, selon le ratio molaire $\text{CO}_2\text{H} : \text{CN}$ utilisé, la nature des fonctions terminales du poly(N-acylamide) obtenu varie.

25

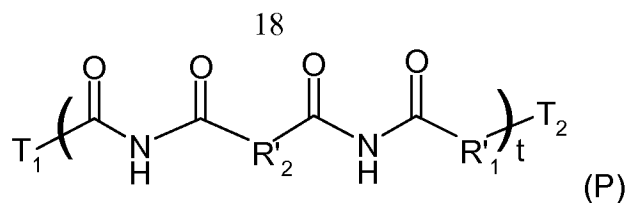
De préférence, la réaction est réalisée dans un ratio molaire 1 : 1.

30

La présente invention a également pour objet les poly(N-acylamides) tels qu'obtenus par le procédé susmentionné.

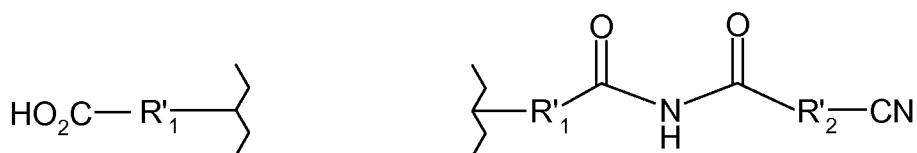
Ainsi, la présente invention concerne des poly(N-acylamides) de formule (P) suivante :

35

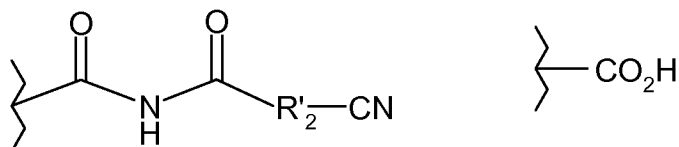


dans laquelle :

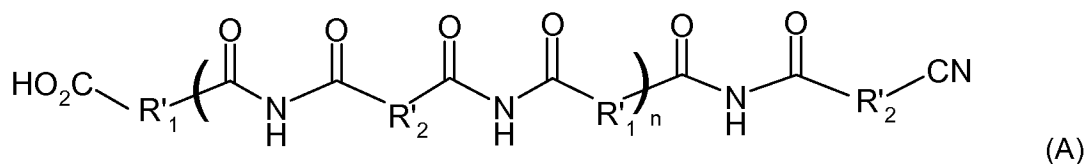
- R'₁ et R'₂ sont tels que définis précédemment, R'₁ pouvant être identique ou différent, R'₂ pouvant être identique ou différent,
- t représente un nombre entier compris de 1 à 1000, de préférence de 1 à 200,
- T₁ est choisi dans le groupe constitué de :



- T₂ est choisi dans le groupe constitué de :



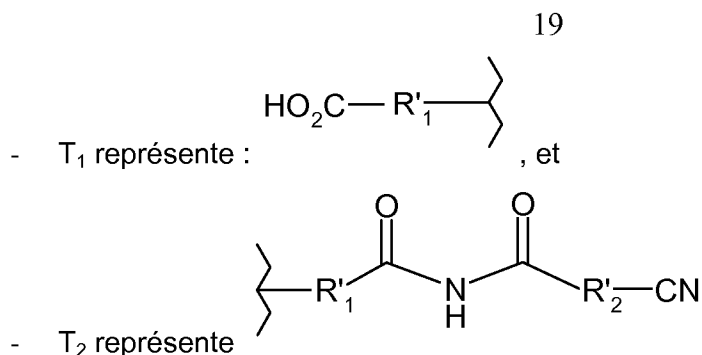
Selon un mode de réalisation, la présente invention concerne les poly(N-acylamides) linéaires de formule (A) suivante :



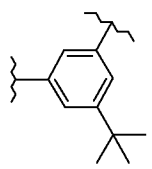
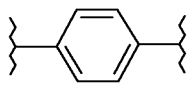
dans laquelle R'₁ et R'₂ sont tels que définis précédemment, R'₁ pouvant être identique ou différent, R'₂ pouvant être identique ou différent, et n représente un nombre entier compris de 1 à 1000, de préférence de 1 à 200.

