

<http://doi.org/10.32864/polymmattech-2021-7-3-30-39>

УДК 678:539.55

ИССЛЕДОВАНИЕ ПОЛИМЕРНОЙ ОСНОВЫ ДЛЯ СОЗДАНИЯ ЭЛЕКТРОПРОВОДЯЩЕЙ ГРАФИТОВОЙ ПАСТЫ МЕДИЦИНСКОГО НАЗНАЧЕНИЯ

М. И. ГРЯЗНОВА⁺, Д. С. ЛУГВИЩУК, А. Р. КАРАЕВА, И. Г. СОЛОМОНИК, Н. В. КАЗЁННОВ, В. З. МОРДКОВИЧ

Технологический институт сверхтвёрдых и новых углеродных материалов, ул. Центральная, 7а, 108840, г. Москва, г. Троицк, Россия

Высокая потребность в биосенсорах, с помощью которых можно количественно измерять концентрацию глюкозы в крови человека, приводит к поиску новых, недорогих и надёжных решений для удовлетворения растущего спроса. Основным компонентом таких биосенсоров является графитовый электрод, который наносят на подложку с помощью технологии трафаретной печати. Для трафаретной печати обычно используют графитовую пасту. Это — высокодисперсная коллоидная система, которая состоит из термопластичного полимера-диэлектрика, низкокипящего растворителя и электропроводящего компонента. Реология и физические свойства готовой графитовой пасты зависят в значительной мере от состава жидкой фазы, которая содержит раствор полимера и стабилизирующие компоненты.

Цель работы — исследование широкого ряда систем полимер–растворитель на предмет удовлетворения условиям применения графитовой пасты в процессе трафаретной печати, для изготовления прочных электропроводящих графитовых электродов медицинского назначения.

В настоящей работе сформулированы критерии отбора полимерной основы для изготовления графитовой пасты медицинского назначения. Были проведены измерения динамической вязкости систем полимер–растворитель, исследовано влияние растворителей на деградацию технологического оборудования, используемого в трафаретной печати. Исследован процесс формирования полимерных плёнок при температурах 90 °С и 120 °С. Методом интерференционно-контрастной оптической микроскопии исследовано качество полимерных плёнок. Адгезия плёнок оценена методом испытаний на изгиб. В результате проведенных исследований установлены наилучшие растворы полимер–растворитель, которые рекомендованы в качестве полимерной основы для изготовления электропроводящей графитовой пасты: системы поливинилбутираль-изоамиловый спирт с концентрацией полимера 5,0 мас.% и 10,0 мас.%; коллоксиллин- α -терпинеол/диацетоновый спирт с массовым соотношением растворителей 1 : 2 во всех исследованных концентрациях полимера.

Ключевые слова: полимер, растворитель, графитовый электрод, трафаретная печать, графитовая паста, углеродные чернила.

RESEARCH OF A POLYMER BASE FOR CREATING AN ELECTRICALLY CONDUCTIVE GRAPHITE PASTE FOR MEDICAL PURPOSES

M. I. GRYAZNOVA⁺, D. S. LUGVISHCHUK, A. R. KARAEVA, I. G. SOLOMONIK, N. V. KAZENNOV, V. Z. MORDKOVICH

Technological Institute for Superhard and Novel Carbon Material, Tsentrlnaya St., 7a, 108840, Moscow, Troitsk, Russia

⁺Автор, с которым следует вести переписку. E-mail: mig@tisnum.ru

The high demand for biosensors, which can be used to measure the concentration of glucose in the human blood, leads to the search for new, inexpensive and reliable solutions to meet the growing market. The main component of such biosensors is a graphite electrode, which is applied to the substrate using screen-printing technology. For screen-printing technology, graphite paste is usually used. It is a highly dispersive colloidal system that consists of a thermoplastic polymer-dielectric, a low-boiling solvent and an electrically conductive component. The rheology and physical properties of a ready-to-use graphite paste depend largely on the composition of the liquid phase, which contains of a polymer solution and stabilizing components. This research had the purpose to study a wide range of polymer-solvent systems to meet the conditions of their use as a part of graphite paste in the screen-printing process and to produce elastic and electric conductive graphite electrode for medicine purposes. In this paper, the criteria for selecting the polymer base for the production of a graphite paste for medicine purposes are formulated. The dynamic viscosity of the polymer-solvent systems was measured as well as the effect of solvents on the technological characteristics of the equipment used in screen printing. The process of curing the polymer base into the polymer film at 90 °C and 120 °C was studied. The polymer films were examined by the means of interference reflection optical microscopy. The polymer films adhesion to substrate by means of flexure testing was studied. As a result of the conducted studies, the best polymer-solvent solutions have been established, which are recommended as a polymer base for the manufacture of an electrically conductive graphite paste. These are polyvinyl butyral-isoamyl alcohol systems with a polymer concentration of 5.0 wt.% and 10.0 wt.%; colloxylin- α -terpineol/diacetone alcohol with a mass ratio of solvents 1 : 2 in all the studied concentrations of the polymer.

Keywords: polymer, solvent, graphite electrode, screen printing, graphite paste, carbon ink.

Поступила в редакцию 21.06.2021

© М. И. Грязнова, Д. С. Лугвищук, А. Р. Караева, И. Г. Соломоник, Н. В. Казённов, В. З. Мордкович, 2021

Для приобретения полного текста статьи, обращайтесь в [редакцию журнала](#)
Full text of articles can be purchased from the editorial office

Адрес редакции: ул. Кирова, 32а, 246050, г. Гомель, Беларусь
Телефон/факс: +375 (232) 34 06 36 / 34 17 11

Address: Kirov St., 32a, 246050, Gomel, Belarus
Phone: +375 (232) 34 06 36. Fax: +375 (232) 34 17 11

E-mail: polmattex@gmail.com

Web: <http://mpri.org.by/izdaniya/pmt/>

Образец цитирования:

Грязнова М. И., Лугвищук Д. С., Караева А. Р., Соломоник И. Г., Казённов Н. В., Мордкович В. З. Исследование полимерной основы для создания электропроводящей графитовой пасты медицинского назначения // Полимерные материалы и технологии. 2021. Т. 7, № 3. С. 30–39. <http://doi.org/10.32864/polymmattech-2021-7-3-30-39>

Citation sample:

Gryaznova M. I., Lugvishchuk D. S., Karaeva A. R., Solomonik I. G., Kazennov N. V., Mordkovich V. Z. Issledovanie polimernoy osnovy dlya sozdaniya elektroprovodyashchey grafitovoy pasty meditsinskogo naznacheniya [Research of a polymer base for creating an electrically conductive graphite paste for medical purposes]. *Polimernye materialy i tekhnologii* [Polymer Materials and Technologies], 2021, vol. 7, no. 3, pp. 30–39. <http://doi.org/10.32864/polymmattech-2021-7-3-30-39>

Литература

1. Banks C., Foster C., Kadara R. Screen-Printing Electrochemical Architectures. Cham, Switzerland : Springer, 2016. 63 p.
2. Wang J., Tian B., Nascimento V., Angnes L. Performance of screen-printed carbon electrodes fabricated from different carbon inks // *Electrochimica Acta*, 1998, vol. 43, is. 23, pp. 3459–3465. doi: 10.1016/S0013-4686(98)00092-9
3. Hanafusa A. Aramoto T., Morita A. Performance of Graphite Pastes Doped with Various Materials as Back Contact for CdS/CdTe Solar Cell // *Japanese Journal of Applied Physics*, 2001, vol. 40, no. 12R, pp. 6764–6769. doi: 10.1143/jjap.40.6764

