

УДК 541.64.539.199

НОВЫЕ ЖЕСТКОЦЕПНЫЕ СОПОЛИНАФТОИЛЕНИМИДОБЕНЗИМИДАЗОЛЫ И ПЛЕНКИ НА ИХ ОСНОВЕ¹

© 1994 г. И. И. Пономарев*, О. Г. Никольский**,
Ю. А. Волкова*, А. В. Захаров**

**Институт элементоорганических соединений им. А.Н. Несмеянова Российской академии наук
117813 Москва, ул. Вавилова, 28*

***Институт синтетических полимерных материалов Российской академии наук
117393 Москва, ул. Профсоюзная, 70*

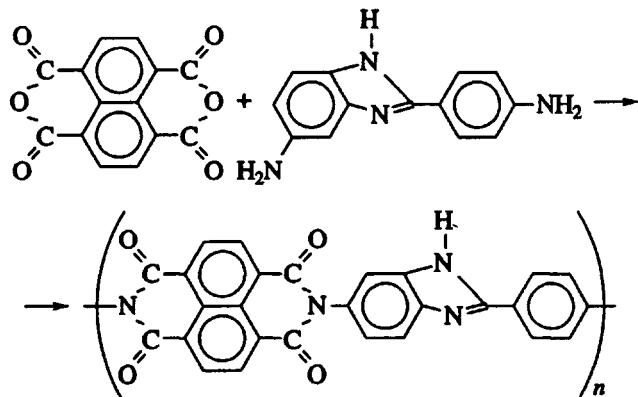
Поступила в редакцию 14.12.93 г.

Синтезированы новые сополинафтоиленимиидобензимидазолы на основе диангидрида 1,4,5,8-нафталинетракарбоновой кислоты, 5(6)-амино-2-(*n*-аминофенил)бензимидазола и стержнеобразных ароматических диаминов. Прочностные показатели пленок на основе полученных полимеров как в исходном, так и ориентированном состояниях резко возрастают при 20 - 40 мол. % содержании в сополимере стержнеобразных фрагментов. Разрывная прочность ориентированного пленочного материала на основе полимера, содержащего 30 мол. % звеньев дифенила, достигает 1.5 ГПа при модуле упругости 38 ГПа.

Полигетероарилены (ПГА) представляют собой полимеры, состоящие из ароматических карбо- и гетероциклов. Особый интерес к ПГА обусловлен тем, что помимо высокой термо-, огне-, радиационной и хемостойкости они образуют волокна и пленки с уникальными прочностными показателями. Кроме того, являясь полисопряженными системами, ПГА привлекли внимание исследователей как потенциальные кандидаты для создания на их основе электропроводящих материалов и нелинейных оптических устройств [1 - 3].

Одним из перспективных классов ПГА являются полинафтоиленимииды (ПНИ) – продукты поликонденсации бис-нафталевых ангидридов и ароматических диаминов. ПНИ, содержащие в своем составе шестичленные имидные циклы, отличаются от наиболее распространенных ПГА (полифталимидов) повышенными термическими показателями и гидролитической устойчивостью [4].

Ранее нами был синтезирован новый жесткоцепной (сегмент Кона $A = 320 \text{ \AA}$) высокомолекулярный ($M \leq 2.5 \times 10^5$) растворимый в органических растворителях полинафтоиленимиидобензимидазол (ПНИБ) на основе диангидрида 1,4,5,8-нафталинетракарбоновой кислоты (ДНТК) и 5(6)-амино-2-(*n*-аминофенил)бензимидазола (ДАБ):



Из реакционных растворов ПНИБ в фенольных растворителях были получены изотропные пленки, названные ИПЛОН, обладающие уникальными прочностными показателями ($\sigma = 470 \text{ МПа}$, $\varepsilon = 35\%$, $E = 5000 \text{ МПа}$) [5]. Исследование пленок ПНИБ методом динамического механического анализа показало, что исходные пленки обладают непрерывным спектром релаксационных переходов. Наличие различных мод движения (начиная от β -перехода в области 193 К) является причиной значительной деформации жесткоцепного полимера. Развитие такой деформации при высоком модуле упругости обуславливает высокие значения разрывной прочности. Наличие непрерывного спектра релаксационных переходов предопределяет возможность ориентации полимера в широком интервале скоростей и температур. При ориентации (до 60%) получены анизотропные пленки ИПЛОН с $\sigma = 930 \text{ МПа}$,

¹ Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (код проекта 93-03-18510).