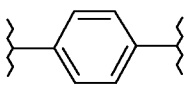
Les poly(N-acylamides) de formule (A) sont des poly(N-acylamides) de formule (P) dans laquelle :

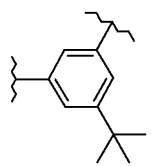
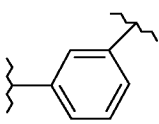
- t représente n,

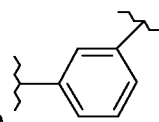


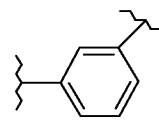
Selon un mode de réalisation, les poly(Nacylamides) de formule (P) ou (A) ne sont pas ceux dans lesquels :

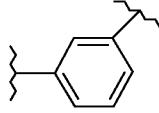
- R'_1 représente un groupe  et R'_2 représente un groupe  , ou inversement,

- R'_1 représente un groupe butylène et R'_2 représente un groupe  , ou inversement,

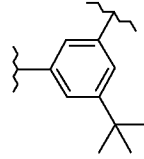
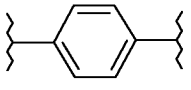
- R'_1 représente un groupe  et R'_2 représente un groupe  , ou inversement,

- R'_1 représente un groupe butylène et R'_2 représente un groupe  , ou inversement,

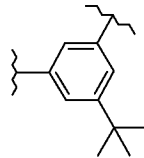
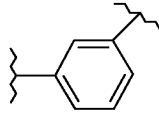
- R'_1 représente un groupe octylène et R'_2 représente un groupe  , ou inversement, et

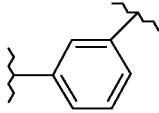
- R'₁ représente un groupe  et R'₂ représente un groupe , ou inversement.

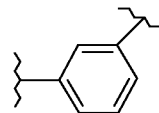
Selon un mode de réalisation, les poly(Nacylamides) de formule (P) ou (A) ne sont pas

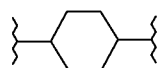
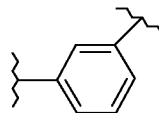
5 ceux dans lesquels :- R'₁ représente un groupe  et R'₂ représente un groupe ,

- R'₁ représente un groupe butylène et R'₂ représente un groupe ,

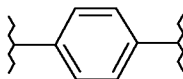
- R'₁ représente un groupe  et R'₂ représente un groupe ,

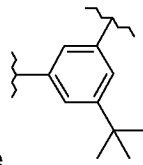
10 - R'₁ représente un groupe butylène et R'₂ représente un groupe ,

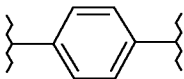
- R'₁ représente un groupe octylène et R'₂ représente un groupe ,

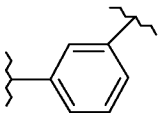
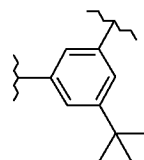
- R'₁ représente un groupe  et R'₂ représente un groupe .

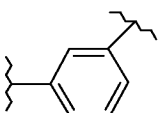
Selon un autre mode de réalisation, les poly(Nacylamides) de formule (P) ou (A) ne sont

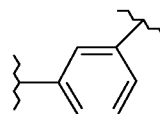
pas ceux dans lesquels - R'₁ représente un groupe  et R'₂ représente un

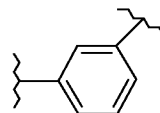
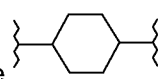
groupe ,

- R'₁ représente un groupe  et R'₂ représente un groupe butylène,

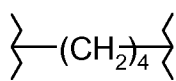
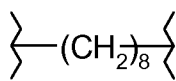
5 - R'₁ représente un groupe  et R'₂ représente un groupe ,

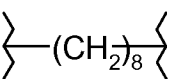
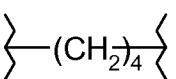
- R'₁ représente un groupe  et R'₂ représente un groupe butylène,

- R'₁ représente un groupe  et R'₂ représente un groupe octylène,

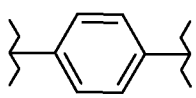
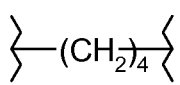
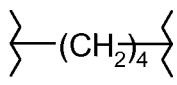
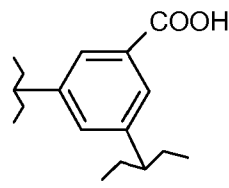
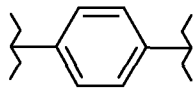
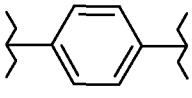
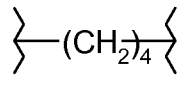
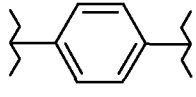
10 - R'₁ représente un groupe  et R'₂ représente un groupe .

