

# Высокомолекулярные соединения

## Серия Б

ВЫСОКОМОЛЕКУЛЯРНЫЕ СОЕДИНЕНИЯ, Серия Б, 2001, том 43, № 1, с. 105–111

УДК 541.64:542.952

### СОПОЛИКОНДЕНСАЦИЯ 4-ЦИКЛОГЕКСИЛ- И 4-ФЕНИЛУРАЗОЛА С ХЛОРАНГИДРИДАМИ АЛИФАТИЧЕСКИХ ДИКАРБОНОВЫХ КИСЛОТ<sup>1</sup>

© 2001 г. Шадпур Е. Маллакпур, Хуссейн Наср-Исфахани

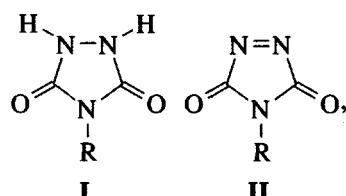
Исследовательская лаборатория органической химии полимеров,  
Химический колледж, Исфаханский технологический университет  
Исфахан, 84156, И.Р. Иран

Поступила в редакцию 14.12.1999 г.  
Принята в печать 21.06.2000 г.

4-Циклогексилуразол (ЦГУ) синтезировали в два этапа из циклогексилизоцианата. На ЦГУ действовали избыtkом ацетилхлорида в растворе ДМАА при комнатной температуре. Ацетилирование обеих групп N-H проходило количественно. Это соединение охарактеризовали ИК-, ПМР-спектрами, элементным анализом и использовали как модель для реакции поликонденсации. Растворная поликонденсация мономера ЦГУ с дихлорангидридом пробковой кислоты (ДХАП) в ДМАА и хлороформе в присутствии пиридина дала новые алифатические полиамиды, которые оказались нерастворимыми почти во всех растворителях. При контролировании реакции через концентрацию мономера и время поликонденсации получили растворимые полиамиды с приведенной вязкостью 0.167 дL/g. Поликонденсация с хлорангидридом адипиновой кислоты (ДХАА) также приводит к образованию растворимых полиамидов. Сополиконденсация ЦГУ и 4-фенилуразола (ФУ) с ДХАП и ДХАА, осуществляемая в растворе при различных процентных соотношениях каждого из уразольных мономеров, дает новые растворимые полиамиды, имеющие оба уразольных фрагмента в цепи сополимера. Полученные полиамиды растворимы в большинстве органических растворителей. Представлены некоторые структурные характеристики и физические свойства этих новых сополимеров.

#### ВВЕДЕНИЕ

4-Замещенные уразолы формулы I являются важными источниками для синтеза 4-замещенных 1,2,4-триазолин-3,5-дионов II. Соединения II – исключительно сильные акцепторы электронов и поэтому они являются мощными диенофилами, енофилами и электрофилами [1–4]. Хотя вещества I очень стабильны и время их жизни составляет много лет, они легко окисляются до соединений II самыми разнообразными окислителями [5].



где R – алкил, арил.

<sup>1</sup> Работа выполнена при финансовой поддержке Research Affairs Division, Isfahan University of Technology, Isfahan, I.R. Iran and National Research Council of I.R. Iran (грант 1168).

Хотя уразолы широко использовали для модификации полидиенов [6–16], лишь в немногих работах сообщали о применении уразолов в качестве новых мономеров. Соединения I имеют два протона N-H, которые являются кислыми. Уразолы, полученные реакцией триазолиндионов с алкенами и полидиенами имеют один протон N-H, который, по-видимому, очень кислый. Кислотность этого протона характеризуется  $pK_a = 4.72$  – почти такая же, как у уксусной кислоты [7]. Соединения I потенциально должны подвергаться N-ацилированию: 4-замещенные уразолы были превращены в 1-ацил-производные под действием ангидридов карбоновых кислот [18]. Сообщалось также об упрощенной процедуре N-ацилирования оксазолидин-2-он хиральных соединений [19].

Недавно нам удалось использовать высокую кислотность протона N-H в 1-метил-2,-бис-[1-(4-фенилуразоил)]пирроле (ФУ) и синтезировать новый полимер реакциями N-алкилирования и N-аци-

лирования [20, 21]. Поликонденсация ФУ с фосгеном, хлорангидридом терефталевой кислоты и эпихлоргидрином дает нерастворимые полимеры [22]. Поликонденсация ФУ с хлорангидридами алифатических дикарбоновых кислот приводит к растворимым полиамидам с приведенной вязкостью 0.39 дL/g [23].

