

Умерова С.О., Дуліна І.О., Барановський Д.І., Рагуля А.В.

Інститут проблем матеріалознавства Національної академії наук України

ім. І.М. Францевича

ОСОБЛИВОСТІ ФОРМУВАННЯ ШАРУВАТИХ НАНОКОМПОЗИТІВ ТИПУ «МЕТАЛ-ДИЕЛЕКТРИК» МЕТОДОМ ТРАФАРЕТНОГО ДРУКУ

Дана стаття присвячена формуванню наноконкомпозитів типу «метал-діелектрик» методом трафаретного друку. Встановлено, що одержання наноконкомпозиту шляхом послідовного нанесення декількох шарів пластифікованої діелектричної пасты на основі нанопорошку $BaTiO_3$ із подальшим нанесенням шару провіднику пасты на основі нанопорошку Ni/NiO обумовлює формування суцільних двошарових об'єктів після спікання. При цьому одержані наноконкомпозити характеризуються чіткою межею розділу між двома функціональними шарами.

В данной статье исследовалась возможность формирования сплошных наноконкомпозитов типа «металл-диелектрик» методом трафаретной печати. Установлено, что получение наноконкомпозита путем последовательного нанесения нескольких слоев диелектрической пасты на основе нанопорошка $BaTiO_3$ и дальнейшего нанесения проводящего слоя пасты на основе нанопорошка Ni/NiO обуславливает формирование сплошных двуслойных объектов после спекания. При этом полученные наноконкомпозиты характеризуются четкой границей раздела между двумя функциональными слоями.

This article is about the formation of solid nanocomposites of «metal - dielectric» type by screen printing method. It was established that nanocomposites could be obtained by the consistent printing of several layers of plasticized dielectric paste based on $BaTiO_3$ nanopowder with subsequent printing of conductive paste based on Ni/NiO nanopowder. As a result, after sintering the continuous bilayered nanocomposites with clear interphase between functional layers were obtained.

Вступ

Наноконпозиційні матеріали представляють собою клас багатофазних матеріалів із чіткою межею розділу структурних елементів [1], в яких хоча б одна з фаз має розмір менше 100 нм [2, 3]. Перевагою наноконкомпозитів є їх багатофункціональність, яка полягає

у можливості досягнення та поєднання унікальних властивостей, не досяжних під час застосування традиційних матеріалів [1]. Окрім цього, сучасні нанотехнології дозволяють розробляти нові підходи до формування об'єктів та модернізувати більшість відомих промислових технологічних операцій задля одержання відповідних виробів із суттєво покращеними характеристиками.

Галузь друкованої електроніки є найяскравішим прикладом нанотехнологічної модернізації [4]. Для більшості традиційних методів літографії вихідним робочим об'єктом є суспензія твердих частинок функціонального матеріалу у органічному носії. При цьому промислове виробництво багатошарових об'єктів передбачає використання мікронних та субмікронних порошків, розмір яких перевищує розмір органічної молекули, і структурно-механічні властивості таких систем є досить прогнозованими у рамках класичної науки. З точки зору нанотехнологій для зменшення габаритних розмірів відповідних пристроїв із одночасним покращенням експлуатаційних властивостей доцільно використовувати робочі суспензії на основі нанопорошків функціональних матеріалів. По-перше, таке технологічне рішення є економічно обґрунтованим – висока питома поверхня та реакційна здатність наночастинок обумовить зниження їх концентрації щонайменше удвічі, а по-друге, дозволить формувати високоструктуровані тонкі функціональні шари.

У контексті тенденції мініатюризації загалом усіх електронних пристроїв найбільший інтерес представляє метод трафаретного друку, який є основним літографічним методом виробництва друкованих електронних приладів (MLCC [5-7], SOFC [8-12], DSSC [13]) протягом останніх 25 років [14] через низьку вартість, високу швидкість здійснення процесу та можливість формування гладких, однорідних, щільних шарів завтовшки 1 – 100 мкм із розподільчою здатністю ліній менше 100 мкм [15] за один крок [16-18]. Процес трафаретного друку представляє собою нанесення пасти (носія металічного та/або неорганічного порошків [19]) на матеріал основи (або підкладки) шляхом продавливання крізь комірки плетеного трафарету з рисунком довільної геометрії [16]. При цьому якість одержаних відтисків визначається середньою товщиною відтиску і її однорідністю, роздільною здатністю тонких ліній та кількістю отворів трафарету [15]. На якість відтисків суттєво впливають в'язкісно-реологічні властивості паст та технологічні параметри здійснення друку.

У наших попередніх дослідженнях було встановлено, що, на відміну від традиційних паст для трафаретного друку на основі мікронних та субмікронних порошків, пластифіковані пасти на основі нанорозмірного порошку BaTiO_3 представляли собою системи зі складним характером течії, що проявляють явище зростання ефективної в'язкості за низьких напружень зсуву [20, 21]. Оскільки, окрім технологічних параметрів

здійснення друку [22] на якість відтисків суттєво впливають в'язкісно-реологічні властивості паст [23], дана робота присвячена формуванню шаруватих нанокompозитів типу «метал - діелектрик» методом трафаретного друку на основі діелектричних паст із різним характером течії.

Експериментальна частина

Для приготування діелектричних та провідних паст для трафаретного друку використовували нанорозмірний порошок BaTiO_3 з розміром частинок 20 – 25 нм, отриманий методом неізотермічного розкладання титанілоксалату барію (рис. 1) та Ni/NiO з розміром частинок 8 нм, отриманий методом термічного розкладання гексааміакуту ацетату нікелю (рис. 2).

У якості розчинників для диспергування нанопорошків титанату барію та Ni використовували терпінеол (суміш ізомерів α - та β -терпінеолу) (Merck GmbH) – 2-(4-метил-1-циклогекс-3-еніл)пропан-2-ол та 1-метил-4-проп-1-ен-2-ілциклогексан-1-ол.

