

NGHIÊN CỨU CHẾ TẠO VÀ KHẢO SÁT ĐẶC TÍNH CỦA MỰC IN DẪN ĐIỆN NỀN GRAPHENE

MANUFACTURE AND SURVEY PROPERTIES OF CONDUCTIVE PRINTING INK BASED ON GRAPHENE NANOMATERIAL

Dương Văn Thiết¹, Nguyễn Tuấn Hồng²,
Nguyễn Đình Dũng², Đặng Thanh Bình²,
Vũ Duy Đạt², Phương Gia Phong³, Nguyễn Anh Đức^{2,*}

DOI: <https://doi.org/10.57001/huih5804.2024.035>

TÓM TẮT

Mực in dẫn điện nền vật liệu graphen sở hữu nhiều tính năng ưu việt như độ dẫn cao, nhẹ, bền trong môi trường do đó nó có tiềm năng thay thế các dòng mực in nền kim loại quý như vàng, bạc, trong các mạch điện tử, thiết bị cảm biến. Trong báo cáo này, chúng tôi nghiên cứu chế tạo các tấm graphen để phân tán trong dung môi gốc nước từ nguyên liệu giấy graphit bằng phương pháp bóc tách điện phân. Các kết quả nghiên cứu hiển vi điện tử quét (SEM) và hiển vi lực nguyên tử (AFM) cho thấy các tấm graphen trong mực in có bề rộng khoảng 1 - 2µm và bề dày 5 - 7nm. Dung dịch gồm nước và 1% khối lượng chất hoạt động bề mặt Polyvinylpyrrolidone (PVP) được sử dụng làm dung môi cho mực in nền graphen chế tạo được, PVP cũng đồng thời đóng vai trò là chất kết dính. Một hỗn hợp đồng nhất dạng lỏng sệt được tạo thành sau khoảng 1 giờ siêu âm kết hợp cùng khuấy trộn. Với nồng độ ~60mg/ml, mực in graphen chế tạo được có thể phân tán ổn định trong 2 tháng. Mực in có độ dẫn 2.10^3S/cm , bám dính chặt lên đế mica và kính. Ngoài ra, sự thay đổi độ dẫn theo điều kiện xử lý nhiệt (từ 100 - 400°C) cũng được khảo sát.

Từ khóa: Mực in dẫn điện; vật liệu graphen; phân tán graphen; bóc tách điện hóa.

ABSTRACT

Conductive printing ink based on graphene nanomaterial possesses many outstanding features such as high conductivity, light weight, and durability in the environment, therefore it has the potential to replace precious metal-based inks such as gold and silver in electronic devices and sensors. In this report, we fabricate graphene nanosheets from graphite paper by electrochemical exfoliation technique. The results of scanning electron microscopy (SEM) and atomic force microscopy (AFM) show that the graphene sheets in the ink have the area of 1 - 2µm and a thickness of 5 - 7nm. The solution consists of water and 1% by weight of the surfactant Polyvinylpyrrolidone (PVP) used as a solvent for the graphene-based ink, PVP acts as a binder as well. A homogenous viscous mixture is formed after 1 hour of ultrasonication combined with stirring. With a concentration of ~60mg/ml, the fabricated graphene ink can be dispersed stably for 2 months. The ink has a conductivity of 2.10^3S/cm , strong adhesion to the mica and glass. In addition, the dependent of the conductivity on the temperature treatment (from 100 to 400°C) was also investigated.

Keywords: Conductive ink; graphene material; dispersion of graphene; electrochemical exfoliation.

¹Trường Cơ khí - Ô tô, Trường Đại học Công nghiệp Hà Nội

²Trung tâm Phát triển Công nghệ cao, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam

³Trường Trung học phổ thông chuyên Khoa học Tự nhiên - Đại học Quốc gia Hà Nội

*Email: anhduc5989@gmail.com

Ngày nhận bài: 28/6/2023

Ngày nhận bài sửa sau phản biện: 22/9/2023

Ngày chấp nhận đăng: 20/01/2024

1. GIỚI THIỆU

Hiện nay đang nổi lên nhu cầu ngày càng tăng về các thiết bị điện tử nhỏ gọn, mềm dẻo có khả năng đeo mặc được với các mục tiêu ứng dụng liên quan đến chăm sóc, theo dõi sức khỏe con người hay chế tạo robot siêu nhỏ [1, 2]. Gần đây, công nghệ chế tạo mạch điện tử sử dụng mực in dẫn điện là một kỹ thuật tương đối mới so với những công nghệ truyền thống khác [3, 4], nó có thể đáp ứng được nhu cầu trong việc chế tạo các thiết bị điện tử nói trên. Có thể nói tính ưu việt đáng kể nhất của kỹ thuật in mực dẫn điện so với phương pháp quang khắc truyền thống là nó không yêu cầu những thiết bị đắt đỏ với nhiều công đoạn phức tạp như mạ, tạo mặt nạ, khắc ăn mòn. Hơn nữa, công nghệ này còn làm giảm được những yếu tố độc hại đến sức khỏe con người [1, 5]. Với những lợi thế đó, còn có những nghiên cứu, ứng dụng mực in dẫn điện trong nhiều lĩnh vực công nghệ khác như chế tạo vật liệu mềm dẻo lưu trữ năng lượng [6], chế tạo cảm biến [7], ăng-ten [8]. Hiện nay, những mực in nền tảng hạt kim loại như vàng, bạc, đồng vẫn đang là sản phẩm phổ biến trong thương mại bởi khả năng dẫn điện tốt vốn có của kim loại [9]. Mặc dù vậy, nhiều hạn chế có thể thấy rõ đối với mực in kim loại là nguyên liệu giá thành cao, không bền hóa học, độc hại và thường yêu cầu nhiệt độ thiêu kết lớn [10]. Để khắc phục những nhược điểm đó, việc phát triển các dạng mực in nền vật liệu nanocarbon, đặc biệt là nền graphen đang rất được quan tâm. Graphen, vật liệu nano thấp chiều nền carbon, sở hữu những đặc

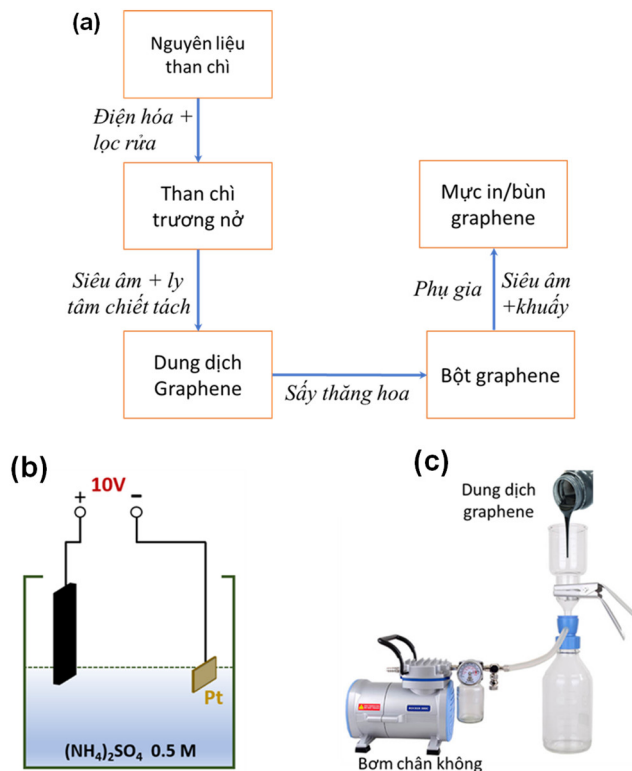
tính mới lạ, trong đó đáng chú nhất là khả năng dẫn điện đặc biệt cao $\sigma \sim 10^6$ (S/cm), độ mềm dẻo lớn, bền hóa học trong các môi trường. Chế tạo mực in graphene có thể tạo ra các thiết bị điện tử phân giải lớn, hay các cảm biến có độ nhạy cao vẫn còn phải đối diện nhiều thử thách [1]. Yêu cầu cần bản đầu tiên đó là graphene phải được phân tán tốt để dễ dàng thiết kế các mạch dẫn có chất lượng đồng nhất. Do sở hữu diện tích bề mặt lớn, nên dưới tác động của lực Van der Waals các tấm graphene chưa biến tính có xu hướng liên kết lại với nhau sau khi được phân tán trong dung môi, gọi là sự cặn hóa. Hiện tượng này lại diễn biến nhanh trong các dung môi thông dụng như nước, cồn, axeton, bởi có sự khác biệt lớn giữa năng lượng bề mặt của các dung môi này với năng lượng bề mặt của graphene [11, 12].

Một số nghiên cứu cho biết các dung môi có năng lượng bề mặt gần với năng lượng bề mặt của graphene ($\sim 40\text{mJ/cm}^2$) như N-methyl-2-pyrrolidone (NMP -40mJ/cm^2), N,N-dimethylformamide (DMF $-37,1\text{mJ/cm}^2$), hay Ethylene glycol (EG $-47,3\text{mJ/cm}^2$) cũng giúp cho graphene dễ phân tán ổn định với nồng độ cao ($\sim 2\text{mg/ml}$) [4, 13]. Tuy nhiên DMF và NMP lại khá độc hại, do đó không lợi ích cho ứng dụng thực tế và sản xuất công nghiệp, trong khi EG lại có nhiệt độ bay hơi cao. Một hướng tiếp cận khác là biến tính bề mặt graphene để chúng trở nên ưa nước hơn từ đó giúp dễ phân tán trong dung môi nền tảng nước hơn, trong đó người ta có thể lấy nguyên liệu than chì oxit rồi sử dụng các phương pháp bóc tách như siêu âm hay khuấy đồng hóa ở tốc độ cao để thu được graphene oxit [14, 15]. Các gốc ôxy như hydroxyl, epoxy, carboxyl liên kết cộng hóa trị với các nguyên tử carbon làm biến đổi tính chất lý hóa của graphene [16]. Nhược điểm của phương pháp này là rất khó có thể loại bỏ hoàn toàn các gốc ưa nước đó (quá trình khử) mà không gây ra những vị trí khuyết tật trên mạng tinh thể graphene, từ đó làm giảm đi đặc tính cố hữu của nó [17-19].