Parmi les poly(N-acylamides) de formule (P), on peut citer ceux pour lesquels :

15 - R'₁ représente  et R'₂ représente  ; ou

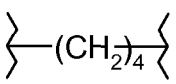
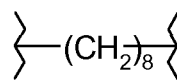
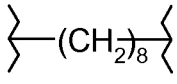
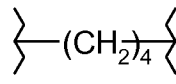
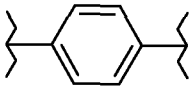
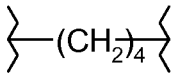
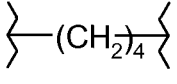
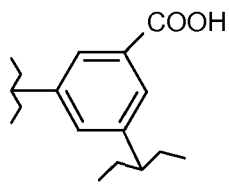
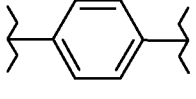
- R'₁ représente  et R'₂ représente  ; ou

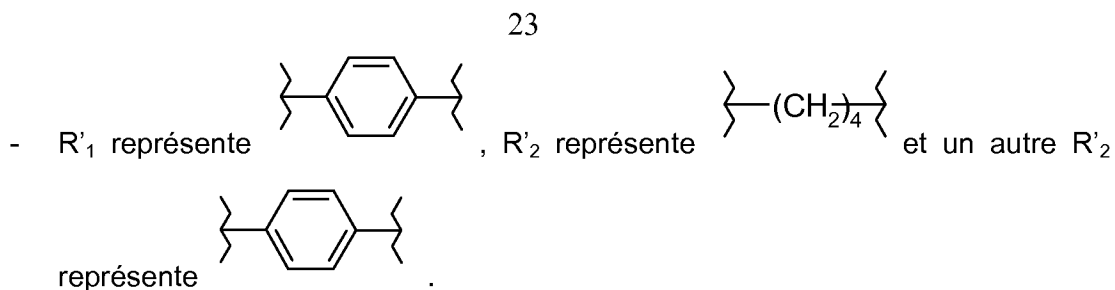
22

- R'₁ représente  et R'₂ représente  ; ou
- R'₁ représente , un autre R'₁ représente  et R'₂ représente  ; ou
- R'₁ représente , R'₂ représente  et un autre R'₂ représente ,

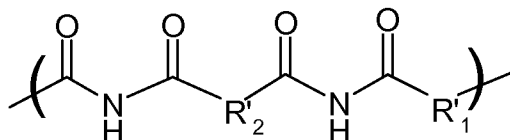
dans lesquels T₁ et T₂ sont tels que définis précédemment.

Parmi les poly(N-acylamides) de (A) on peut citer ceux pour lesquels :

- R'₁ représente  et R'₂ représente  ; ou
- R'₁ représente  et R'₂ représente  ; ou
- R'₁ représente  et R'₂ représente  ; ou
- R'₁ représente , un autre R'₁ représente  et R'₂ représente  ; ou



Selon l'invention, les poly(N-acylamides) de formule (A) comprennent un motif de répétition (motif répété n fois) :



et les fonctions terminales suivantes :



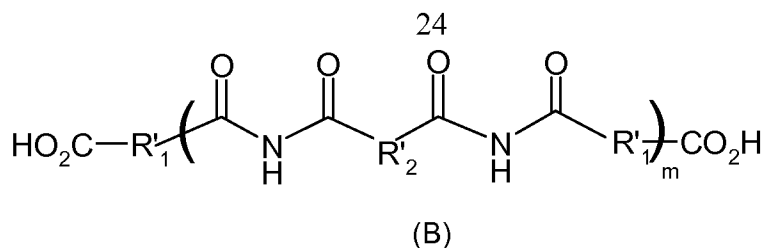
Dans le cadre de l'invention, dans les poly(N-acylamides) de formule (A), le groupe R'₁ dans le motif de répétition peut être identique ou différent du groupe R'₁ dans les fonctions terminales. De plus, dans chaque motif de répétition des poly(N-acylamides) de formule (A), le groupe R'₁ peut être de nature identique ou différente.

Ceci peut s'expliquer notamment par l'utilisation d'un mélange de composés de formule (I') dans lesquels R'₁ est de nature différente.

Dans le cadre de l'invention, dans les poly(N-acylamides) de formule (A), le groupe R'₂ dans le motif de répétition peut être identique ou différent du groupe R'₂ dans les fonctions terminales. De plus, dans chaque motif de répétition des poly(N-acylamides) de formule (A), le groupe R'₂ peut être de nature identique ou différente.

Ceci peut s'expliquer notamment par l'utilisation d'un mélange de composés de formule (II') dans lesquels R'₂ est de nature différente.

