



economie

BREVET D'INVENTION

ROYAUME DE BELGIQUE

SPF ECONOMIE, P.M.E.,
CLASSES MOYENNES & ENERGIE

Office de la Propriété intellectuelle

NUMERO DE PUBLICATION : 1017609A4

NUMERO DE DEPOT : 09700227

Classif. Internat. : C07D C06B

Date de délivrance le : 03 Février 2009

Le Ministre de l'Economie,

Vu la Convention de Paris du 20 Mars 1883 pour la Protection de la propriété intellectuelle;

Vu la loi du 28 Mars 1984 sur les brevets d'invention, notamment l'article 22;

Vu l'arrêté royal du 2 Décembre 1986 relatif à la demande, à la délivrance et au maintien en vigueur des brevets d'invention, notamment l'article 28;

Vu le procès verbal dressé le 14 Mars 1997 à 15H00 à l'Office de la Propriété Intellectuelle

ARRETE :

ARTICLE 1.- Il est délivré à : SNPE MATERIAUX ENERGETIQUES
12 Quai Henri IV, F-75181 PARIS Cédex 04(FRANCE)

représenté(e)s par : VOSSWINKEL Philippe, GEVERS & VANDER HAEGHEN, Holidaystraat 5, - B 1831 DIEGEM.

un brevet d'invention d'une durée de 20 ans, sous réserve du paiement des taxes annuelles, pour : FORME POLYMORPHE EPSILON D'UN DERIVE DE L'ISOWURTZITANE ET PROCEDE DE SYNTHESE.

INVENTEUR(S) : Gagnon Guy, Lotissement du Bois 24, F-91610 Ballancourt (FR); Jacob Guy, Avenue du Maréchal Lyautey 2, F-91710 Vert le Petit (FR); Mace Hélène, Allée des Sources 5, F-91140 Villebon sur Yvette (FR)

PRIORITE(S) 14.03.96 FRFRA9603209

ARTICLE 2.- Ce brevet est délivré sans examen préalable de la brevetabilité de l'invention, sans garantie du mérite de l'invention ou de l'exactitude de la description de celle-ci et aux risques et périls du(des) demandeurs(s).

Pour Expédition certifiée conforme

Bruxelles, le 03 Février 2009
PAR DELEGATION SPECIALE :

PETIT M.
Attaché

M. PETIT
Attaché

.be

Forme polymorphe epsilon d'un dérivé de l'isowurtzitane et
procédés de synthèse

La présente invention est relative à une nouvelle
forme polymorphe, appelée epsilon, de l'hexanitrohexaa-
zaisowurtzitane, ainsi qu'à deux procédés de synthèse de
cette nouvelle forme polymorphe.

5 L'invention se situe dans le domaine des poudres,
propergols, et explosifs, très couramment utilisés,
notamment dans les industries d'armement.

Il existe, depuis quelques années, de nombreuses
publications relatives au 2,4,6,8,10,12-hexanitro-
10 2,4,6,8,10,12-hexaazatétracyclo (5.5.0.0⁵,9.0³,11) dodé-
cane encore appelé hexanitrohexaazaisowurtzitane.

Ces publications décrivent les propriétés
physiques, chimiques et détoniques de ce composé et/ou
diverses formes polymorphes, ainsi que son utilisation
15 dans des compositions explosives, des propergols ou des
poudres pour armes.

On peut citer, par exemple, F. FOLTZ qui, dans
Propellants, Explosives, Pyrotechnics 19, 63-69 (1994),
étudie la stabilité thermique du polymorphe epsilon dans
20 un poly(uréthane-ester), et qui, dans Propellants,
Explosives, Pyrotechnics 19, 19-25 (1994), étudie la
stabilité thermique des quatre formes polymorphes
appelées alpha, bêta, gamma et epsilon.

Toutefois, les informations concernant sa synthèse
25 sont très rares, imprécises et insuffisantes pour que
l'homme du métier, même avec ses connaissances
générales, puisse la réaliser.

