УДК 544.7 + 544.2 DOI https://doi.org/10.32782/pcsd-2022-2-6

Едуард ЛИСЕНКОВ

доктор фізико-математичних наук, професор, професор кафедри інтелектуальних інформаційних систем, Чорноморський національний університет імені Петра Могили, вул. 68 десантників, 10, м. Миколаїв, Україна, 54003 **ORCID:** 0000-0002-1369-4609

Бібліографічний опис статті: Лисенков, Е. (2022). Вплив поліетилегліколевих модифікаторів на розподіл вуглецевих нанотрубок у полімерній матриці. *Проблеми хімії та сталого розвитку*, 2, 45–51, doi: https://doi.org/10.32782/pcsd-2022-2-6

ВПЛИВ ПОЛІЕТИЛЕГЛІКОЛЕВИХ МОДИФІКАТОРІВ НА РОЗПОДІЛ ВУГЛЕЦЕВИХ НАНОТРУБОК У ПОЛІМЕРНІЙ МАТРИЦІ

У полімерних нанокомпозитах, наповнених вуглецевими нанотрубками (BHT), дуже важко забезпечити рівномірність розподілу нанотрубок у полімерній матриці, а також стабільність даної дисперсії у часі. Тому у таких системах з часом, завдяки потужним ван-дер-ваальсівським силам притягання між окремими нанотрубками, має місце агрегація частинок наповнювача, яка приводить до переходу від нано- до мікрорівня їх структурної організації. Такий перехід негативно впливає на комплекс функціональних властивостей полімерних нанокомпозитів, наповнених ВНТ. Отже, розробка нових підходів до стабілізації наночастинок з метою перешкоджанню їх агрегації для створення нанокомпозитних матеріалів із поліпшеними функціональними характеристиками є актуальною задачею.

У роботі вивчено вплив нековалетної модифікації вуглецевих нанотрубок за допомогою поліетиленгліколю (ПЕГ) різної молекулярної маси на ступінь їх розподілу у полімерній матриці. Досліджували особливості розподілу ВНТ різних типів: немодифікованих і нековалентно модифікованих з використанням різних молекул ПЕГ нанотрубок. Із аналізу мікроскопічних зображень виявлено, що модифіковані ВНТ більш рівномірно розподіляються у полімерній матриці, ніж немодифіковані нанотрубки, що можна пояснити різних характером взаємодії міжс полімерною матрицею та ВНТ. Визначено, що для систем, які містять модифіковані ВНТ, спостерігається вище значення фрактальної розмірності, що свідчить про утворення більш розпушених агрегатів із ВНТ, тоді як не модифіковані ВНТ виявляють тенденцію до утворення більш цільних агрегатів. Виявлено, що значення фрактальної розмірності для функціоналізованих ВНТ наближається до 3, що свідчить про рівномірний ступінь розподілу ВНТ. Встановлено, що найвищу стабілізуючу дію чинить модифікатор на основі ПЕГ-10000. При цьому ВНТ найбільш рівномірно розподіляються по об'єму матеріалу.

Ключові слова: вуглецеві нанотрубки, нековалентна модифікація, поліетиленгліколь, мікроструктура, фрактальна розмірність.

Eduard LYSENKOV

Doctor of Physics and Mathematics, Professor, Professor of the Department of Intellectual Information Systems, Petro Mohyla Black Sea National University, 10 68 Desantnykiv str., Mykolaiv, Ukraine, 54003 **ORCID:** 0000-0002-1369-4609

To cite this article: Lysenkov, E. (2022). Vplyv polietylehlikolevykh modyfikatoriv na rozpodil vuhletsevykh nanotrubok u polimerniy matrytsi [The influence of polyethylene glycol modifiers on the distribution of carbon nanotubes in the polymer matrix]. *Problems of Chemistry and Sustainable Development*, 2, 45–51, doi: https://doi.org/10.32782/pcsd-2022-2-6

THE INFLUENCE OF POLYETHYLENE GLYCOL MODIFIERS ON THE DISTRIBUTION OF CARBON NANOTUBES IN THE POLYMER MATRIX

In polymer nanocomposites filled with carbon nanotubes (CNTs), it is very difficult to ensure the uniformity of the distribution of nanotubes in the polymer matrix, as well as the stability of this dispersion over time. Therefore, in such systems, over time, due to the strong van der Waals forces of attraction between individual nanotubes, the aggregation of filler particles takes place, which leads to the transition from the nano to the micro level of their structural organization. Such a transition negatively affects the set of functional properties of polymer nanocomposites filled with CNTs. Therefore,

the development of new approaches to the stabilization of nanoparticles in order to prevent their aggregation for the creation of nanocomposite materials with improved functional characteristics is an urgent task.

The paper studied the effect of non-covalent modification of carbon nanotubes using polyethylene glycol (PEG) of different molecular weight on the degree of their distribution in the polymer matrix. The peculiarities of the distribution of CNTs of various types: unmodified and non-covalently modified, using different molecules of PEG, nanotubes were studied. From the analysis of microscopic images, it was found that modified CNTs are more evenly distributed in the polymer matrix than unmodified nanotubes, which can be explained by the different nature of the interaction between the polymer matrix and CNTs. It was determined that for systems containing modified CNTs, a higher value of the fractal dimension is observed, which indicates the formation of looser CNT aggregates, while unmodified CNTs is close to 3, which indicates a uniform distribution of CNTs. It was established that the modifier based on PEG-10000 exerts the highest stabilizing effect. At the same time, CNTs are most evenly distributed throughout the volume of the material.

Key words: carbon nanotubes, non-covalent modification, polyethylene glycol, microstructure, fractal dimension.

Вступ

Полімерні нанокомпозити, які містять вуглецеві нанотрубки (ВНТ), привертають значну увагу науковців протягом останніх двох десятиліть. Такий підвищений інтерес зумовлений специфічною будовою ВНТ, які складаються з циліндрових графенових шарів, їхніми унікальними тепловими, магнітними, електричними та механічними властивостями, зокрема екстремально високою механічною міцністю і високою хімічною стабільністю (Shoukat, 2021). Однак кінцеві властивості полімерного нанокомпозитного матеріалу, наповненого нанотрубками, залежить від багатьох чинників: форма, аспектне відношення, хімічний стан поверхні ВНТ, а також методів змішування полімеру і наповнювача (Iqbal, 2021).

Для поліпшення розподілу ВНТ у полімерній матриці ефективно застосовують функціоналізацію поверхні нанотрубок. Така модифікація ВНТ дає змогу створити додаткові стеричні перешкоди, які унеможливлюють наближення нанотрубок на дуже маленькі відстані (агрегацію). Одним із ефективних методів модифікації є функціоналізація за допомогою полімерів, до якої можна зачислити хімічну («ковалентну») та фізичну («нековалентну»), що базуються на утворенні ковалентних зв'язків або більш слабких взаємодій (наприклад, електростатичні сили або сили Ван-дер-Ваальса), відповідно (Baowan, 2019).

Одними із перспективних модифікаторів вуглецевих нанотрубок є аліфатичні поліетердіоли, такі як поліетиленгліколь (ПЕГ) та поліпропіленгліколь (ППГ). Досліджено дисперсії поверхнево-модифікованих ВНТ у водорозчинних (ПЕГ) і водонерозчинних (ППГ) полімерах (Vaisman, 2006). Так, автори роботи (Nuriel, 2005) спостерігали добре змочування та поліпшену дисперсність багатошарових ВНТ при використанні обох полімерів (ПЕГ та ППГ). Функціоналізація ВНТ шляхом хімічного прищеплення молекули ПЕГ (так зване пегілювання) підвищує їх розчинність у воді та водних розчинах (Kubota 2009). Крім того, багатошарові ВНТ, ковалентно функціоналізовані ПЕГ, показали відмінну гідрофільність, хорошу біоелектрокаталітичну активність і біосумісність (Wen, 2009). Однак, грунтовні дослідження щодо особливостей нековалентної модифікації ВНТ за допомогою ПЕГ різних молекулярних мас наразі відсутні. Тому метою нашої роботи була розробка методу нековалентної модифікації ВНТ за допомогою поліетиленгліколю різних молекулярних мас та дослідження розподілу модифікованих нанотрубок у полімерній матриці.

Експериментальна частина

Для дослідження використовували різні серії немодифікованих та нековалентно модифікованих вуглецевих нанотрубок. Для нековалентної модифікації ВНТ використовували поліетиленгліколь.

Як модифікатори використовували поліетиленгліколь (ПЕГ 400), молекулярної маси $M_w = 400$, поліетиленгліколь (ПЕГ-1000), молекулярної маси $M_w = 1000$ та поліетиленгліколь (ПЕГ 10000), молекулярної маси $M_w = 10000$, виробництва компанії Aldrich.

Перед використанням ПЕГ зневоднювали нагріванням у вакуумі протягом чотирьох годин за 353-373 К при залишковому тиску 300 Па.

Багатошарові ВНТ виробництва ВАТ «Спецмаш» (Україна) виготовлені з етилену методом хімічного осадження парів (CVD), Вміст мінеральних домішок становив не більше 0,1%. ВНТ містили функціональні групи на поверхні, вміст яких визначали титруванням. Питома поверхня – 190 м²/г, зовнішній діаметр – 20 нм, довжина (5÷10) мкм, аспектне відношення $L/d \approx 250 \pm 170$. Нековалентну модифікацію ВНТ проводили за схемою, яка зображена на рис. 1. ПЕГ розчиняли у воді у співвідношенні 1:5. Після розчинення додавали ВНТ, де співвідношення ПЕГ-ВНТ становило 1:3. Після цього суміш змішували за допомогою ультразвукового диспергатора УДЗН А-650. Диспергація тривала неперервно протягом 10 хв на частоті 22 кГц, потужність ультразвуку становила 100 Вт. На завершальному етапі проводили випарювання води.

Для визначення впливу модифікації на розподіл нанотрубок у полімерній матриці приготували полімерні нанокомпозити на основі ПЕГ-1000. Один із зразків містив не модифіковані ВНТ, а інший – ВНТ, які були нековалентно модифіковані. Вміст ВНТ становив 0,75 мас. %, у якому, згідно з літературними даними для такого типу систем, утворюється перколяційний кластер із нанотрубок (Klepko, 2015).

Дослідження мікроструктури отриманих матеріалів проводили за допомогою цифрового опличного мікроскопа SIGETA MB-303 (Україна), який обладнано цифровою відеокамерою SIGETA DCM-800 (Україна). Для проведення досліджень матеріали у розплавленому стані поміщали між двох плоскопаралельних скляних пластинок, відстань між якими становила 80 мкм.

Із мікроскопічних знімків оцінювали фрактальну розмірність d_{f} яка відображає морфологію кластерів із ВНТ у двовимірній проєкції (Lysenkov, 2015). Фрактальна розмірність d_{f} була розрахована шляхом підрахунку кількості комірок, потрібних для покриття периметру агрегатів N від розміру комірки L (Feder, 2013).

$$N \propto L^{d_f} \,. \tag{1}$$

Для оцінки фрактальної розмірності всі зображення переводили у бінарний (чорнобілий) формат. Для переходу до фрактальної розмірності тривимірних агрегатів можна скористатися наступною формулою (Feder, 2013):

$$d_f^3 = d_f^2 + 1, (2)$$

де d_f^3 – фрактальна розмірність тривимірних агрегатів; d_f^2 – фрактальна розмірність двовимірних агрегатів.

Для отримання інформації про фрактальність структури кластерів із ВНТ, отримані мікрознімки обробляли використовуючи програму ImageJ v1.41. В аналізі мікрофотографій виникала абсолютна похибка, яка варіювалася від 0,3 до 0,5.

Результати та їх обговорення

Для більшості багатошарових ВНТ, виготовлених методом CVD, характерина наявність на поверхні невеликої кількості функціональних груп. У ВНТ, які використовували у даній роботі, на поверхні були виявлені гідроксильні, лактонні та карбоксильні групи (Лисенков, 2017). Ці полярні групи в складі ВНТ можуть вступати в диполь-дипольні взаємодії з поліетиленгліколем, а також здатні до формування сильних водневих зв'язків з основним ланцюгом та з його кінцевими гідроксильними групами, що сприяє адсорбції полімеру на поверхні ВНТ (Лисенков, 2017).

Особливості структурної організації функціоналізованих ВНТ.

На рис. 2 приведені мікроскопічні зображення немодифікованих ВНТ та ПЕГмодифікованих ВНТ. Із фотографій видно, що немодифіковані ВНТ утворюють великі та щільні агрегати, тоді як модифіковані ВНТ мають більш рівномірний розподіл.

Подібний вплив на розподіл ВНТ чинить модифікація нанотрубок за допомогою ПЕГ-1000 (рис. 3). При дисперсії немодифікованих ВНТ, вони формують великі агрегати. Нековалентна функціоналізація ж дозволяє отримати більш рівномірний розподіл ВНТ.



Рис. 1. Схема модифікації ВНТ



Рис. 2. Мікрофотографії систем, які містять немодифіковані ВНТ (а) та модифіковані ВНТ з використанням ПЕГ-400 (б)



Рис. 3. Мікрофотографії систем, які містять немодифіковані ВНТ (а) та модифіковані ВНТ з використанням ПЕГ-1000 (б)





б)

Рис. 4. Мікрофотографії систем, які містять немодифіковані ВНТ (а) та модифіковані ВНТ з використанням ПЕГ-10000 (б)

Найбільший вплив на розподіл ВНТ чинить модифікація за допомогою ПЕГ-10000, який має дуже довгу молекулу, яка теоретично здатна обвивати нанотрубку. На рис. 4 приведено мікрофотографії, де простежується такий ефект. 3 рис. 4 видно, що у випадку модифікації ВНТ за допомогою ПЕГ-10000, їх розподіл є максимально рівномірним, про що свідчить повне затемнення області спостереження. Варто також відмітити, що подібна поведінку у розподілі ВНТ спостерігається на різних масштабних рівнях. Це свідчить про те, що дані системи проявляють масштабну інваріантність, а їх структуру можна описати у рамках фрактального підходу.

Фрактальна розмірність ПЕГ-функціоналзованих ВНТ

Мікрофотографії, приведені на рис. 2-4 аналізували у рамках фрактального підходу. Використовуючи формули (1) та (2) розраховували значення фрактальної розмірності. Значення фрактальної розмірності для досліджуваних систем із різним типом модифікації ВНТ приведені у табл. 1.

Отже, чим ближче значення фрактальної розмірності до 3, то більш рівномірний розподіл ВНТ у досліджуваних зразках. Із табл. 1 видно, що Фрактальна розмірність досліджуваних систем змінюється і залежить як від самого процесу модифікації, так і від типу модифікатора (молекулярної маси макромолекули ПЕГ). Для немодифікованих ВНТ, введених у полімерну матрицю значення d_f варіюється у межах 2,80-2,83. Теоретично, значення фрактальної розмірності не змінюється зі зміною масштабу. Однак, як видно із таблиці, значення фрактальної розмірності змінюються у межах похибки, яка виникла у процесі аналізу мікрофотографій. Усереднене значення d_r для систем із немодифікованими ВНТ становить 2,82, що свідчить про помірний ступінь агрегації. Для модифікованих ВНТ значення d_f значно більше, і у випадку модифікації за допомогою ПЕГ-400 досягає середнього значення 2,88, а у випадку ПЕГ-1000 – 2,89. Збільшення фрактальної розмірності є прямим свідченням зростання ступеня дисперсності наповнювача.

Для нанотрубок, функціоналізованих за допомогою ПЕГ-10000 d_f досягає значення 2,99, що є дуже близьким до 3 (заповнення всього об'єму матеріалу). З таблиці 1 також видно тенденцію впливу різних модифікаторів на розподіл ВНТ. Так з використанням ПЕГ-400, молекула якого є найменшою із використаних поліетерів, значення фрактальної розмірності найменше. Це свідчить про гірший розподіл ВНТ, порівняно із нанотрубками, стабілізованими з використанням ПЕГ-10000.

АналізрозподілуПЕГ-функціоналізованих ВНТ.

З рис. 2-4 видно, що агрегати з ВНТ формуються у вигляді двох «квазіфаз»: розпушеної з добре розвинутою (сірі області фази напо-

внювача) та щільною (темні області) поверхнями. За допомогою програми ІтаgeJ v 1.41., у результаті обробки зображень, можна отримати розподіл інтенсивності відтінків сірого кольору (номера відтінків від 0 до 255) для мікрофотографій досліджуваних систем. Із такого розподілу можна судити про щільність агрегатів ВНТ, які утворюються у системах на основі поліетерів (Яковлев, 2014).

На рис. 5 приведені результати обробки мікрофотографій для функціоналізованих та нефункціоналізованих ВНТ. Видно, що криві для нефункціоналізованих ВНТ мають унімодальний характер, спостерігаються інтенсивний максимум, який відповідає номеру відтінку для дуже близького до чорного кольору. Це вказує на формування щільних агрегатів. Для ВНТ, модифікованих за допомогою ПЕГ-400 та ПЕГ-1000 спостерігається менш інтенсивний максимум, зсунутий в область сірих кольорів, що вказує на присутність лише розпушених агрегатів з ВНТ, а щільні агрегати практично відсутні на що вказує єдиний максимум на кривій розподілу. Для системи, модифікованої за допомогою ПЕГ-10000 не вдалося провести обробку, адже через дуже високий розподіл не спостерігалося відтінків агрегатів.

Враховуючі отримані вище результати, можна запропонувати схему взаємодії вуглецевої нанотрубки з молекулою ПЕГ (рис. 6).

При функціоналізації ВНТ за допомогою ПЕГ-400 відбувається нековелентна взаємодія короткої молекули, яка торкається лише одним кінцем до нанотрубки. У випадку використання як модифікатора ПЕГ-1000, останній фізично з'єднується з нанотрубкою декількома мономерними ланками і, фактично розміщується на поверхні ВНТ. При використанні ПЕГ-10000, який має дуже довгу молекулу відбувається обвивання нанотрубки молекулою. Такий тип взаємодіє є більш надійним та приводить до більш стабільної дисперсії ВНТ та більш рівномірного їх розподілу.

Таблиця 1

Значення фрактальної розмірності для систем, які місять різні типи ВНТ

Модифікатор	Немодифіковані ВНТ	Модифіковані ВНТ
ПЕГ-400	$2,80 \pm 0,5$	$2,88 \pm 0,3$
ПЕГ-1000	$2,81 \pm 0,3$	$2,89 \pm 0,5$
ПЕГ-10000	$2,83 \pm 0,5$	$2,99 \pm 0,3$



a)

б)

Рис. 5. Розподіл агрегатів ВНТ за щільністю, залежно від типу модифікатора: а – ПЕГ-400, б – ПЕГ-1000