Цель настоящего исследования – изучение реакции циклогексилуразола (ЦГУ) с хлористым ацетилом, а затем с дихлорангидридами алифатических дикарбоновых кислот для последующего синтеза растворимых полиамидов с циклогексилуразольными фрагментами в цепи, а также реакции сополиконденсации ФУ и ЦГУ с дихлорангидридами алифатических дикарбоновых кислот с целью получения новых растворимых полиамидов.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

### *Материалы и оборудование*

Использовали реагенты “Fluka Chemical CO.”, “Aldrich Chemical CO.” и “Riedel-deHaen AG”. ФУ синтезировали по опубликованному методу [5, 24–26].

ДМАА сушили  $\text{BaO}$  и затем перегоняли при пониженном давлении. Хлороформ промывали водой, сушили  $\text{CaCl}_2$  и перегоняли при нормальном давлении. Спектры ПМР (90 МГц) записывали на приборе “Varian EM-390”. Тетраметилсилан использовали в качестве внутреннего эталона.

ИК-спектры записывали на спектрофотометре “Shimadzu 435 IR”. Спектры твердых веществ снимали в таблетках с KBr.

Температуры плавления определяли на аппарате Галленкампа без введения коррекций. Приведенную вязкость измеряли стандартным методом на вискозиметре “Cannon Fensk Routin”. ДСК-анализ проводили на приборе “Mettler DSK-30” в атмосфере азота при скорости нагревания 20 град/мин. Кривые ТГА получали на приборе “Mettler TGA-50”. Элементный анализ проводили в Исследовательском институте нефтяной промышленности (Тегеран).

**Получение 1-этоксикарбонил-4-циклогексилсемикарбазида.** В 500 мл трехгорлую круглодонную колбу с мешалкой, водяным холодильником и капельной воронкой, содержащую охлажденный ниже 10°C раствор этилкарбазата ( $8.32\text{ g}, 7.99 \times 10^{-2}$  моля) в 100 мл толуола, добавляли раствор циклогексилизоцианата ( $10.0\text{ g}, 7.99 \times 10^{-2}$  моля) в 50 мл толуола. Раствор нагревали до комнатной

температуры, перемешивали 14 ч и затем кипятили с обратным холодильником 2 ч. После охлаждения на водяной бане получили  $18.06\text{ g}$  (98.58%) кристаллов белого цвета с  $T_{\text{пл}} = 124\text{--}125^\circ\text{C}$ ; ПМР ( $\text{ДМСО}-d_6$ , ТМС):  $\delta = 1.0\text{--}2.0$  (ср, 13H), 3.30–3.65 (ср, 1H), 4.10 (к, 2H), 6.10 (д, 1H), 7.60 (с, 1H), 8.65 (с, 1H).

**Получение 4-циклогексилуразола.** К раствору этилата натрия ( $0.55\text{ g}, 0.0239$  моля Na в 30 мл этанола), помещенному в 100 мл одногорлую круглодонную колбу, добавляли  $5.00\text{ g}$  ( $2.18 \times 10^{-2}$  моля) 1-этоксикарбонил-4-циклогексилсемикарбазида. Полученный красновато-оранжевый раствор кипятили с обратным холодильником 24 ч, в результате чего образовался белый осадок. Колбу охлаждали во льду, содержимое быстро подкисляли 2 н. HCl (рН 2) и немедленно фильтровали. Твердое белое вещество ( $3.97\text{ g}$ , 99.3%) перекристаллизовывали из горячей воды,  $T_{\text{пл}} = 233\text{--}235^\circ\text{C}$ ; ИК (KBr),  $\text{cm}^{-1}$ : 3020 (с), 2900 (с), 2840 (с), 1760 (ср), 1660 (с), 1465 (с), 1385 (ср), 1325 (сл), 1260 (ср), 1235 (ср), 1210 (ср), 1080 (ср), 1050 (сл), 1030 (сл), 995 (ср), 890 (ср), 855 (сл), 800 (с), 775 (с), 665 (с); ПМР ( $\text{ДМСО}-d_6$ , ТМС):  $\delta = 1.00\text{--}2.55$  (ср, 10H), 3.55–4.00 (ср, 1H), 10.00 (с, 2H).