Si les auteurs des publications précitées
mentionnent parfois que le composé a été obtenu à partir
30 d'hexabenzylhexaazaisowurtzitane, il ne décrivent jamais
comment.

Les informations les plus précises concernant la
synthèse figurent dans la demande de brevet japonais
J 06 321962 A relative à la synthèse de l'hexakis(tri-

méthylsilyléthylcarbamyl)hexaazaisowurtzitane à partir de l'hexabenzylhexaazaisowurtzitane.

Il y est mentionné qu'on peut obtenir l'hexanitro-hexaazaisowurtzitane à partir de ce composé intermédiaire silylé en le faisant d'abord réagir avec l'acide nitreux puis ensuite avec l'acide nitrique, mais aucun exemple d'une telle réaction n'est décrit, et aucune précision concernant les conditions opératoires (température, concentration des acides, milieu, etc...) n'est indiquée.

Arnold T. NIELSEN, au congrès de Long Beach (Californie, USA) organisé par l'American Defense Preparedness Association et tenu à l'Hotel Queen Mary les 27-29 octobre 1986, a divulgué la synthèse du 4,10-dibenzyl-2,6,8,12-tétraacétyl-2,4,6,8,10,12-hexaazatétracyclo (5.5.0.0^{5,9}.0^{3,11}) dodécane, encore appelé tétraacétyldibenzylhexaazaisowurtzitane, par réaction, à 60°C durant 6h, de l'hexabenzylhexaazaisowurtzitane avec l'anhydride acétique, en présence d'hydrogène et de Pd/C comme catalyseur. Le rendement est de 25%.

L'auteur indique également avoir étudié de nombreuses conditions opératoires de nitration du tétraacétyldibenzylhexaazaisowurtzitane dans le but d'obtenir l'hexanitrohexaazaisowurtzitane, mais ce composé n'a jamais pu être obtenu.

Malgré ce préjugé, des conditions opératoires ont été trouvées permettant l'obtention, avec un excellent rendement, de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane à partir du tétraacétyldibenzylhexaazaisowurtzitane. L'hexanitro-hexaazaisowurtzitane ainsi obtenu se présente sous la forme polymorphe alpha, en référence aux publications de FOLTZ précitées. Sa masse volumique est de 1,97 g/cm³.

Or, d'après ces mêmes publications de FOLTZ, c'est la forme polymorphe epsilon qui possède la masse volumique la plus élevée, et qui paraît donc présenter

le plus d'intérêt, notamment pour son utilisation dans les compositions pyrotechniques.

Si certaines propriétés et caractéristiques de la forme epsilon de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane sont
5 connues de l'homme du métier, les informations comprises dans ce même état de la technique, même complétées par les connaissances générales de l'homme du métier, ne permettent pas à celui-ci de la préparer et de l'isoler.

L'homme du métier est donc à la recherche d'un
10 procédé permettant d'obtenir cette forme polymorphe epsilon.

La présente invention permet de résoudre ce problème.

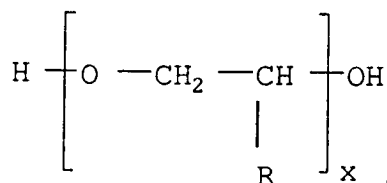
Elle a tout d'abord pour objet la forme polymorphe
15 epsilon de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane dont la synthèse n'était pas connue de l'homme du métier, ni suggérée par l'état de la technique.

Elle a également pour objet deux procédés de
20 synthèse de cette forme polymorphe epsilon, dont la masse volumique est de 2,04 g/cm³.

Cette masse volumique élevée rend cette forme polymorphe epsilon particulièrement intéressante comme charge explosive ou oxydante dans les compositions pyrotechniques.