Để sản xuất graphene với sản lượng lớn, thì bóc tách than chì trong điều kiện ướt (wet routes) đòi hỏi quy trình và thiết bị chế tạo đơn giản, đặc biệt phù hợp cho chế tạo mực in graphene nền tảng nước [4, 20, 21]. Trong các phương pháp ẩm ướt, điện hóa bóc tách từ một thanh/tấm than chì (với vai trò là điện cực dương) được chú ý trong mấy năm gần đây bởi hệ thiết bị đơn giản, dễ kiểm soát, thực hiện trong môi trường áp suất khí quyển thông thường, hóa chất sử dụng đơn giản, không độc, tốc độ nhanh với hiệu suất cao, lại dễ nhân rộng quy mô sản xuất công nghiệp [22-24]. Trong báo cáo này, chúng tôi sử dụng phương pháp điện phân để chế tạo graphene xuất phát từ nguyên liệu tấm giấy than chì với dung môi là dung dịch muối $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ theo gợi ý của Khaled Parvez và cộng sự [23]. Nhờ việc sử dụng dung môi có pH trung hòa, các tấm graphene chỉ bị oxy hóa nhẹ, vừa không quá làm tổn hại đến đặc tính điện của graphene và vừa cũng giúp graphene ưa nước hơn, từ đó dễ phân tán với nồng độ cao theo yêu cầu của mực in. Để tăng sự ổn định cho phân tán graphene trong mực in, chúng tôi sử dụng Polyvinylpyrrolidone (PVP) là một polymer hòa tan trong nước, vừa có vai trò là chất kết dính cho mực lên để in. Quá trình xử lý nhiệt để cải thiện độ dẫn sẽ được khảo sát.

2. THỰC NGHIỆM

Toàn bộ quá trình chế tạo mực in graphene từ nguyên liệu than chì được mô tả trên sơ đồ hình 1a. Các công đoạn chính lần lượt gồm có điện phân bóc tách than chì, lọc rửa, siêu âm, chiết tách, thêm phụ gia, sấy, siêu âm kết hợp khuấy.



Hình 1. (a) Sơ đồ quy trình chế tạo mực in graphene; (b) Sơ đồ hệ điện hóa làm trương nở than chì; (c) Hệ lọc hút chân không tạo giấy graphene để xác định nồng độ dung dịch

2.1. Điện hóa chế tạo than chì trương nở

Quá trình điện hóa làm trương nở than chì được thực hiện ở điện thế xấp xỉ 10V. Trong suốt quá trình điện hóa, than chì dạng tấm giấy (độ dày 0,5mm) có khối lượng $\sim 5\text{g}$ được gắn với cực dương (anode) của nguồn, còn cực âm (cathode) là điện cực trơ Pt. Chúng tôi sử dụng muối $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ hòa tan trong nước với nồng độ từ 0,5 mol/lit làm dung dịch điện ly (hình 1b). Khi được nhúng xuống dung dịch điện ly, lá than chì bị ăn mòn dần, cùng lúc cốt điện hóa được nâng chậm lên để quá trình phản ứng bóc tách không bị gián đoạn. Khoảng cách giữa anode và cathode của hệ là 5cm. Dòng điện dao động trong khoảng 1,0 đến 1,2A.

2.2. Siêu âm bóc tách và phân tán graphene

Quá trình điện hóa cho sản phẩm là các mảnh than chì trương nở, chúng có xu hướng nổi lên bề mặt dung dịch điện ly. Than chì trương nở được gom lại và lọc rửa ít nhất 5 lần bằng phương pháp lọc chân không để loại bỏ hoàn toàn muối điện ly còn dư. Bộ lọc chân không bao gồm phễu, bình lọc, ống silicon - bơm hút chân không (minh họa trên hình 1c). Màng lọc PTFE (Polytetrafluoroethylen) có kích thước $0,47\mu\text{m}$. Sau quá trình lọc rửa, than chì trương nở được khuấy nhẹ trong nước cất trong 5 phút với tỷ lệ $\sim 5\text{mg/ml}$ rồi siêu

âm bằng bể siêu âm với công suất 300W trong 15 phút. Dung dịch graphen lúc này vẫn tồn tại một lượng nhất định bột than chì dư, có thể loại bỏ chúng đơn giản bằng cách để yên lắng dung dịch graphen trong 2 ngày, sau đó chiết giữ lấy phần dung dịch phía trên (50%), hoặc có thể tăng tốc quá trình lắng cặn bằng ly tâm dung dịch với tốc độ 500 vòng/phút trong 1 giờ.