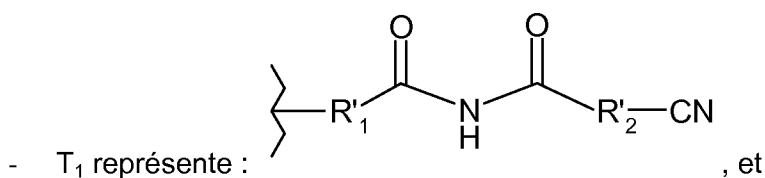
Selon un mode de réalisation, la présente invention concerne également des poly(N-acylamides) linéaires de formule (B) suivante :



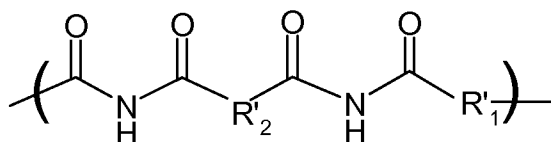
dans laquelle R'_1 et R'_2 sont tels que définis précédemment, R'_1 pouvant être identique ou différent, R'_2 pouvant être identique ou différent, et m représente un nombre entier compris de 1 à 1000, de préférence de 1 à 200.

Les poly(N-acylamides) de formule (B) sont des poly(N-acylamides) de formule (P) dans laquelle :

- t représente m ,



Selon l'invention, les poly(N-acylamides) de formule (B) comprennent un motif de répétition (motif répété m fois) :



et les fonctions terminales suivantes :



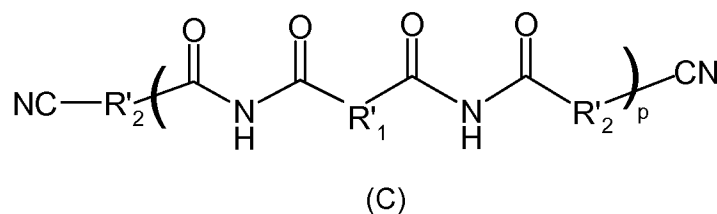
Dans le cadre de l'invention, dans les poly(N-acylamides) de formule (B), le groupe R'_1 dans le motif de répétition peut être identique ou différent du groupe R'_1 dans les fonctions terminales. De plus, dans chaque motif de répétition des poly(N-acylamides) de formule (B), le groupe R'_1 peut être de nature identique ou différente.

Ceci peut s'expliquer notamment par l'utilisation d'un mélange de composés de formule (I') dans lesquels R'_1 est de nature différente.

Dans le cadre de l'invention, dans les poly(N-acylamides) de formule (B), le groupe R'_2 dans le motif de répétition peut être identique ou différent du groupe R'_2 dans les fonctions terminales. De plus, dans chaque motif de répétition des poly(N-acylamides) de formule (B), le groupe R'_2 peut être de nature identique ou différente.

Ceci peut s'expliquer notamment par l'utilisation d'un mélange de composés de formule (II') dans lesquels R'_2 est de nature différente.

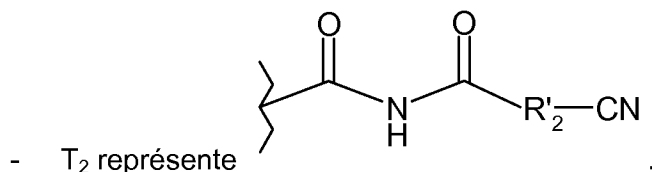
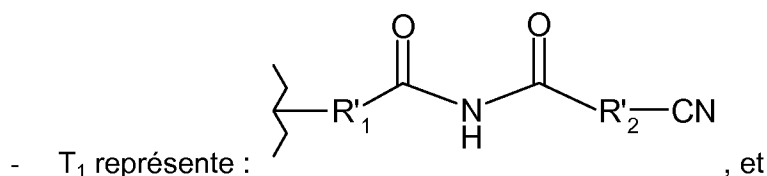
La présente invention concerne également des poly(N-acylamides) linéaires de formule (C) suivante :



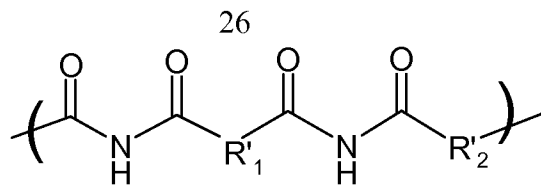
dans laquelle R'_1 et R'_2 sont tels que définis précédemment, R'_1 pouvant être identique ou différent, R'_2 pouvant être identique ou différent, et p représente un nombre entier compris de 1 à 1000, de préférence de 1 à 200.

Les poly(N-acylamides) de formule (C) sont des poly(N-acylamides) de formule (P) dans laquelle :

- t représente $(p-1)$,



Selon l'invention, les poly(N-acylamides) de formule (C) comprennent un motif de répétition (motif répété p fois) :



et les fonctions terminales suivantes :

5



Dans le cadre de l'invention, dans les poly(N-acylamides) de formule (C), le groupe R'₁ dans le motif de répétition peut être identique ou différent du groupe R'₁ dans les fonctions terminales. De plus, dans chaque motif de répétition des poly(N-acylamides) de formule (C), le groupe R'₁ peut être de nature identique ou différente.

