

HÓA HỌC & ỨNG DỤNG

JOURNAL OF CHEMISTRY AND APPLICATION / TẠP CHÍ CỦA HỘI HÓA HỌC VIỆT NAM - ISSN1859-4069

Số 1(56)/2021



HÓA HỌC VÀ ỨNG DỤNG

JOURNAL OF CHEMISTRY AND APPLICATION

ISSN

1859-4069

TẠP CHÍ CỦA HỘI HÓA HỌC VIỆT NAM

HỘI ĐỒNG BIÊN TẬP

NGUYỄN CƯỜNG, NGUYỄN ĐỨC CHUY,
TRẦN THÀNH HUẾ, LÊ QUỐC KHÁNH,
CHÂU VĂN MINH, ĐẶNG VŨ MINH,
TRẦN TRUNG NINH, NGUYỄN ĐĂNG
QUANG, HỒ VIẾT QUÝ, CHU PHẠM NGỌC
SON, TRẦN QUỐC SON, HỒ SĨ THOẢNG,
NGÔ THỊ THUẬN, QUÁCH ĐĂNG TRIỀU,
NGUYỄN XUÂN TRƯỜNG

Tổng Biên tập:

PGS, TS, NGUYỄN ĐĂNG QUANG

Phó Tổng Biên tập - Thư ký tòa soạn:

NGUYỄN HỮU ĐỨC

Trình bày:

TRẦN THỊ HOA

Tòa soạn:

164 đường Tựu Liệt

xã Tam Hiệp, huyện Thanh Trì, Hà Nội

ĐT: (024) 3971 9078 - 0983 602 553

Email: tapchihoahocvaungdung@gmail.com

Tài khoản: 002704060000831

Ngân hàng Quốc tế VIB, số 5,

Lê Thánh Tông, Hà Nội.

Giấy phép xuất bản:

Số 319/GP-BTTTT

Bộ Thông tin và Truyền thông
cấp ngày 14/06/2016

In tại Công ty TNHH in ấn Đa Sắc

13 Ngọc Mạch - Xuân Phương
quận Nam Từ Liêm - Hà Nội

* Tạp chí xuất bản hàng quý.

Giá: 50.000 đồng

Trong số này:

01(56)/2021

- ❖ Nguyễn Thị Nghĩa, Diệp thị Lan Phương,
Võ Thị Thanh Tuyền, Phạm Nữ Ngọc Thịnh 1
- ❖ Bùi Thị Lệ Thủy, Nguyễn Thanh Bảo 6
- ❖ Phạm Thị Nam Bình, Nguyễn Thị Phương Hòa,
Nguyễn Hoàng Ngân, Vũ Thị Thu Hà 11
- ❖ Nguyễn Đức Vương 16
- ❖ Trần Dương, Lâm Thị Tố Uyên, Phạm Thị Bé 21
- ❖ Nguyễn Thành Trung, Vũ Thị Mai, Phạm Bá Việt Anh 24
- ❖ Nguyễn Thị Hoa, Trần Thị Thúy Thành, Nghiêm Hải Vũ,
Chu Tam Hưng, Đỗ Minh Đại, Nguyễn Xuân Tứ 30
- ❖ Trần Ngọc Tuyền, Nguyễn Đức Vũ Quyên,
Tô Thị Xuân Nhã, Võ Châu Ngọc Anh 36
- ❖ Trịnh Hồng Hạnh, Ngô Xuân Lương,
Nguyễn Thành Dương 39
- ❖ Bùi Thị Lệ Thủy, Đào Đình Thuận 46
- ❖ Tạ Ngọc Dũng, Nguyễn Ngọc Hùng 51
- ❖ Bùi Duy Hùng, Vũ Thị Thu Hà,
Nguyễn Thị Bầy, Bạch Thị Tâm 55
- ❖ Tạ Ngọc Dũng 60
- ❖ Phạm Thị Mai Hương, Phan Thị Quyên,
Nguyễn Thị Thoa, Đào Thu Hà,
Nguyễn Mạnh Hà, Vũ Thúy Nga, Trần Hồng Côn 65
- ❖ Lê Thị Đặng Chi, Nguyễn Quý Bảo,
Lê Thị Phương Nhi, Võ Thị Huyền Trang,
Nguyễn Thị Lâm Tiến, Nguyễn Thị Kim Châu 71
- ❖ Nguyễn Thị Mỹ Linh 77