Nồng độ của dung dịch phân tán được xác định bằng kỹ thuật lọc hút chân không. Một lượng khoảng 40ml dung dịch graphen được đưa vào phễu, sau đó việc bơm hút chân không được thực hiện đến khi màng tự khô. Màng graphen được tiếp tục sấy ở 80°C trong 10 giờ rồi được bóc tách khỏi màng PTFE, ta có được giấy graphen. Nồng độ của dung dịch phân tán được xác định bằng tỷ số của khối lượng giấy và thể tích của dung dịch lọc.

2.3. Chế tạo mực in graphen

Để có được mực in graphen phù hợp cho từng phương pháp in, dung dịch graphen được sấy khô bằng kỹ thuật sấy lạnh. Tiếp đến, bột graphen và 1% theo khối lượng phụ gia được phối trộn cùng với lượng dung môi như nước, cồn theo đúng nồng độ tương ứng với các kỹ thuật và điều kiện in. Hỗn hợp gồm dung môi, graphen, và phụ gia được siêu âm nhẹ, và khuấy kỹ trong khoảng 1 giờ, ta thu được sản phẩm mực in cuối cùng. Trong bài báo này, mực được in bằng kỹ thuật vẽ phun, nồng độ phù hợp là ~60mg/ml trong dung môi nước.

2.4. Các kỹ thuật phân tích đặc tính

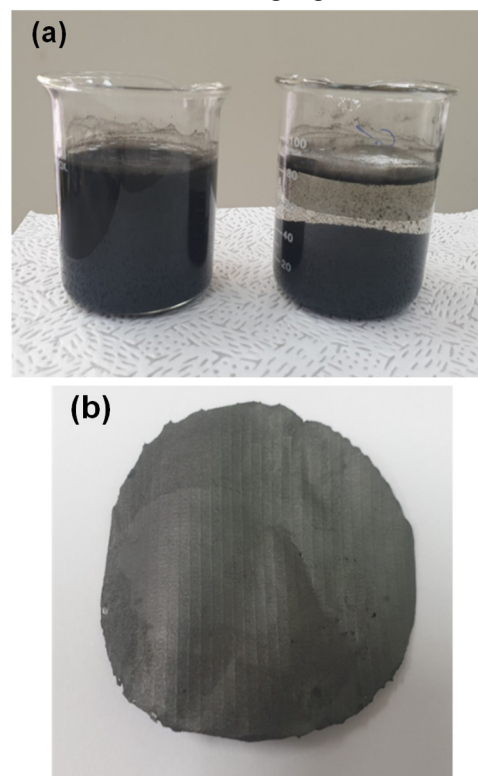
Để quan sát kích thước, hình thái học và tính chất dao động mạng tinh thể của các tấm graphen, một màng gồm rời rạc các tấm graphen được chuẩn bị trên đế Si/SiO₂ bằng kỹ thuật nhúng kéo. Một dung dịch graphen loãng (~0,1mg/ml) với dung môi ethanol được chuẩn bị cho quá trình phủ màng. Đế Si/SiO₂ được nhúng chìm dưới bề mặt dung dịch rồi được kéo lên khỏi bề mặt dung dịch theo hướng chếch 45°. Để chứa graphen được để tự khô trong không khí, sau đó được sấy nhẹ ở 60 °C thêm 30 phút để loại bỏ hoàn toàn dung môi dư trên bề mặt của đế. Tính chất dao động mạng tinh thể được khảo sát bằng phổ phát tán xạ Raman, nhãn hiệu thiết bị: Dongwoo Optron, Ramboss-Star. Hình thái học của cái tấm graphen được quan sát bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM: JEOL JSM-6500F). Thông tin về bề dày của tấm graphen được khảo sát bằng kính hiển vi lực nguyên tử (AFM). Độ dẫn của màng graphen được đánh giá bằng hệ 4 mũi dò (JANDEL ENGINEERING).

