

КОМПОЗИЦИОННЫЕ МАТЕРИАЛЫ НА ОСНОВЕ АЛИЦИКЛИЧЕСКОГО СОПОЛИИМИДА И ПОЛИАКРИЛАМИДА

© М. Б. Умерзакова*, В. Д. Кравцова, Р. Б. Сариева**

Институт химических наук им. А. Б. Бектурова,
050010, Республика Казахстан, г. Алматы, ул. Ч. Валиханова, д. 106
E-mail: * umerzak@mail.ru; ** sarieva.rahima@mail.ru

Поступила в Редакцию 24 февраля 2020 г.

После доработки 20 мая 2020 г.

Принята к публикации 14 июля 2020 г.

Приведены результаты исследований по получению композиций на основе сополиимидов из диангидридов алициклической и ароматической структуры (при их соотношении 90:10/85:15 мол% соответственно) и диаминодифенилового эфира с полиакриламидом. Методом ИК-спектроскопии установлено, что в исследуемых системах образуются водородные связи по функциональным группам полимеров, способствующие совместимости компонентов в смеси. Подобраны оптимальные условия получения композиционных пленок на их основе с улучшенными термическими и механическими свойствами. Показано, что полиакриламидная составляющая композиции в процессе термообработки пленок частично сшивается с остаточными амидокислотными группами сополиимида. Это обуславливает повышение термических и прочностных свойств композиционных пленок в целом. Получены пленки с прочностью на разрыв 136–178 МПа, удлинением 23–17%. По термическим свойствам композиционные материалы превышают исходные немодифицированные (со)полиимиды: алициклический полиимид — на 13–46, сополиимиды — на 11 и 8°C соответственно.

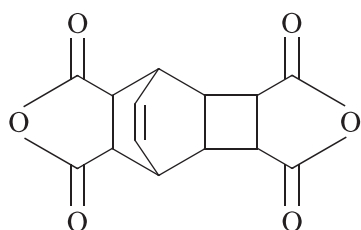
Ключевые слова: сополиимид; полиакриламид; композиция; водородная связь; композиционные пленки
DOI: 10.31857/S0044461820110079

Известны полиимидные материалы, обладающие высокой гидролитической стойкостью, устойчивые к действию агрессивных сред, паров воды, с высоким уровнем электрофизических характеристик, на основе полигетероциклов алициклического строения [1, 2]. Однако эти полимеры характеризуются низкой термической стойкостью по сравнению с ароматическими аналогами, которую можно улучшить введением в звенья алициклического гетероцикла звеньев диангидридов ароматических тетракарбоновых кислот методом сополиконденсации. Использование в качестве сомономера диангидрида 3,3',4,4'-дифенилоксидтетракарбоновой кислоты в реакции сополиконденсации с диангидридом алициклического строения и диаминодифениловым эфиром расширяет области применения как алициклических, так и ароматических гомо- и сополиимидов [3–5].

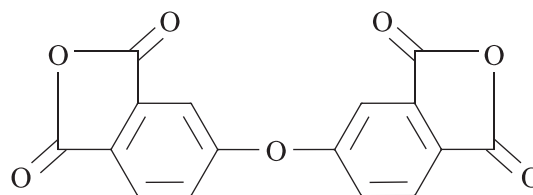
Модификация полиимидов различными полимерами позволяет с наименьшими затратами получать

изделия с требуемыми свойствами, поэтому большое внимание производителей привлекают полиимидные материалы, характеризующиеся высокой термической и термоокислительной стабильностью. Такие материалы находят применение в качестве полимерной матрицы для создания большого ассортимента композиционных материалов с заданными свойствами, также известно использование полиимидных материалов в авиа- и космической технике [5–8].

Цель работы — получение композиционных материалов с улучшенными термическими и прочностными свойствами на основе (со)-полиимидов из диангидрида трицикло-(4,2,2,0^{2,5})дец-7-ен-3,4,9,10-тетракарбоновой кислоты (АБ) с 4,4'-диаминодифениловым эфиром (алициклический полиимид); из диангидридов трицикло-(4,2,2,0^{2,5})дец-7-ен-3,4,9,10-тетракарбоновой и 3,3',4,4'-дифенилоксидтетракарбоновой (ДФО) кислот с 4,4'-диаминодифениловым эфиром (сополиимид), модифицированных полиакриламидом:



АБ



ДФО

Экспериментальная часть

4,4'-Диаминодифениловый эфир очищали сублимацией в вакууме при температуре 210°C и остаточном давлении 10^{-3} мм рт. ст., $T_{пл} = 200\text{--}202^\circ\text{C}$. Диангидриды трицикло-(4,2,2,0^{2,5})дец-7-ен-3,4,9,10-тетракарбоновой и 3,3',4,4'-дифенилосидтетракарбоновой кислот очищали прогреванием в вакууме при остаточном давлении 10^{-3} мм рт. ст. и температурах 200 и 230°C соответственно; $T_{пл} = 351$ и 221°C [9]. Полиакриламид с молекулярными массами $1 \cdot 10^6$ и $0.4 \cdot 10^6$ компании Aldrich и Bayer Material марки х.ч. использовали без дополнительной очистки. N-Метил-2-пирролидон, пиридин очищали в соответствии с известными методиками.*

Сополимеры на основе диангидридов трициклодеценттетракарбоновой, дифенилосидтетракарбоновой кислот и диаминодифенилового эфира получали при соотношении диангидридов АБ:ДФО = 90:10 (сополиимид-1) и 85:15 мол% (сополиимид-2) методом одностадийной поликонденсации в растворе метилпирролидона (40 мас%) в присутствии 6 мас% пиридина при ступенчатом подъеме температуры от 90°C, которую поддерживали в течение 0.5 ч, до 140°C, при данной температуре синтез продолжали 3.5 ч [9].

Приведенные вязкости 0.5%-ных растворов сополиимидов измеряли в вискозиметре Уббелодде в метилпирролидоне при 25°C.

Композиции на основе сополиимида-1 или сополиимида-2 с полиакриламидом получали добавлением 0.1 и 1.0 мас%-ного раствора полиакриламида [молекулярной массы (ММ), равной $1 \cdot 10^6$ и $0.4 \cdot 10^6$ соответственно] в метилпирролидоне в 40%-ный раствор сополиимидов в метилпирролидоне в количестве от 0.5 до 3 мас% по отношению к сополимеру. Смесь перемешивали при температуре 40°C в течение 1.5 ч.

Пленки на основе сополиимидов и их композиций с полиакриламидом формировали методом по-

лива растворов на стеклянные поверхности; с целью удаления растворителя пленки предварительно высушивали нагреванием в сушильном шкафу при температуре 90°C в течение 0.3 ч, затем проводили дополнительный отжиг в интервале температур 140–250°C в воздушной среде в течение 1.5 ч.

Термические свойства сополиимидных и композиционных пленок на их основе определяли методами термогравиметрии (ТГА) и калориметрии (ДСК) на приборе Mettler Toledo TGA/SDTA 851c в FFTA Cell при постоянной скорости нагрева 4 и 8 град·мин⁻¹ соответственно.

Механические свойства — прочность на разрыв ($\sigma_{рз}$) и относительное удлинение (l) образцов (со)полиимидных пленок размером 10 × 10 мм, толщиной 0.45–0.55 мкм определяли на разрывной машине Com-Tem Testing Equipment.

ИК-спектры растворов композиций на основе сополиимидов и полиакриламида регистрировали на ИК-спектрометре Nicolet 5700 (Thermo Electron Corporation) между стеклами из КВг.

Обсуждение результатов

Методом одностадийной (равновесной) сополиконденсации получали сополиимиды на основе диангидридов трициклодеценттетракарбоновой, дифенилосидтетракарбоновой кислот и диаминодифенилового эфира при исходном соотношении диангидридов АБ:ДФО = 90:10, 85:15 мол% (дальнейшее увеличение содержания диангидрида дифенилосидтетракарбоновой кислоты в сополимере приводит к переходу процесса к условиям неравновесной поликонденсации [4, 6]) в метилпирролидоне при максимально допустимой концентрации раствора мономеров 40 мас%. В данных условиях достигается максимально возможная вязкость раствора сополимеров $\eta_{пр} = 1.98$ дл·г⁻¹. При получении композиционных смесей исходный раствор сополиимида разбавляется раствором полиакриламида до концентрации ~20 мас%, что обуславливает целостность композиционных пленок. Использование полиакриламида в качестве модифицирующей до-

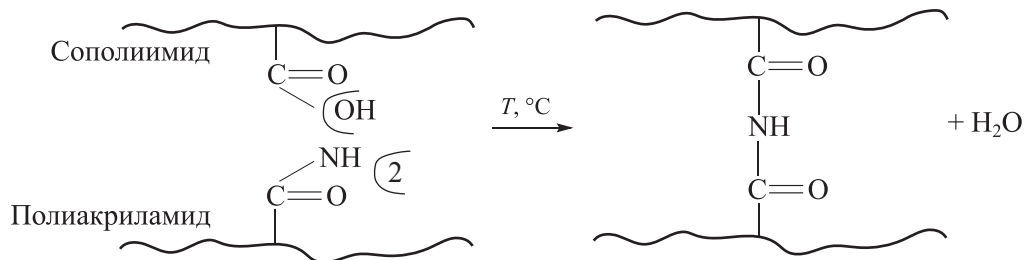
* Гордон А., Форд Р. Спутник химика. М.: Мир, 1976. С. 437–444, 202 [Gordon A. J., Ford R. A. The Chemist's Companion: A handbook of practical data, techniques, and references. New York; London; Sydney; Toronto, 1972].

бавки обусловлено тем, что он относится к не-ионогенным поверхностно-активным веществам, обладающим полярной группой, что должно способствовать взаимодействию функциональных групп полимеров, составляющих композиционный материал.

Добавление полиакриламида в процессе реакции сополиконденсации приводит к образованию пространственных полимеров, предотвращающему получение пленок. Поэтому в подобные системы полиакриламид вводят тогда, когда реакция сополиконденсации уже завершена, и содержание амидокислотных групп в сополиимиде не превышает ~10–15% [10], что осуществимо при механическом

смешении полученных сополимеров с полиакриламидом, при котором макромолекулярные реакции между полифункциональными полимерами практически исключены.

Нами получены растворы различных концентраций полиакриламида в метилпирролидоне: 0.1 (ММ = $1 \cdot 10^6$) и 1 мас%-ный раствор полиакриламида (ММ = 400 000) [11, 12], которые обеспечивают при смешении полиакриламида с конечным реакционным раствором сополиимид-1 и сополиимид-2 (с остаточными полиамидокислотными группами) и при дальнейшей термообработке пленки на основе данных композиций образование частичных сшивок по функциональным группам:



Экспериментально установлено, что при введении полиакриламида методом механического смешения предварительно из реакционного раствора необходимо удалять остатки конденсационной воды, образовавшейся в процессе сополиконденсации, так как она способствует растворению полиакриламида и вызывает хрупкость материала. Конденсат следует удалять до прокатки пленки нагреванием полимерной смеси сополиимид + полиакриламид при 40°C. Увеличение температуры смешения исходного раствора полиакриламида с сополиимидом до 60°C способствует образованию сшитых структур в макромолекулах, что приводит к исчезновению растворимости полимера.

Пленки, сформованные из композиционных смесей на основе сополиимидов и полиакриламида, подвергали термической обработке на воздухе при ступенчатом подъеме температуры от 90 до 140 и 250°C в течение 0.5 и 1 ч соответственно до полного высыхания пленок (при резком увеличении температуры происходит вспучивание поверхности пленки). Полученные при этом композиционные пленки на основе сополиимид-1/сополиимид-2 и полиакриламида (ММ = 400 000) прозрачные, тогда как пленки с добавками полиакриламида (ММ = $1 \cdot 10^6$) — мутные. Поэтому оптимальными являются пленки, сформованные из композиции с полиакриламидом молекулярной массы 400 000.

С целью определения оптимальных условий получения термодинамически совместимых пленок изучены композиционные смеси с различным содержанием полиакриламида (от 0.5 до 3 мас% по отношению к сополиимиду). Дальнейшее увеличение содержания полиакриламида в смеси приводит к несовместимости компонентов, пленки расслаиваются.

Проведенными исследованиями установлено, что в сополиимид-1 можно ввести до 3 мас% полиакриламида, а в сополиимид-2 — 2 мас%. По-видимому, это обусловлено наличием в сополиимиде-2 большего количества ароматических звеньев (диангирида дифенилоксидтетракарбоновой кислоты), чем в сополиимиде-1, препятствующих совместимости компонентов в композиционном материале.

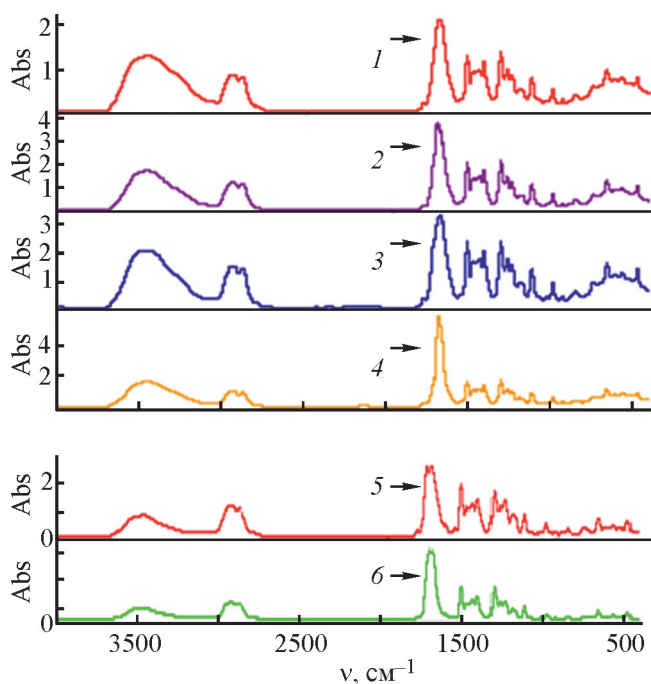
Методом ИК-спектроскопии проведено изучение протекающих при смешении полимеров взаимодействий (см. рисунок). Найдено, что в смеси сополиимид-1 + полиакриламид (см. рисунок, спектры 1–4) происходит изменение характеристической полосы валентных колебаний кислотной группы сополиимид-1 в области 1704 см^{-1} , которая по мере увеличения содержания полиакриламида в смеси до 3 мас% расширяется, а пик становится более пологим и смещается до 1670.5 см^{-1} [1], что свидетельствует об образовании Н-комплексов между остаточными кислотными группами полиамидокислоты и амидными группами полиакриламида. Водородные комплексы

способствуют совместимости компонентов в композиционном материале [10, 11].

Аналогичная картина наблюдается на спектрах композиционных смесей на основе сополиимида-2 с добавками 0.5 и 2 мас% полиакриламида. Увеличение концентрации полиакриламида от 0.5 до 2 мас% в смеси сополиимид-2 + полиакриламид также приводит к повышению комплексообразования амидных групп полиакриламида с кислотными группами сополиимида-2, что подтверждается изменением полосы в области 1692–1673 см⁻¹ (см. рисунок, спектры 5, 6).

Исследования композиционных материалов на основе полипиромеллитимидов и пластифицирующих добавок показали [13], что свойства композитов на их основе по ряду параметров заметно отличаются от исходных полимеров. Качества композитных продуктов рассматриваются с точки зрения интерполимерного взаимодействия, а модифицирующие добавки в полиимиде повышают термоокислительную стабильность композиционного материала при его термообработке. Поэтому несомненный интерес представляло изучение термических свойств пленок на основе сополиимида-1/сополиимида-2 и полиакриламида различных составов.

Метод термогравиметрии позволяет установить процессы, происходящие в образце при нагревании при постоянном повышении температуры. При тер-



ИК-спектры композиций на основе сополиимида-1 (1–4) и сополиимида-2 (5, 6) с содержанием полиакриламида 3 (1), 2.5 (2), 1 (3), 0.5 (4, 6), 2 мас% (5).

модеструкции полиимидов на основе пиромеллитового диангидрида и диаминодифенилоксида звеном, с которого начинается разрушение полиимида, является пиромеллитимидный цикл, температура начала разложения соответствует 490 (в атмосфере азота) и 400°C (на воздухе) [13]. Термодеструкция алициклических полиимидов начинается с распада трициклодещеновых фрагментов с образованием малеимида и бензола или его производных. При температурах выше 460°C протекают более глубокие деструктивные процессы, сопровождающиеся выделением CO, CO₂, H₂O и H₂ [14].

Проведенными термогравиметрическими исследованиями выявлено, что на начальном участке кривой ТГА в области температур 100–200°C, где изменение массы незначительно, происходит выделение из образца остатков воды. Второй участок кривой с дальнейшим небольшим снижением массы образца в интервале температур 200–300°C обусловлен выделением остатков растворителя из пленки и имидизацией незациклизованных амидокислотных звеньев в сополиимиде. Дальнейшее повышение температуры приводит к распаду ариалициклического сополиимида.

Плавный характер изменения теплоемкости без разрыва диаграммы ДСК с увеличением температуры соответствует единой температуре стеклования и свидетельствует о термодинамической совместимости полимеров в композиционной смеси.*

Установлено, что все композиционные пленки на основе сополиимидов и полиакриламида (см. таблицу) обладают улучшенными термическими свойствами в сравнении с исходным алициклическим полиимидом, так как температуры начала разложения полученных композиционных материалов ($T_{н.р} = 393–416^\circ\text{C}$) превышают аналогичное значение для алициклического полиимида (380°C). Пленки на основе композиций с более высоким содержанием полиакриламида в смеси с сополиимидами обладают лучшей термоустойчивостью ($T_{н.р} = 411–416^\circ\text{C}$), чем исходные сополимеры сополиимид-1/сополиимид-2 ($T_{н.р} = 405/408^\circ\text{C}$). Лучшими термическими характеристиками обладают пленки, полученные при соотношениях полимеров сополиимид-1 + 3 мас% полиакриламида и сополиимид-2 + 2 мас% полиакриламида (см. таблицу).

* Экспериментальные методы в химии полимеров / Пер. с англ. Я. С. Выгодского под ред. В. В. Коршака. М.: Мир, 1983. Т. 1. С. 34; Т. 2. С. 171–188 [Jan F. Rabek. Experimental Methods in Polymer Chemistry. John Wiley & Sons, New York, Brisbane, Toronto, 1979].

Термические и физико-механические свойства композиционных пленок на основе сополиимидов и полиакриламида

Пленка, соотношение компонентов	Температура стеклования $T_g, ^\circ\text{C}$	Температура начала разложения $T_{н.р}, ^\circ\text{C}$	Прочность на разрыв, $\sigma_{рз}, \text{МПа}$	Относительное удлинение $l, \%$
Сополиимид-1/сополиимид-2 + 0.5 мас% полиакриламида	352/355	393/395	136/146	23/23
Сополиимид-2 + 0.75 мас% полиакриламида	360	400	155	21
Сополиимид-1/сополиимид-2 + 1 мас% полиакриламида	362/364	402/405	162/168	20/19
Сополиимид-2 + 1.5 мас% полиакриламида	365	411	170	20
Сополиимид-2 + 2 мас% полиакриламида	371	416	176	19
Сополиимид-1 + 2.5 мас% полиакриламида	370	410	172	19
Сополиимид-1 + 3 мас% полиакриламида	377	416	178	17
Сополиимид-1/сополиимид-2	340/350	405/408	150/162	20/17
Алициклический полиимид	114	380	71	30

Композиционные пленки с различным содержанием компонентов проявили прочностные свойства (прочность на разрыв $\sigma_{рз}$), намного превышающие (136–178 МПа) прочность алициклического полиимиды (70 МПа). Увеличение прочности материала с ростом содержания полиакриламида в полимерной смеси сополиимид-1/сополиимид-2 + полиакриламид, возможно, обусловлено ростом частичных сшивок в композиционных пленках, подвергнутых термообработке. При увеличении содержания полиакриламида от 0.75 до 3 мас% в композиционной смеси с сополиимидом-1/сополиимидом-2 полученный материал по прочности (155–178 МПа) превышает аналогичные значения исходных сополимеров сополиимид-1/сополиимид-2. Однако эластичность композиционных пленок (относительное удлинение l) несколько уменьшается, но находится в пределах допустимого для композиционного материала.

Таким образом, получены новые композиционные пленки на основе сополиимиды-1/сополиимиды-2 и полиакриламида с улучшенными термическими и физико-механическими свойствами.

Выводы

Показано, что наибольшее содержание ароматического диангирида при равновесной сополиконденсации диангиридов трициклодецентетракарбонной, дифенилоксидтетракарбонной кислот и диаминодифенилового эфира в растворе метилпирролидона с образованием арилалициклических сополиимидов

составляет 15 мол%, дальнейшее его увеличение нецелесообразно из-за перехода процесса к условиям неравновесной поликонденсации.

Пленкообразующие композиции арилалициклических сополиимидов с полиакриламидом получены их механическим смешением, при котором макромолекулярные реакции между полифункциональными полимерами практически исключены. Пластифицирующие добавки полиакриламида благодаря частичной межмолекулярной сшивке, происходящей в процессе термообработки пленок, способствуют повышению их прочности и термостойкости. Лучшими термическими и прочностными характеристиками обладают пленки, полученные при следующих соотношениях полимеров: сополиимид-1 + 3 мас% полиакриламида, сополиимид-2 + 2 мас% полиакриламида.

Финансирование работы

Работа выполнена в Институте химических наук им. А. Б. Бектурова по программе целевого и грантового финансирования научных исследований на 2018–2020 годы, осуществляемого Комитетом науки Министерства образования и науки Республики Казахстан, по проектам BR05234667 и AP05131077.

Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов, требующего раскрытия в данной статье.

Информация об авторах

Умерзакова Майра Бердигалиевна, д.х.н., проф.,
ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-9392-4637>.

Кравцова Валентина Дмитриевна, д.х.н.,
ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-0234-6729>

Сариева Рахима Баймухаметовна, к.х.н.,
ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-1566-4611>.

Список литературы

- [1] Новаков И. А., Орлинсон Б. С., Брунилин Р. Б., Потаенкова Е. А. Растворимые полиимиды и сополиимиды с повышенной гидролитической устойчивостью на основе [(2-амино)- и (2-аминометил)бицикло[2.2.1]гептен-3-ил]анилинов // Высокомолекуляр. соединения. 2010. Т. 52А, Б. № 10. С. 1861–1865 [Novakov I. A., Orlinson B. S., Brunilin R. B., Potaenkova E. A. Soluble polyimides and copolyimides with increased hydrolytic stability that are based on [(2-amino)- and (2-aminomethyl)-bicyclo[2.2.1]hept-3-yl]anilines // Polym. Sci. Ser. A, B. 2010. V. 52. N 10. P. 1246–1250. <https://doi.org/10.1134/S1560090410090137>].
- [2] Юдин В. Е., Бугров А. Н., Диденко А. Л. Композиты мультимодного (сегментного) алифатического полиэфиримида с наночастицами диоксида циркония. Синтез, механические и перапорационные свойства // Высокомолекуляр. соединения. 2014. Т. 56Б. № 6. С. 859–866 [Yudin V. E., Bugrov A. N., Didenko A. L. Composites of multiblock (segmented) aliphatic poly(ester imide) with zirconia nanoparticles: Synthesis, mechanical properties, and pervaporation behavior // Polym. Sci. Ser. B. 2014. V. 56. N 6. P. 576–583. <https://doi.org/10.1134/S1560090414060165>].
- [3] Мелешко Т. К., Сущенко И. Г., Богорад Н. Н., Гофман И. В., Светличный В. М., Розова Е. Ю., Ельяшевич Г. К., Кудрявцев В. В., Якиманский А. В. Электропроводящие пленкообразующие композиции на основе смеси полианилина и полиимидов // Высокомолекуляр. соединения. 2009. Т. 51А. № 3. С. 447–453 [Meleshko T. K., Sushchenko I. G., Bogorad N. N., Gofman I. V., Svetlichnyi V. M., Rozova E. Yu., El'yashevich G. K., Kudryavtsev V. V., Yakimanskiy A. V. Conducting film-forming composites based on polyaniline-polyimide blends // Polym. Sci. Ser. A. 2009. V. 51. N 3. P. 311–316. <https://doi.org/10.1134/S0965545X09030109>].
- [4] Пат. РФ 2409599 (опубл. 2011). Полиимиды и сополиимиды, предназначенные для изготовления гидролитически и термически устойчивых полиимидных материалов.
- [5] Rehman Sh., Li P., Zhou H.-W., Zhao X.-G., Dang G.-D., Chen Ch.-H. Thermally and hydrolytically stable-27-polyimides containing naphthalimide units // Polym. Degrad. Stab. 2012. V. 97. N 9. P. 1581–1588. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2012.06.035>
- [6] Кравцова В. Д., Умерзакова М. Б., Коробова Н. Е., Сариева Р. Б. Получение и исследование новых металлсодержащих полимерных композиций на основе алициклического полиимида // ЖПХ. 2017. Т. 90. № 11. С. 1528–1534 [Kratsova V. D., Umerzakova M. B., Korobova N. E., Sariyeva R. B. Obtaining and investigation of new metal-containing polymer compositions based on acyclic polyimide // Russ. J. Appl. Chem. 2017. V. 90. N 11. P. 1833–1839. <https://doi.org/10.1134/S1070427217110167>].
- [7] Пат. РБ 11322 (опубл. 2008). Полиимидная композиция для защиты кристаллов полупроводниковых приборов и интегральных схем.
- [8] Крутько Э. Т., Прокопчук Н. Р. // Химия и химическая технология органических веществ, материалов и изделий. Тр. БГТУ. 2013. № 4. С. 145–150. <http://dx.doi.org/10.15688/jvolsu10.2014.3.4>
- [9] Кравцова В. Д., Умерзакова М. Б., Искаков Р. М., Сариева Р. Б. // Фундаментальные исследования. Журн. РАЕ. 2017. № 7. С. 39–43.
- [10] Жубанов Б. А., Искаков Р. М., Сариева Р. Б., Абадие М. Ж. Новые композиционные пленочные материалы на основе алициклического полиимида // ЖПХ. 2007. Т. 80. № 5. С. 856–861 [Zhubanov B. A., Iskakov R. M., Sariyeva R. B., Abadie M. J. New film composites based on alicyclic polyimide // Russ. J. Appl. Chem. 2007. V. 80. N 5. P. 833–837. <https://doi.org/10.1134/S1070427207050278>].
- [11] Жубанов Б. А., Умерзакова М. Б., Кравцова В. Д., Искаков Р. М., Сариева Р. Б. Полимерные композиции на основе алициклического полиимида и полиэтиленгликоля // ЖПХ. 2013. Т. 86. № 10. С. 1653–1658 [Zhubanov B. A., Umerzakova M. B., Kratsova V. D., Iskakov R. M., Sariyeva R. B. Polymeric composites based on alicyclic polyimide and poly(ethylene glycol) // Russ. J. Appl. Chem. 2013. V. 86. N 10. P. 1605–1609. <https://doi.org/10.1134/S1070427213100212>].
- [12] Баженов С. Л., Берлин А. А., Кульков А. А., Ошмян В. Г. Полимерные композиционные материалы. Прочность и технологии. М.: Изд-во Интеллект, 2009. С. 25–30.
- [13] Крутько Э. Т., Прокопчук Н. Р., Глоба А. И. Химическая модификация полипиромеллитимида // Полимер. материалы и технологии. 2017. Т. 3. № 1. С. 33–46.
- [14] Жубанов Б. А., Кравцова В. Д., Бекмагамбетова К. Х., Ахметтаев Д. Д. Электрические свойства алициклических полиимидов. Алматы: Print-S, 2010. С. 89.