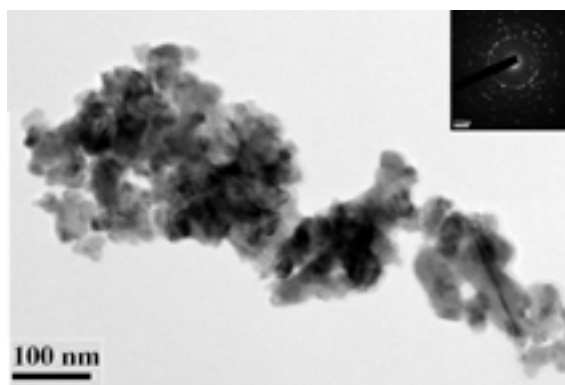


Рис. 1. Нанопорошок BaTiO_3

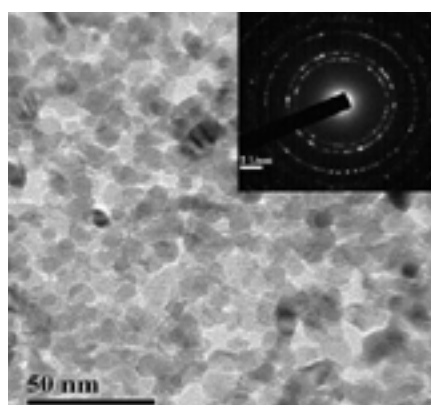


Рис. 2. Нанопорошок Ni/NiO

У якості полімерного в'язучого використовували етилцелюлозу ЕЦ (Merck GmbH) – етиловий ефір целюлози з вмістом етоксильних груп 48 %. Пластифікація полімеру ЕЦ

проводилась шляхом додавання певної кількості пластифікатору дибутилфталату ДБФ (Merck GmbH), який представляє собою дибутиловий ефір фталевої кислоти.

Приготування паст проводилось у два етапи. На першому етапі здійснювалась дезагрегація частинок порошку шляхом розтирання у розчиннику терпінеолі протягом 60 хвилин у планетарному мономліні Pulverisette 6 фірми Fritsch за швидкості обертання барабану 450 об./хв; паралельно із цим готували органічне в'язуче шляхом розчинення полімеру ЕЦ у терпінеолі (у випадку пластифікованих паст також додавали необхідну кількість пластифікатору ДБФ) із використанням магнітної мішалки RCT basic safety control (ІКА) за швидкості обертання 1000 об./хв.

На другому етапі до суспензії нанопорошку відповідного функціонального матеріалу додавали необхідну кількість органічного в'язучого та продовжували гомогенізацію суспензії протягом 60 хв. у планетарному мономліні Pulverisette 6 фірми Fritsch за швидкості обертання барабану 450 об./хв.

Дослідження реології відповідних паст проводили за допомогою ротаційного віскозиметру Rheotest RN4.1 фірми Medingen в діапазоні зростаючих напружень зсуву від 1 до 1000 Па із зазором між коаксіальними циліндрами 1,48 мм та температурі 20 °С із використанням вимірювального вузла «конус - площина».

Трафаретний друк паст здійснювався на полімерну плівку розмірами 10x10 см через нейлоновий трафарет із числом меж 151 та 158 за допомогою прецизійного трафаретного принтеру MPS-485 фірми AMI у режимі «заповнення/друк». Після нанесення відтиски висушувались протягом 2 год за температури 70 °С зі швидкістю нагрівання 20 °С/год у сушильній шафі СНОЛ 294/350.

Видалення органічного в'язучого здійснювали із використанням муфельної печі Е5СК-Т за температури 450 °С протягом 12 год. Спікання пористих зразків проводили у муфельній печі Е5СК-Т за температури 1000 протягом 7,5 год.

Візуальна оцінка якості на предмет наявності грубих дефектів за периметром відтиску та порушення суцільності відтисків досліджуваних паст проводилась за допомогою оптичного мікроскопу Bresser Advance ICD 10x-160x.

2D і 3D профілі поверхні, товщина, кількісні та якісні характеристики поверхні відтисків паст визначались за допомогою безконтактного інтерференційного 3D профілографу «Мікрон - альфа» фірми «Мікрон-система».

Обговорення результатів.

Провідні пасти на основі нанопорошку Ni/NiO.

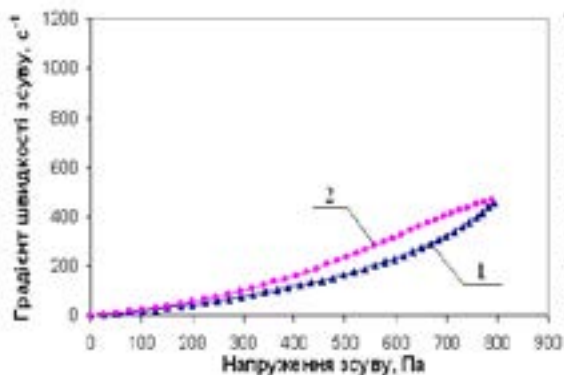
З метою оптимізації складу та реологічних властивостей до трьох провідних паст був введений додатковий розчинник – ментон, із відповідним зменшенням вмісту терпінеолу. Виходячи з даних табл. 1 та рис. 3, тиксотропними є пасти із виключним

вмістом одного з розчинників та при певному їх співвідношенні (пасти П38, П57 та П55 відповідно). А пасти П54 та П56 є виключно псевдопластичними. Примітно, що паста П55 з певним середнім вмістом обох розчинників має найнижчий ступінь тиксотропності та найвищу ефективну в'язкість. Як видно з рис. 3, паста П38 проявляє яскраво виражений тиксотропний характер течії. Лише для цієї пасти спостерігається формування тиксотропної петлі гістерезису. Пасти П55 та П57 також утворюють своєрідну петлю гістерезису, проте ці системи не здатні повернутись до вихідного значення ефективної в'язкості. Встановлено, що найвище значення ефективної в'язкості 52,7 Па·с було отримане для псевдопластичної пасти П56, а найнижче – 0,17 Па·с - для пасти П57, яка має найнижчий ступінь тиксотропності, обумовлений використанням виключно ментону в якості розчинника.

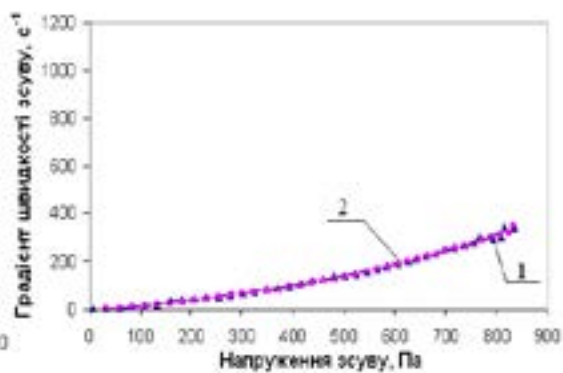
Таблиця 1.