25 Selon l'invention, un premier procédé de synthèse de la forme polymorphe epsilon consiste à tout d'abord mélanger de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe quelconque, alpha par exemple, dans un prémélange comprenant :

30 - 20% à 40% en poids d'un polyazoture de glycidyle répondant à la formule générale



dans laquelle x est un nombre entier tel que $10 \leq x \leq 60$ et R représente un groupement $-(\text{CH}_2)_n\text{N}_3$ ou $-\text{CH}_2\text{CHN}_3\text{CH}_2\text{N}_3$ dans lequel n est un nombre entier tel que $1 \leq n \leq 5$,

- 5 - 60% à 80% en poids d'au moins un trinitrate d'un triol monomère comportant 3 à 12 atomes de carbone, puis à réaliser ensuite au moins un, de préférence plusieurs, et mieux encore au moins cinq, cycle thermique de chauffage du mélange à une température comprise entre
10 40°C et 60°C puis à une température comprise entre 10°C et 30°C, puis enfin à éliminer les constituants du prémélange par lavage avec un solvant organique.

Lorsqu'on mélange l'hexanitrohexaazaisowurtzitane et le prémélange, on obtient une suspension de
15 l'hexanitrohexaazaisowurtzitane dans le prémélange, mais une faible partie est néanmoins dissoute.

De façon préférée, R représente $-\text{CH}_2\text{N}_3$ et x est tel que $20 \leq x \leq 40$.

- De façon également préférée, le prémélange
20 comprend 60% à 80% en poids d'un mélange de trinitrate de triméthyloléthane et de 1,2,4-butanetriol.

Selon une variante préférée, ce prémélange est constitué de 27,5% en poids de polyazoture de glycidyle, 35% en poids de trinitrate de triméthyloléthane, 35% en
25 poids de trinitrate de 1,2,4-butanetriol, 1,25% en poids de 2-nitrodiphénylamine et 1,25% en poids de N-méthyl paranitroaniline.

- De façon générale, selon ce premier procédé, le rapport massique entre le prémélange et
30 l'hexanitrohexaazaisowurtzitane à recristalliser, respectivement, est compris entre 10 et 100.

Selon une variante préférée, on réalise au moins 5 cycles thermiques successifs de 2h à 50°C et de 2h à 20°C.

5 Par ailleurs, parmi les solvants de lavage du prémélange qui conviennent bien, on peut citer les solvants chlorés, notamment le chlorure de méthylène qui est particulièrement préféré.

10 Le second procédé de synthèse de la forme polymorphe epsilon de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane consiste à réaliser une solution saturée d'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe quelconque, alpha par exemple, dans un mélange acétone/toluène, puis à ensemercer cette solution saturée par quelques cristaux d'hexanitrohexaaza-
15 isowurtzitane de forme polymorphe epsilon, puis enfin à concentrer la solution par évaporation de l'acétone.

20 De façon générale, le rapport volumique acétone/toluène respectivement, est compris entre 10/90 et 50/50, mieux encore entre 15/85 et 30/70, par exemple 20/80 ou 25/75.

Selon une variante préférée, la quantité de semence représente entre 0,1% et 1% en poids de la quantité d'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe quelconque à recristalliser.

25 Par ailleurs, de façon inattendue, on a constaté qu'on obtenait un produit de pureté plus élevée, c'est à dire exempt notamment d'autres formes polymorphes d'hexanitrohexaazaisowurtzitane, lorsque, lors de l'opération de concentration de la solution par
30 évaporation de l'acétone, la température n'excède pas 30°C, c'est à dire lorsqu'elle est inférieure ou égale à 30°C, par exemple comprise entre 10°C et 30°C, de préférence entre 20°C et 30°C.

35 Selon une autre variante préférée, pour réaliser la solution saturée d'hexanitrohexaazaisowurtzitane dans

le mélange acétone/toluène, le procédé est simplifié lorsqu'on réalise d'abord une solution saturée d'hexanitrohexaazaisowurtzitane dans l'acétone et qu'on ajoute ensuite le toluène.

5 Si la solution saturée contient de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane en suspension, il est préférable d'éliminer cette suspension, par exemple par filtration, avant l'ensemencement, de façon à ne pas polluer le produit final obtenu.

