



УКРАЇНА

(19) **UA** (11) **162600** (13) **U**
(51) МПК (2026.01)
C07C 25/13 (2006.01)
C08G 18/00
C08G 73/10 (2006.01)

НАЦІОНАЛЬНИЙ ОРГАН
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ ВЛАСНОСТІ
ДЕРЖАВНА ОРГАНІЗАЦІЯ
"УКРАЇНСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ
ОФІС ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ
ВЛАСНОСТІ ТА ІННОВАЦІЙ"

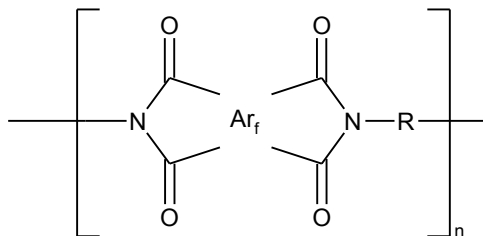
(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА КОРИСНУ МОДЕЛЬ

(21) Номер заявки: u 2025 03208	(72) Винахідник(и): Мужев Валерій Вячеславович (UA), Пилипенко Андрій Миколайович (UA), Мишак Володимир Дмитрович (UA), Шекера Олег Васильович (UA)
(22) Дата подання заявки: 02.07.2025	
(24) Дата, з якої є чинними права інтелектуальної власності: 09.04.2026	
(46) Публікація відомостей про державну реєстрацію: 08.04.2026, Бюл.№ 14	(73) Володілець (володільці): ІНСТИТУТ ХІМІЇ ВИСОКОМОЛЕКУЛЯРНИХ СПОЛУК НАЦІОНАЛЬНОЇ АКАДЕМІЇ НАУК УКРАЇНИ, Харківське шосе, 48, м. Київ, 02160 (UA)

(54) СПОСІБ ОТРИМАННЯ ФЛУОРОВІСНИХ ПОЛІЕТЕРІМІДІВ ЯК ТЕРМОСТІЙКИХ ПОЛІМЕРІВ

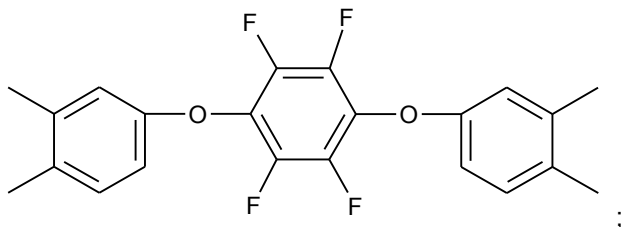
(57) Реферат:

Спосіб отримання флуоровісних поліетерімідів (ФПЕІ) як термостійких полімерів, загальної формули:



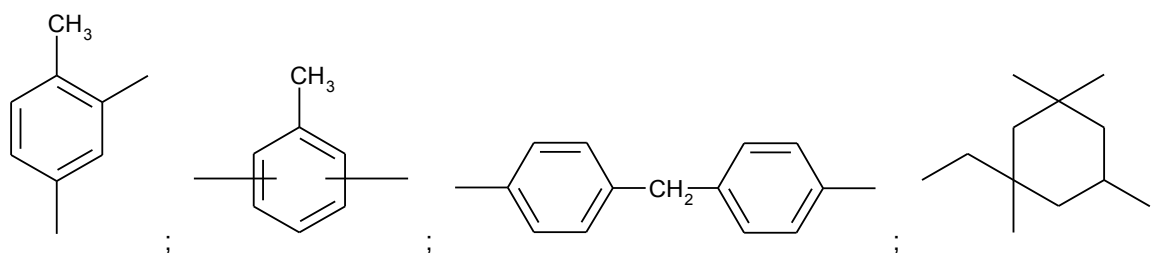
n=40-60;

де: Ar-



R-

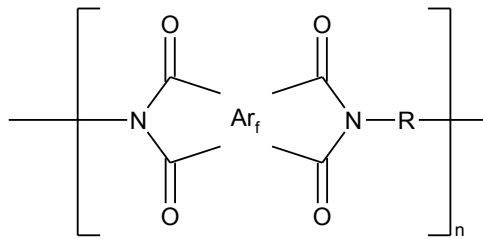
UA 162600 U



який здійснюють шляхом проведення реакції поліконденсації різних за хімічною будовою діізоціанатів і діангідриду в одну стадію, в розчині апротонного полярного розчинника, взаємодією еквімолярних кількостей діізоціанату та діангідриду, відповідно. При цьому використовують діангідрид, який містить у складі тетрафлуоробензольний фрагмент.