Таблица 1. Рассчитанные значения сегментов Куна для ПНИ различного строения

Образец, №	Строение звена	$A, \text{ \AA}$
1		280
2		380
3		700
4		∞
5		∞

$\epsilon = 10\%$, $E = 20000$ МПа. По этим показателям ИПЛОН не имеет аналогов среди аморфных ПГА и по удельной прочности превосходит конструкционные стали в 5 - 6 раз [5].

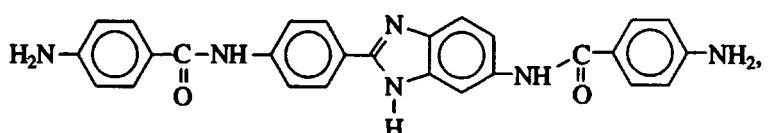
Столь высокие прочностные показатели пленок ИПЛОН можно связать с химическим строением ПНИБ, в частности с высокой равновесной жесткостью цепи ($A = 320 \text{ \AA}$) этого полимера, а также системы мощных диполь-дипольных взаимодействий и водородных связей за счет наличия полярных карбонильных групп нафтоиленимидного и групп NH бензимидазольного циклов.

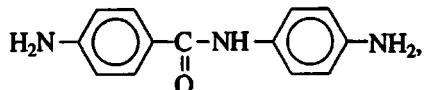
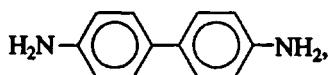
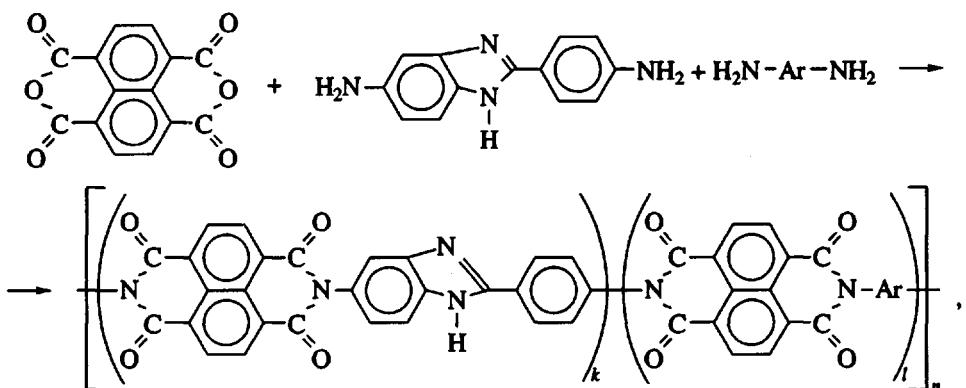
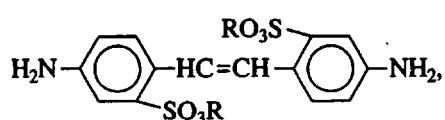
Цель настоящей работы – синтез новых жесткоцепных ПНИ, получение на их основе пленочных материалов, исследование их прочностных показателей, изучение влияния увеличения жесткости полимерной цепи за счет введения в состав ПНИБ стержнеобразных фрагментов (в том чис-

ле, способных к образованию более плотной и совершенной сетки водородных связей) на физико-механические свойства исходных и ориентированных пленок.