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Chế tạo dung dịch graphen

Trước hết, khi điện thế 10V được áp vào trong dung dịch điện ly chứa (NH₄)₂SO₄ 0,5M, điện cực dương than chì bị dần hòa tan tạo thành các mảnh than chì trương nở, nổi lên bề mặt dung dịch. Sau khi than chì trương nở được thu gom lại thì việc lọc rửa bằng phương pháp lọc chân không cần thực hiện nhiều lần, ít nhất 5 lần. Một lượng nhỏ muối điện hóa còn dư lại sẽ ảnh hưởng đáng kể đến khả năng phân tán của dung dịch graphen sau khi tiến hành siêu âm bóc tách

graphen trong dung môi nước. Hình 2a là ảnh chụp hai dung dịch graphen trong dung môi nước sau khi được siêu âm trong cùng điều kiện sau đó để trong vài giờ, dung dịch bên trái chứa graphen được 5 lần lọc rửa, còn bên phải chỉ 1 lần lọc rửa. Bằng mắt thường, ta dễ thấy graphen (trong cốc nghiệm bên trái) được lọc rửa nhiều lần phân tán tốt, còn graphen được lọc rửa chỉ một lần thì dễ bị cặn hóa (cốc bên phải). Như vậy, các ion muối dư làm thay đổi đáng kể tính chất của dung môi nước trong việc phân tán các tấm graphen, và do đó cần được cố gắng loại sạch.



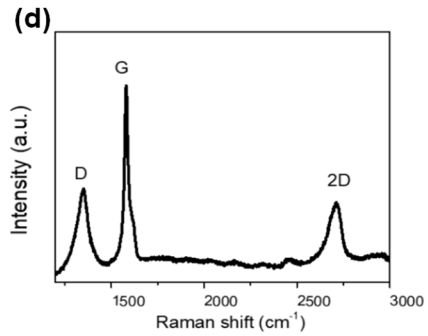
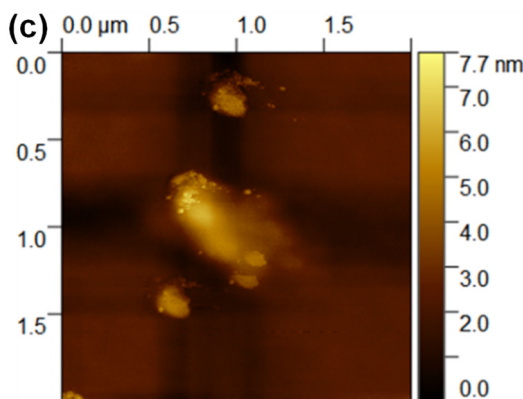
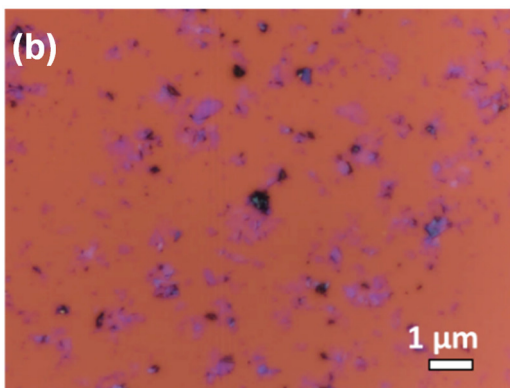
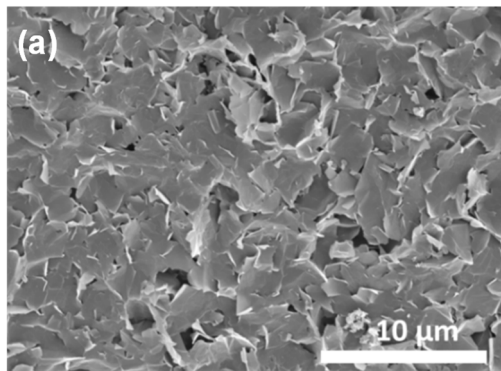
Hình 2. (a) Dung dịch graphen phân tán và không phân tán; (b) Giấy graphen chế tạo bằng phương pháp lọc chân không

Các báo cáo trước đây [25, 26] đã chỉ ra rằng, graphen chế tạo bằng phương pháp điện hóa có chứa một tỷ lệ nguyên tố oxy, liên quan đến một số gốc nhóm chức ưa nước. Đây là nguyên nhân giải thích cho khả năng dễ phân tán của graphen chúng tôi chế tạo được trong dung môi gốc nước. Đến đây, chúng tôi có đánh giá mức độ phân tán của graphen bằng việc xác định nồng độ của dung dịch graphen đã nêu phần trên. Sau khi được ly tâm ở tốc độ 1500 vòng/phút trong 1 giờ để loại bỏ hoàn toàn các hạt graphite dư, khoảng 40ml dung dịch graphen phía trên (supernatant) được đưa vào hệ lọc chân không. Tấm giấy graphen sau khi được sấy khô (hình 2b) có khối lượng ~65mg. Do đó, nồng độ dung dịch graphen thu được là ~1,6mg/ml.