Склад та реологічні властивості паст на основі нанопорошку Ni/NiO

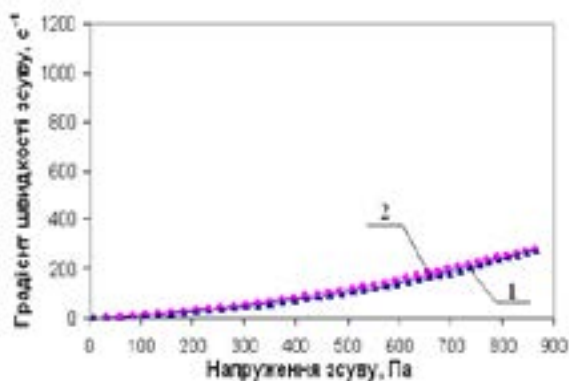
Паста	Склад, мас. %				В'язкість, Па·с		Ступінь тиксотропності, МПа/с
	Ni/NiO	Етилцелюлоза	Терпінеол	Ментон	1 с ⁻¹	500 с ⁻¹	
П38	13,35	3,3	83,35	0	6,87	1,71	0,4415
П54	20,16	2,48	47,18	30,18	10,4	2,4	0
П55	24,36	2,4	45,53	27,71	11,9	3,08	0,0184
П56	24,42	3,18	60,33	12,07	52,7	16,5	0
П57	25,91	3,48	0	70,61	0,17	0,17	0,1061



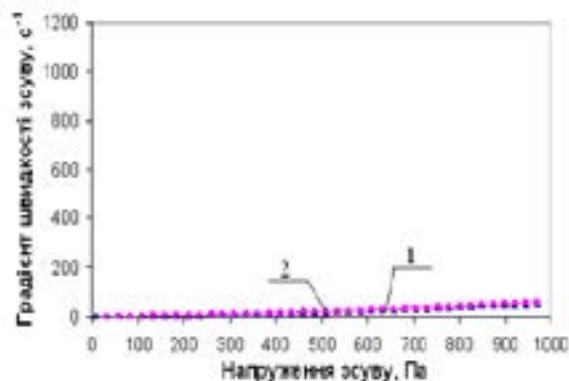
а



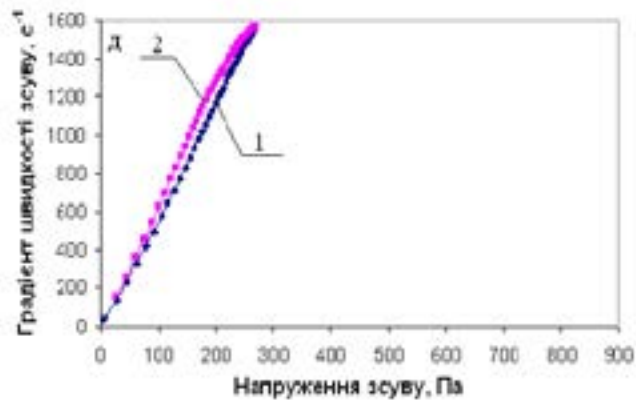
б



в



г



δ
 1 – пряма крива; 2 – зворотна крива
 а – П38; б – П54; в – П55; г – П56; д – П57

Рис. 3. Криві течії паст на основі нанопорошку Ni/NiO

За допомогою металографічного мікроскопу була підрахована кількість вдалих відтисків провідних паст, надрукованих за заданим тиском ракелю у відсотках (рис. 4). Згідно з отриманими даними, встановлена залежність якості трафаретного друку паст на основі нанопорошку Ni/NiO від тиску ракелю, з чого витікає, що найкращу здатність до друку проявляла паста П38 майже на всьому інтервалі тисків, починаючи з 0,086 МПа (рис. 5).

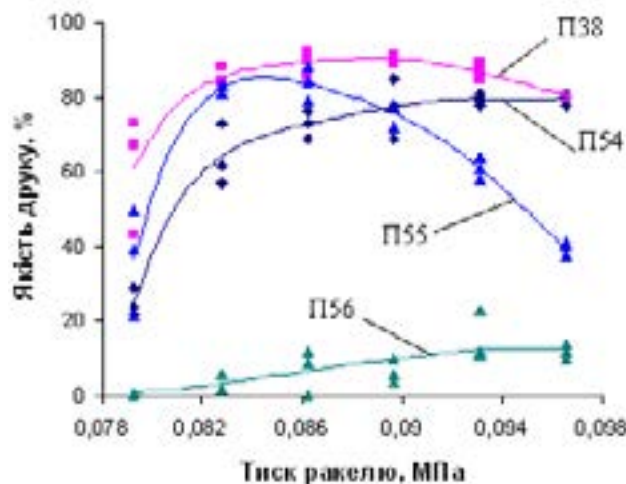


Рис. 4. Залежність якості відтисків паст на основі нанопорошку Ni/NiO, отриманих методом трафаретного друку від тиску ракелю

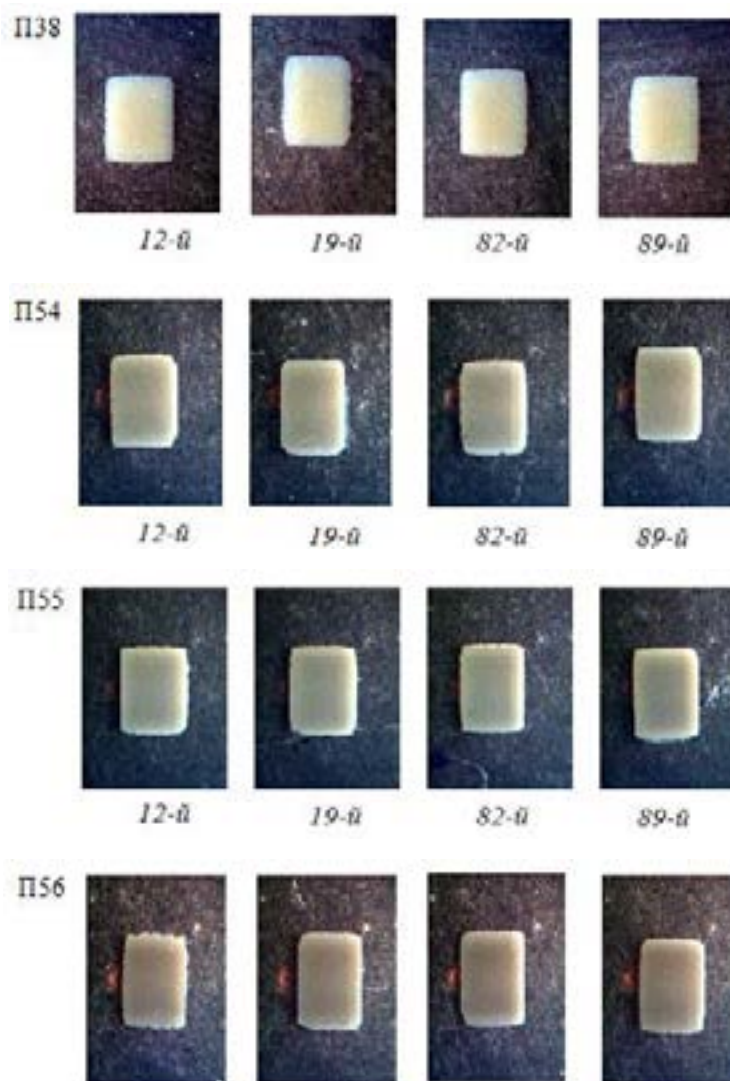


Рис. 5 Зовнішній вигляд відтисків паст на основі Ni трафаретного друку за тиску ракелю 0,086 МПа

Діелектричні пасти на основі нанопорошку BaTiO_3

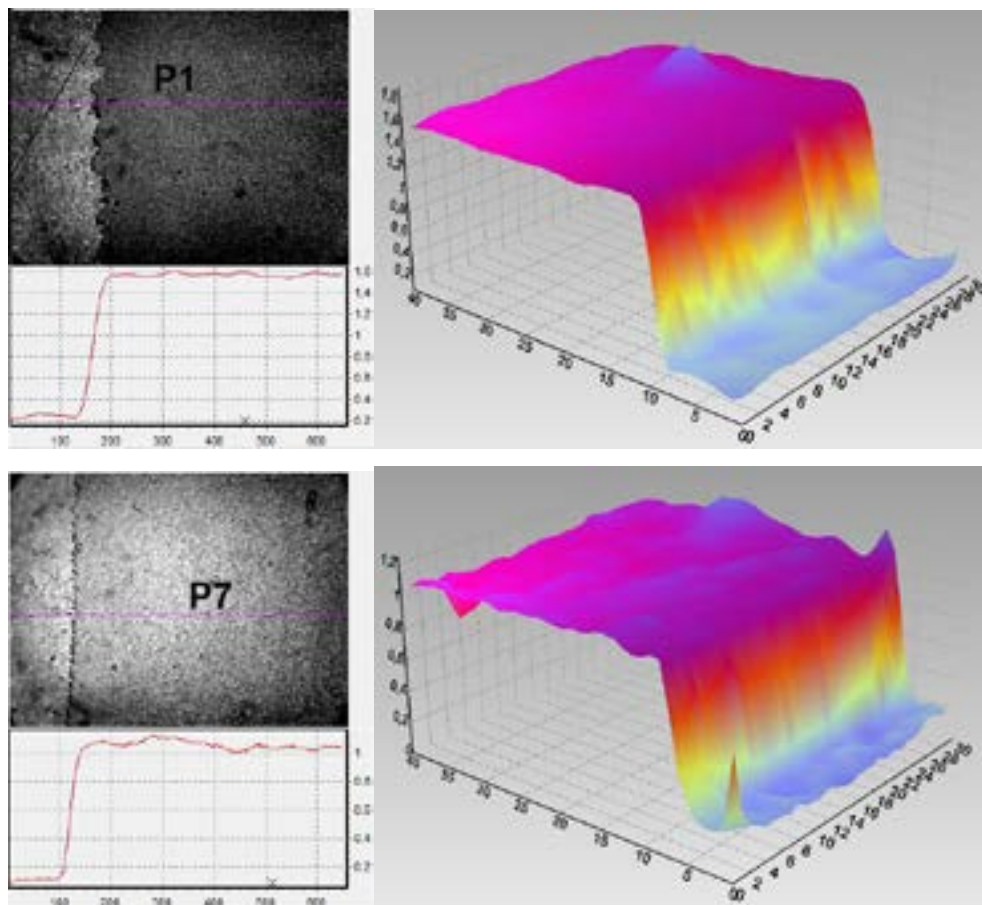
З метою формування діелектричних шарів методом трафаретного друку було обрано чотири представницьких діелектричних пасти із різним характером течії на основі нанопорошку BaTiO_3 [21]. Під час проведення профілометричних досліджень були визначені товщина та параметри шорсткості поверхні відтисків досліджуваних паст. Як видно з таблиці 2 та рисунку 6, наявність пластифікатору безперечно сприяла зменшенню товщини та значень поверхневих характеристик у порівнянні із непластифікованою пастою P1. Згідно з вимірними значеннями параметрів шорсткості поверхні, пластифікація полімеру обумовила зменшення розміру порошкових агломератів на поверхні висушених плівок паст. Зокрема, Ra поверхні відтисків пластифікованих паст становила в середньому на рівні розміру однієї наночастинки BaTiO_3 , а значення товщини було ≤ 1 мкм. Таким чином можна зробити висновок, що наявність пластифікатору дійсно

спричиняє зменшення розміру структурних елементів, тим самим обумовлюючи формування тонких гладких шарів.

Таблиця 2.

Результати профілометричного аналізу відтисків діелектричних паст, отриманих методом трафаретного друку за оптимальних режимів здійснення процесу [22]

Паста	Вміст ДБФ, мас. %	Товщина, мкм	Ra поверхні, нм	Rz поверхні, нм
P1	0	1,30	36	162
P7	10	0,91	22	70
P9	12,5	0,88	15	42
P16	22,5	0,95	23	44



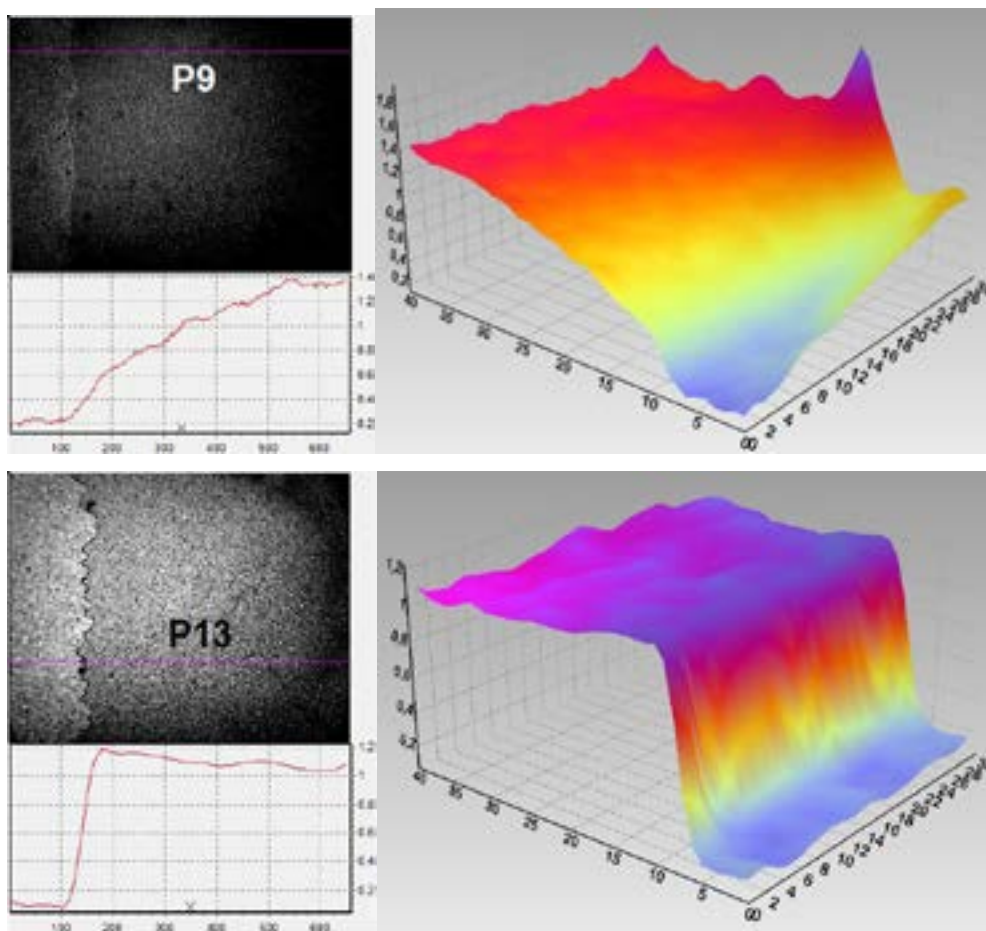


Рис. 6 2-D та 3-D профілі поверхні відтисків досліджуваних діелектричних паст

Формування шаруватих нанокompозитів типу «метал - діелектрик»

Згідно з проведеними дослідженнями, найкращу здатність до трафаретного друку проявила паста П38, забезпечуючи формування найбільшої кількості відтисків вдалої геометрії на досить широкому інтервалі тисків ракелю. Враховуючи одержаний результат, можна зрозуміти, що паста П38 була обрана у якості вихідного матеріалу для металічного шару Ni двошарового об'єкту «метал - діелектрик».

Формування дослідних зразків нанокompозитів «Ni - BaTiO₃» (рис. 7) здійснювали методом трафаретного друку у режимі «заповнення/друк». Перший етап збірки композиту полягав у одержанні сирих керамічних підкладок P1, P7, P9 та P13 шляхом послідовного нанесення 8 шарів відповідних паст на основі BaTiO₃ та їх подальшому висушуванні протягом 2 годин за T = 70 °C з метою видалення розчинника терпінеола. На другому етапі поверх керамічних підкладок методом трафаретного друку наносили шар із пасти П38 на основі нанопорошку Ni/NiO методом трафаретного друку і подальше висушування всього композиту. Таким чином були одержані сирі нанокompозити Ni/BaTiO₃ із характеристиками, наведеними у таблиці 3.

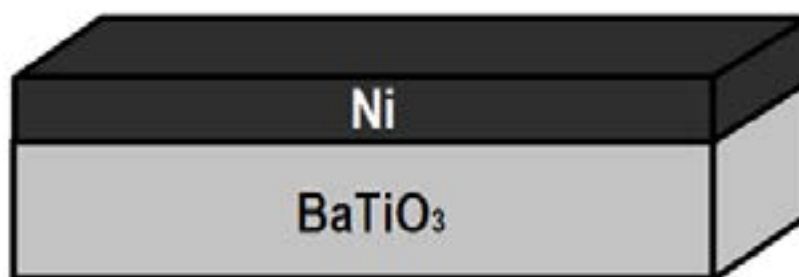


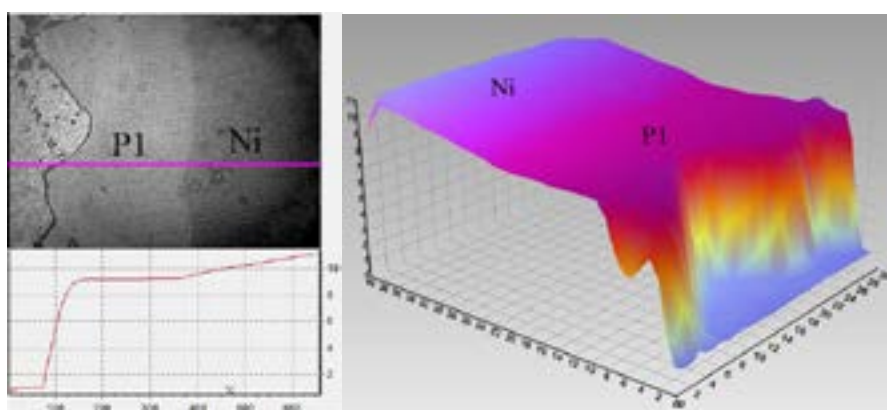
Рис. 7. Модель «метал - діелектрик»

Таблиця 3.

Результати профілометричного аналізу сирих двошарових нанокompозитів «Ni - BaTiO₃»

Паста	Вміст ДБФ, мас. %	Товщина шару, мкм	Ra, нм	Rz, нм	Rp, нм	Rv, нм	Rku, від. од.
P1 Ni	0	8,22	51	118	121	-159	3,8
		1,16	33	45	77	-121	4,78
P7 Ni	10	8,63	59	48	86	-149	3,2
		1,65	122	221	192	-356	2,76
P9 Ni	12,5	6,75	27	33	61	-45	2,7
		1,15	37	37	78	-108	3,66
P13 Ni	20	8,81	54	83	87	-132	3
		1,2	39	65	73	-75	2,98

Згідно з проведеними дослідженнями методом оптичної профілометрії, одержані зразки мали товщину керамічної підкладки у середньому на рівні 8 мкм із шаром Ni більше 1 мкм. Як видно з рисунку 8, найбільша товщина металічного шару 1,65 мкм була зафіксована для композиту «Ni/P7», а найбільша деформація керамічної підкладки – для композиту «Ni/P1».



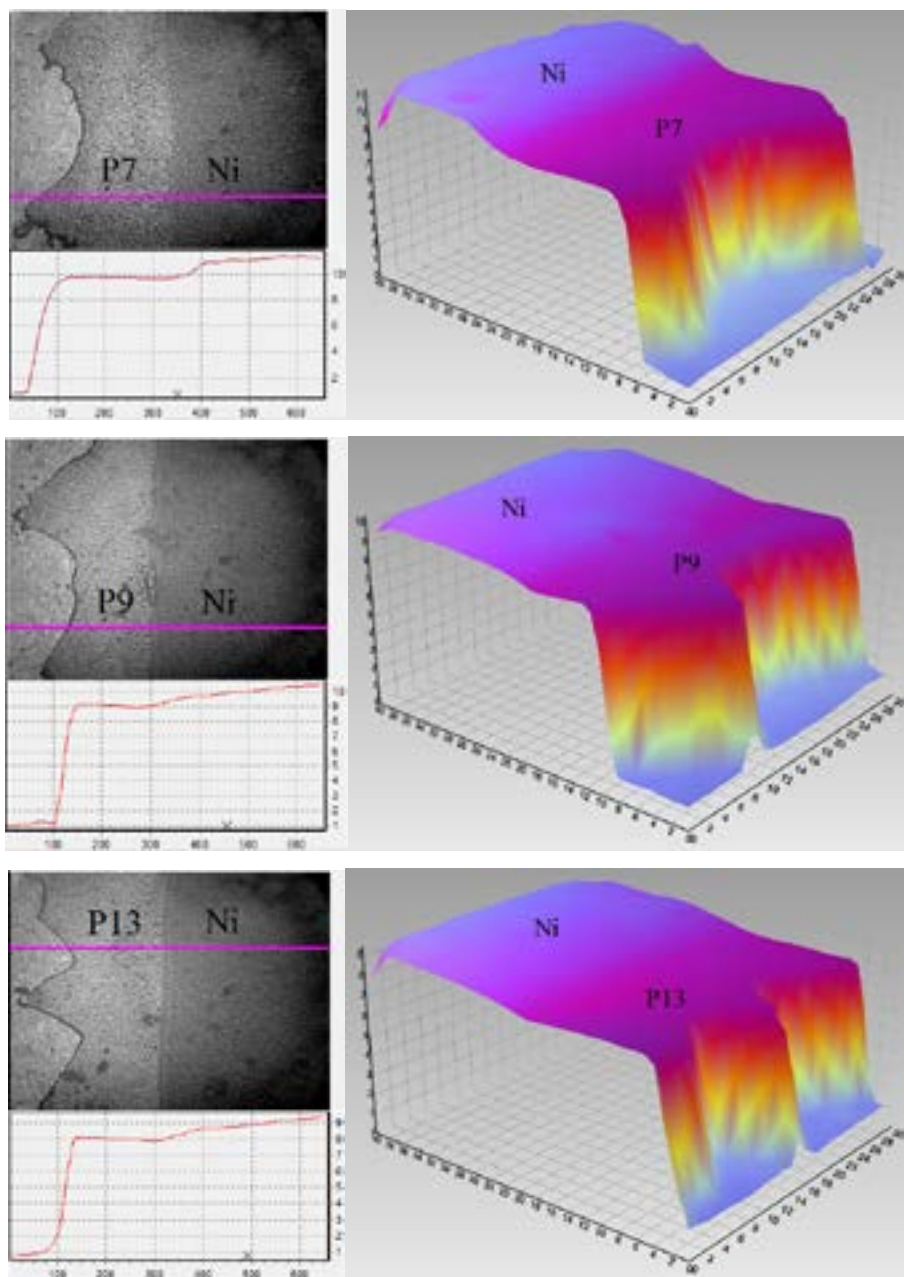
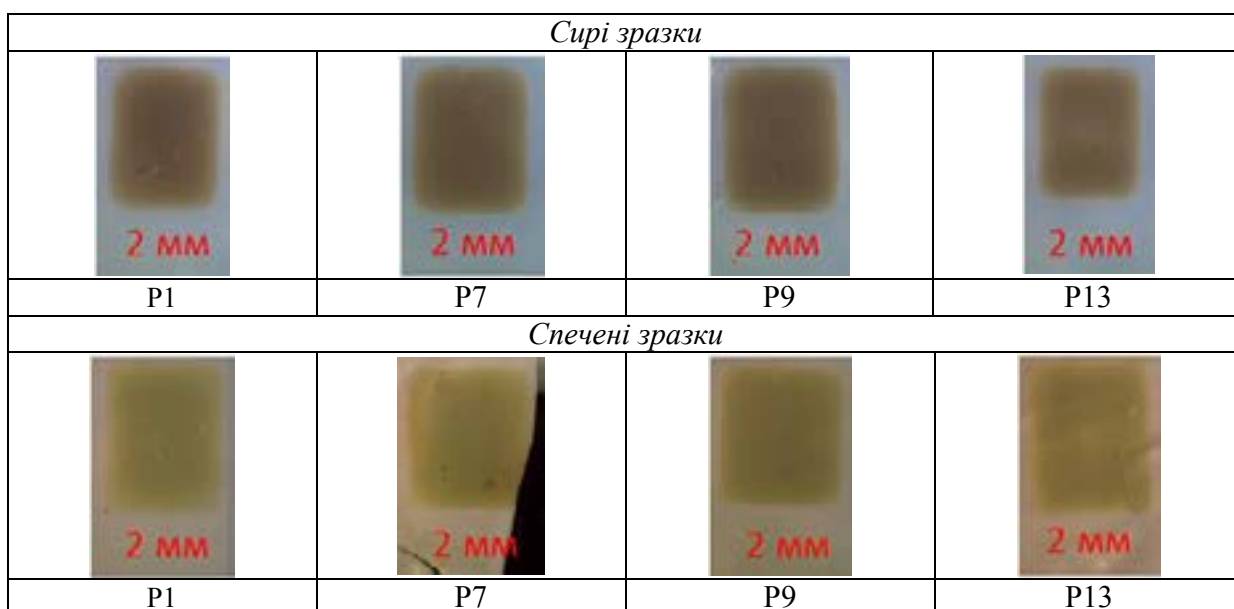
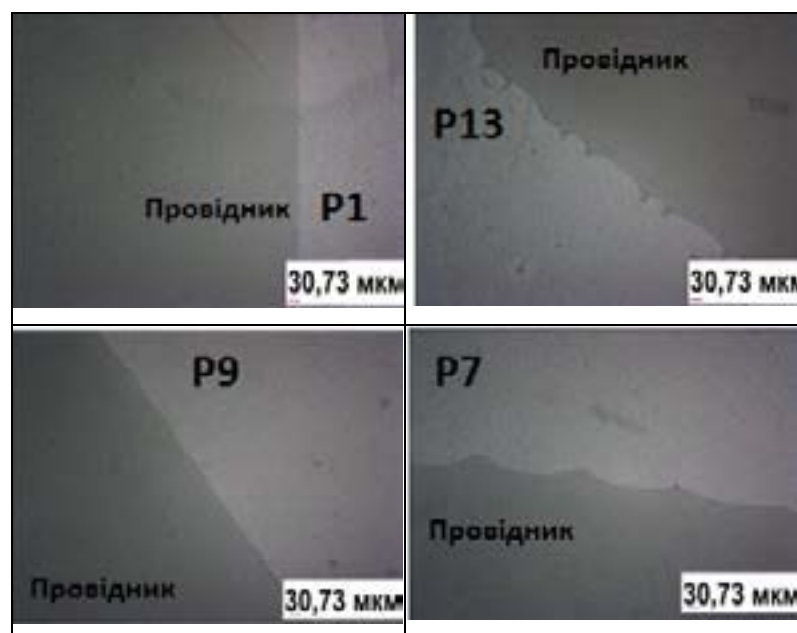


Рис. 8. 2-D та 3-D профілі сирих нанокompозитів «Ni / BaTiO₃»

Спiкання сирих дослiдних зразкiв здiйснювалось за температури 1000°C протягом 20 годин з метою формування суцiльних щiльних двошарових композитiв. Згiдно з рис. 9, пiсля повного циклу термiчної обробки усi дослiджуванi зразки характеризувались збереженням форми та суцiльностi. Окрiм цього, як видно з рис. 10, межа роздiлу мiж двома функцiональними шарами є досить чiткою, без яскраво виражених дефектiв за периметром вiдтиску Ni.

Рис. 9. Мікрофотографії сирих та спечених нанокompозитів «Ni - BaTiO₃»Рис. 10. Мікрофотографії межі розділу двох функціональних шарів спечених нанокompозитів «Ni - BaTiO₃»

Окрім самої можливості формування нанокompозитів методом трафаретного друку, у даній роботі встановлювався вплив спікання на зміну основних характеристик на прикладі нанокompозиту «Ni/P1». Так, згідно з одержаним результатом, після спікання товщина керамічного шару зменшилась у 1,8 рази, параметр шорсткості поверхні R_a збільшився у 3 рази (табл. 4). Проведені методом ТЕМ дослідження показали, що внаслідок спікання відбулось зростання наночастинок BaTiO₃ у рихлі агрегати із чіткими межами розділу. Також спостерігалось утворення двійників. Діапазон розмірів зерен складав 50 – 200 нм за основної складової 100 – 200 нм (рис. 11).

Таблиця 4.

Результати профілометричного аналізу сирих нанокompatитів «Ni - BaTiO₃» до та після спікання

Паста	Товщина шару, мкм	Ra, нм	Rz, нм	Rp, нм	Rv, нм	Rku, від. од.	Щільність, г/см ³
До спікання							
P1	8,22	51	118	121	-159	3,8	2,7984
Провідник	2,33	75	170	200	-190	4	1,8652
Після спікання							
P1	4,62	156	245	315	-326	2,1	4,3665
Провідник	1,52	235	310	385	-420	2,5	3,3682

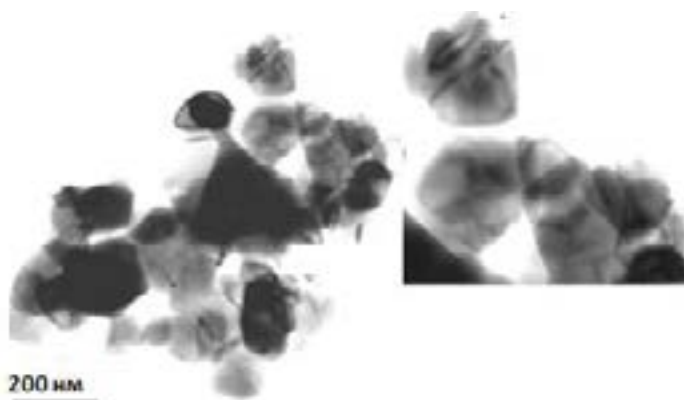


Рис. 11. ТЕМ наночастинок BaTiO₃ спеченого шару P1 нанокompatити «Ni/P1»

Висновки

У роботі досліджена можливість формування та властивості нанокompatитів типу «метал - діелектрик» методом трафаретного друку. Встановлено, що використання нанопорошку Ni/NiO із розміром частинок 8 нм у якості функціонального матеріалу і розчиннику терпінеолу обумовлює тиксотропні властивості провідної пасти, які забезпечують її високу здатність до трафаретного друку. У свою чергу дослідження відтисків чотирьох представницьких діелектричних паст на основі нанопорошку BaTiO₃ із розміром частинок 20 – 25 нм показало, що наявність пластифікатора у складі пасти позитивно впливає на якість плівок, обумовлюючи суттєве стоншення відтисків та зниження шорсткості поверхні.

Виявлено, що усі чотири представницькі діелектричні пасти виявились придатними для збірки у нанокompatит типу «метал - діелектрик» методом трафаретного друку. Так, усі три пластифіковані пасти зберегли нижчі, у порівнянні із неластифікованою пастою

P1 значення параметрів шорсткості поверхні як у стані моношару, так і в результаті послідовного трафаретного друку 8-ми шарів.