**Синтез 1,2-диацетил-4-циклогексилуразола.** В 25 мл круглодонной колбе к раствору ЦГУ ( $0.300\text{ g}, 1.09 \times 10^{-3}$  моля) в смеси ДМАА–пиридин (1 мл/0.2 мл) добавляли хлористый ацетил ( $5\text{ ml}, 6.37 \times 10^{-2}$  моля) и перемешивали 24 ч. Избыток хлористого ацетила удаляли простой отгонкой и остаток высаживали в 50 мл дистиллированной воды. После перемешивания в течение 3 ч белое твердое вещество отфильтровывали и сушили. Перекристаллизация из водного ацетона дала модельное соединение 1,2-диацетил-4-циклогексилуразол (III) в виде игольчатых кристаллов с  $T_{\text{пл}} = 124\text{--}125^\circ\text{C}$ ; ИК (KBr),  $\text{cm}^{-1}$ : 2900 (ср), 1720 (с), 1410 (с), 1380 (ср), 1370 (ср), 1250 (ср), 1175 (с), 1035 (ср), 1000 (ср), 970 (ср), 910 (сл), 890 (сл), 780 (сл), 750 (ср), 655 (сл), 580 (ср); ПМР ( $\text{ДМСО}-d_6$ ):  $\delta = 1.15\text{--}2.35$  (ср, 10H), 2.65 (с, 6H), 3.80–4.25 (ср, 1H).

Найдено, %: C 54.0; H 6.4; N 16.4.

Для  $\text{C}_{12}\text{H}_{17}\text{N}_3\text{O}_4$

вычислено, %: C 53.92; H 6.41; N 15.72.

**Поликонденсация ЦГУ с дихлорангидридом пробковой кислоты (ДХАП).** В 25 мл круглодонную колбу помещали раствор ЦГУ ( $0.20\text{ g}, 1.09 \times 10^{-3}$  моля) в смеси ДМАА– $\text{CHCl}_3$ –пиридин (1 мл/9 мл/0.2 мл). К этому раствору добавляли ДХАП ( $0.2\text{ ml}, 1.09 \times 10^{-3}$  моля). Смесь перемешивали 48 ч при комнатной температуре и прилили

3 мл воды. Растворитель удаляли при пониженном давлении, высаживали в 50 мл смеси метанол–вода (80 : 20). Твердое вещество отфильтровывали и сушили. Выход 0.252 г (72%);  $T_{\text{разм}} = 205^{\circ}\text{C}$ ; ИК (КBr),  $\text{см}^{-1}$ : 2900 (ср), 1720 (с), 1410 (с), 1380 (с), 1340 (ср), 1160 (сл), 1110 (ср), 1000 (сл), 890 (сл), 750 (ср), 720 (ср); ПМР ( $\text{CDCl}_3$ , ТМС):  $\delta = 1.00\text{--}2.50$  (ср, 18H), 2.95 (ДМАА), 3.80–4.20 (ср, 1H).

Найдено, %: C 58.50; H 7.40; N 14.00.  
Для  $\text{C}_{16}\text{H}_{23}\text{N}_3\text{O}_4$   
вычислено, %: C 59.80; H 7.21; N 13.08.

**Сополиконденсация смеси ЦГУ : ФУ = 50 : 50 с ДХАП.** ЦГУ (0.1008 г,  $5.50 \times 10^{-4}$  моля) и ФУ (0.0974 г,  $5.50 \times 10^{-4}$  моля) растворяли в смеси ДМАА– $\text{CHCl}_3$ –пиридин (0.6 мл/0.4 мл/0.1 мл); добавляли по каплям раствор ДХАП (0.2 мл,  $1.09 \times 10^{-3}$  моля) в 0.4 мл  $\text{CHCl}_3$  при комнатной температуре; смесь разбавляли 9 мл  $\text{CHCl}_3$ ; перемешивали 4 ч и приливали 3 мл воды. Растворители удаляли при пониженном давлении, остаток высаживали в смеси метанол–вода (80 : 20), отфильтровывали и сушили. Получили 0.29 г (83.2%) белого вещества с  $T_{\text{разм}} = 155^{\circ}\text{C}$ ; ИК (КBr),  $\text{см}^{-1}$ : 2900 (ср), 1740 (с), 1495 (ср), 1405 (с), 1225 (ср), 1160 (ср), 1110 (ср), 1055 (ср), 1025 (ср), 740 (ср), 685 (сл)  $\text{см}^{-1}$ . ПМР ( $\text{CDCl}_3$ , ТМС):  $\delta = 1.00\text{--}2.50$  (ср, 23H), 3.00 (ДМАА), 3.80–4.30 (ср, 1H), 7.55 (с, 5H).

Аналогично проводили сополиконденсацию ДХАП со смесями ЦГУ : ФУ состава 30 : 70 и 10 : 90. Температуры размягчения полученных сополимеров были соответственно равны 145 и 160°C. ИК- и ПМР-спектры этих сополимеров близки к таковым для сополимера состава 50 : 50.

**Поликонденсация ЦГУ с дихлорангидридом ади-пиновой кислоты (ДХАА).** К раствору 0.2 г ( $1.1 \times 10^{-3}$  моля) ЦГУ в смеси ДММА :  $\text{CHCl}_3$  : пиридин = 0.6 мл : 2 мл : 0.1 мл при комнатной температуре добавляли по каплям ДХАА (0.16 мл,  $1.1 \times 10^{-3}$  моля). Реакционную смесь перемешивали 90 ч, а затем высаживали в смесь метанол : вода = 80 : 20, отфильтровывали и сушили. Получили 0.264 г (76.9%) белого твердого вещества с  $T_{\text{разм}} = 115^{\circ}\text{C}$ , ИК (КBr)  $\text{см}^{-1}$ : 2900 (ср), 1730 (с), 1405 (с),

1375 (с), 1230 (ср), 1115 (ср), 1110 (ср), 1000 (ср), 890 (сл), 750 (ср).

Найдено, %: C 57.0; H 6.70; N 13.50.  
Для  $\text{C}_{14}\text{H}_{19}\text{N}_3\text{O}_4$   
вычислено, %: C 57.31; H 6.53; N 14.33.

**Сополиконденсация ЦГУ : ФУ = 50 : 50 с ДХАА.** К раствору 0.1008 г ( $5.50 \times 10^{-4}$  моля) ЦГУ и 0.0974 г ( $5.50 \times 10^{-4}$  моля) ФУ в смеси ДМАА :  $\text{CHCl}_3$  : пиридин (0.6 мл : 1 мл : 0.1 мл) при комнатной температуре добавляли по каплям ДХАА (0.16 мл,  $1.1 \times 10^{-3}$  моля). Смесь перемешивали 72 ч, высаживали в смесь метанол : вода = 80 : 20, отфильтровывали и сушили. Получили 0.269 г (84.3%) белого твердого вещества с  $T_{\text{разм}} = 175^{\circ}\text{C}$ ; ИК (КBr),  $\text{см}^{-1}$ : 2900 (ср), 1740 (с), 1495 (ср), 1405 (ср), 1375 (ср), 1220 (с), 1160 (ср), 1115 (ср), 1050 (ср), 1020 (ср), 910 (сл), 755 (ср), 685 (сл).

Аналогично проводили поликонденсацию ДХАА со смесями ЦГУ : ФУ состава 30 : 70 и 10 : 90. Температуры размягчения сополимеров 165 и 175°C. Сополимеры были охарактеризованы ИК-спектрами и элементным анализом.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Мономер ЦГУ из соответствующего циклогексилизоцианата получали в два этапа, используя методы, о которых сообщалось в работах [27, 28], с некоторыми изменениями. Для второго этапа реакции была проведена циклизация с помощью  $\text{Na/C}_2\text{H}_5\text{OH}$  вместо  $\text{KOH/H}_2\text{O}$ , и ЦГУ получили с хорошим выходом и высокой чистотой.

### Изучение модельных веществ

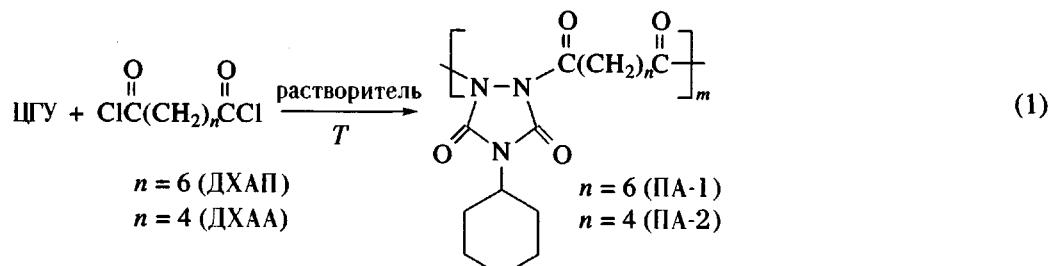
ЦГУ реагировал с избытком хлористого ацетила в растворе ДМАА и дал с высоким выходом 1,2-диацетил-4-циклогексилуразол (III). Соединение III охарактеризовано ИК- и ПМР-спектрами, а также и элементным анализом. ИК-спектр соединения III содержит два сильных пика при 1800 и  $1750 \text{ cm}^{-1}$ , характерных для карбонильных групп. ПМР-спектр соединения III содержит синглет при 2.65 м. д. двух метильных групп при карбонилах (рис. 1а).

### Реакции поликонденсации

Поскольку реакция ЦГУ с хлористым ацетилом дала модельное соединение 1,2-диацетил-4-циклогексилуразол с высокими выходом и чистотой, представляло интерес провести такого рода реакцию для получения новых полиамидов. Ре-

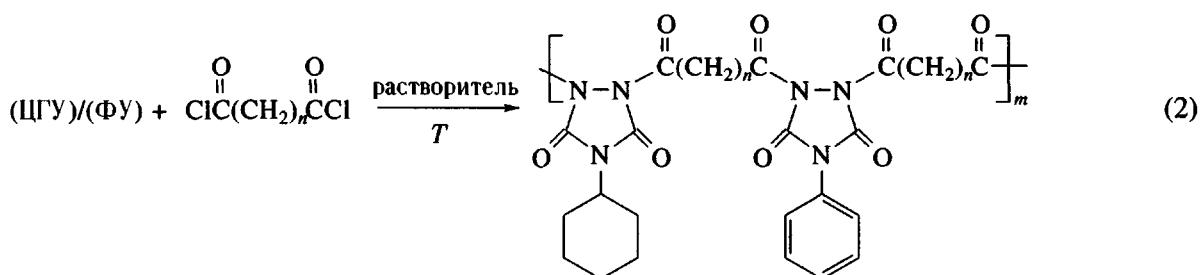
акция ЦГУ с ДХАП является чрезвычайно быстрой и приводит к образованию нерастворимого продукта. Чтобы получить растворимый поли-

мер, реакцию проводили в разбавленном растворе, используя пиридин в качестве акцептора HCl. С хорошим выходом был получен полимер ПА-1:



В ПМР-спектре ПА-1 (рис. 1б) присутствует широкий мультиплетный сигнал при 1.10–2.55 м. д., который отнесен к четырем метиленовым и циклогексильным протонам. Сигнал при 2.90 м. д. в виде искаженного триплета можно отнести к двум другим метиленовым протонам. Полимер ПА-1 рас-

творим в большинстве органических растворителей, таких как ДМСО, ДМФА, ТГФ и  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ , и не растворим в воде, метаноле, ацетоне и неполярных растворителях (циклогексан, *n*-гексан). Сополиконденсацию с ДХАП проводили также с различными соотношениями двух мономеров ЦГУ : ФУ



Обозначения сополимеров для  $n = 6$  и ЦГУ : ФУ = 50 : 50 (СПА-1), 30 : 70 (СПА-2), 10 : 90 (СПА-3). Для  $n = 4$  и ЦГУ : ФУ = 50 : 50 (СПА-4), 30 : 70 (СПА-5), 10 : 90 (СПА-6).

ПМР-спектры СПА-1 содержат широкий сигнал при 7.20–7.80 м. д., относящийся к фенильным протонам; мультиплет при 3.80–4.30 м. д. соответствует протонам циклогексильной группы (рис. 1в). Из соотношения площадей этих двух пиков было вычислено отношение звеньев ЦГУ : ФУ и полимера, которое оказалось равным 51 : 49, т.е. отвечало соотношению исходных соединений. Хорошее соответствие между исходными соотношениями ЦГУ : ФУ и содержанием их звеньев в сополимерах по данным ПМР-спектров достигнуто и в случае

сополимеров СПА-2 и СПА-3. Также была проведена сополиконденсация ЦГУ : ФУ в соотношении 50 : 50, 30 : 70, 10 : 90 с ДХАА в растворах ДМАА :  $\text{CHCl}_3$ . Условия реакции и некоторые физические свойства синтезированных полiamидов представлены в таблице.

Полимеры ПА-1 и ПА-2 растворимы в большинстве органических растворителей, таких как ДМФА, диоксан, метиленхлорид и хлороформ, и не растворимы в воде, метаноле, ацетоне, циклогексане и *n*-гексане. Сополимеры СПА-1–СПА-6 растворимы в хлороформе, ДМФА, ТГФ, диоксане и нерастворимы в воде, метаноле, ацетоне, циклогексане и *n*-гексане.