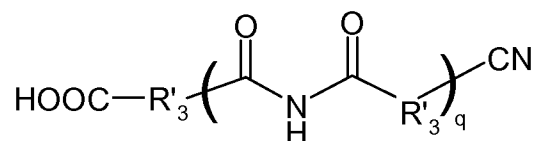
Ceci peut s'expliquer notamment par l'utilisation d'un mélange de composés de formule (I') dans lesquels R'₁ est de nature différente.

Dans le cadre de l'invention, dans les poly(N-acylamides) de formule (C), le groupe R'₂ dans le motif de répétition peut être identique ou différent du groupe R'₂ dans les fonctions terminales. De plus, dans chaque motif de répétition des poly(N-acylamides) de formule (C), le groupe R'₂ peut être de nature identique ou différente.

Ceci peut s'expliquer notamment par l'utilisation d'un mélange de composés de formule (II') dans lesquels R'₂ est de nature différente.

20

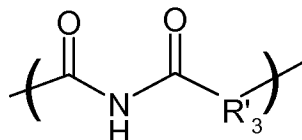
La présente invention concerne également des poly(N-acylamides) linéaires de formule (D) suivante :



25

dans laquelle R'₃ est tel que défini précédemment, R'₃ pouvant être identique ou différent, et q représente un nombre entier compris de 1 à 1000, de préférence de 1 à 200.

Selon l'invention, les poly(N-acylamides) de formule (D) comprennent un motif de répétition (motif répété q fois) :



5

et les fonctions terminales suivantes :



10 Dans le cadre de l'invention, dans les poly(N-acylamides) de formule (D), le groupe R'₃ dans le motif de répétition peut être identique ou différent du groupe R'₃ dans les fonctions terminales. De plus, dans chaque motif de répétition des poly(N-acylamides) de formule (D), le groupe R'₃ peut être de nature identique ou différente.

15 Ceci peut s'expliquer notamment par l'utilisation d'un mélange de composés de formule (III') dans lesquels R'₃ est de nature différente.

Un autre objet de l'invention est l'utilisation des poly(N-acylamides) dans le domaine des composites, de l'extrusion, de l'injection, du filage.

20 La présente invention concerne également des compositions comprenant au moins un poly(N-acylamide) tel que décrit précédemment, ou un mélange de un poly(N-acylamides).

25 Les compositions selon l'invention peuvent comprendre en outre au moins un additif choisi parmi les arylamides, les fibres, les stabilisants à la lumière (notamment UV et/ou à la chaleur), les plastifiants, les colorants, les agents de démoulage, de lubrification, les agents d'ignifugation, les charges habituelles (telles que talc, fibres de verre, nanocharges, pigments, oxydes métalliques, métaux), les modifiants chocs, les agents tensioactifs, les azurants optiques, les anti-oxydants, les cires naturelles et leurs
30 mélanges.

Il a été montré que le procédé selon l'invention, permet avantageusement de préparer des poly(N-acylamides), sans la formation de produits secondaires. Il a été mis en œuvre un procédé avantageusement facile à mettre en œuvre, qui ne requiert pas nécessairement l'emploi de solvant. Par ailleurs, le procédé selon l'invention peut
5 avantageusement être réalisé avec une grande variété de réactifs de départ.

Les exemples suivants permettent d'illustrer l'invention, sans toutefois la limiter.

Exemples

Exemple 1 : Polycondensation d'adiponitrile et d'acide sébacique

Dans un tube en verre, 1,74g d'adiponitrile (16mmol), 3,26g d'acide sébacique (16mmol) et 25mg environ d'acide orthophosphorique à 85% ont été introduits. Le mélange réactionnel a été maintenu pendant 4 heures à 270°C dans un bloc de chauffe et sous
15 agitation magnétique. Le polymère **(1)** obtenu est pâteux à température ambiante.

L'analyse thermique différentielle montre un pic de fusion large entre 40°C et 72°C.

L'analyse par résonance magnétique nucléaire du ¹³C montre clairement les pics de résonance des carbones imide dans la région 174,0-174,5 ppm, et ceux des terminaisons nitrile à 120,5ppm et acide carboxylique à 173,8ppm. Le degré de polycondensation moyen (DP) calculé sur la base de cette indexation est de 2,3 imide/chaine, et la
20 répartition des bouts de chaines est de 84% mol. en nitrile et 16% mol. en acide.

Exemple 2 : Polycondensation de sébaconitrile et d'acide adipique

Selon la même procédure que l'exemple 1, 2,65g de sébaconitrile, 2,35g d'acide adipique ont été polycondensés en présence d'environ 25mg d'acide orthophosphorique. Le polymère **(2)** obtenu est pâteux à température ambiante.