Để quan sát hình thái học các tấm graphen, dung dịch graphen được sấy thăng hoa rồi nghiền thành bột mịn. Ở đây, kỹ thuật sấy thăng hoa giúp hạn chế việc các tấm graphen lại với nhau dẫn tới quá trình bồi lắng (sedimentation). Ảnh SEM chụp các tấm graphen trên hình 3a cho thấy các tấm graphen có kích thước trung bình từ 1 -

2µm, kết quả này phù hợp với ảnh chụp hiển vi quang học trên hình 3b. Quan sát trên hình 3c ảnh kính hiển vi lực nguyên tử (AFM) của một mảnh graphen đặc trưng, ta thấy độ dày là ~6nm, do đó số lớp tương ứng nhỏ hơn 10.

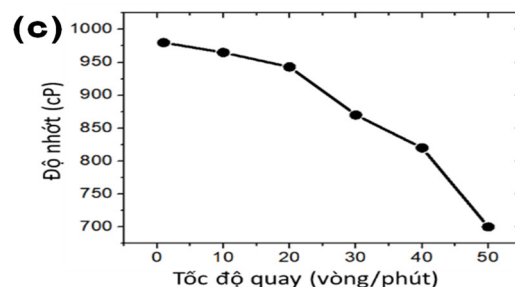
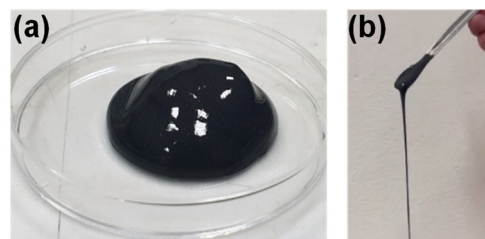
Phổ tán xạ Raman được sử dụng để đánh giá các vị trí khuyết tật trong mạng tinh thể graphen. Hình 3d là kết quả phổ tán xạ Raman của các tấm graphen nằm trên đế SiO₂/Si như đã thấy ở hình 3b. Đỉnh dao động D (vị trí ~1350cm⁻¹) biểu diễn mode dao động thở của các nguyên tử carbon sp² tại các vị trí khuyết tật như vùng biên, các nhóm chức hoặc các vị trí khuyết [27]. Rõ ràng cường độ đỉnh D nhỏ hơn đáng kể so với đỉnh G, từ đó chỉ ra rằng mức độ khuyết tật trong mạng tinh thể của graphen là nhỏ. So với graphen oxit khử bằng phương pháp nhiệt thì mức độ khuyết tật chế tạo bằng kỹ thuật điện hóa trong báo cáo này nhỏ hơn đáng kể [28], kết quả này cũng phù hợp với một số báo cáo trước đây [23, 25, 29]. Mức độ khuyết tật nhỏ là một trong những điều kiện quan trọng để đạt được độ dẫn điện cao của mực in graphen.

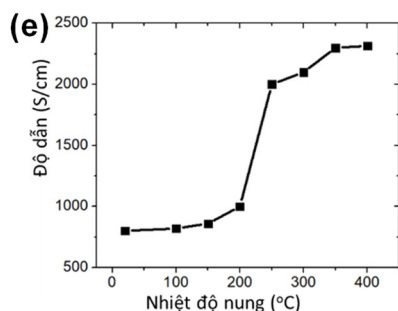
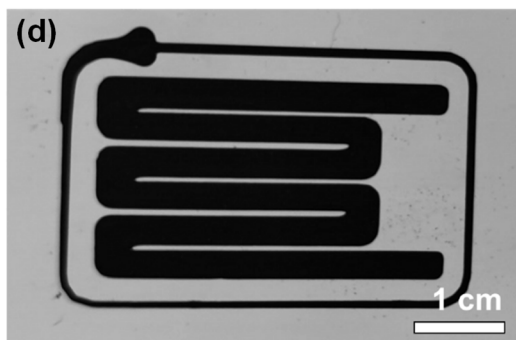


Hình 3. Hình thái học và tính chất dao động mạng tinh thể: (a) ảnh SEM, (b) ảnh hiển vi quang học, (c) ảnh hiển vi lực nguyên tử và (d) phổ tán xạ Raman của các tấm graphen

3.2. Thông số cơ bản của mực in graphen

Với nồng độ >100mg/ml, sản phẩm graphen phân tán có dạng bùn sệt như hình 4a. Khi nồng độ cao như vậy, bùn graphen có độ nhớt cao (>10000cp), thích hợp với kỹ thuật in lưới (screen printing) [30]. Để có thể in bằng một số kỹ thuật khác, chẳng hạn như in phun, thì mực in cần loãng hơn (~60mg/ml), tương ứng với độ nhớt được giảm xuống ~1000cp. Hình 4b là ảnh chụp của mực in graphen với nồng độ 60 mg/ml, mực loãng hơn nên có thể tạo thành vệt chảy dài. Độ nhớt xác định được khi tỉ lệ trượt (shear rate) thấp có giá trị trung bình là 960cp. Khi tỉ lệ trượt tăng dần (tương ứng với tốc độ của trục quay trong máy đo), mực in biểu hiện chất lỏng phi Niu-tơn với độ nhớt giảm xuống cỡ 700cp khi tốc độ quay đạt 50 vòng/phút. Với nồng độ và độ nhớt trên đây, chúng tôi thiết kế được mạch in sử dụng kỹ thuật vẽ phun, như trình bày trên hình 4d. Bề mặt được in là lam kính và mica được đặt tiếp xúc với đĩa gia nhiệt (khoảng 80 °C) để điều chỉnh tốc độ khô của mực in. Đầu vòi đùn mực có nhiều kích thước khác nhau từ 0,16 đến 0,5mm để tùy chỉnh hình thái học và cấu trúc của lớp vật liệu. Có thể quan sát thấy mạch in khá mạnh, đồng đều. Sau hai tháng bảo quản ở điều kiện thông thường, chúng tôi quan sát thấy mực vẫn giữ được sự đồng nhất và mạch in vẫn đảm bảo được sự đồng đều, không bị loãng nhờ hay tắc mực.