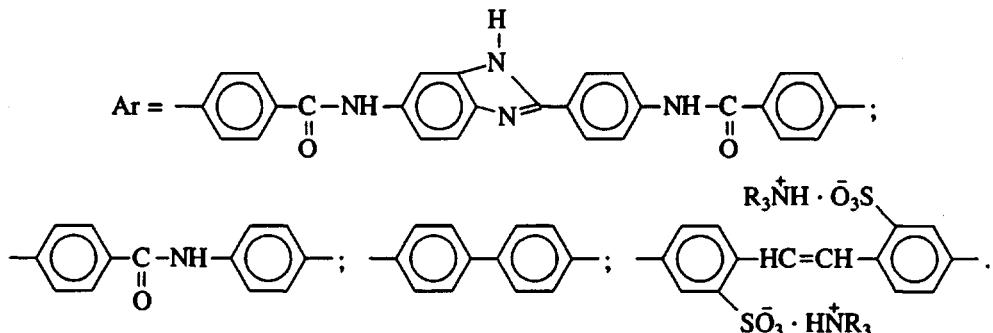
РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Дальнейшее повышение прочностных показателей пленок на основе ПНИБ может быть достигнуто за счет увеличения жесткости цепи или за счет образования в полимере более плотной и совершенной сетки водородных связей. Для этого в синтезе ПНИБ было решено использовать наряду с ДАБ ароматические диамины, на основе которых могли бы быть получены ПНИ с повышенной равновесной жесткостью. В качестве сомономеров использовали *n*-аминобензоилпроизводное 5(6)-амино-2-(*n*-аминофенил)бензимидазола (ДАБИ)



4,4'-диаминобензанилид (ДАБА)**4,4'-диаминодифенил (ДФ)****4,4'-диаминостильбен-2,2'-дисульфокислота (ДАСК)**

где



Реакцию проводили в среде фенолов (фенол, *n*-хлор- и *m*-хлорфенолы) в присутствии в качестве катализаторов бензойной кислоты, бензимидазола, имидазола, *n*-оксибензойной кислоты при 70 - 160°C в течение 8 - 20 ч в токе аргона. Затем реакционные растворы разбавляли до концентрации 2 - 5 мас. %, фильтровали через стеклянные пористые фильтры. Пленки получали поливом фильтрованных растворов на стеклянную подложку с последующим испарением растворителя при 80 - 100°C. После этого пленки подвергали сушке на стекле при 140 - 150°C в вакууме

где R = H, H⁺N₃. Содержание их в цепи ПНИБ варьировалось в широких пределах (от 5 до 60 мол. %).

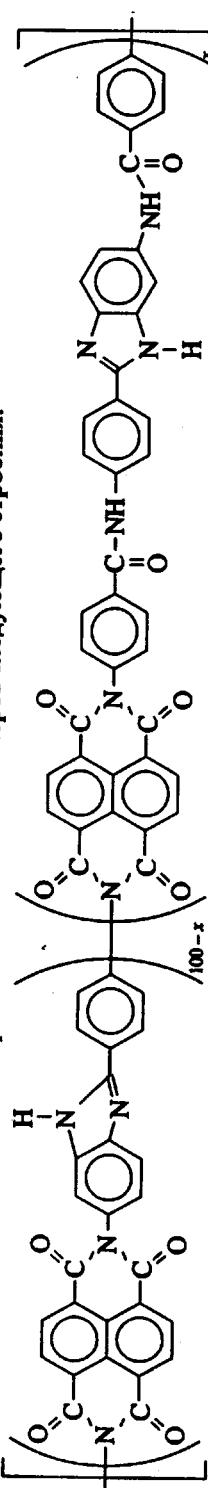
Как видно из табл. 1, в которой представлены рассчитанные методом Монте-Карло значения сегментов Куна "гомополимеров", все ПНИ имеют более высокие значения A по сравнению с ПНИБ, что должно приводить к повышению равновесной жесткости сополинафтоиленнимидобензимидазолов и соответственно упрочнению пленочных материалов на их основе. Кроме того, сополимеры ПНИБ и ПНИ (табл. 1, образцы 2, 3, 5), имеющие в своем составе помимо карбонильных и вторичных аминогрупп еще и полярные амидные и сульфогруппы, потенциально могут образовывать более плотную и совершенную систему водородных связей и тем самым способствовать упрочнению пленочных материалов.

Сополимеры получали по следующей схеме:

($p_{\text{ост}} = 0.1 \text{ мм рт. ст.}$) в течение 6 - 8 ч. Ориентационную вытяжку пленок проводили в среде органических растворителей – ДМФА, ДМАА, метаноле, воде.