Корисна модель стосується способу отримання високомолекулярних сполук, які містять вуглець з воднем, галогенами та киснем або без них, які зв'язані з атомом вуглецю шестичленного ароматичного ядра, а саме флуоровмісних поліетерімідів (ФПЕІ), загальної формули:

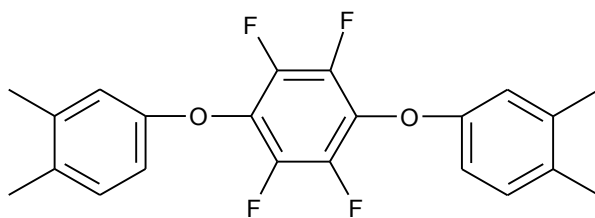
5



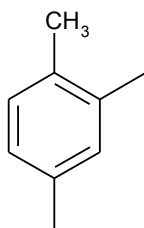
$n = 40-60$;

де: Ar_f -

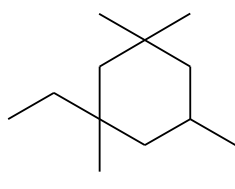
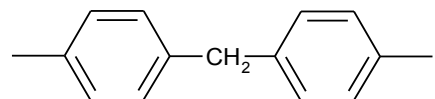
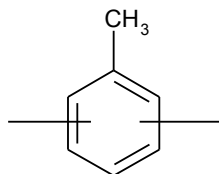
10



R -



15



як термостійкі полімери.

20

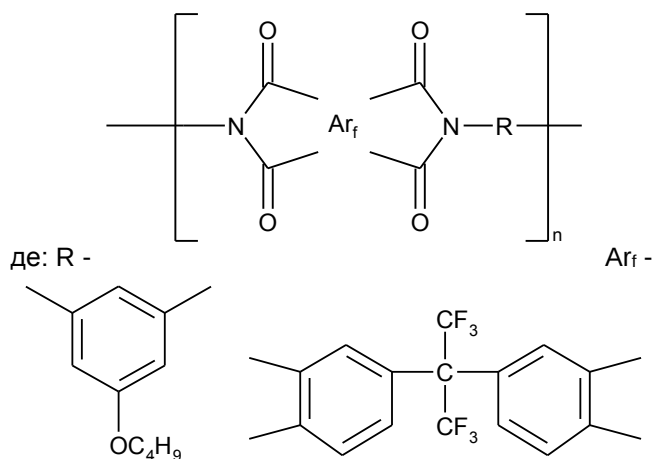
Вказані ФПЕІ можуть знайти застосування як термостійкі полімерні матеріали та допанти в оптиці і електроніці, аерокосмічній промисловості та інших галузях промисловості. Синтезовані ФПЕІ являють собою порошкоподібні речовини, які характеризуються високою термічною стійкістю, розчинністю в типових полярних апротонних розчинниках, таких як диметилацетамід (ДМАА), диметилформамід, диметилсульфоксид, ін.

25

Відомі флуоровмісні полііміди (ФПІ), які отримують поліконденсацією різних за хімічною будовою діізоціанатів і діангідридів [1-3]. Синтез проводять в одну стадію, взаємодією еквімолярних кількостей діізоціанату та діангідриду, відповідно, в розчині апротонного полярного розчинника, за наявності або без каталізатора, за підвищеної температури протягом декількох годин. Описані ФПІ [3-5] отримані поліконденсацією діізоціанатів і 4,4'-гексафлуороізопропілідендифталевого ангідриду. Синтезовані ФПІ характеризуються високою термічною стійкістю та можуть знайти застосування як термостабільні матеріали.