Hình 4. (a) (b) và (d) lần lượt là ảnh chụp bìn graphen, mực in graphen và mạch in graphen bằng kỹ thuật phun vẽ; (c) độ nhớt của mực in theo tốc độ quay của trục đo; (e) Độ dẫn của mạch in theo nhiệt độ nung

Cuối cùng để làm tối đa độ dẫn của mạch in, chúng tôi tiến hành xử lý nhiệt với nhiệt độ tăng dần đến 400°C, thời gian duy trì nhiệt độ là 20 phút. Sự phụ thuộc của độ dẫn điện của màng mạch in graphen vào nhiệt độ nung được biểu diễn trên biểu đồ hình 4e. Hiện tượng độ dẫn của màng graphen tăng vọt từ 700S/cm tới 2000 S/cm tại giá trị nhiệt độ 250°C là do sự phân hủy phụ gia PVP. Giá trị độ dẫn đạt cực đại khi nhiệt độ nung là 350°C. Tuy nhiên, với nhiệt độ nung trên 300°C, thì sự lựa chọn các loại để bị hạn chế đi đáng kể, đặc biệt là các loại đế gốc nhựa.

4. KẾT LUẬN

Tóm lại, chúng tôi đã chế tạo mực in dẫn điện nền graphen với dung môi nước, xuất phát từ nguyên liệu than chì bằng phương pháp điện hóa, trong đó sử dụng PVP đồng thời là chất hoạt động bề mặt và chất kết dính. Quá trình chế tạo được thực hiện bằng các công cụ đơn giản, dễ điều chỉnh, có nguồn nguyên liệu và công đoạn chế tạo chi phí thấp. Các tấm graphen chế tạo được có kích thước trung bình ~1µm và độ dày 5 - 7nm. Với nồng độ 60mg/ml, độ nhớt trung bình của mực in graphen ~900cp, phù hợp với kỹ thuật in phun. Sau khi xử lý nhiệt ở > 250°C, độ dẫn của mạch in graphen đạt được ~2.10³S/cm. Với giá trị này, mực in graphen có tiềm năng được áp dụng để chế tạo các mạch điện tử ứng dụng trong các cảm biến mềm dẻo, dễ đeo mặc.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Bộ Khoa học và Công nghệ trong đề tài mã số: ĐTĐLCN.20/23. Nhóm tác giả cảm ơn sự hỗ trợ của Phòng Kỹ thuật Điện - Điện tử, thuộc Viện Kỹ thuật Nhiệt đới - Viện Hàn lâm Khoa học và Công Nghệ Việt Nam trong nghiên cứu.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. Htwe Y.Z.N., M. Mariatti, "Printed graphene and hybrid conductive inks for flexible, stretchable, and wearable electronics: Progress, opportunities, and challenges," *Journal of Science: Advanced Materials and Devices*, 7(2), 100435, 2022.
- [2]. He P., et al., "Screen-Printing of a Highly Conductive Graphene Ink for Flexible Printed Electronics," *ACS Appl Mater Interfaces*, 11(35), 32225-32234, 2019.
- [3]. Grau G., et al., "Gravure-printed electronics: recent progress in tooling development, understanding of printing physics, and realization of printed devices," *Flex. Print. Electron.*, 1(2), 023002, 2016.
- [4]. Tran T.S., N.K. Dutta, N.R. Choudhury, "Graphene inks for printed flexible electronics: Graphene dispersions, ink formulations, printing techniques and applications," *Adv Colloid Interface Sci.*, 261, 41-61, 2018.
- [5]. Htwe, Y.Z.N., M.K. Abdullah, M. Mariatti, "Water-based graphene/AgNPs hybrid conductive inks for flexible electronic applications," *Journal of Materials Research and Technology*, 16, 59-73, 2022.
- [6]. Bellani S., et al., "Scalable Production of Graphene Inks via Wet-Jet Milling Exfoliation for Screen-Printed Micro-Supercapacitors," *Adv. Funct. Mater.*, 29(14), 1807659, 2019.
- [7]. Dua V., et al., "All-Organic Vapor Sensor Using Inkjet-Printed Reduced Graphene Oxide," *Angew. Chem. Int. Ed.* . 49(12), 2154-2157, 2010.
- [8]. Pan K., et al., "Sustainable production of highly conductive multilayer graphene ink for wireless connectivity and IoT applications," *Nature Communications*, 9(1), 5197, 2018.
- [9]. Kamyshny A., S. Magdassi, "Conductive Nanomaterials for Printed Electronics," *Small*, 10(17), 3515-3535, 2014.
- [10]. Kamyshny A., S. Magdassi, "Conductive nanomaterials for 2D and 3D printed flexible electronics," *Chem. Soc. Rev.*, 48(6), 1712-1740, 2019.
- [11]. Li D., et al., "Processable aqueous dispersions of graphene nanosheets," *Nat Nanotechnol.*, 3(2), 101-5, 2008.
- [12]. Perumal S., R. Atchudan, I.W. Cheong, "Recent Studies on Dispersion of Graphene-Polymer Composites," *Polymers (Basel)*, 13(14), 2021.
- [13]. Liu Z., et al., "Water-Dispersed High-Quality Graphene: A Green Solution for Efficient Energy Storage Applications," *ACS Nano.*, 13(8), 9431-9441, 2019.
- [14]. Fang S., Y. Lin, Y.H. Hu, "Recent Advances in Green, Safe, and Fast Production of Graphene Oxide via Electrochemical Approaches," *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 7(15), 12671-12681, 2019.
- [15]. Eigler S., et al., "Wet chemical synthesis of graphene," *Adv. Mater.*, 25(26), 3583-7, 2013.
- [16]. Pei S., H.M. Cheng, "The reduction of graphene oxide," *Carbon*, 50(9), 3210-3228, 2012.
- [17]. Torrisi F., et al., "Inkjet-Printed Graphene Electronics," *ACS Nano.*, 6(4), 2992-3006, 2012.
- [18]. Ciesielski A., P. Samori, "Graphene via sonication assisted liquid-phase exfoliation," *Chem Soc Rev.*, 43(1), 381-98, 2014.
- [19]. Zhou A.a., et al., "Electrochemically reduced graphene oxide: Preparation, composites, and applications," *Carbon*, 191, 301-332, 2022.
- [20]. Parvez K., et al., "Exfoliation of graphene via wet chemical routes," *Synthetic Metals*. 210, 123-132, 2015.

- [21]. Sun Z., Y.H. Hu, "Ultrafast, Low-Cost, and Mass Production of High-Quality Graphene," *Angew Chem Int Ed Engl.*, 59(24), 9232-9234, 2020.
- [22]. Yang S., et al., "New-Generation Graphene from Electrochemical Approaches: Production and Applications," *Adv. Mater.*, 28(29), 6213-21, 2016.
- [23]. Parvez K., et al., "Exfoliation of graphite into graphene in aqueous solutions of inorganic salts," *J. Am. Chem. Soc.*, 136(16), 6083-91, 2014.
- [24]. Pei S., et al., "Green synthesis of graphene oxide by seconds timescale water electrolytic oxidation," *Nat Commun.*, 9, 2018.
- [25]. Parvez K., et al., "Electrochemically exfoliated graphene as solution-processable, highly conductive electrodes for organic electronics," *ACS Nano.*, 7(4), 3598-606, 2013.
- [26]. Cao J., et al., "Two-Step Electrochemical Intercalation and Oxidation of Graphite for the Mass Production of Graphene Oxide," *J. Am. Chem. Soc.*, 139(48), 17446-17456, 2017.
- [27]. Ferrari A.C., et al., "Raman spectrum of graphene and graphene layers," *Phys. Rev. Lett.*, 97(18), 187401, 2006.
- [28]. Sengupta I., et al., "Thermal reduction of graphene oxide: How temperature influences purity," *J. Mater. Res.*, 33(23), 4113-4122, 2018.
- [29]. Aghamohammadi H., et al., "Recent advances in one-pot functionalization of graphene using electrochemical exfoliation of graphite: A review study," *Synthetic Metals.*, 269, 2020.
- [30]. Jabari E., et al., "2D printing of graphene: a review," *2D Materials*, 6(4), 042004, 2019.

AUTHORS INFORMATION

**Duong Van Thiet¹, Nguyen Tuan Hong², Nguyen Dinh Dzung²,
Dang Thanh Binh², Vu Duy Dat², Phuong Gia Phong³,
Nguyen Anh Duc²**

¹School of Mechanical and Automotive Engineering, Hanoi University of Industry, Vietnam

²Center for High Technology Development, Vietnam Academy of Science and Technology, Vietnam

³HUS High School for Gifted Students, Vietnam National University, Hanoi, Vietnam