В табл. 2 представлены некоторые свойства сополимеров ПНИБ, содержащих в своем составе фрагменты *n*-аминобензоилпроизводного 5(6)-амино-2-(*n*-аминофенил)бензимидазола. Сополимеры имеют высокую вязкость, а деформационно-прочностные показатели σ , E , ε полученных из них пленок в большинстве случаев превы-

Таблица 2. Свойства пленочных материалов на основе сополимеров следующего строения:



Образец, №	x , мол. %	$\eta_{\text{пр}}^{\text{D}}$ дл/г (0.1%-ный раствор H_2SO_4)	σ , МПа		ε , %	$E \times 10^{-3}$, МПа
			320 ± 10	25 ± 5		
1	0	9.8	320 ± 10	25 ± 5	4.5 ± 0.5	
2	10	2.8	317 ± 24	25 ± 6	8.3 ± 0.3	
3	15	4.3	362 ± 9	30 ± 3	8.7 ± 1.1	
4	20	5.8	405 ± 38	30 ± 8	7.8 ± 0.6	
			(760)*	(7)*	(17)*	
5	25	5.2	319 ± 30	32 ± 6	6.1 ± 0.3	
6	30	4.8	258 ± 11	24 ± 3	7.2 ± 0.3	
7	50	4.2	304 ± 24	15 ± 4	9.1 ± 0.3	
			(680)*	(5)*	(22)*	

* Ориентация пленки в ДМФА 60%.

шают аналогичные показатели для пленки ИПЛОН.

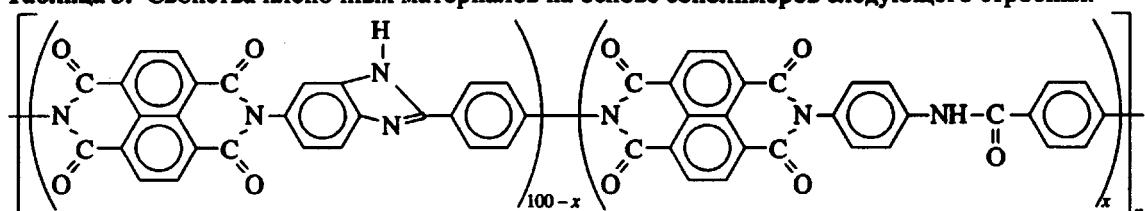
Введение в цепь ПНИБ более жестких *n*-бензамидных звеньев (табл. 3) также приводит к возрастанию прочностных свойств пленок по сравнению с материалом ИПЛОН при довольно значительном уменьшении их эластичности.

Стержнеобразные фрагменты дифенила, введенные в цепь ПНИБ (табл. 4), оказывают более существенное влияние на σ и E пленок сополимеров, чем в случае использования в качестве сомономеров ДАБИ и ДАБА. Ориентация пленок со-

полимеров, содержащих 20 и 30 мол. % звеньев дифенила, позволила получить образцы с уникальными прочностными свойствами: σ достигает 1.5 ГПа при $E = 38$ ГПа и $\epsilon = 4\%$. Такие характеристики пленок для аморфных гетероциклических полимеров получены впервые. Удельная прочность ориентированной пленки превосходит удельную прочность конструкционных сталей в 8 - 10 раз.

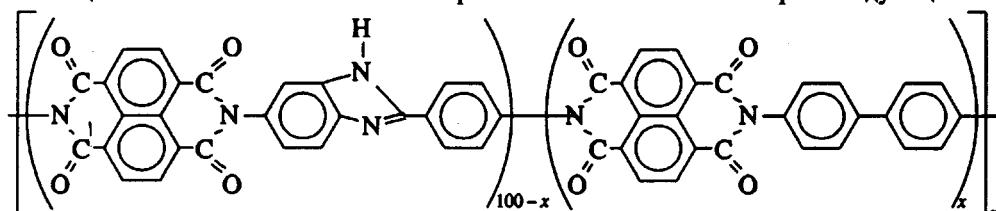
Казалось, что использование в качестве сомономера стержнеобразной ДАСК, содержащей высокополярные сульфогруппы, позволит еще

Таблица 3. Свойства пленочных материалов на основе сополимеров следующего строения:



Образец, №	x , мол. %	$\eta_{\text{пр}}$ (0.1%-ный раствор H_2SO_4), дл/г	σ, МПа	ε, %	$E \times 10^{-3}$, МПа
1	5	11.2	321 ± 5	15 ± 3	8.7 ± 0.1
2	10	13.2	356 ± 6	15 ± 2	9.8 ± 0.4
3	15	15.3	362 ± 22	13 ± 2	8.8 ± 1.7
4	20	18.1	388 ± 44	7 ± 1	9.7 ± 0.5
5	25	9.5	324 ± 12	22 ± 8	7.1 ± 0.9
6	30	4.6	327 ± 4	14 ± 1	7.7 ± 1.0
7	40	4.5	362 ± 6	9 ± 4	11.3 ± 1.3
8	50	3.8	353 ± 7	20 ± 3	8.1 ± 2.7

Таблица 4. Свойства пленочных материалов на основе сополимеров следующего строения:



Образец, №	x , мол. %	$\eta_{\text{пр}}$ (0.1%-ный раствор H_2SO_4), дл/г	σ, МПа	ε, %	$E \times 10^{-3}$, МПа
1	0	9.8	320 ± 10	25 ± 5	4.5 ± 0.5
2	5	11.5	384 ± 21	17 ± 4	10.0 ± 0.4
3	10	13.0	443 ± 9	17 ± 1	12.9 ± 0.5
4	15	8.9	417 ± 19	17 ± 2	12.0 ± 0.8
5	20	11.2	446 ± 19 (1174)*	17 ± 2 (4)*	15.2 ± 1.6 (29.9)*
6	25	9.4	418 ± 14	20 ± 4	10.7 ± 0.3
7	30	15.3	418 ± 33 (1500)*	20 ± 4 (4)*	10.4 ± 0.2 (38.0)*
8	40	Не растворим в H_2SO_4	371 ± 18	19 ± 4	9.7 ± 0.2
9	45	То же	316 ± 5	15 ± 3	9.5 ± 0.2
10	50	»	304 ± 6	14 ± 3	9.4 ± 0.4
11	60	»	413 ± 8	7 ± 3	14.0 ± 1.3

* Ориентация пленки 60%.

больше упрочнить пленки сополимеров за счет возможности образования редких сульфамидных сшивок путем реакции сульфогрупп с вторичными аминогруппами бензимидазольного цикла. Однако судя по данным табл. 5, физико-механические характеристики пленок сополимеров, содержащих фрагменты ДАСК, сравнимы с пленками сополимеров ПНИБ (ДАБИ) и ПНИБ (ДАБА). Особенно сильно влияние сульфогрупп на эластичность пленок, которая значительно уменьшается ($\epsilon = 5 - 6\%$) при содержании ДАСК 20 мол. %.

При разработке синтеза сополимеров, содержащих звенья ДАСК, оказалось, что исходная ДАСК практически не растворима в фенольных растворителях и не реагирует с ДНТК, по-видимому, за счет образования устойчивой солевой формы SO_3^- , NH_3^+ -групп. Для "солюбилизации" ДАСК в реакционный раствор вводили эквимолярное (по отношению к сульфогруппам) количество высокоосновных третичных аминов (триэтиламин, имидазол и т.д.). При этом ДАСК быстро вступала в реакцию поликонденсации, и были получены высокомолекулярные сополимеры.

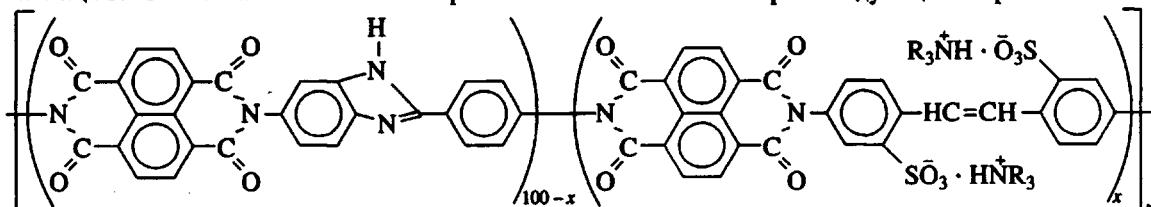
Как видно из представленных в табл. 5 данных, присутствие в составе ПНИБ фрагментов ДАСК приводит к повышению как прочности, так и модуля упругости пленок, однако, увеличение содержания фрагментов ДАСК выше 30 мол. % вызывает уменьшение эластичности, выше 50 мол. % – постепенное снижение значений σ до значений, характерных для пленок ИПЛОН. По всей видимости, такое поведение сополимеров, содержащих более 50 мол. % ДАСК, связано со сравнительно невысокой вязкостью сополимеров

($\eta_{\text{пп}} < 2 \text{ дL/g}$) и с их склонностью к образованию кристаллосольватов. На образование последних указывает помутнение растворов и пленок при содержании в сополимерах более 60 мол. % ДАСК.