10 Ce second procédé est beaucoup plus simple à mettre en oeuvre, plus économique et plus facilement extrapolable au stade industriel que le premier. S'il nécessite de disposer au préalable, lorsqu'on le met en oeuvre pour la toute première fois, d'une faible
15 quantité du produit recherché obtenu selon une autre méthode, la très faible proportion de semence nécessaire par rapport au produit à recristalliser rend ensuite le procédé parfaitement autonome.

Les exemples non limitatifs suivants illustrent
20 l'invention et les avantages qu'elle procure.

Exemple 1 : Synthèse du tétraacétyldibenzylhexaazaisowurtzitane

25 Dans un réacteur double enveloppe de 250 ml muni d'une agitation magnétique, d'un réfrigérant à eau et d'une canne d'introduction équipée d'un fritté pour l'introduction d'hydrogène, on introduit, à la température ambiante (15-20°C), 67 ml de diméthylformamide (DMF), 17 ml d'anhydride acétique,
30 0,23 g (1,46 mmol) de bromobenzène, 20,8 g (29,4 mmol) d'hexabenzylhexaazaisowurtzitane et 1,15 g d'hydroxyde de palladium sur charbon (humidité : 50%, taux de palladium dans la matière sèche : 5%). Après purge de l'appareillage par un gaz inerte, et tout en
35 introduisant de l'hydrogène dans le milieu et en

maintenant sa pression dans le réacteur entre $1,13 \cdot 10^5 \text{ Pa}$ et $1,25 \cdot 10^5 \text{ Pa}$, on porte le milieu réactionnel de la température ambiante jusqu'à 55°C en 3h, puis on maintient cette température pendant 2h.

5 On arrête l'introduction d'hydrogène, puis on introduit 158 ml d'acide acétique dans le milieu que l'on porte alors à une température comprise entre 80°C et 90°C .

10 On filtre ce milieu afin de séparer le catalyseur, puis on concentre le filtrat à 60°C - 70°C sous une pression réduite de $2,5 \cdot 10^3 \text{ Pa}$ à $5 \cdot 10^3 \text{ Pa}$ (environ 20 mm à 40 mm Hg).

15 Après retour à la température ambiante, on reprend le résidu par 100 ml d'acétone. Le tétraacétyldibenzylhexaazaisowurtzitane obtenu, qui a précipité, est filtré et rincé par 50 ml d'acétone.

20 Après séchage 24h à 30°C sous une pression réduite de $5 \cdot 10^3 \text{ Pa}$ (environ 40 mm Hg), on obtient 12,1 g (rendement 80%) de tétraacétyldibenzylhexaazaisowurtzitane, identifié par conformité à des spectres de référence par spectrométrie de masse, infrarouge et RMN du proton à 60 MHz.

25 Exemple 2 : Synthèse de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe alpha

Dans un réacteur d'un litre double enveloppe équipé d'une agitation mécanique et d'une sonde de température, on introduit, à 0°C , 313 g (3,37 mol) de N_2O_4 liquide.

30 On additionne, entre 0°C et 5°C , 133 g (0,259 mol) de tétraacétyldibenzylhexaazaisowurtzitane obtenu selon l'exemple 1.

On laisse remonter la température du milieu réactionnel jusqu'à 15 - 16°C (reflux du N_2O_4) puis on

laisse le milieu sous agitation et au reflux du N_2O_4 pendant 20h.

Après avoir refroidi le milieu à $0^\circ C$, on ajoute, entre $0^\circ C$ et $8^\circ C$, 667 ml d'un mélange sulfonitrique respectivement 20/80 en volumes, ce qui correspond à l'ajout de 12,8 mol d'acide nitrique.

On chauffe ensuite progressivement le milieu de façon à éliminer l'excès de N_2O_4 par distillation, puis, lorsque la température du milieu atteint $73-75^\circ C$, on laisse le milieu sous agitation durant 4h.