L'analyse thermique différentielle montre un pic de fusion large entre 55°C et 80°C et une
30 Tg à 46°C.

L'analyse par RMN ¹³C indique un DP moyen de 1.8 imide/chaine, et la répartition des bouts de chaines est de 85% mol. en nitrile et 15% mol. en acide.

Exemple 3 : Polycondensation d'adiponitrile et d'acide téréphthalique

Selon la même procédure que l'exemple 1, 1,97g d'adiponitrile (18mmol), 3,03g d'acide téréphtalique (18mmol) ont été polycondensés en présence d'environ 25mg d'acide orthophosphorique, pour conduire au polymère **(3)**.

L'analyse thermique différentielle montre un pic de fusion à 212°C et une Tg à 135°C.

5

Exemple 4 : Polycondensation d'adiponitrile et d'acide adipique

Selon la même procédure que l'exemple 1, 2,13g d'adiponitrile (20mmol), 2,87g d'acide adipique (20mmol) ont été polycondensés en présence d'environ 25mg d'acide orthophosphorique. Le polymère **(4)** obtenu est solide à température ambiante.

10

L'analyse thermique différentielle montre un pic de fusion large entre 65 et 125°C et une Tg à 57°C.

L'analyse par résonance magnétique nucléaire du ^{13}C montre clairement les pics de résonance des carbones imide à 174,1 et 174,2 ppm, et ceux des terminaisons nitrile à 120,5ppm et acide carboxylique à 173,8ppm. Le degré de polycondensation moyen calculé sur la base de cette indexation est de 5.0 imide/chaine et la répartition des bouts de chaines est de 72% mol. en nitrile et 28% mol. en acide.

15

Exemple 5 : Polycondensation de téréphtalonitrile, d'acide adipique et d'acide Benzène 1,3,5-Tricarboxylique

20

Selon la même procédure que l'exemple 1, 2,09g de téréphtalonitrile (16mmol), 1,19g d'acide adipique (8mmol) et 1,72g d'acide Benzène-1,3,5 tricarboxylique (8mmol) ont été polycondensés en présence d'environ 25mg d'acide orthophosphorique. Le polymère **(5)** obtenu est solide à température ambiante, insoluble et infusible (DSC), confirmant la formation d'un réseau réticulé.

25

Exemple 6 : Polycondensation d'acide téréphtalique, d'adiponitrile et de téréphtalonitrile

Selon la même procédure que l'exemple 1, 2,92g d'acide téréphtalique (18mmol), 0,95g d'adiponitrile (9mmol) et 1,13g de téréphtalonitrile (9mmol) ont été polycondensés en présence d'environ 25mg d'acide orthophosphorique. Le polymère **(6)** obtenu est solide à température ambiante.

30

L'analyse thermique différentielle montre une température de transition vitreuse autour de 190-220°C mais pas de pic de fusion jusqu'à 300°C, caractéristique d'un polymère amorphe.

35

Exemple 7 : Polycondensation d'adiponitrile et d'acide adipique

Selon la même procédure que l'exemple 1, 2,15g d'adiponitrile (20mmol) et 2,87g d'acide adipique (20mmol) ont été polycondensés en présence d'environ 25mg de chlorure ferrique hexahydrate. Le polymère **(7)** obtenu est solide à température ambiante.

L'analyse thermique différentielle montre un pic de fusion large entre 60 et 150°C.

L'analyse RMN du ^{13}C sur la base de l'indexation de l'exemple 4 montre que le degré de polycondensation moyen est de 2.3 et la répartition des bouts de chaines nitrile/acide est respectivement de 80/20% mol.

Exemple 8 : Polycondensation d'acide cyano-5 valérique

Dans un tube en verre, 2,00g d'acide cyano-5 valérique (16mmol) et environ 10mg d'acide orthophosphorique ont été introduits. Le mélange réactionnel a été maintenu pendant 7 heures à 180°C puis 7 heures à 200°C dans un bloc de chauffe et sous agitation magnétique. Le polymère **(8)** obtenu est solide pâteux à température ambiante.

L'analyse RMN du ^{13}C sur la base de l'indexation de l'exemple 4 montre que le degré de polycondensation moyen est d'environ 4 et la répartition des bouts de chaines nitrile/acide est respectivement de 85/15% mol. L'analyse thermique différentielle montre un pic de fusion large entre 50 et 90°C.

