

Cette thèse, qui combine chimie supramoléculaire et chimie des polymères, vise à développer de nouveaux outils pour la formation de polymères supramoléculaires et de matériaux stimulables. Elle s'articule autour de deux projets exploratoires aux objectifs distincts. Le premier travail consiste à élaborer une méthode de contrôle de la taille des polymères supramoléculaires en usant de l'avantage des polymères covalents à pouvoir être synthétisés de manière précise et contrôlée. Cet objectif nous a conduit à concevoir trois nouveaux dérivés triarylamines ainsi que des gabarits polymère de dispersité contrôlée. Nous avons également étudié la formation des hybrides gabarit-triarylamines par une méthode originale de formation de complexes hétéroleptiques de terpyridines. Le deuxième travail vise à développer de nouveaux matériaux stimulables à partir de systèmes à cliquet énergétique. Pour atteindre cet objectif, nous avons conçu de nouveaux polymères à base d'éther couronnes et de pompes supramoléculaires photochimiques. L'interaction entre ces deux polymères combinée au mouvement des pompes sous irradiation lumineuse permet de créer un réseau de polymères mécaniquement entrelacés. En travaillant dans différentes conditions mises au point au cours de cette thèse (concentration, taille, ratio et temps d'irradiation), la formation d'objets discrets de type nanoparticule a été observée par différentes techniques microscopiques et physiques.

Mots-clés : Chimie supramoléculaire, polymères covalents, triarylamines, machines moléculaires, polymérisation RAFT, matériaux stimulables, complexes métalliques, systèmes hors-équilibre.

This thesis, which combines supramolecular and polymer chemistry, aims to develop new tools for the formation of supramolecular polymers and responsive materials. It deals with two exploratory projects having distinct objectives. The first aims to developing a method for controlling the size of supramolecular polymers, by taking advantage of the precise and controlled synthesis of covalent polymers. This objective has led us to design three new triarylamine derivatives and polymer templates with controlled dispersity. We have also studied the formation of template-triarylamine hybrids using an original method of heteroleptic terpyridine complex formation. The second project aims to develop new responsive materials based on energy ratchet systems. To achieve this goal, we have designed new polymers incorporating either crown ethers as side chains or photochemical supramolecular pumps as chain ends. The interaction between these two polymers, combined with the movement of the pumps under light irradiation, creates a network of mechanically intertwined polymers. Working under different conditions developed during this thesis (concentration, size, ratio and irradiation time), the formation of discrete nanoparticle-like objects was observed by various microscopic and physical techniques.

Keywords: Supramolecular chemistry, covalent polymers, triarylamines, molecular machines, RAFT polymerization, stimuli-responsive materials, metal complexes, out-of-equilibrium systems.