Après refroidissement à $40^\circ C$, on verse le milieu sur 2 l d'un mélange eau-glace. Un solide décante que l'on récupère par filtration et lavage à l'eau chaude ($40^\circ C$) sur filtre jusqu'à pH neutre des eaux de lavage.

Après séchage, on obtient 104 g d'hexanitrohexaazaisowurtzitane (rendement 97%) solide blanc identifié par RMN du proton à 200 MHz dans le diméthylsulfoxyde (DMSO), par RMN du carbone dans les mêmes conditions, par IR, par analyse élémentaire et par étude cristallographique aux rayons X.

Sa température de fusion est voisine de $170^\circ C$ et sa pureté peut être estimée supérieure à 95%.

Sa masse volumique est de $1,97 \text{ g/cm}^3$ d'après les données cristallographiques obtenues par rayons X.

L'étude cristallographique d'un monocristal par rayons X montre que ce composé cristallise avec environ 25% molaires d'eau et qu'il présente une structure cristalline orthorhombique de groupe d'espace Pbca ayant les paramètres de mailles suivantes : $a = 9,546 \text{ \AA}$, $b = 13,232 \text{ \AA}$, $c = 23,634 \text{ \AA}$ et $Z = 8$.

Par ailleurs, le spectre IR à transformée de Fourier d'une dispersion à 1% dans KBr présente, entre 700 cm^{-1} et 1200 cm^{-1} , les pics caractéristiques de la forme polymorphe alpha, en référence à la publication de FOLTZ précitée, tableau 1 page 66. Les pics

caractéristiques des formes epsilon, bêta et gamma ne sont pas observés.

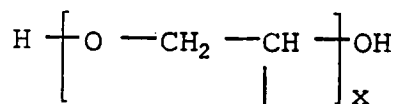
L'hexanitrohexaazaisowurtzitane obtenu se trouve donc sous la forme polymorphe alpha.

5

Exemple 3 : Synthèse de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe epsilon. Méthode par mélange

Après mise en suspension avec dissolution partielle, à la température ambiante proche de 20°C, de 0,5g d'hexanitrohexaazaisowurtzitane obtenu selon l'exemple 2 dans 15 g d'un prémélange constitué de :

- 27,5% en poids du polyazoture de glycidyle (PAG) de formule



CH₂N₃ dans laquelle x est un nombre entier tel que 20 ≤ x ≤ 40 commercialisé par la SNPE sous la référence PAG-diol 1800 et dont la masse moléculaire moyenne en nombre est voisine de 1800,

- 35% en poids de trinitrate de triméthyloléthane,

- 35% en poids de trinitrate de 1,2,4-butanetriol,

- 1,25% en poids de 2-nitrodiphénylamine,

- 1,25% en poids de N-méthyl paranitroaniline,

on réalise six cycles thermiques successifs de 2h à 50°C, puis de 2h à 20°C. Chaque cycle est donc constitué d'une période de chauffage du mélange de 20°C à 50°C, d'une période de maintien de la température 2h à 50°C, d'une période de refroidissement du mélange de 50°C à 20°C, et d'une période de maintien de la température 2h à 20°C.

On élimine ensuite totalement les constituants du prémélange par lavage au chlorure de méthylène sur un filtre.

On recueille 0,47 g d'hexanitrohexaazaisowurtzitane, identifié comme selon l'exemple 2.

Sa masse volumique, à 20°C, est de 2,04 g/cm³ d'après les données cristallographiques obtenues par rayons X.

L'étude cristallographique d'un monocristal par rayons X montre que le produit présente une structure cristalline monoclinique de groupe d'espace P2₁/n, dont les paramètres de mailles sont : a = 8,864Å, b = 12,581Å, c = 13,388Å et Z = 4.

Par ailleurs, le spectre IR à transformée de Fourier d'une dispersion à 1% dans KBr présente, entre 700 cm⁻¹ et 1200 cm⁻¹, les pics caractéristiques de la forme polymorphe epsilon, en référence à la publication de FOLTZ précitée, tableau 1 page 66. Les pics caractéristiques des formes alpha, bêta et gamma ne sont pas observés.