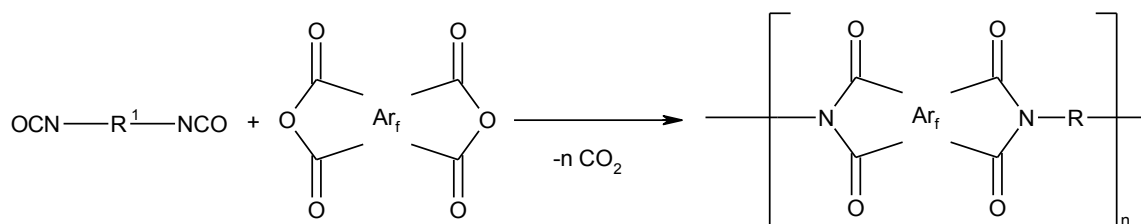
30

Найбільш близькою за хімічною будовою до сполук, які заявляються, є ФПІ загальної формули:

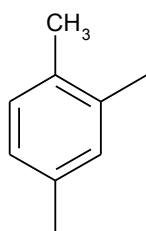


5 який отримують на основі діізоціанату (R) та 4,4'-(гексафлуороізопропіліден)-дифталевого ангідриду (Ar_f) [5]. Отриманий ФПІ характеризується 10 %-вою втратою ваги, що відповідає показнику 410 °C [5]. Однак відомі ФПІ [1-5] не забезпечують необхідний комплекс властивостей для використання їх в сучасних технологіях.

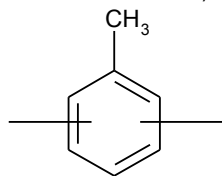
10 Задачею запропонованого способу отримання є синтез нових флуоровмісних поліетерімідів, які містять у складі діангідриду тетрафлуоробензольний фрагмент, як притаманний для термостійких полімерів, що відповідають вказаній нижче загальній формулі:



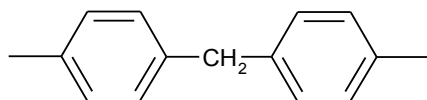
15 n=40-60;
де: R¹ =



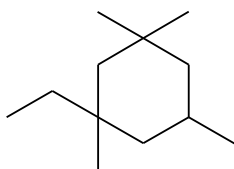
- 2,4-толуїлендіізоціанат (2,4-ТДІ);



- 2,4/2,6-толуїлендіізоціанат (2,4/2,6-ТДІ (80/20));

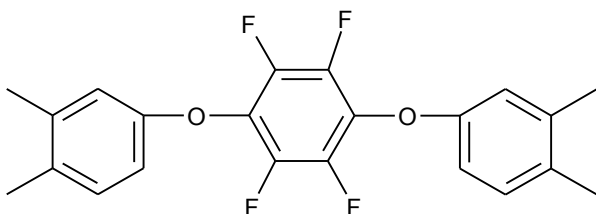


- 4,4'-дифенілметандіізоціанат(ДФМДІЦ);



- ізофорондіізоціанат (ІФДІЦ);

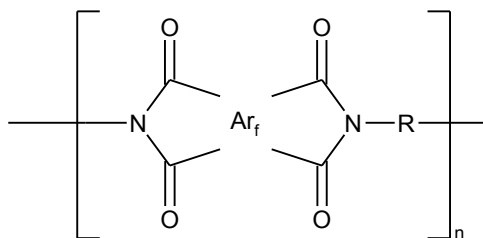
Ar_f -



5

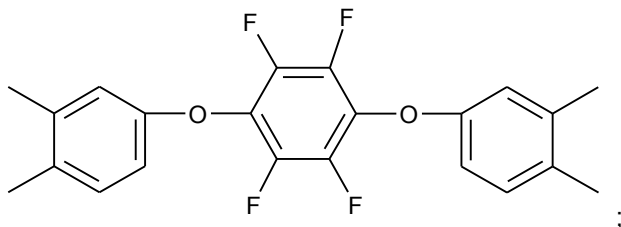
флуоровмісний діангідрид (ФДА).