Оптимальными свойствами обладает пленка, полученная из сополимера, содержащего 30 мол. % ДАСК ($\sigma = 430 \text{ МПа}$, $E = 15 \text{ ГПа}$, $\epsilon = 14\%$). Весьма интересным фактом является высокая устойчивость этой пленки к действию органических растворителей. Так, в среде ДМФА, применявшегося ранее в качестве растворителя для ориентации ПНИБ-пленок, физико-механические показатели пленок не изменяются. Зато резко возрастает сродство сополимеров к воде, что открывает уникальную возможность низкотемпературной ориентации пленок таких сополимеров. Ориентация в воде при 20°C пленки ПНИБ, содержащей 30 мол. % ДАСК, приводит к увеличению прочности до 700 МПа при $\epsilon = 7\%$ и $E = 13.5 \text{ ГПа}$. Повышение температуры до 60°C позволяет получить анизотропную пленку с $\sigma = 860 \text{ МПа}$ при $\epsilon = 4\%$ и $E = 26 \text{ ГПа}$, сравнимую по прочностным свойствам с ориентированной пленкой ИПЛОН.

В целом зависимости σ , ϵ и E пленок сополимеров от состава носят сложный характер и, безусловно, нуждаются в более подробном изучении. Однако из данных, приведенных в табл. 2 - 5, следует вывод о возрастании по сравнению с пленкой ИПЛОН, разрывной прочности и модуля упругости пленок и уменьшении их эластичности при введении в состав ПНИБ стержнеобразных фрагментов.

Таблица 5. Свойства пленочных материалов на основе сополимеров следующего строения:



Образец, №	x , мол. %	$\eta_{\text{пп}}$ (0.1%-ный раствор H_2SO_4), дL/g	σ , МПа	ϵ , %	$E \times 10^{-3}$, МПа
1	5	9.66	380 ± 28	16.0 ± 4.0	8.5 ± 0.2
2	10	4.68	340 ± 10	18.0 ± 1.0	7.5 ± 0.8
3	15	5.04	377 ± 15	11.0 ± 1.0	8.9 ± 0.2
4	20	5.57	398 ± 12	6.0 ± 1.0	10.5 ± 0.6
5	25	3.77	415 ± 15	5.8 ± 0.6	9.6 ± 0.7
6*	30	10.1	379 ± 49	12.0 ± 0.2	12.3 ± 2.4
7	35	4.3	401 ± 9	5.1 ± 0.3	11.1 ± 0.7
8	40	2.8	366 ± 8	6.3 ± 1.0	9.1 ± 0.8
9	50	3.07	378 ± 13	4.9 ± 0.1	9.7 ± 0.3
10	60	1.93	262 ± 13	4.4 ± 0.2	8.1 ± 0.2

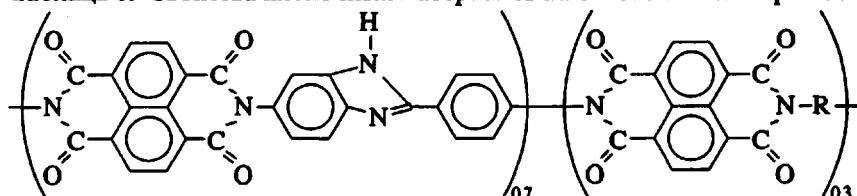
* Для ориентированной пленки (60%) $\sigma = 860 \text{ МПа}$; $\epsilon = 4\%$, $E = 26000 \text{ МПа}$.

Одна из целей настоящей работы – выяснение влияния равновесной жесткости полимерной цепи и вклада водородных связей в прочностные свойства пленок сополимеров. Исходя из изложенного выше, можно считать, что оптимальной концентрацией стержнеобразных звеньев в цепи ПНИБ является 20 - 30 мол. %, и пленки таких сополимеров имеют наивысшее значение σ и E .