L'hexanitrohexaazaisowurtzitane obtenu se trouve donc sous la forme polymorphe epsilon.

Exemples 4 et 5 : Synthèse de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe epsilon. Méthode par ensemencement

Exemple 4

On mélange, à la température ambiante proche de 20°C, 10 g d'hexanitrohexaazaisowurtzitane obtenu selon l'exemple 2 avec 20 ml d'acétone. On obtient ainsi une solution saturée dans laquelle une faible partie de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane de départ reste en suspension.

On ajoute 80 ml de toluène, ce qui permet d'obtenir une solution saturée d'hexanitrohexaazaisowurtzitane dans un mélange 20/80 en volumes acétone/toluène respectivement dans laquelle une faible

partie de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane de départ reste en suspension.

On filtre cette suspension et recueille le filtrat, c'est à dire la solution saturée, que l'on
5 ensemence ensuite par quelques cristaux d'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe epsilon obtenu selon l'exemple 3.

On concentre ensuite le mélange à 25°C sous un vide partiel de $2,5 \cdot 10^3$ - $5 \cdot 10^3$ Pa (environ 20-40 mm Hg)
10 jusqu'à ce que tout l'acétone soit éliminé.

Un solide blanc (9 g) précipite au cours de cette opération de concentration, que l'on récupère par filtration.

Ce solide blanc, identifié et analysé comme décrit
15 pour l'exemple 3, qui présente toutes les caractéristiques, notamment physiques et spectrales, du produit obtenu pour l'exemple 3, est de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe epsilon.

Exemple 5

On a reproduit l'exemple 4, mais avec 0,5 kg d'hexanitrohexaazaisowurtzitane obtenu selon l'exemple 2, 1 l d'acétone et 4 l de toluène. La quantité de
25 semence est de 2,5 g, soit 0,5% en poids de la quantité d'hexanitrohexaazaisowurtzitane à recristalliser.

On a obtenu 455 g d'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe epsilon, identifié et analysé comme selon les exemples 3 et 4.

30

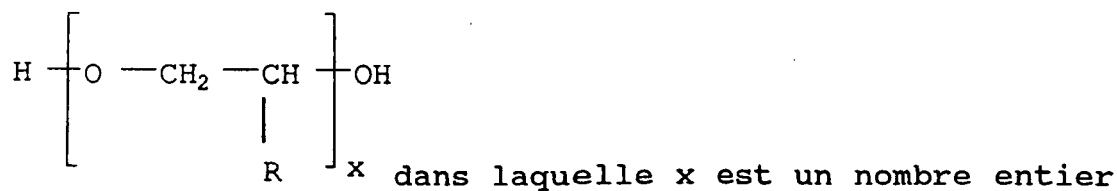
35

Revendications

1. Forme polymorphe epsilon de l'hexanitrohexaaza-isowurtzitane.

5 2. Procédé de synthèse de la forme polymorphe epsilon de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane, caractérisé en ce qu'on mélange de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe quelconque dans un prémélange comprenant :

10 - 20% à 40% en poids d'un polyazoture de glycidyle répondant à la formule générale



tel que $10 \leq x \leq 60$ et R représente un groupement

15 $-(\text{CH}_2)_n\text{N}_3$ ou $-\text{CH}_2-\text{CHN}_3-\text{CH}_2\text{N}_3$ dans lequel n est un nombre entier tel que $1 \leq n \leq 5$,

- 60% à 80% en poids d'au moins un trinitrate d'un triol monomère comportant 3 à 12 atomes de carbone, en ce qu'on réalise ensuite au moins un cycle thermique de chauffage du mélange à une température comprise entre 40°C et 60°C puis à une température comprise entre 10°C et 30°C,

puis en ce qu'on élimine les constituants du prémélange par lavage avec un solvant organique.

25 3. Procédé de synthèse selon la revendication 2, caractérisé en ce que R représente $-\text{CH}_2\text{N}_3$, en ce que x est tel que $20 \leq x \leq 40$, et en ce que le prémélange comprend 60% à 80% en poids d'un mélange de trinitrate de triméthyloléthane et de trinitrate de 1,2,4-butanetriol.