4. Yan L., Tam S., Fung K., Ng K. Product design: Formulation of a screen-printable sintering-type conductive paste // *American Institute of Chemical Engineers Journal*, 2020, vol. 66, is. 8. doi: 10.1002/aic.16272
5. Kava A., Henry C. Exploring carbon particle type and plasma treatment to improve electrochemical properties of stencil-printed carbon electrodes // *Talanta*, 2021, vol. 221. doi: 10.1016/j.talanta.2020.121553
6. He P., Cao J., Ding H., Liu C., Neilson J., Li Z., Kinloch I., Derby B. Screen-Printing of a Highly Conductive Graphene Ink for Flexible Printed Electronics // *ACS Applied Materials and Interfaces*, 2019, vol. 11, no. 35, pp. 32225–32234. doi: 10.1021/acsami.9b04589
7. Li G., Wang Y., Xu H. A Hydrogen Peroxide Sensor Prepared by Electropolymerization of Pyrrole Based on Screen-Printed Carbon Paste Electrodes // *Sensors*, 2007, vol. 7, no. 3. pp. 239–250. doi: 10.3390/s7030239
8. Fletcher S. Screen-printed carbon electrodes // *Electrochemistry of Carbon Electrodes* / eds.: R. C. Alkire, Ph. N. Bartlett, J. Lipkowski. Weinheim : Wiley-VCH Verlag, 2016, ch. 12, pp. 425–444. doi: 10.1002/9783527697489.ch12
9. Hatala M., Gemeiner P., Hvojnik M., Mikula M. The effect of the ink composition on the performance of carbon-based conductive screen printing inks // *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2019, vol. 30, pp. 1034–1044. doi: 10.1007/s10854-018-0372-7
10. Suresh R., Lakshmanakumar M., Arockia Jayalatha J., Rajan K., Sethuraman S., Krishnan U., Rayappan J. Fabrication of screen-printed electrodes: opportunities and challenges // *Journal of Materials Science*, 2021, vol. 56, is. 15, pp. 8951–9006. doi: 10.1007/s10853-020-05499-1
11. Potts S., Phillips C., Claypole T., Jewell E. The effect of carbon ink rheology on ink separation mechanisms in screen-printing // *Coatings*, 2020, vol. 10, no. 10. doi: 10.3390/coatings10101008
12. Phillips C., Al-Ahmadi A., Potts S., Claypole T., Deganello D. The effect of graphite and carbon black ratios on conductive ink performance // *Journal of Materials Science*, 2017, vol. 52, no. 17, pp. 9520–9530. doi: 10.1007/s10853-017-1114-6
13. Zhang W., Dehghani-Sanj A., Blackburn R. Carbon based conductive polymer composites // *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2007, vol. 42, is. 10, pp. 3408–3418. doi: 10.1007/s10853-007-1688-5
14. Ульянов В. М., Рыбкин Э. П., Гуткович А. Д., Пишин Г. А. Поливинилхлорид. М. : Химия, 1992. 288 с.
15. Jewell E., Philip B., Greenwood P. Improved manufacturing performance of screen- printed carbon electrodes through material formulation // *Biosensors*, 2016, vol. 6, no. 3. doi: 10.3390/bios6030030
16. PubChem [Электронный ресурс]. URL: <https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/> (дата обращения: 01.09.2020).
17. Sys M., Khaled E., Metelka R., Vytas K. Electrochemical characterisation of novel screen-printed carbon paste electrodes for voltammetric measurements // *Journal of the Serbian Chemical Society*, 2017, vol. 82, no. 7-8, pp. 865–877. doi: 10.2298/JSC170207048S
18. Производство и применение поливинилбутираля / сост.: Бадалян В. Е., Кулешова Ю. П. М. : НИИТЭХИМ, 1984. 18 с.

References

1. Banks C., Foster C., Kadara R. *Screen-Printing Electrochemical Architectures*. Cham, Switzerland : Springer, 2016. 63 p.
2. Wang J., Tian B., Nascimento V., Angnes L. Performance of screen-printed carbon electrodes fabricated from different carbon inks. *Electrochimica Acta*, 1998, vol. 43, is. 23. pp. 3459–3465. doi: 10.1016/S0013-4686(98)00092-9
3. Hanafusa A., Aramoto T., Morita A. Performance of Graphite Pastes Doped with Various Materials as Back Contact for CdS/CdTe Solar Cell. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2001, vol. 40, no. 12R, pp. 6764–6769. doi: 10.1143/jjap.40.6764
4. Yan L., Tam S., Fung K., Ng K. Product design: Formulation of a screen-printable sintering-type conductive paste. *American Institute of Chemical Engineers Journal*, 2020, vol. 66, is. 8. doi: 10.1002/aic.16272
5. Kava A., Henry C. Exploring carbon particle type and plasma treatment to improve electrochemical properties of stencil-printed carbon electrodes. *Talanta*, 2021, vol. 221. doi: 10.1016/j.talanta.2020.121553
6. He P., Cao J., Ding H., Liu C., Neilson J., Li Z., Kinloch I., Derby B. Screen-Printing of a Highly Conductive Graphene Ink for Flexible Printed Electronics. *ACS Applied Materials and Interfaces*, 2019, vol. 11, no. 35, pp. 32225–32234. doi: 10.1021/acsami.9b04589
7. Li G., Wang Y., Xu H. A Hydrogen Peroxide Sensor Prepared by Electropolymerization of Pyrrole Based on Screen-Printed Carbon Paste Electrodes. *Sensors*, 2007, vol. 7, no. 3. pp. 239–250. doi: 10.3390/s7030239
8. Fletcher S. Screen-printed carbon electrodes. *Electrochemistry of Carbon Electrodes*. Eds.: R. C. Alkire, Ph. N. Bartlett, J. Lipkowski. Weinheim : Wiley-VCH Verlag, 2016, ch. 12, pp. 425–444. doi: 10.1002/9783527697489.ch12
9. Hatala M., Gemeiner P., Hvojnik M., Mikula M. The effect of the ink composition on the performance of carbon-based conductive screen printing inks. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2019, vol. 30, pp. 1034–1044. doi: 10.1007/s10854-018-0372-7
10. Suresh R., Lakshmanakumar M., Arockia Jayalatha J., Rajan K., Sethuraman S., Krishnan U., Rayappan J. Fabrication of screen-printed electrodes: opportunities and challenges. *Journal of Materials Science*, 2021, vol. 56, is. 15, pp. 8951–9006. doi: 10.1007/s10853-020-05499-1
11. Potts S., Phillips C., Claypole T., Jewell E. The effect of carbon ink rheology on ink separation mechanisms in screen-printing. *Coatings*, 2020, vol. 10, no. 10. doi: 10.3390/coatings10101008
12. Phillips C., Al-Ahmadi A., Potts S., Claypole T., Deganello D. The effect of graphite and carbon black ratios on conductive ink performance. *Journal of Materials Science*, 2017, vol. 52, no. 17, pp. 9520–9530. doi: 10.1007/s10853-017-1114-6
13. Zhang W., Dehghani-Sanj A., Blackburn R. Carbon based conductive polymer composites. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2007, vol. 42, is. 10, pp. 3408–3418. doi: 10.1007/s10853-007-1688-5
14. Ul'yanov V. M., Rybkin E. P., Gutkovich A. D., Pishin G. A. *Polivinilklorid* [Polyvinyl chloride]. Moscow: Khimiya Publ., 1992. 288 p.
15. Jewell E., Philip B., Greenwood P. Improved manufacturing performance of screen- printed carbon electrodes through material formulation. *Biosensors*, 2016, vol. 6, no. 3. doi: 10.3390/bios6030030
16. PubChem. Available at: <https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/> (accessed 1.09.2020).
17. Sys M., Khaled E., Metelka R., Vytas K. Electrochemical characterisation of novel screen-printed carbon paste electrodes for voltammetric measurements. *Journal of the Serbian Chemical Society*, 2017, vol. 82, no. 7-8, pp. 865–877. doi: 10.2298/JSC170207048S
18. *Proizvodstvo i primenenie polivinilbutiralya* [Production and application of polyvinyl butyral]. Compilers: Badalyan V. E., Kuleshova Yu. P. Moscow: NIITEKHIM Publ., 1984. 18 p.