В табл. 6 приведены свойства сополимеров, содержащих 30 мол. % стержнеобразных фрагмен-

тов различного химического строения, а также прочностные свойства образованных из сополимеров пленок. Практически все полученные сополимеры (кроме образца 7) образуют пленки, превосходящие прочность пленок ИПЛОН на 20 - 30%. Это связано с тем, что введение стержнеобразных фрагментов приводит к возрастанию жесткости полимерной цепи и, по-видимому, к совершенствованию надмолекулярной структуры полимера в пленочном материале. Вклад водо-

Таблица 6. Свойства пленочных материалов на основе сополимеров общей формулы:



Образец, №	R	$\eta_{\text{пр}}$ (0.1%-ный раствор H_2SO_4), дL/g	σ , МПа	ε , %	$E \times 10^{-3}$, МПа
1		9.8	330	30	5.0
2		13.1	448	13	9.2
3		12.1	413	24	11.0
4		15.3	445	24	10.6
5		10.2	407	12	9.6
6		10.1	428	14	14.7
7		4.6	331	15	8.7
8		3.1	296	25	9.0

родных связей в повышение прочностных показателей пленок оценить практически невозможно (табл. 6, образцы 4 и 5).

С этой целью нами был специально синтезирован ПНИБ, содержащий N-фенилзамещенный бензимидазольный цикл. Как видно из табл. 6, прочностные характеристики данного полимера сравнимы с аналогичными характеристиками материала ИПЛОН. Тот факт, что σ и E такой пленки ниже, а E несколько выше, чем у пленки ИПЛОН, позволяет говорить о незначительном вкладе водородных связей в прочностные свойства сополинафтоиленимидобензимидазолов. Основное влияние на прочностные свойства сopolимеров оказывает равновесная жесткость цепи, характеризующаяся величиной сегмента Куна [8].

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Очистка исходных соединений и растворителей

ДАБ использовали без предварительной очистки, $T_{m.p.} = 230^\circ\text{C}$ (по лит. данным [6] $T_{m.p.} = 230^\circ\text{C}$); ДНТК прогревали перед синтезом в течение 6 ч при 160°C в вакууме; ДАБА перекристаллизовывали из смеси ДМФА- H_2O (1 : 1 по объему), $T_{m.p.} = 204 - 205^\circ\text{C}$ (по лит. данным [6] $T_{m.p.} = 204 - 205^\circ\text{C}$); ДАСК (ч.) в виде динатриевой соли перекристаллизовывали из воды; выпавшие кристаллы растворяли в горячей воде и свободную дисульфокислоту осаждали 5%-ной HCl (до рН 5), отфильтровывали выпавший осадок, промывали водой и сушили в вакууме при 140°C . Бензидин очищали сублимацией в вакууме при 10^{-1} мм рт. ст. и 180°C , $T_{m.p.} = 127 - 128^\circ\text{C}$ (по лит. данным [6] $T_{m.p.} = 127.5 - 128^\circ\text{C}$); ДАБИ использовали без предварительной очистки, $T_{m.p.} = 291 - 292^\circ\text{C}$. Фенол (х. ч.) использовали без предварительной очистки, $T_{m.p.} = 42^\circ\text{C}$ (по лит. данным [7] $T_{m.p.} = 41 - 42^\circ\text{C}$; *n*-хлорфенол (фирма "Merck") использовали без предварительной очистки, $T_{m.p.} = 32^\circ\text{C}$ (по лит. данным [7] $T_{m.p.} = 32^\circ\text{C}$); *n*-хлорфенол (ч.) использовали без предварительной очистки, $T_{m.p.} = 43^\circ\text{C}$ (по лит. данным [7] $T_{m.p.} = 43^\circ\text{C}$); бензойную кислоту (ч. д. а.) использовали без предварительной очистки, $T_{m.p.} = 122^\circ\text{C}$ (по лит. данным [7] $T_{m.p.} = 122^\circ\text{C}$); бензимидазол (ч.) использовали без предварительной очистки, $T_{m.p.} = 173^\circ\text{C}$ (по лит. данным [7] $T_{m.p.} = 172 - 174^\circ\text{C}$); имидазол (фирма "Fluka") использовали без предварительной очистки, $T_{m.p.} = 90^\circ\text{C}$ (по лит. данным [7] $T_{m.p.} = 88 - 90^\circ\text{C}$).