Послідовна термічна обробка сирих наноккомпозитів типу «метал - діелектрик» обумовила формування суцільних двошарових об'єктів «метал - діелектрик», зокрема для наноккомпозиту «Ni/P1» було встановлено збільшення розміру зерна до 150 – 200 нм.

Подяка

Подяка виражається Олійник Галині Сергіївні (Інститут проблем матеріалознавства ім. І.М. Францевича НАН України) за проведення мікроскопічних досліджень.

Перелік посилань

1. Hussain, F. Review article: polymer-matrix nanocomposites, processing, manufacturing, and application: an overview / F. Hussain, M. Hojjati, M. Okamoto, R.E. Gorga // *Journal of composite materials*. – 2006. – Vol. 40, No 17. – P. 1511 - 1575.
2. Ajayan, P.M. Nanocomposite science and technology / P.M. Ajayan, L.S. Schadler, P.V. Braun. – Weinheim: Wiley-VCH GmbH & Co KGaA, 2003 – 223 p. ISBN 3-527-30359-6.
3. Барыбин, А.А. Физико-химия наночастиц, наноматериалов и наноструктур. Учебное пособие / А.А. Барыбин, В.А. Бахтина, В.И. Томилин, Н.П. Томилина. – Красноярск : Сибирский федеральный университет, 2011. – 236 с. ISBN 978-5-7638-2396-7.
4. Cao, Y. The future of nanodielectrics in the electrical power industry / Y. Cao, P.C. Irwin, K. Younsi // *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*. – 2004. – Vol. 11, No 5. – P. 797 - 807.
5. Stojanovic, B.D. Barium titanate screen-printed thick films / B.D. Stojanovic, C.R. Foschini, V.B. Pavlovic, V.M. Pavlovic, V. Pejovic, J.A. Valera // *Ceramics International*. – 2002. – Vol. 28, No. 3. – P. 293 - 298.
6. Pan, M.J. A brief introduction to ceramic capacitors / M.J. Pan, C.A. Randall // *IEEE electrical insulation magazine*. – 2010. – Vol. 26, No 3. – P. 44 - 50.
7. Kishi, H. Base-metal electrode-multilayer ceramic capacitors: past, present and future perspectives / H. Kishi, Y. Mizuno, H. Chazono // *Japanese Journal of Applied Physics*. – 2003. – Vol. 42, No. 1R. – P. 1 - 15.
8. Inukai, K. Molecular weight dependence of ethyl cellulose adsorption behavior on (La, Sr)(Ti, Fe)O₃- δ particles in organic solvent pastes and their printing properties / K. Inukai, Y. Takahashi, S. Murakami // *Ceramics International*. - 2014. – Vol. 40, No. 8. – P. 12319 - 12325.
9. Inukai, K. Rheological analysis of ceramic pastes with ethyl cellulose for screen-printing / K. Inukai, Y. Takahashi, K. Ri, W. Shin // 2015. – Vol. 41, No. 4. – P. 5959 - 5966.

10. Murakami, S. Effects of ethyl cellulose polymers on rheological properties of (La,Sr)(Ti,Fe)O₃ - terpeneol pastes for screen printing / S. Murakami, K. Ria, T. Itoha //, *Ceramics International*. – 2014. – Vol. 40, No. 1. – P. 1661 - 1666.
11. Phair, J.W. Rheological analysis of concentrated zirconia pastes with ethyl cellulose for screen printing SOFC electrolyte films / J.W. Phair // *Journal of the American Ceramic Society*. – 2008. – Vol. 91, No. 7. – P. 2130 - 2137.
12. Phair, J.W. Determination and Assessment of the Rheological Properties of Pastes for Screen Printing Ceramics / J.W. Phair, A.F.J. Kaiser // *Annual Transactions of the Nordic Rheology Society*. – 2009. – Vol. 17. – 5 p.
13. Gemeiner, P. The relation between TiO₂ nano-pastes rheology and dye sensitized solar cell photoanode efficiency // P. Gemeiner, M. Mikula // *Materials Science in Semiconductor Processing*. – 2015. – Vol. 30. – P. 605 - 611.
14. Weng, B. Printing conducting polymers / B. Weng, R.L. Shepherd, K. Crowley, // *Analyst*. – 2010. – Vol. 135, No. 11. – P. 2779 - 2789.
15. Aegerter, M.A. Sol-gel technologies for glass producers and users / M.A. Aegerter, M. Mennig. – New York: Springer, 2004. – 493 p. ISBN 978-1-4020-7938-2.
16. Ингрэм, С.Т. Основы трафаретной печати / С. Т. Ингрэм; пер. на рус. яз. М. Бредис, С. Вартамян. – М.: МГУП, 2004. – 165 с.
17. Сорокин, Б.А. Трафаретная печать: Учебное пособие / Б.А. Сорокин – М.: МГУП. – 2005. – 142 с. ISBN 5-8122-0117-х.
18. Beeby, S. MEMS Mechanical Sensors / S. Beeby, G. Ensell, M. Kraft, N. White. - Boston-London.: Artech House, 2004. – 282 p. ISBN 978-1-58053-536-6.
19. White, G.S. A model for the screen-printing of Newtonian fluids / G.S. White, C.J.W. Breward, P.D. Howell, R.J.S. Young // *Journal of Engineering Mathematics*. – 2006. – Vol. 54, No. 1. - P. 49 - 70.
20. Dulina, I. Plasticizer effect on rheological behaviour of screen printing pastes based on barium titanate nanopowder / I. Dulina, S. Umerova, A. Ragulya // *Journal of Physics*. – 2015. – Vol. 602. – P. 1 – 5.
21. Umerova, S. Rheology of plasticized screen printing pastes based on BaTiO₃ nanopowder / S. Umerova, I. Dulina, A. Ragulya, T. Konstantinova, V. Glazunova // *Applied Rheology*. – 2016. - Vol. 3, No. 3. – P. 1 – 9.
22. Умерова, С.О. Трафаретний друк паст на основі нанопорошку BaTiO₃ / С.О. Умерова, І.О. Дуліна, А.В. Рагуля // *Кераміка: наука и жизнь*. – 2016. - Т. 31, № 2. – С. 31 – 41.
23. Somalu, M.R. Renewable and Sustainable Energy Reviews (2016), <http://dx.doi.org/10.1016/j.rser.2016.11.008>.