31
REVENDICATIONS

1. Procédé de préparation d'un poly(N-acylamide) par réaction entre :

- au moins un composé de formule (I) suivante :



et

- au moins un composé de formule (II) suivante :



dans lesquelles :

- R_1 et R_2 sont, indépendamment l'un de l'autre, choisis dans le groupe constitué de :

15 . un groupe alkylène linéaire ou ramifié, comprenant de 4 à 20 atomes de carbone, comprenant éventuellement des hétéroatomes, ledit groupe alkylène étant éventuellement substitué ;

. un groupe arylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, ledit groupe arylène étant éventuellement substitué ;

. un groupe hétéroarylène comprenant de 5 à 30 atomes, ledit groupe hétéroarylène étant éventuellement substitué ;

20 . un groupe cycloalkylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, ledit groupe cycloalkylène étant éventuellement substitué ;

. un groupe arylalkylène comprenant de 6 à 30 atomes de carbone, ledit groupe arylalkylène étant éventuellement substitué ;

25 - X , X' , Y et Y' représentent, indépendamment les uns des autres, une fonction CN ou CO_2H ,

à condition que :

- au moins l'un de X , X' , Y et Y' représente une fonction CN ;

- au moins l'un de X , X' , Y et Y' représente une fonction CO_2H ;

30 - lorsque R_1 représente un groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène, alors X et Y sont en position para ou méta l'un de l'autre sur respectivement ledit groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène, et

- lorsque R_2 représente un groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène, alors X' et Y' sont en position para ou méta l'un de l'autre sur respectivement ledit groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène.

35

2. Procédé selon la revendication 1, consistant en la réaction entre :

- au moins un composé de formule (I) selon la revendication 1,
- au moins un composé de formule (II) selon la revendication 1, et
- au moins un composé de formule (IV) suivante :



dans laquelle R représente :

- un groupe alkyle linéaire ou ramifié comprenant de 1 à 20 atomes de carbone, éventuellement substitué ;
- un groupe aryle comprenant de 6 à 30 atomes de carbone, éventuellement substitué ;
- un groupe hétéroaryle comprenant de 5 à 30 atomes, éventuellement substitué ;
- un groupe arylalkyle comprenant de 6 à 30 atomes de carbone, éventuellement substitué,

et Z représente COOH ou CN.

3. Procédé selon la revendication 1, consistant en la réaction entre :

- au moins un composé de formule (I') suivante :



et

- au moins un composé de formule (II') suivante :



dans lesquelles R'₁ et R'₂ répondent respectivement aux définitions pour R₁ et R₂ selon la revendication 1.

4. Procédé selon la revendication 1, consistant en la réaction entre :

- au moins un composé de formule (III') suivante :



et :

- au moins un composé de formule (III') identique ou différent, ou

- au moins un composé de formule (I'), selon la revendication 2 ; ou
- au moins un composé de formule (II'), selon la revendication 2,

R'₃ étant choisi dans le groupe constitué de :

5 . un groupe alkylène linéaire ou ramifié, comprenant de 4 à 20 atomes de carbone, comprenant éventuellement des hétéroatomes, ledit groupe alkylène étant éventuellement substitué ;

 . un groupe arylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, éventuellement substitué ;

 . un groupe hétéroarylène comprenant de 5 à 30 atomes, éventuellement substitué ; et

10 . un groupe cycloalkylène comprenant de 5 à 30 atomes de carbone, éventuellement substitué ;

 . un groupe arylalkylène comprenant de 6 à 30 atomes de carbone, éventuellement substitué ;

15 à condition que lorsque R'₃ représente un arylène, hétéroarylène ou arylalkylène, la fonction nitrile et la fonction acide soient en position méta ou para l'une de l'autre sur respectivement ledit groupe arylène, hétéroarylène ou arylalkylène.

5. Procédé selon la revendication 1, consistant en la réaction entre :

- au moins un composé de formule (III') selon la revendication 4, et
- 20 - au moins un composé de formule (I') et au moins un composé de formule (II'), selon la revendication 3.

6. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, dans lequel la réaction est effectuée en solution, en masse solide ou en masse fondue.

7. Procédé selon la revendication 1, dans lequel la réaction est effectuée à une température supérieure à la température de fusion du composé de formule (I) ou (II), qui présente la température de fusion la plus basse.

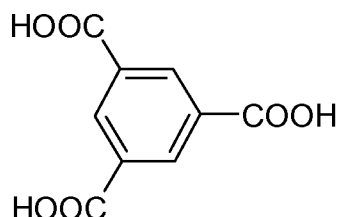
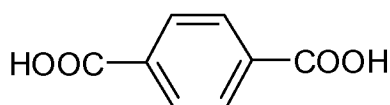
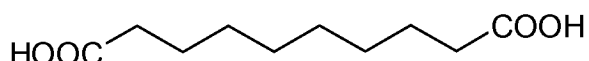
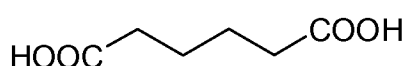
8. Procédé selon la revendication 7, dans lequel la réaction est effectuée à une température comprise de 150°C à 300°C.

9. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, dans lequel la réaction est effectuée à pression atmosphérique.

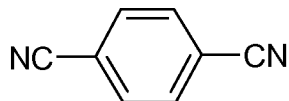
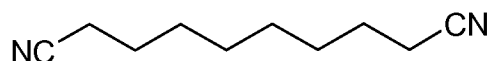
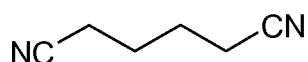
10. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 à 9, dans lequel la réaction est effectuée en présence d'un catalyseur, notamment choisi parmi l'acide orthophosphorique, le chlorure ferrique, notamment le chlorure ferrique hexahydrate, le chlorure d'aluminium, les phosphates, les borophosphates, l'acide sulfurique, l'acide sulfonique, les acides benzènesulfoniques, les acides toluènesulfoniques tels que l'acide para toluène sulfonique, les acides naphthalènesulfoniques, la silice, l'alumine, l'argile et la silice/alumine.

11. Procédé selon la revendication 10, dans lequel le catalyseur est choisi parmi l'acide orthophosphorique et le chlorure ferrique hexahydrate.

12. Procédé selon la revendication 3, dans lequel le composé (I') est l'un des composés suivants :

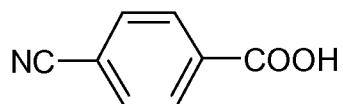
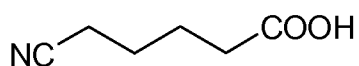


13. Procédé selon la revendication 3, dans lequel le composé (II') est l'un des composés suivants :

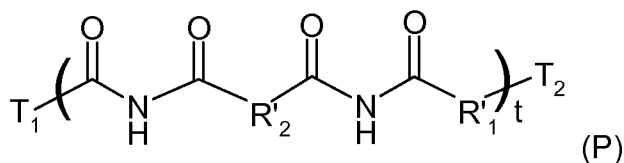


14. Procédé selon la revendication 4, dans lequel le composé (III') est l'un des composés suivants :

35



15. Poly(N-acylamide) de formule (P) suivante :

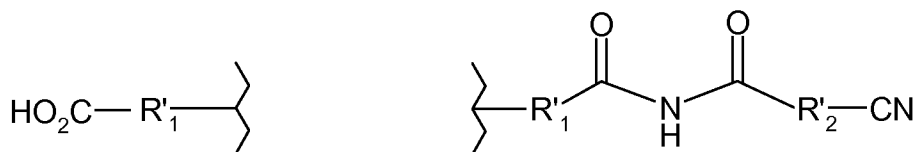


5

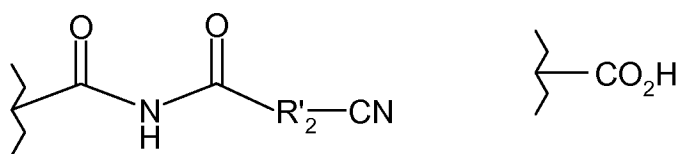
dans laquelle :

- R'₁ et R'₂ sont tels que définis précédemment, R'₁ pouvant être identique ou différent, R'₂ pouvant être identique ou différent,
- t représente un nombre entier compris de 1 à 1000, de préférence de 1 à 200,
- T₁ est choisi dans le groupe constitué de :

10



- T₂ est choisi dans le groupe constitué de :



15

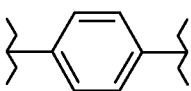
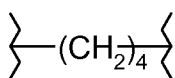
16. Poly(N-acylamides) selon la revendication 15, dans lesquels :

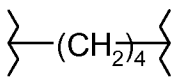
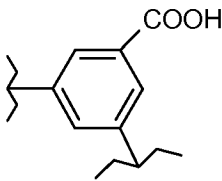
- R'₁ représente $\text{---}(\text{CH}_2)_4\text{---}$ et R'₂ représente $\text{---}(\text{CH}_2)_8\text{---}$; ou

20

- R'₁ représente $\text{---}(\text{CH}_2)_8\text{---}$ et R'₂ représente $\text{---}(\text{CH}_2)_4\text{---}$; ou

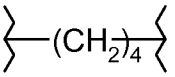
36

- R'₁ représente  et R'₂ représente  ; ou

- R'₁ représente , un autre R'₁ représente  et R'₂

représente  ; ou

5

- R'₁ représente , R'₂ représente  et un autre R'₂

représente ,

T₁ et T₂ étant tels que définis selon la revendication 15.