Рис. 6. Схематичне зображення нековалентної взаємодії вуглецевої нанотрубки з полімером

Висновки

На підставі проведених досліджень було вивчено вплив нековалентної модифікації та молекулярної маси макромолекули поліетиленгліколю на характер взаємодії і розподіл вуглецевих нанотрубок у полімерній матриці. Виявлено, що введення модифікатора значно змінює фрактальну розмірність ВНТ. Значення фрактальної розмірності для модифікованих ВНТ наближається до 3, що свідчить про зростання рівномірності розподілу ВНТ. При модифікації ВНТ їхні кластери стають більш розпушеними. Показано, що фазова структура агрегатів ВНТ змінюється залежно від типу модифікатора. Найвищу стабілізуючу дію чинить модифікатор на основі ПЕГ-10000.

При цьому ВНТ найбільш рівномірно розподіляються по об'єму матеріалу. Запропоновано схему взаємодії вуглецевої нанотрубки з молекулою ПЕГ. При функціоналізації за допомогою ПЕГ відбувається нековелентна взаємодія молекул з поверхнею ВНТ. Зроблено припущення, що коротка молекула ПЕГ-400 взаємодіє з ВНТ одним кінцем, більш довша молекула ПЕГ-1000 – декількома ланками, а найдовша молекула ПЕГ-10000 обвиває ВНТ, тому є найбільш ефективним стабілізатором. Модифікація ВНТ за допомогою ПЕГ є перспективним методом збільшення ступеня розподілу нанотрубок у полімерній матриці, що буде значно поліпшувати властивості таких нанокомпозитних матеріалів.

ЛІТЕРАТУРА:

1. Shoukat R., Khan M.I. Carbon nanotubes: a review on properties, synthesis methods and applications in micro and nanotechnology. *Microsyst. Technol.* 2021. Vol. 27. P. 4183–4192.

2. Iqbal A., Saeed A., Ul-Hamid A. A review featuring the fundamentals and advancements of polymer/CNT nanocomposite application in aerospace industry. *Polym. Bull.* 2021. Vol. 78. P. 539–557.

3. Baowan D., Ruengrot P., Hill J.M., Bacsa W. The effect of non-covalent functionalization on the interaction energy of carbon nanotubes. *J. Phys. Commun.* 2019. Vol. 3. P. 035018.

4. Vaisman L., Marom G., Wagner H.D. Dispersions of surface-modified carbon nanotubes in water-soluble and water-insoluble polymers. *Advanced Functional Materials*. 2006. Vol. 16. P. 357–363.

5. Nuriel S., Liu L., Barber A.H., Wagner H.D. Direct measurement of multiwall nanotube surface tension. *Chemical Physics Letters*. 2005. Vol. 404. P. 263–266.

6. Kubota S., Maruyama T., Nishikiori H., Tanaka N., Endo M., Fujii T. Spectroscopic evaluation of the length of poly(ethylene glycol) covalently attached to multiwalled carbon nanotubes. *Chemistry Letters*. 2009. Vol. 38. P. 890–891.

7. Wen Y., Wu H., Chen S., Lu Y., Shen H., Jia N. Direct electrochemistry and electrocatalysis of hemoglobin immobilized in poly(ethylene glycol) grafted multi-walled carbon nanotubes. *Electrochimica Acta*. 2009. Vol. 54. P. 7078–7084.

8. Klepko V.V., Lysenkov E.A. Features of percolation transition in systems on the basis of oligoglycols and carbon nanotubes. *Ukrainian Journal of Physics*. 2015. Vol. 60 (9). P. 944–949.

9. Lysenkov E.A., Klepko V.V., Yakovlev Yu.V. Influence of the Filler's Size on the Percolation Behavior in the Polyethylene Glycol/Carbon Nanotubes System. *Journal of Nano- and Electronic Physics*. 2015. Vol. 7 (1). P. 01031.

10. Feder J. Fractals. Springer: Science & Business Media. 2013. 284 p.

11. Лисенков Е.А., Стрюцький О.В., Бохван С.І., Клепко В.В. Вплив кінцевих гідроксильних груп на перколяційну поведінку систем на основі олігоетиленгліколю та вуглецевих нанотрубок. *Полімерний журнал.* 2017. Т. 39, № 2. С. 75–82.

12. Яковлев Ю.В., Клепко В.В., Лисенков Е.А. Особливості перколяційної поведінки в системі ПЕГ400/КНТ: вплив режимів змішування. Полімерний журнал. 2014. Т. 36, № 1. С. 53–56.

REFERENCES:

1. Shoukat, R., Khan, M.I. (2021). Carbon nanotubes: a review on properties, synthesis methods and applications in micro and nanotechnology. *Microsyst. Technol.* 27, 4183–4192.

2. Iqbal, A., Saeed, A., Ul-Hamid, A. (2021). A review featuring the fundamentals and advancements of polymer/CNT nanocomposite application in aerospace industry. *Polym. Bull.* 78, 539–557.

3. Baowan, D., Ruengrot, P., Hill, J.M., Bacsa, W. (2019). The effect of non-covalent functionalization on the interaction energy of carbon nanotubes. *J. Phys. Commun.* 3, 035018.

4. Vaisman, L., Marom, G., Wagner, H.D. (2006). Dispersions of surface-modified carbon nanotubes in water-soluble and water-insoluble polymers. *Advanced Functional Materials*. 16, 357–363.

5. Nuriel, S., Liu, L., Barber, A.H., Wagner, H.D. (2005). Direct measurement of multiwall nanotube surface tension. *Chemical Physics Letters*. 404, 263–266.

6. Kubota, S., Maruyama, T., Nishikiori, H., Tanaka, N., Endo, M., Fujii, T. (2009). Spectroscopic evaluation of the length of poly(ethylene glycol) covalently attached to multiwalled carbon nanotubes. *Chemistry Letters*. 38, 890–891.

7. Wen, Y., Wu, H., Chen, S., Lu, Y., Shen, H., Jia, N. (2009). Direct electrochemistry and electrocatalysis of hemoglobin immobilized in poly(ethylene glycol) grafted multi-walled carbon nanotubes. *Electrochimica Acta*. 54, 7078–7084.

8. Klepko, V.V., Lysenkov, E.A. (2015). Features of percolation transition in systems on the basis of oligoglycols and carbon nanotubes. *Ukrainian Journal of Physics*. 60 (9), 944–949.

9. Lysenkov, E.A., Klepko, V.V., Yakovlev, Yu.V. (2015). Influence of the Filler's Size on the Percolation Behavior in the Polyethylene Glycol/Carbon Nanotubes System. *Journal of Nano- and Electronic Physics*. 7(1), 01031.

10. Feder, J. (2013). Fractals. (Springer: Science & Business Media). 284 p.

11. Lysenkov, E.A., Striutsky, O.V., Bohvan, S.I., Klepko, V.V. (2017). Vplyv kintsevykh hidroksyl'nykh hrup na perkolyatsiynu povedinku system na osnovi olihoetylenhlikolyu ta vuhletsevykh nanotrubok. [Effect of end hydroxyl groups on the percolation behavior of systems based on oligoethylene glycol and carbon nanotubes]. *Polimernyy zhurnal – Polymer Journal*. 39 (2), 75–82 [in Ukrainian].

12. Yakovlev, Yu.V., Klepko, V.V., Lysenkov, E.A. (2014). Osoblyvosti perkolyatsiynoyi povedinky v systemi PEH400/ KNT: vplyv rezhymiv zmishuvannya [Peculiarities of percolation behavior in the PEG400/CNT system: the influence of mixing modes]. *Polimernyy zhurnal – Polymer Journal*. 36 (1) 53–56 [in Ukrainian].