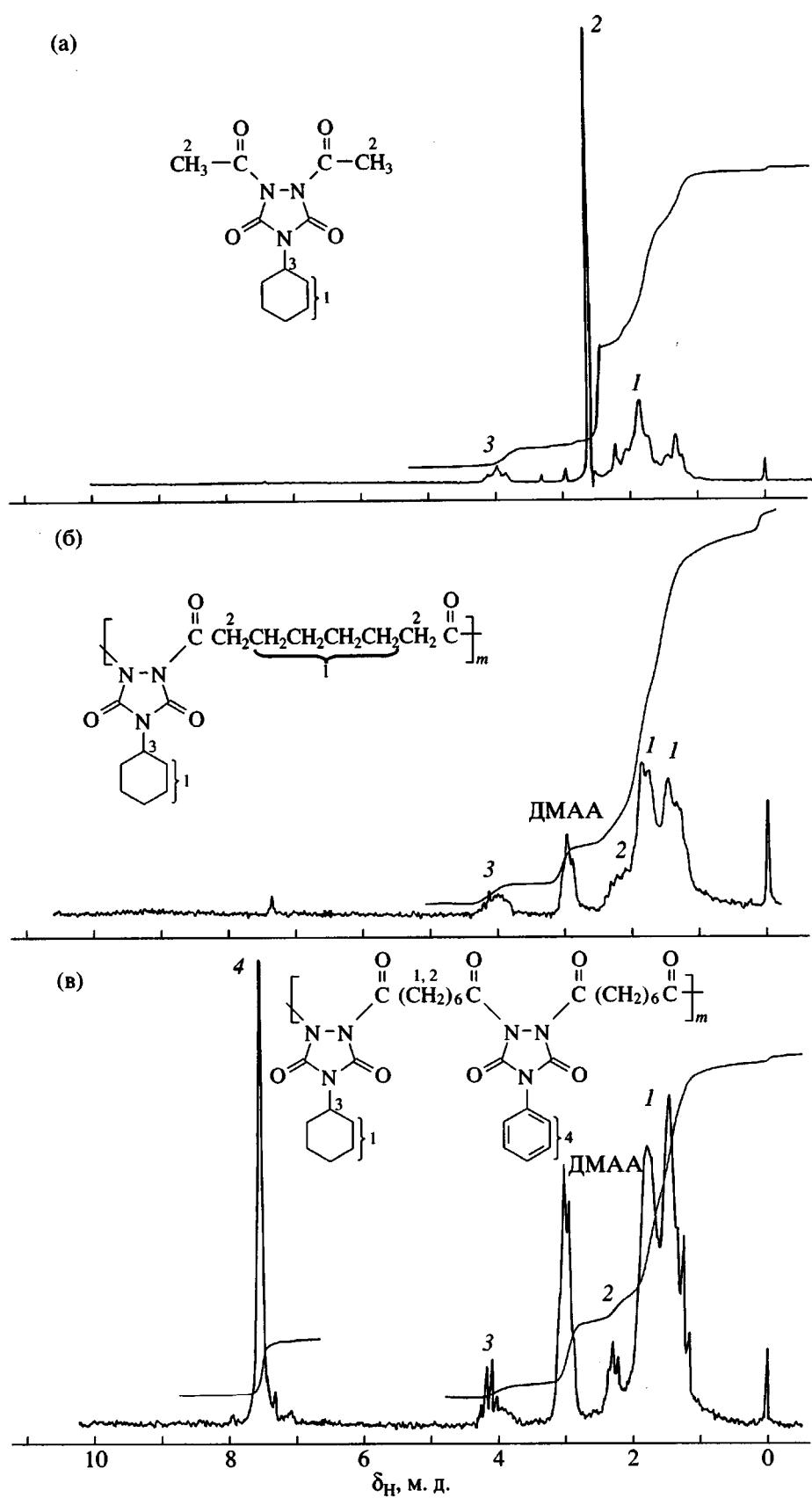


Рис. 1. Спектры ПМР, снятые в  $\text{CDCl}_3$  при комнатной температуре, модельного соединения III (а), полимера PA-1 (б) и сополимера SPA-1 (в).

## Полимеры и сополимеры на основе ЦГУ и ФУ

Полимер	Время реакции, ч	Выход, %	$\eta_{\text{пр}}^*$ , дл/г	$T_{\text{размечч}}$ , °C
Полимеры на основе ДХАП				
ПА-1	48	72	0.167	205
СПА-1	4	83.2	0.107	155
СПА-2	36	87.8	0.104	145
СПА-3	36	86.2	0.110**	160
Полимеры на основе ДХАА				
ПА-2	90	77	0.094	115
СПА-4	72	84	0.064***	175
СПА-5	36	99	0.109	165
СПА-6	36	86	0.119	175

\* Приведенная вязкость раствора 0.5 г/дл в  $\text{CHCl}_3$  (для полимеров на основе ДХАП) и в ДМФА (для полимеров на основе ДХАА) при 25°C.

\*\* В ДМФА.

\*\*\* В  $\text{CHCl}_3$ .

## Термические свойства

Были определены термические свойства полимеров ПА-1 и СПА-5 с помощью ДСК при скорости нагревания 20 град/мин в атмосфере

азота. Кривые ТГА сняты при скорости нагревания 10 град/мин в атмосфере азота. Кривые ДСК полимера ПА-1 показаны на рис. 2а. На рисунке виден эндотермический переход около 118°C, который соответствует температуре стеклования  $T_c$ . Этот полимер также обнаруживает два эндотермических пика с максимумом при 205 и 345°C. Кривая ТГА данного полимера показывает (рис. 2в), что эндотермические пики, вероятно, обусловлены медленной и быстрой стадиями деструкции. На термограмме СПА-5 виден переход стеклования около 125°C и эндотермические пики с максимумом при 200 и при 320°C (рис. 2б). Как видно, полимеры ПА-1 и СПА-5 являются термически стабильными до 200°C в атмосфере азота и обнаруживают 5%-ную потерю массы при 275 и 300°C соответственно. Остаточный вес этих полимеров при 500°C составляет 12.5 и 15.5% (рис. 2в, 2г). Как видно из изложенного выше, ЦГУ и ФУ представляют интерес в качестве мономеров для реакций поликонденсации, в частности для синтеза новых полиамидов с уразольными звеньями в основной цепи.

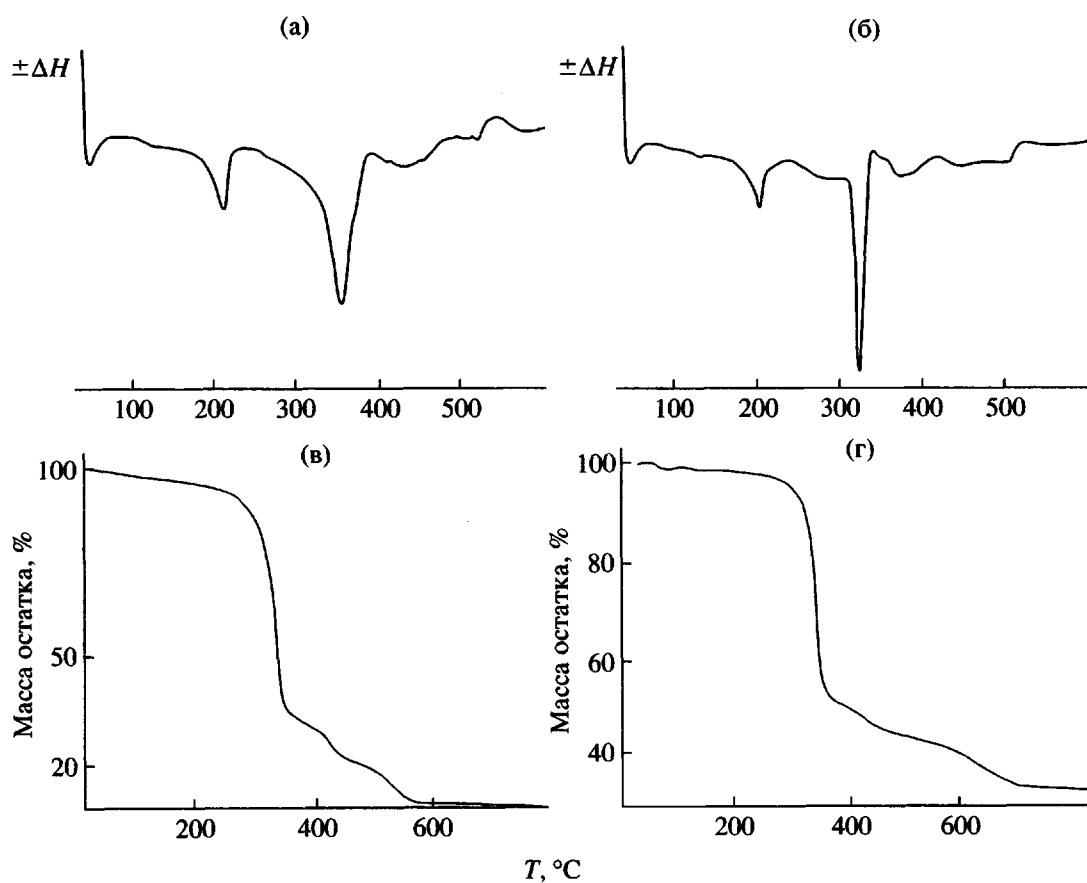


Рис. 2. Кривые ДСК (а, б) и ТГА (в, г) полимера ПА-1 (а, в) и сополимера СПА-5 (б, г).

Мы благодарим Mrs. Haghigat за запись кри-  
вых ДСК и ТГА.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Mallakpour S.E., Zolfigol M.A.* // Indian J. Chem. 1995. V. 34B. P. 183.
2. *Mallakpour S.E., Asghari J.* // Iranian Polym. J. 1996. V. 5. P. 1026.
3. *Mallakpour S.E., Asghari J., Schollmeyer D.* // Polym. Int. 1996. V. 41. P. 43.
4. *Mallakpour S.E., Mohammadi F., Kolshorn H.* // Polym. Int. 1997. V. 42. P. 328.
5. *Mallakpour S.E.* // J. Chem. Educ. 1992. V. 69. P. 238.
6. *Williams A.G., Butler G.B.* // J. Polym. Sci., Polym. Chem. Ed. 1979. V. 17. P. 1117.
7. *Leong K.W., Butler G.B.* // J. Macromol. Sci., Chem. 1980. V. 14. № 3. P. 287.
8. *Chen T.C.S., Butler G.B.* // J. Macromol. Sci., Chem. 1981. V. 16. № 3. P. 757.
9. *Jacobi M.M., Stadler R.* // Makromol. Chem., Rapid Commun. 1988. V. 9. P. 709.
10. *Kuhrau M., Stadler R.* // Makromol. Chem. 1990. V. 191. P. 1787.
11. *Hilger C., Stadler R.* // Makromol. Chem. 1990. V. 191. P. 1347.
12. *Hilger C., Stadler R.* // Makromol. Chem. 1991. V. 192. P. 805.
13. *Hilger C., Stadler R.* // Polymer. 1991. V. 32. P. 3244.
14. *Dardin A., Stadler R.* // Makromol. Chem. 1993. V. 194. P. 3467.
15. *Mallakpour S.E., Rafiemanzelat F., Sheikholeslami B.* // Iranian Polym. J. 1997. V. 6. P. 235.
16. *Mallakpour S.E., Hajipour A., Khoei S., Sheikholeslami B.* // Polym. Int. 1998. V. 47. P. 193.
17. *Ohashi S., Leong K.W., Matyjaszewski K., Butler G.B.* // J. Org. Chem. 1980. V. 45. P. 3467.
18. *Simlot R., Izydore R.A., Wong O.T., Hall I.H.* // J. Pharma. Sci. 1993. V. 82. P. 408.
19. *Ager D.J., Allen D.R., Schaad D.R.* // Synthesis. 1996. P. 1283.
20. *Mallakpour S.E., Karami-Dezcho B., Sheikholeslami B.* // Polym. Int. 1998. V. 45. P. 98.
21. *Mallakpour S.E., Sheikholeslami B.* // Iranian Polym. J. 1998. V. 7. P. 121.
22. *Bausch M.J., David B., Selmarthen D., Wang L.H.* // Cmpos.-Technol., Annu. Conf. Mater. Technol. 1991. V. 7. P. 41.
23. *Mallakpour S.E., Sheikholeslami B.* // Polym. Int. 1999. V. 48. P. 41.
24. *Cookson R.C., Gilani S.S.H., Stevence L.D.* // Tetrahedron Lett. 1962. P. 615.
25. *Cookson R.C., Gilani S.S.H., Stevence L.D.* // J. Chem. Soc. C. 1967. P. 1905.
26. *Gilani S.S.H., Triggle J.D.* // J. Org. Chem. 1966. V. 31. P. 2397.
27. *Zinner G., Deucker W.* // Arch. Pharm. 1961. V. 294. P. 370.
28. *Zinner G., Boehike B.* // Arch. Pharm. 1966. V. 299. P. 43.

### Copolycondensation of 4-Cyclohexyl and 4-Phenylurazole with Aliphatic Diacid Chlorides

S. E. Mallakpour\* and H. Nasr-Isfahani

*Organic Polymer Chemistry Research Laboratory, College of Chemistry, Isfahan University of Technology,  
Isfahan, 84156, I.R. Iran*

*E-mail: MALLAK@CC.IUT.AC.IR*

*\* To whom all correspondence should be addressed*

**Abstract**—4-Cyclohexylurazole (CHU) was synthesized from cyclohexyl isocyanate in two steps. The CHU compound was reacted with an excess acetyl chloride in a N,N-dimethylacetamide (DMAc) solution at room temperature. The reaction proceeded with a quantitative yield and involved acetylation of both N–H bonds of the urazole moiety. This compound was characterized by IR, <sup>1</sup>H NMR, and elemental analysis and was used as a model compound for the polycondensation reaction. The solution polycondensation of the CHU monomer with suberoyl chloride (SC) was performed in DMAc and chloroform in the presence of pyridine and led to the formation of novel aliphatic polyamides which were insoluble in almost all solvents. The reaction was controlled by the concentration of monomers and the reaction time and yielded soluble polyamides with an inherent viscosity 0.167 dL/gr. The polymerization reaction with adipoyl chloride (AC) also gave soluble polyamides. The copolycondensation reaction of CHU monomer and 4-phenylurazole (PHU) with AC and SC were carried out under the conditions of solution polymerization with a different content of each urazole monomers and gave novel soluble polyamides, having both urazoles moieties in the copolymers backbone. The resulting polymers are soluble in most organic solvents. Some structural characterization and physical properties of these novel copolymers are reported.