30 4. Procédé de synthèse selon la revendication 3, caractérisé en ce que le prémélange est constitué de

27,5% en poids de polyazoture de glycidyle, 35% en poids de trinitrate de triméthyloléthane, 35% en poids de trinitrate de 1,2,4-butanetriol, 1,25% en poids de 2-nitrodiphénylmine et 1,25% en poids de N-méthylparanitroaniline.

5 5. Procédé de synthèse selon la revendication 1, caractérisé en ce que le rapport massique entre le prémélange et l'hexanitrohexaazaisowurtzitane, respectivement, est compris entre 10 et 100, en ce qu'on
10 réalise au moins 5 cycles thermiques successifs de 2h à 50°C et de 2h à 20°C, et en ce que le solvant de lavage est le chlorure de méthylène.

15 6. Procédé de synthèse de la forme polymorphe epsilon de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane, caractérisé en ce qu'on réalise une solution saturée d'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe quelconque dans un mélange acétone/toluène, en ce qu'on ensemence cette solution saturée par quelques cristaux d'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe epsilon, puis
20 en ce qu'on concentre la solution par évaporation de l'acétone.

25 7. Procédé de synthèse selon la revendication 6, caractérisé en ce que le rapport volumique acétone/toluène respectivement, est compris entre 10/90 et 50/50.

30 8. Procédé de synthèse selon la revendication 6, caractérisé en ce que la quantité de semence représente entre 0,1% et 1% en poids de la quantité d'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe quelconque.

9. Procédé de synthèse selon la revendication 6, caractérisé en ce que lors de l'opération de concentration de la solution par évaporation de l'acétone, la température n'excède pas 30°C.

10. Procédé de synthèse selon la revendication 6, caractérisé en ce qu'on réalise d'abord une solution saturée d'hexanitrohexaazaisowurtzitane dans l'acétone et en ce qu'on ajoute ensuite le toluène.

5

10

15

20

25

30

35

L'invention est relative à une nouvelle forme polymorphe, appelée epsilon, de l'hexanitrohexaazaisowurtzitane, ainsi qu'à la synthèse de cette forme.

Selon un second procédé, on réalise une solution saturée d'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme polymorphe quelconque dans un mélange acétone/toluène, on ensemence par quelques cristaux d'hexanitrohexaazaisowurtzitane de forme epsilon, puis on concentre la solution par évaporation de l'acétone.

L'hexanitrohexaazaisowurtzitane, notamment la forme epsilon particulièrement dense, est utile comme charge explosive ou oxydante dans les compositions pyrotechniques.



RAPPORT DE RECHERCHE PRÉLIMINAIRE

établi sur la base des dernières revendications
déposées avant le commencement de la recherche

N° d'enregistrement
national

FA 625242
FR 9603209

DOCUMENTS CONSIDÉRÉS COMME PERTINENTS		Revendication(s) concernée(s)	Classement attribué à l'invention par l'INPI
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes		
X,D	FOLTZ, M. FRANCES: "Thermal stability of. epsilon.- hexanitrohexaazaisowurtzitane in an Estane formulation" PROPELLANTS, EXPLOSIVES, PYROTECHNICS (1994), 19(2), 63-9 , XP008015542 * tableau 1 *	1	C07D487/22 C06B25/34
A,D	FOLTZ, M. FRANCES ET AL: "The thermal stability of the polymorphs of hexanitrohexaazaisowurtzitane. Part I" PROPELLANTS, EXPLOSIVES, PYROTECHNICS (1994), 19(1), 19-25 , XP008015543 * page 23, colonne 1, alinéa 2 - page 25, alinéa 1 *	2,6	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHÉS (Int.CL.7)
			C07D
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
27 mars 2003		Alfaro Faus, I	
CATÉGORIE DES DOCUMENTS CITÉS X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure. D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant			