第 39 卷 第 X 期
2026 年 X 月

高 分 子 通 报
POLYMER BULLETIN

Vol. 39, No. X
XXXX, 2026

·研究论文·

基于脲基氢键增强的无色透明含氟聚酰亚胺的制备与性能

张维贤 李佳文 王佳佳*

(湘潭大学化学学院 环境友好化学与应用教育部重点实验室 湘潭 411105)

摘要：无色透明聚酰亚胺(CPI)因兼具优异的耐热性与透明性成为柔性显示领域的关键材料。本研究设计合成了一种含脲基的含氟二元芳胺单体，并将其与4,4'-(六氟异丙亚基)二邻苯二甲酸酐(6FDA)进行聚合，经热亚胺化制备了含脲基的含氟聚酰亚胺。通过脲基结构的引入实现了线型芳香族聚酰亚胺的溶解性、热稳定性与光学透明性的平衡。利用变温核磁(NMR)证明了脲基在分子链间形成了稳定的氢键相互作用，所制得的PUI薄膜兼具优异的光学透明性(可见光透过率>87%，截止波长<340 nm)与热稳定性，玻璃化转变温度(T_g)达333 ℃，线性热膨胀系数(CTE)低至5.4×10^{-5} ℃$^{-1}$。氢键作用的引入为平衡CPI材料的光学透明性与耐热性提供了有效的分子设计策略。

关键词：含氟聚酰亚胺；氢键；光学透明性；热稳定性；脲

Preparation and Properties of Fluorinated Colorless Polyimide Enhanced by Urea-based Hydrogen Bonding

ZHANG Wei-xian, LI Jia-wen, WANG Jia-jia*

(*Key Laboratory of Environment-Friendly Chemistry and Application in Ministry of Education, College of Chemistry, Xiangtan University, Xiangtan 411105*)

Abstract: Colorless transparent polyimides (CPIs) have become key materials in the field of flexible displays due to their excellent combination of thermal resistance and optical transparency. In this work, a fluorinated diamine monomer containing a urea group was designed and synthesized, which was then polymerized with 4, 4'-(hexafluoroisopropylidene)diphthalic anhydride (6FDA) to prepare a urea-containing fluorinated polyimide via thermal imidization. The introduction of the urea structure enables a balance among solubility, thermal stability, and optical transparency in linear aromatic polyimides. Variable-temperature nuclear magnetic resonance (NMR) spectroscopy confirms the formation of stable hydrogen bonding interactions between polymer chains via the urea groups. The resulting poly(urethane-imide) (PUI) film exhibits excellent optical transparency (visible light transmittance >87%, cut-off wavelength < 340 nm) and high thermal stability, with a glass transition temperature (T_g) of 333 ℃ and a low coefficient of linear thermal expansion (CTE) of 5.4×10^{-5} ℃$^{-1}$. The introduction of hydrogen bonding interactions provides an effective molecular design strategy for balancing the optical transparency and thermal resistance of CPI materials.

Keywords: Fluorinated polyimide; Hydrogen bonding; Optical transparency; Thermal stability; Urea

引用：张维贤, 李佳文, 王佳佳. 基于脲基氢键增强的无色透明含氟聚酰亚胺的制备与性能. 高分子通报, doi: 10.14028/j.cnki.1003-3726.2026.26.219

Citation: Zhang, W. X.; Li, J. W.; Wang, J. J. Preparation and properties of fluorinated colorless polyimide enhanced by urea-based hydrogen bonding. *Polym. Bull.* (in Chinese), doi: 10.14028/j.cnki.1003-3726.2026.26.219

2026-04-30 收稿，2026-05-25 录用
基金项目：国家自然科学基金 (基金号 22205192)
* 通信联系人：王佳佳，E-mail: wangjiajia@xtu.edu.cn
doi: 10.14028/j.cnki.1003-3726.2026.26.219

聚酰亚胺(PI)因其优异的耐热性、机械性能、化学稳定性及介电性能，被广泛应用于航空航天、微电子、新能源及柔性显示等技术领域[1~5]。随着光电器件向轻量化、柔性化、高集成度方向发展，对PI材料的光学透明性、尺寸稳定性及加工性能等提出了更高要求。然而，传统芳香族PI由于分子链内及链间存在强烈的电荷转移络合(CTC)效应，通常呈深黄至棕褐色，严重限制了其在光学器件、柔性显示等领域的应用[6]。开发兼具高耐热性、优异尺寸稳定性与良好光学透明性的无色透明聚酰亚胺(CPI)成为当前功能高分子材料研究的热点之一[7~9]。

提高PI光学透明性的常用策略包括引入高电负性含氟基团[10~14]、脂环结构[15~19]、不对称[20~23]或非共面结构[24~26]等。其中，含氟芳香族聚酰亚胺因氟原子的强电负性和低极化率，能够显著削弱CTC效应，赋予材料优异的光学透明性，同时保持较高的热稳定性[27]。然而，含氟结构的引入往往降低分子链间的相互作用力，导致材料的热机械性能与尺寸稳定性下降，限制了其在精密光学与微电子封装中的应用。

为在保持高透明性的同时提升PI的耐热性与尺寸稳定性，研究者们尝试通过分子结构设计引入氢键、π-π堆积等相互作用，增强分子链间的物理交联作用[28,29]。氢键作为一种强效且可逆的非共价相互作用，在提高聚合物玻璃化转变温度、降低热膨胀系数、改善力学性能方面展现出独特优势[30]。近年来，在聚酰亚胺主链或侧链中引入酰胺基、脲基、氨基甲酸酯基等氢键单元，已成为调控聚集态结构、提升综合性能的有效途径[31~35]。其中，脲基因其双氢键给体与受体的结构特点，可形成强且方向性良好的氢键网络，在增强分子链间相互作用方面具有显著效果。

本工作设计并合成了一种含脲基的含氟二元芳胺单体UA，通过该单体与4,4'-(六氟异亚丙基)二邻苯二甲酸酐(6FDA)进行聚合，采用两步法热亚胺化成功制备了一种含脲基的芳香族聚酰亚胺PUI。研究发现，脲基的引入使得PUI分子链间形成了稳定的氢键相互作用，在不显著影响溶解性与光学透明性的前提下，有效提升了所得PI膜的耐热性与尺寸稳定性。所得PUI薄膜在450 nm处的光学透过率(T_{450nm})达到87%，玻璃化转变温度(T_g)高达333 ℃，50~200 ℃范围内线性热膨胀系数(coefficient of thermal expansion，CTE)仅为5.4×10^{-5} ℃$^{-1}$。为开发兼具优异成膜性、高透明性与高耐热性的新型聚酰亚胺材料提供了可行的分子设计与工艺优化思路。

1 实验部分

1.1 原料和试剂

4,4'-(六氟异亚丙基)二邻苯二甲酸酐(6FDA)，纯度高于99%，购自阿达玛斯试剂有限公司；2,2'-二(三氟甲基)二氨基联苯，纯度高于98%，购自阿达玛斯试剂有限公司；4,4'-二苯基甲烷二异氰酸酯，纯度高于95%，购自阿达玛斯试剂有限公司；*N*-甲基吡咯烷酮(NMP)与四氢呋喃(THF)均购自天津市科密欧化学试剂有限公司，使用前均需要用预先干燥好的分子筛处理7天，分析纯；其他试剂均购自试剂公司，使用前无特殊处理。

1.2 测试与表征

单体的红外光谱采用美国Nicolet公司的Nicolet-670型傅里叶变换红外光谱仪KBr压片制样测试，PI薄膜采用傅里叶变换衰减全反射红外光谱，测试范围为4000~600 cm^{-1}；核磁共振氢谱(^{1}H-NMR)采用瑞士布鲁克公司Bruker Avance 400 instrument，以DMSO-d_6为溶剂，在25 ℃条件下测试；变温^{1}H-NMR测试：采用德国Bruker (600 MHz)，以DMSO-d_6为溶剂，在25，35，45，55 ℃条件下测试。

使用美国TA公司的Perkin-Elmer TGA50型热重分析仪进行热重分析(TGA)测试，采用氧化铝坩埚，试样质量为3~5 mg，温度范围为50~800 ℃，吹扫气为氮气，升温速率为10 ℃·min^{-1}；示差扫描量热法(DSC)测试采用美国TA-instrument公司DSC-Q10型热重分析仪进行，氮气氛围下，以10 ℃·min^{-1}的速率在25~350 ℃进行升温测试；动态热机械分析(DMA)测试采用美国TA-instrument公司的Q800型分析仪，在空气氛围下测试温度为25~400 ℃，升温速率为5 ℃·min^{-1}，扫描频率为1 Hz；热机械分析(TMA)测试采用美国TA-instrument公司的Q400型测试仪，在氮气氛围下温度为25~400 ℃，升温速率为5 ℃·min^{-1}，固定负载为0.1 N。紫外–可见(UV-Vis)透光率测试采用日本SHIMADZU公司的UV-3600Plus型的紫外可见近红外分光光度计；聚合物薄膜的力学性能在1121型材料试验机(Instron，英国)上测定，拉

伸速率10 mm·min^{-1}；X射线衍射 (XRD)采用岛津XRD-6100衍射仪，使用Cu Kα辐射 (40 kV 30 mA, 5 (°)·min^{-1}, 5°~60°). d值计算公式为：$d = \lambda/(2\sin\theta)$ 其中，d为分子链的间距，a为λ射波长，θ为λ射X射线与膜表面的夹角。

1.3　含脲基的二胺单体的制备

向圆底烧瓶中加入2,2'-二(三氟甲基)二氨基联苯(12.81 g, 40.00 mmol)，然后缓慢加入THF (200 mL)，待完全溶解后，将溶于THF (50 mL)的4,4'-亚甲基双(异氰酸苯酯) (2.50 g, 10.00 mmol)的溶液，用恒压滴液漏斗缓慢滴加进圆底烧瓶中，于40 ℃下，搅拌反应 12 h。然后加入去离子水(100 mL) 终止反应，用乙酸乙酯(3×150 mL)提取粗产物并合并，去离子水 (3×200 mL) 洗涤、无水Na_2SO_4干燥。过滤并浓缩后，使用正己烷/乙酸乙酯(体积比为4:1~2:1)作为洗脱剂通过硅胶柱层析纯化，得到白色粉末UA 7.12 g. 收率80%。

1.4　含脲基的聚酰亚胺PUI的制备

聚酰亚胺PUI的合成如图1所示。在氩气气氛下，将UA (4.45 g, 5.00 mmol)和6FDA (2.22 g, 5.00 mmol)溶于NMP (25 mL)中，在25 ℃下搅拌24 h，得到聚酰胺酸溶液。将所得聚酰胺酸溶液缓慢滴涂至玻璃板上，并置于加热台上在80 ℃下加热6 h挥去大部分溶剂，然后置于N_2气氛中于180 ℃下加热1 h、250 ℃下加热1 h，冷却至室温后，得到聚酰亚胺PUI。

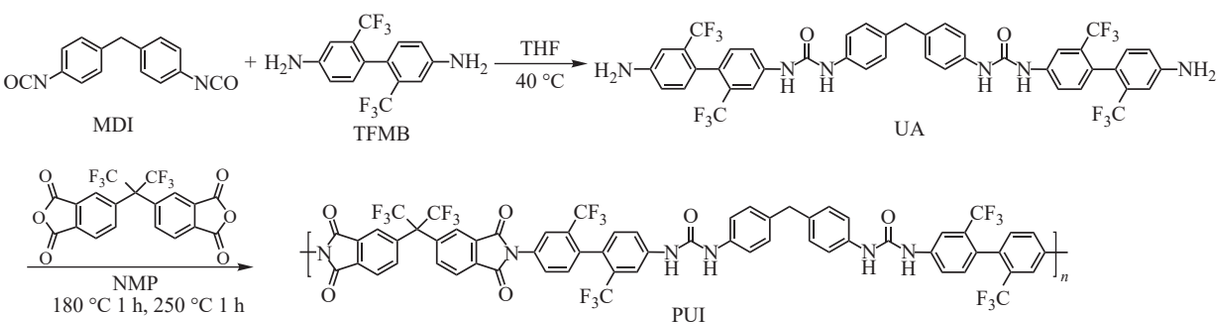


图 1　单体 UA 及聚酰亚胺 PUI 的合成

Figure 1　Synthesis of diamine monomer UA and polyimide PUI

2　结果与讨论

2.1　单体及聚合物的结构表征

所合成的单体UA及聚酰亚胺PUI的^{1}H-NMR谱图如图2所示，其中，δ=3.8处的单峰对应亚甲基上的氢，在δ=9.2~8.8范围内的2组单峰属于脲基上的氢的典型特征峰，说明脲基结构的成功引入，且亚胺化过程没有造成脲基结构的破坏。在聚合完成后，单体中的氨基特征峰(δ=5.7)消失，且在PUI的^{1}H-NMR谱图中未发现酰胺酸的特征峰，证明亚胺化完全。

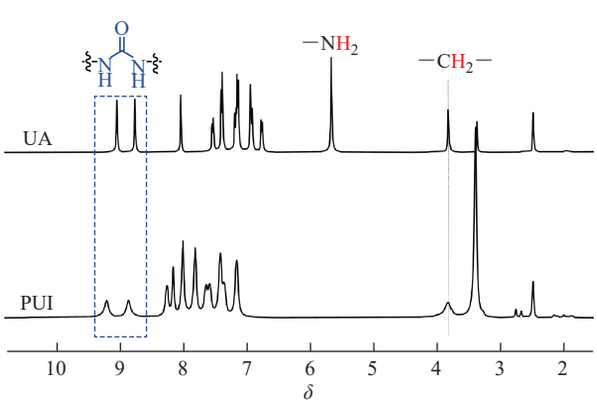


图 2　单体 UA 及聚酰亚胺 PUI 的核磁氢谱图

Figure 2　^{1}H-NMR spectra (DMSO-d_6, 400 MHz) of monomer UA and polyimide PUI

氢键形成时，键的变弱和键长的增加能引起相关质子和原子核的局部化学环境的变化。如图3(a)所示，通过变温^{1}H-NMR对二胺单体UA形成的氢键进行了研究，UA的脲基上N−H质子峰以及−NH_2的质子峰化学位移随温度变化明显，随着温度的升高，其化学位移向高场移动，说明形成了分子间氢键。

将二胺单体UA和二酐6FDA通过传统两步法缩合，首先生成预聚体聚酰胺酸，然后经过热亚胺化方法，得到聚酰亚胺PUI。通过变温^{1}H-NMR对聚酰亚胺PUI形成的氢键进行了研究，如图3(b)所示，可以清楚地看到聚合物链上脲基N−H上的质子化学位移随温度的升高而向高场移动，说明了聚合物分子链上氢键的存在。

通过FTIR光谱进一步表征二胺单体UA和

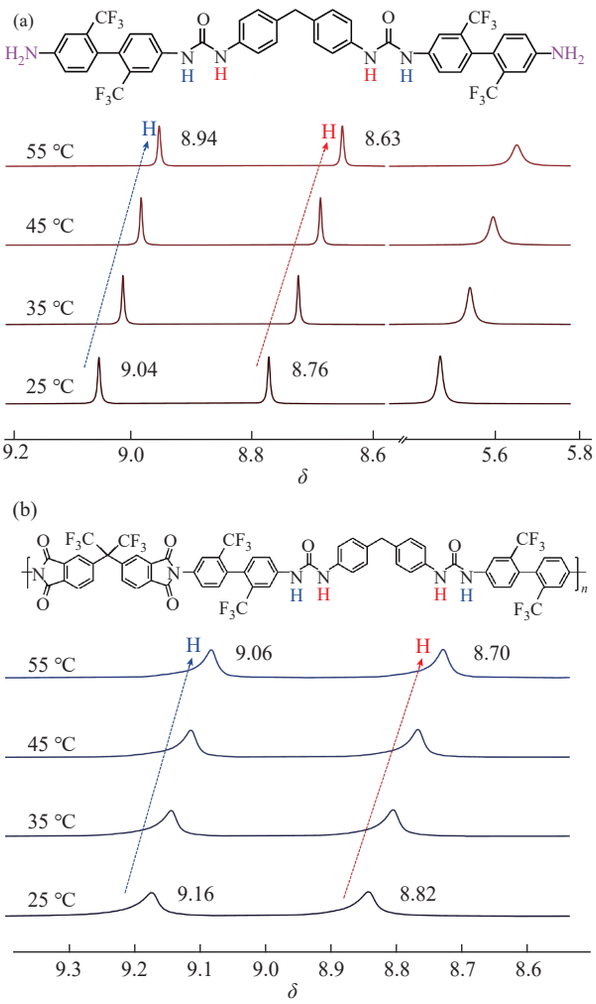


图 3 (a)单体 UA 及 (b)聚酰亚胺 PUI 的变温核磁氢谱图

Figure 3 ^{1}H-NMR spectra (DMSO-d_6, 600 MHz) of (a) UA and (b) PUI under different temperatures

聚酰亚胺PUI的分子结构，如图4所示。氢键(N—H···O)的形成导致O上的孤对电子进入N—H的反键轨道，N—H键延长。PUI和UA的脲基上的N—H峰出现在3370~3350 cm^{-1}，比自由的N—H伸缩振动(>3400 cm^{-1})处于更低的波数处，说明了氢键的形成。在约为1784、1724和1370 cm^{-1}处出现的特征峰，对应于酰亚胺环上不对称/对称的C=O的伸缩振动以及C—N的伸缩振动，以及1600 cm^{-1}处的脲基上C=O特征峰都表明了二胺单体UA和聚合物PUI的成功制备。

2.2 聚酰亚胺PUI的成膜性和光学透过性

如图5所示，通过溶液滴涂法制备PUI膜，将聚合得到的聚酰胺酸溶液缓慢滴涂到玻璃基板上，在80 ℃的加热板上加热6 h除去大部分溶剂。然后在N_2气氛中，于180 ℃下加热1 h，250 ℃下加热1 h。冷却至室温后，成功获得自支撑PUI薄膜，如图6(a)所示。

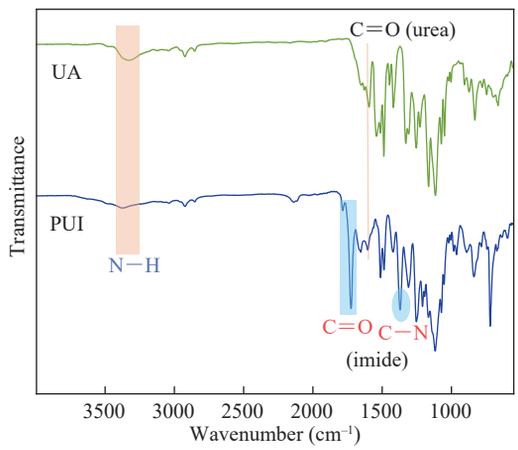


图 4 单体 UA 及聚酰亚胺 PUI 的 FTIR 光谱图

Figure 4 FTIR spectra of monomer UA and polyimide PUI

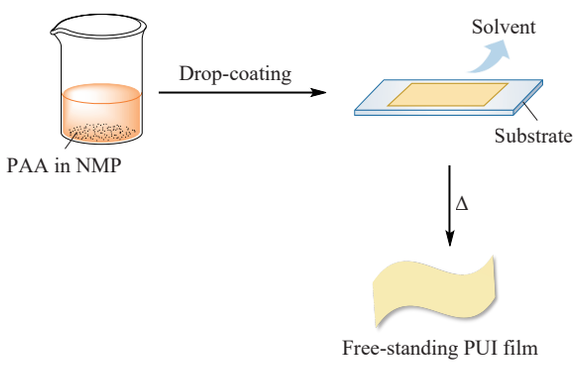


图 5 PUI 薄膜的制备过程示意图

Figure 5 Preparation process of PUI film

从图6(a)可以明显看出所得PUI薄膜呈无色透明状并且具有高度柔韧性。进一步用UV-Vis光谱表征PUI的光学透明性，如图6(b)所示，厚度为36 μm的PUI薄膜在450和500 nm处分别显示出87%和90%的高透光率。聚酰亚胺PUI中引入了大量高电负性含氟基团—CF_3，由于氟原子本身的半径较小且有极强的电负性，—CF_3自由体积较大且C—F键高度极化，大大降低二胺的给电子效应，阻碍了分子间或分子内电荷转移络合物CTC的形成，有利于提升材料的光学透明性，使得PUI膜具有优异的光学透明性。

2.3 聚酰亚胺PUI的热稳定性与力学性能

通过差示扫描量热仪(DSC)和热重分析仪(TGA)对聚酰亚胺PUI热稳定性进行表征，所得数据如图7及表1所示。从图7(a)所示的DSC曲线中可以看出PUI在200~300 ℃的温度范围内没有明显的热量变化，说明PUI已经完全亚胺化。接着通过TGA研究了聚酰亚胺PUI的热分

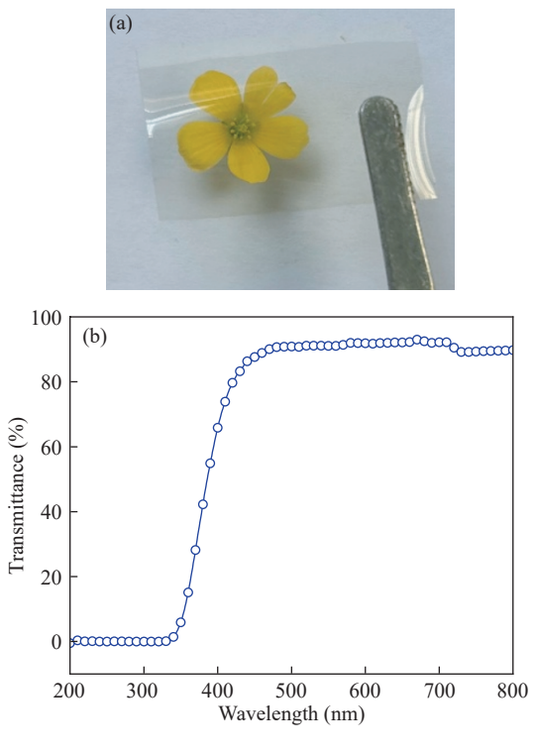


图 6　平均厚度为 36 μm 的 PUI 薄膜(a)照片及 (b)紫外–可见透过率光谱

Figure 6　(a) Photograph and (b) UV-Vis spectrum of PUI film with an average thickness of 36 μm

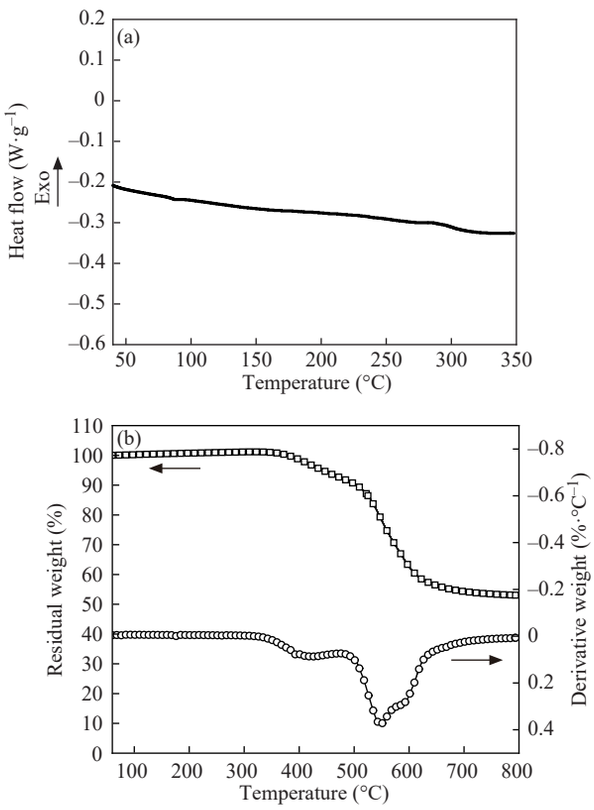


图 7　PUI 的 (a) DSC 与 (b) TGA 曲线

Figure 7　(a) DSC and (b) TGA curves of polyimide PUI

解过程，如图7(b)所示，在N_2气氛下，PUI的5%热失重温度为448 ℃，10%热失重温度为504 ℃，550 ℃时处于最大热分解速率，在800 ℃下的残留率为53%。这些结果表明PUI在N_2下具有优异的热稳定性，这是因为PUI具有大量的芳环和含氮五元杂环，以及高刚性含氢键的分子链骨架，导致分子间具有极强的作用力，并且氢键的存在使得PUI分子链紧密堆积缠结，热稳定性提高。

通过动态热机械分析仪(DMA)和静态热机械分析仪(TMA)对聚酰亚胺PUI热机械性能进行表征，结果如图8和表1所示。根据如图8(a)所示的DMA曲线可以看出 tanδ 在333 ℃达到峰值，由此可得PUI的玻璃化转变温度(T_g)为333 ℃，显示出优异的热稳定性。此外，由PUI链间氢键形成的强相互作用力，使分子链堆积缠结紧密，PUI在室温下显示出1.9 GPa的高储能模量。同时，通过TMA研究了PUI静态热机械行为，如图8(b)所示，聚酰亚胺PUI的线性热膨胀系数(CTE)低至5.4×10^{-5} ℃$^{-1}$，具有较为优异的尺寸稳定性。

此外，聚合物薄膜的拉伸应力–应变曲线结果(如图9与表1所示)显示，所得脲基聚酰亚胺薄膜的拉伸强度为57 MPa，断裂伸长率为4.9%，杨氏模量高达1.5 GPa，表明PUI薄膜具有较为优异的力学性能。

2.4　聚酰亚胺PUI的分子链微观形态

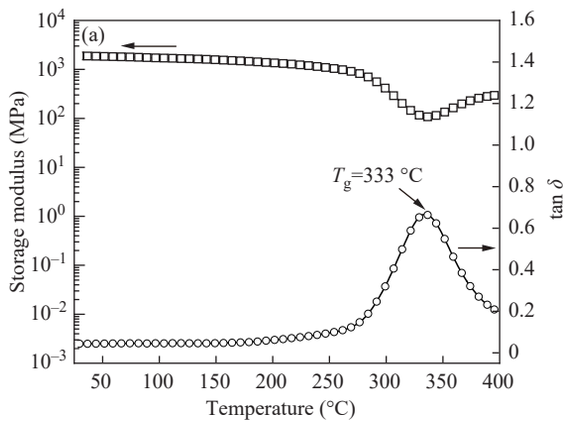
为了研究氢键的存在对PUI分子链堆积的影响，用广角X射线衍射(WAXD)表征了聚酰亚胺

表1　PUI的热稳定性与机械性能[a]

Table 1　Thermal stability and mechanical strength of PUI [a]

polymer	T_g [b] (℃)	$T_{5\%}$ [c] (℃)	R_{800} [d] (%)	Storage modulus [e] (GPa)	CTE [f] (℃$^{-1}$)	Tensile strength (MPa)	Young's modulus (GPa)	Elongation at break (%)
PUI	333	448	53	1.9	5.4×10^{-5}	57	1.5	4.9

[a] PUI prepared using the method described in the experimental section; [b] Glass transition temperature measured by DMA; [c] 5% weight loss temperature, as determined by TGA; [d] Percentage of residual weight at 800 ℃ determined by TGA; [e] Storage modulus measured by DMA at room temperature; [f] Coefficient of thermal expansion calculated using TMA (50 ℃ to 200 ℃)



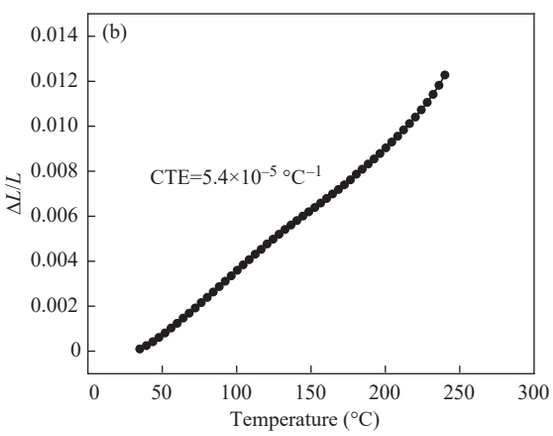


图 8 PUI 的 (a) DMA 与 (b) TGA 曲线

Figure 8 (a) DMA and (b) TMA curves of PUI films.

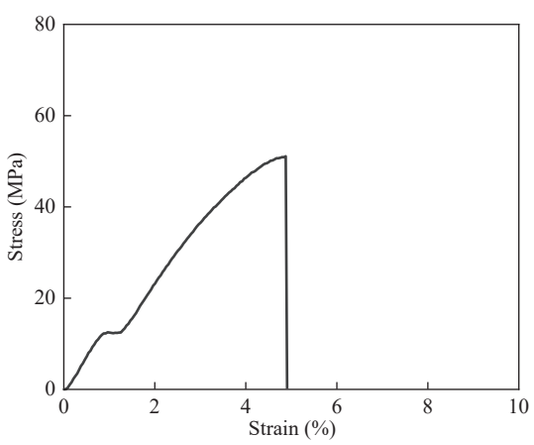


图 9 PUI 薄膜的应力–应变曲线

Figure 9 Stress-strain curve of PUI film

PUI膜的分子链微观形态。图10所示的WAXD曲线可以清楚地看出，聚酰亚胺PUI表现出15°~21°的宽峰，表明PUI是无定形的，根据Bragg方程：$n\lambda = 2d\sin\theta$，计算出了PUI分子链间的平均距离d为0.48 nm，表明多氢键的存在构成了更加紧密缠结的非共价键交联网络。

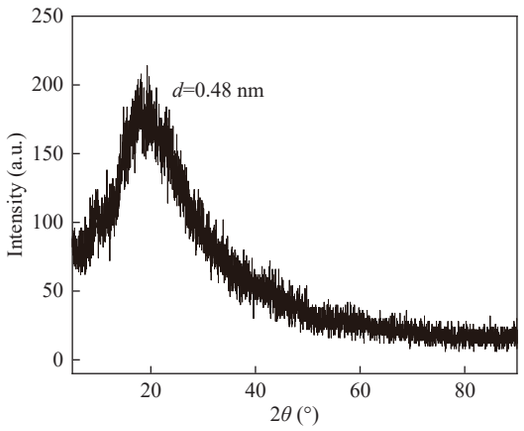


图 10 PUI 的广角 X 射线衍射图

Figure 10 WAXD pattern of PUI

3 结论

设计合成了含脲基含氟的功能化二胺单体，将脲基和强极性基团三氟甲基引入聚合物分子链，制备出了高热稳定性的无色透明聚酰亚胺PUI。含氟基团的存在，抑制了聚酰亚胺分子链内和链间的CTC作用，明显提升了聚酰亚胺薄膜的透明性，降低了聚酰亚胺薄膜的色泽，所得聚酰亚胺在450和500 nm处分别显示出87%和90%的高透过率，由于脲基具有超强的氢键形成能力，使得聚酰亚胺同时还拥有优异的热稳定性，5%热失重温度为448 ℃，线性热膨胀系数低至5.4×10^{-5} ℃$^{-1}$。本工作为通过氢键工程优化聚酰亚胺综合性能提供了有效策略。

参考文献

1 Kothavade, P.; Kafi, A.; Shanmuganathan, K.; Bateman, S. High performance polyimides for additive manufacturing: a critical review. *Prog. Polym. Sci.*, **2026**, 172, 102055.

2 Zhang, H.; Chen, L. L.; Xin, H. S.; Zhang, J. H. Performance regulation and application evaluation of colorless polyimide for flexible displays. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2025**, 17(11), 17358–17367.

3 Liaw, D. J.; Wang, K. L.; Huang, Y. C.; Lee, K. R.; Lai, J. Y.; Ha, C. S. Advanced polyimide materials: syntheses, physical properties and applications. *Prog. Polym. Sci.*, **2012**, 37(7), 907–974.

4 Yu, Z. J.; Fang, Y. Z.; Lu, X. M.; Lu, Q. H. Methyl side-group-regulated terphenyl polyimides with high heat resistance and ultralow thermal expansion for OLED applications. *ACS Appl. Polym. Mater.*, **2024**, 6(11),

6658–6666.

5 Nimkar, A.; Bergman, G.; Ballas, E.; Tubul, N.; Levi, N.; Malchik, F.; Kukurayeve, I.; Chae, M. S.; Sharon, D.; Levi, M.; Shpigel, N.; Wang, G. X.; Aurbach, D. Polyimide compounds for post-lithium energy storage applications. *Angew*. *Chem*. *Int*. *Ed*., **2023**, 62(50), e202306904.

6 Ni, H. J.; Liu, J. G.; Wang, Z. H.; Yang, S. Y. A review on colorless and optically transparent polyimide films: chemistry, process and engineering applications. *J*. *Ind*. *Eng*. *Chem*., **2015**, 28, 16–27.

7 Yang, Z. S.; Liu, H. Y.; Zhou, P. H.; Li, H. L.; Zou, Z. H.; Yang, G. Thermally stable, hydrophobic colorless polyimides with high strength and excellent dimensional stability for flexible optoelectronics and electronics. *J*. *Polym*. *Sci*., **2025**, 63(12), 2615–2625.

8 Li, D. D.; Wang, C. Y.; Yan, X. Y.; Ma, S. Q.; Lu, R.; Qian, G. T.; Zhou, H. W. Heat-resistant colorless polyimides from benzimidazole diamines: synthesis and properties. *Polymer*, **2022**, 254, 125078.

9 Qiu, L. H.; Peng, W. F.; Zou, B. Y.; He, B. X.; Bao, F.; Lei, H. Y.; Huang, M. J. Comprehensive advantages of colorless, transparent, and thermally stable aromatic polyimides *via* fluorinated terphenyl dianhydride. *Polymer*, **2025**, 334, 128741.

10 Liu, Z. Y.; Gao, Y. Y.; Wang, C.; Yu, Q. Q.; Zhang, Z. L.; Wang, L. G. Achieving enhanced optical transparency and low-dielectric properties in meta-substituted copolyimides for flexible substrates. *Chinese J*. *Polym*. *Sci*., **2026**, 44(2), 341–351.

11 Li, H.; Jin, W. Y.; Zhang, W. Y.; Li, J.; Ji, J. Q.; Tang, Y.; Yang, T. Q.; Zhang, S. J.; Yang, H. X.; Gong, C. L. Intrinsic low-dielectric cardo polyimide with high heat resistance, high transparency, and low birefringence. *Giant*, **2025**, 21, 100349.

12 Fang, Y. Z.; Lu, X. M.; Xiao, J. J.; Zhang, S. Y.; Lu, Q. H. Thermally stable and transparent polyimide derived from side-group-regulated spirobifluorene unit for substrate application. *Macromol*. *Rapid Commun*., **2024**, 45(17), e2400245.

13 Bao, F.; Qiu, L. H.; Zou, B. Y.; Lei, H. Y.; Peng, W. F.; Cheng, S. Z. D.; Huang, M. J. Development of fluorinated colorless polyimides of restricted dihedral rotation toward flexible substrates with thermal robustness. *Macromolecules*, **2024**, 57(8), 3568–3579.

14 Peng, W. F.; Lei, H. Y.; Qiu, L. H.; Bao, F.; Huang, M. J. Perfluorocyclobutyl-containing transparent polyimides with low dielectric constant and low dielectric loss. *Polym*. *Chem*., **2022**, 13(26), 3949–3955.

15 Miyane, S.; Chen, C. K.; Lin, Y. C.; Ueda, M.; Chen, W. C. Thermally stable colorless copolyimides with a low dielectric constant and dissipation factor and their organic field-effect transistor applications. *ACS Appl*. *Polym*. *Mater*., **2021**, 3(6), 3153–3163.

16 Chen, C. K.; Lin, Y. C.; Hsu, L. C.; Ho, J. C.; Ueda, M.; Chen, W. C. High performance biomass-based polyimides for flexible electronic applications. *ACS Sustainable Chem*. *Eng*., **2021**, 9(8), 3278–3288.

17 Yu, Y. F.; Zhu, W. J.; Li, H. T.; Long, J.; Huang, W. H.; Li, J. C.; Chen, L.; Zhang, Y. P. Transparent semi-aliphatic polyimide films with excellent thermal stabilities for applications in the display technology. *Eur*. *Polym*. *J*., **2024**, 203, 112653.

18 Sawada, R.; Ando, S. Colorless, low dielectric, and optically active semialicyclic polyimides incorporating a biobased isosorbide moiety in the main chain. *Macromolecules*, **2022**, 55(15), 6787–6800.

19 Zhang, W. G.; Zong, L. S.; Zhu, L. Y.; Zhang, Y. B.; Wang, J. Y.; Jian, X. G. Low dielectric, transparent fluorinated polyimides containing adamantane structure: effect of imidization methods. *Polymer*, **2025**, 337, 128981.

20 Gao, Y. Y.; Peng, W. F.; Wei, J. A.; Guo, D. C.; Zhang, Y. J.; Yu, Q. Q.; Wang, C.; Wang, L. G. Synthesis of high-performance colorless polyimides with asymmetric diamine: Application in flexible electronic devices. *ACS Appl*. *Mater*. *Interfaces*, **2024**, 16(36), 48005–48015.

21 Yan, X. Y.; Dai, F. N.; Ke, Z.; Yan, K. G.; Chen, C. H.; Qian, G. T.; Li, H. Synthesis of colorless polyimides with high T_g from asymmetric twisted benzimidazole diamines. *Eur*. *Polym*. *J*., **2022**, 164, 110975.

22 Zhang, H.; Guo, F.; Xu, K.; Wang, M. X.; Chen, C. H.; Qian, G. T.; Liu, G.; Deng, Z. Q. Synthesis of colorless polyimides derived from benzimidazole diamines with bis-amide structures. *J*. *Polym*. *Sci*., **2024**, 62(12), 2716–2727.

23 Xu, K.; Ke, Z.; Li, D. P.; Li, T.; Qian, G. T.; Deng, Z. Q.; Li, D. D.; Yu, Y. H. Synthesis of novel colorless polyimides from benzimidazole diamines with various linearity. *J*. *Polym*. *Sci*., **2024**, 62(9), 1808–1819.

24 Ning, Z. P.; Yan, Y.; Wang, J. M.; Zhao, C. F.; Chen, L. C.; Zong, L. S.; Xiao, Y. High T_g, low dielectric, and colorless transparent polyimides based on rigid 9, 9-spirobixanthene diamines. *ACS Appl*. *Polym*. *Mater*., **2024**, 6(9), 5434–5442.

25 Li, F. Y.; Wang, Y. Z.; Li, J. W.; Xie, H. J.; Wang, J. J. Soluble, colorless and biobased polyimides with high thermal stability derived from renewable anethole. *J*. *Mater*. *Chem*. *C*, **2025**, 13(25), 12783–12792.

26 She, Y. K.; Wang, S. X.; Liao, Q.; Lin, M. J. Transparent

and highly organosoluble aromatic polyimides with twisted backbone and bulky side substituents for flexible substrate materials. *J. Polym. Sci*., **2024**, 62(6), 1061–1073.

27 Bao, F.; Lei, H. Y.; Zou, B. Y.; Peng, W. F.; Qiu, L. H.; Ye, F.; Song, Y. H.; Qi, F. L.; Qiu, X. P.; Huang, M. J. Colorless polyimides derived from rigid trifluoromethyl-substituted triphenylenediamines. *Polymer*, **2023**, 273, 125883.

28 Jiang, X. S.; Chen, K. J.; Li, C. Y.; Long, Y. B.; Liu, S. W.; Chi, Z. G.; Xu, J. R.; Zhang, Y. Ultralow coefficient of thermal expansion and a high colorless transparent polyimide film realized through a reinforced hydrogen-bond network by *in situ* polymerization of aromatic polyamide in colorless polyimide. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **2023**, 15(35), 41793–41805.

29 Wen, J. X.; Jiang, S. J.; Wang, J. K.; Li, X. Q.; Bi, Z. J.; Jin, Y.; Fan, L. F.; Wang, L. H.; Wu, Y. C.; Gan, F. Polyimide solution with reversible sol-gel transition by construction of dynamic π-π stacking. *Polymer*, **2023**, 278, 126006.

30 Chen, T.; He, X. J.; Lu, Q. H. Comprehensive performance of polyimide reinforced by multiple hydrogen bonds for flexible electronics application. *ACS Appl. Polym. Mater*., **2023**, 5(7), 5436–5444.

31 Xia, X. J.; He, X. J.; Zhang, S. Y.; Zheng, F.; Lu, Q. H. Short-side-chain regulation of colorless and transparent polyamide-imides for flexible transparent displays. *Eur. Polym. J*., **2023**, 191, 112030.

32 Xing, J. L.; Zhu, G.; Fang, X. Z.; Chen, G. F. Preparation of soluble colorless poly(amide-imide) films with high glass transition temperature and low coefficient of thermal expansion by coordination interaction of Li cations. *J. Polym. Sci*., **2023**, 61(24), 3276–3287.

33 Yang, L.; Xing, J. L.; Bai, M. H.; Fang, X. Z.; Chen, G. F. High T_g, low CTE transparent poly(amide-imide)s based on synergistic regulation of lithium ions coordination and ortho-position effect of 9, 9-bis(4-aminophenyl) fluorene. *J. Polym. Sci*., **2025**, 63(4), 974–984.

34 Cao, L. D.; Wen, Y. Q.; Fang, X. Z.; Chen, G. F. Synthesis of highly thermoplastic polyamide-imides with high transparency and low coefficient of thermal expansion. *Polymer*, **2023**, 282, 126093.

35 Liu, Y. Y.; Wu, D. Y.; Wang, Y.; Shen, S. G.; Cao, J. H.; Li, Y. Colorless polyamide-imide films with tunable coefficient of thermal expansion and their application in flexible display devices. *Polymer*, **2024**, 294, 126712.