Поставлена задача вирішується тим, що у способі отримання флуоровмісних поліетерімідів (ФПЕІ) як термостійких полімерів, загальної формули:



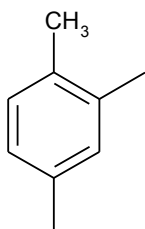
10

n=40-60;
де: Ar_f -

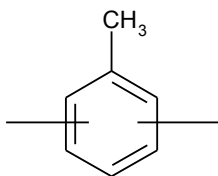


15

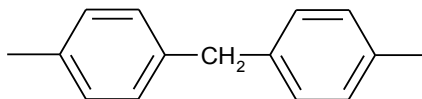
R -



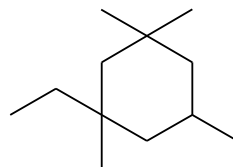
;



;



;



,

20

який здійснюють шляхом проведення реакції поліконденсації різних за хімічною будовою діізоціанатів і діангідриду в одну стадію, в розчині апротонного полярного розчинника, взаємодією еквімолярних кількостей діізоціанату та діангідриду, відповідно, згідно з корисною моделлю, використовують діангідрид, який містить у складі тетрафлуоробензольний фрагмент.

25

Вказані флуоровмісні поліетерімідиди, їх спосіб отримання та властивості в літературі не описані.

Суть запропонованої корисної моделі пояснюється прикладами.

Приклад 1.

Синтез ФПЕІ на основі ІФДІЦ (R) і ФДА (Ar), (ФПЕІ-1).

В тригорлий реактор, який забезпечений мішалкою, термометром, системою, яка забезпечує подачу інертного газу (азоту), вносили 0,508 г (0,0023 моль) ІФДІЦ у розчині 5 мл ДМАА. Потім, при постійному перемішуванні, прибавляли 1,1 г (0,0023 моль) ФДА в 10 мл ДММА. Реакційну суміш перемішували за нульової температури протягом 30 хв. Потім, поступово піднімали температуру до 90 °С. Реакцію проводили при постійному перемішуванні протягом двох годин. Надалі температуру піднімали до 120 °С та витримували реакційну суміш, при постійному перемішуванні, протягом 15 годин. Після закінчення реакції розчин ФПЕІ-1 охолоджували до кімнатної температури та висаджували в етиловий спирт, переосаджували із дистильованої води. Отриманий таким способом полімер висушували добу за кімнатної температури та 8 годин у вакуумній сушильній шафі (1-2 гПа) за температури 60-65 °С. Синтезований ФПЕІ-1 являє собою порошкоподібний полімер світло-коричневого кольору, розчинний в типових органічних апротонних розчинниках.

Хімічна будова ФПЕІ-1 доведена даними ІЧ-спектроскопії.

Вихід - 94 %.

ІЧ-спектр (cm^{-1}): 1720, 1775 ($\text{C}=\text{O}$), 1385 ($-\text{C}\equiv\text{N}$).

$T_{10}(\text{°C})$ - 415.

Приклад 2.

Синтез ФПЕІ на основі ДФМДІЦ (R^1) і ФДА (Ar), (ФПЕІ-2).

В тригорлий реактор, який забезпечений мішалкою, термометром, системою, яка забезпечує подачу інертного газу (азот), вносили 0,5 г (0,002 моль) ДФМДІЦ в розчині 7 мл ДМАА. Потім, при постійному перемішуванні, прибавляли 0,948 г (0,002 моль) ФДА в 10 мл ДММА. Реакційну суміш перемішували за нульової температури протягом 30 хв. Потім, поступово піднімали температуру до 90 °С. Реакцію проводили при постійному перемішуванні протягом двох годин. Надалі температуру піднімали до 120 °С та витримували реакційну суміш, при постійному перемішуванні, протягом 15 годин. Після закінчення реакції розчин ФПЕІ-2 охолоджували до кімнатної температури та висаджували в етиловий спирт, переосаджували із дистильованої води. Отриманий таким способом полімер висушували добу за кімнатної температури та 8 годин у вакуумній сушильній шафі (1-2 гПа) за температури 60-65 °С. Синтезований ФПЕІ-2 являє собою порошкоподібний полімер світло-коричневого кольору, розчинний в типових органічних апротонних розчинниках.

Хімічна будова ФПЕІ-2 доведена даними ІЧ-спектроскопії.

Вихід - 97 %.

ІЧ-спектр (cm^{-1}): 1720, 1775 ($\text{C}=\text{O}$), 1385 ($-\text{C}\equiv\text{N}$).

$T_{10}(\text{°C})$ - 430.

Приклад 3.

Синтез ФПЕІ на основі 2,4/2,6-ТДІ (R^1) і ФДА (Ar), (ФПЕІ-3).

В тригорлий реактор, який забезпечений мішалкою, термометром, системою, яка забезпечує подачу інертного газу (азот), вносили 0,4 г (0,0023 моль) 2,4/2,6-ТДІ в розчині 5 мл ДМАА. Потім, при постійному перемішуванні, прибавляли 1,09 г (0,0023 моль) ФДА в 10 мл ДММА. Реакційну суміш перемішували за нульової температури протягом 30 хв. Потім, поступово піднімали температуру до 90 °С. Реакцію проводили при постійному перемішуванні протягом двох годин. Надалі температуру піднімали до 120 °С та витримували реакційну суміш, при постійному перемішуванні, протягом 15 годин. Після закінчення реакції розчин ФПЕІ-3 охолоджували до кімнатної температури та висаджували в етиловий спирт, переосаджували із дистильованої води. Отриманий таким способом полімер висушували добу за кімнатної температури та 8 годин у вакуумній сушильній шафі (1-2 гПа) за температури 60-65 °С. Синтезований ФПЕІ-3 являє собою порошкоподібний полімер світло-коричневого кольору, розчинний в типових органічних апротонних розчинниках.

Хімічна будова ФПЕІ-3 доведена даними ІЧ-спектроскопії.

Вихід - 96 %.

ІЧ-спектр (cm^{-1}): 1720, 1775 ($\text{C}=\text{O}$), 1385 ($-\text{C}\equiv\text{N}$).

$T_{10}(\text{°C})$ - 415.

Приклад 4.

Синтез ФПЕІ на основі 2,4-ТДІ (R^1) і ФДА (Ar), (ФПЕІ-4).

В тригорлий реактор, який забезпечений мішалкою, термометром, системою, яка забезпечує подачу інертного газу (азот), вносили 0,4 г (0,0023 моль) 2,4-ТДІ в розчині 5 мл ДМАА. Потім, при постійному перемішуванні, прибавляли 1,09 г (0,0023 моль) ФДА в 10 мл ДММА. Реакційну

суміш перемішували за нульової температури протягом 30 хв. Потім поступово піднімали температуру до 90 °С. Реакцію проводили при постійному перемішуванні протягом двох годин. Потім, температуру піднімали до 120 °С та витримували реакційну суміш, при постійному перемішуванні, протягом 15 годин. Після закінчення реакції розчин ФПЕІ-4 охолоджували до кімнатної температури та висаджували в етиловий спирт, переосаджували із дистильованої води. Отриманий таким способом полімер висушували добу за кімнатної температури та 8 годин у вакуумній сушильній шафі (1-2 гПа) за температури 60-65 °С. Синтезований ФПЕІ-4 являє собою порошкоподібний полімер світло-коричневого кольору, розчинний в типових органічних апротонних розчинниках.

Хімічна будова ФПЕІ-4 доведена даними ІЧ-спектроскопії.

Вихід - 95 %.

ІЧ-спектр (см⁻¹): 1720, 1775 (C=O), 1385 (-C≡N).

T₁₀%(°C) - 420.

Встановлено, що синтезовані ФПЕІ 1-4 характеризуються 10 %-вою втратою ваги, яка перебуває в межах 415-430 °С, що перевищує показник запропонованого аналога - 410 °С [5].

Отримані ФПЕІ характеризуються високою термічною стійкістю, розчинністю в типових полярних апротонних розчинниках і можуть бути використані як термостійкі полімери.

Джерела інформації:

1. Xiao-Yan Liu, Mao-Sheng Zhan, Kai Wang. Thermal properties of the polyimide foam prepared from aromatic dianhydride and isocyanate // High Perform. Polym. - 2012. - Vol. 24, No 5. - P. 373-378.

2. Thiruvassagam P., B Saritha B., Hari N. Poly(ether-imide)s with flexible linkages and kinks: Synthesis, processability, thermal stability, and dielectric studies // High Perform. Polym. - 2015. - P. 1-9.

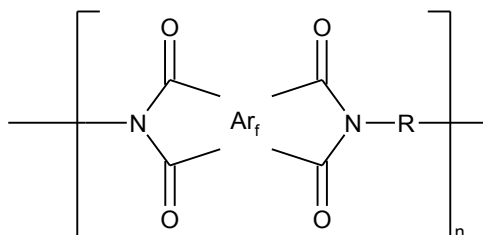
3. Fabrication of Aromatic Polyimide Films Derived from Diisocyanate with Fluorinated Dianhydride / N. Mustafa, T. Kaneko, K. Takada et al. // Sains Malaysiana. - 2023. - Vol. 52, No 5. - P. 1567-1579.

4. Synthesis and characterization of polyimides from diisocyanate with enhanced solubility and thermostability properties via direct low-temperature one-step polymerization in NMP solvent / N. Mustafa, T. Kaneko, K. Takada et al. // Polym. Bull. - 2023. - Vol. 80. - P. 9163-9179.

5. Sarkar A., Halhali M.R., Kulkarni A.D., Wadgaonkar P.P. Polyimides Based on Aromatic Diisocyanates Containing Pendent Flexible Alkoxy Chains and Aromatic Dianhydrides: Synthesis, Characterization and Liquid-Crystal Alignment Properties // J. Appl. Polym. Sci. - 2009. - Vol. 112. - P. 461-472.

ФОРМУЛА КОРИСНОЇ МОДЕЛІ

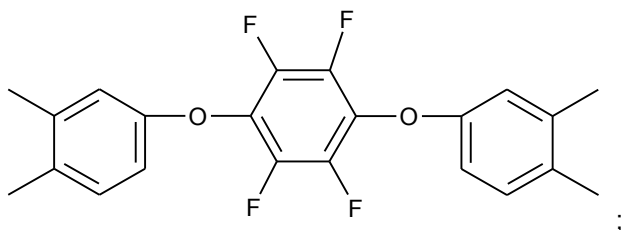
Спосіб отримання флуоровмісних поліетерімідів (ФПЕІ) як термостійких полімерів, загальної формули:



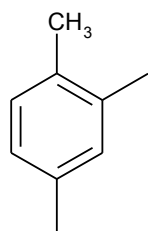
де:

n=40-60;

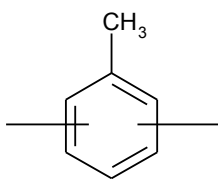
Ar_f -



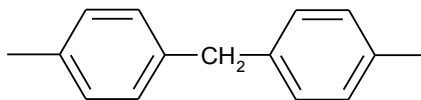
R -



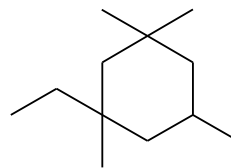
;



;



;



,

5

який здійснюють шляхом проведення реакції поліконденсації різних за хімічною будовою діізоціанатів і діангідриду в одну стадію, в розчині апротонного полярного розчинника, взаємодією еквімолярних кількостей діізоціанату та діангідриду, відповідно, який **відрізняється** тим, що використовують діангідрид, який містить у складі тетрафлуоробензольний фрагмент.

10