Синтез сopolимеров

Синтез сopolимеров проводили по общей методике в среде фенолов (или их смесей).

В двухгорлую колбу, снабженную мешалкой с затвором и трубкой для ввода Ar , загружали 0.002 моля (0.5364 г) ДНТК; 0.0014 моля (0.3140 г) ДАБ, 0.0006 моля (0.1105 г) бензидина, 0.0014 моля (0.33 г) бензимидазола и 8 мл предварительно расплавленного *m*-хлорфенола. Реакционную смесь нагревали в токе Ar 1 ч при 80°C (до момента растворения мономеров), затем температуру поднимали до 160°C и вели при этой температуре синтез в течение 8 ч. Полученный твердый раствор полимера разбавляли при $120 - 140^\circ\text{C}$ смесью фенола с *n*-хлорфенолом (12 мл) и после получения вязкого раствора фильтровали в горячем виде на пористом фильтре (размер пор 16 мкм). Дополнительно разогретый, отфильтрованный раствор полимера выливали на стеклянную подложку и испаряли растворитель при $80 - 100^\circ\text{C}$, а затем в вакууме 10^{-1} мм рт. ст. при $140 - 150^\circ\text{C}$ в течение 6 - 8 ч.

Вязкость полимеров измеряли на вискозиметре Уббелоде в 94%-ной H_2SO_4 при 25°C и концентрации полимера 0.1 г/дл.

Механические испытания образцов пленок размером $10 \times 2 \times (0.02 - 0.06)$ мм проводили в режиме растяжения со скоростью 10^{-4} м/с на разрывной машине 2166 Р-5.

Авторы выражают искреннюю благодарность И.А. Роновой за расчет сегментов Куна и В.К. Щельцину за любезно предоставленный мономер — *bis*-(*n*-аминобензоил) — производное 5(6)-амино-2-(*n*-аминофенил)бензимидазола.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Hergenrother P.M. // In Encyclopedia of Polymer Science and Engineering / Ed. by Korshwitz J.I. New York: Wiley, 1985. V. 7. P. 639.
2. Adams W.W., Eby R.K., McLemore D. The Materials Science and Engineering of Ridig-Rod Polymers; Pittsbugh: Materials Research Society, 1989.
3. Reinhardt B.A. // TRIP. 1993. V. 1. № 1. P. 4.
4. Коршак В.В., Русанов А.Л., Батиров И. // Пласт. массы. 1982. № 8. С. 14.
5. Никольский О.Г., Пономарев И.И., Русанов А.Л., Вишнеградова С.В., Левин В.Ю. // Высокомолек. соед. Б. 1990. Т. 32. № 8. С. 636.
6. Стилл Д.К. Мономеры для поликонденсации. М.: Мир, 1976. С. 465.
7. Aldrich. Catalog Handbook of Fine Chemicals. 1991 - 1992.
8. Цветков В.Н. Жесткоцепные полимерные молекулы. Л., 1986.

New Rigid-Chain Copoly(naphthyleneimidobenzimidazoles) and Their Films

I. I. Ponomarev*, O. G. Nikol'skii**, Yu. A. Volkova*, and A. V. Zakharov**

*Nesmeyanov Institute of Organoelement Compounds, Russian Academy of Sciences,
ul. Vavilova 28, Moscow, 117813 Russia

**Institute of Synthetic Polymeric Materials, Russian Academy of Sciences,
Profsoyuznaya ul. 70, Moscow, 117393 Russia

Abstract – New copoly(naphthyleneimidobenzimidazoles) were synthesized on the basis of 1,4,5,8-naphthalenetetracarboxylic dianhydride, 5(6)-amino-2(*p*-aminophenyl)benzimidazole, and aromatic rigid-rod diamines. The strength parameters of films based on these polymers increase sharply both in the initial and in an oriented state if the material contains 20 - 40 mol % of rodlike fragments. The ultimate tensile strength of an oriented film material based on a polymer containing 30 mol % diphenyl units reaches 1.5 GPa with the elasticity modulus of 38 GPa.