TỔNG HỢP VÀ ĐẶC TRƯNG TÍNH DẪN NHIỆT VÀ TÍNH CHẤT QUANG CỦA MỘT SỐ VẬT LIỆU NANOCOMPOSITE

BÙI THỊ LỆ THUY¹, NGUYỄN THANH BẢO²

¹Trường Đại học Mở Địa chất

²Viện Vật lý, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam

SUMMARY

Two graphene oxide based nanocomposite materials were prepared and characterized by X-ray and infrared spectra, SEM, and TEM analysis. Graphene oxide (GO) and reduced graphene oxide (rGO) based materials were dispersed into brine water to form nanofluids. Transmittance spectra and thermal conductivity of nanofluids of the three-component composites were systematically investigated to evaluate their thermal sorption capacity. It can be seen from the transmittance spectra that nanofluids capture almost incident light. The thermal conductivity results show that hybrid nanofluid showed high thermal conductivity than single nanofluids. Results showed that all prepared materials (either single form such as GO, rGO, Al₂O₃ or composite form such as Al/GO, Fe₃O₄/GO, Al₂O₃-Fe₃O₄/GO, Al₂O₃/rGO, Fe₃O₄/rGO, Al₂O₃-Fe₃O₄/rGO) raised thermal conductivity of brine water. The combination of two or three components led to higher thermal conductivity ability.

Key words: Graphene oxide, reduced graphene oxide, optical property, thermal conductivity property.

I. ĐẶT VẤN ĐỀ

Để đối phó tình hình cạn kiệt nguồn dầu mỏ và khí trong tương lai gần, các nhà khoa học và công nghệ trên thế giới đang nghiên cứu và sử dụng các nguồn năng lượng thay thế, ưu tiên hàng đầu là các nguồn năng lượng tái sinh và thân thiện với môi trường. Trong số các nguồn năng lượng thay thế đang sử dụng hiện nay thì năng lượng mặt trời đang là xu thế phát triển tất yếu, do các lợi ích như: là nguồn năng lượng vô tận, sạch: không gây ô nhiễm trong quá trình sản xuất và sử dụng, không đóng góp vào vấn đề nóng lên toàn cầu... Hiện năng lượng mặt trời đã được sử dụng trong nhiều lĩnh vực như: làm nóng nước, nấu ăn, sản xuất điện mặt trời, thực hiện các phản ứng quang hóa, xe chạy bằng năng lượng mặt trời, xử lý nước (chưng cất nước mặn thành nước ngọt, khử trùng nước, xử lý nước thải) [1]... Việt Nam là nước có khí hậu nhiệt đới nắng nhiều, đặc biệt là các tỉnh phía Nam nắng nóng quanh

năm nên rất thuận lợi cho việc sử dụng nguồn năng lượng này. Bên cạnh đó do ảnh hưởng của biến đổi khí hậu, tình hình xâm nhập mặn đang gia tăng tại vùng đồng bằng sông Cửu Long. Hấp thu nhiệt mặt trời cho quá trình các quá trình chưng cất nước mặn thành nước ngọt giải quyết đồng thời bài toán tiết kiệm năng lượng và thiếu nước ngọt nên được đặc biệt quan tâm [2-4]. Việc nghiên cứu chế tạo và phân tán vật liệu nano vào nước tạo chất lỏng nano để tăng hiệu quả hấp thu nhiệt, khắc phục tình trạng hấp thu nhiệt kém của nước đã được công bố. Trong nghiên cứu này khả năng truyền qua và hấp thu ánh sáng cũng như độ truyền nhiệt của một số chất lỏng nano được đánh giá, từ đó đưa ra kết luận về việc sử dụng chất lỏng nano để tăng hiệu quả hấp thu nhiệt trong quá trình chưng cất nước mặn thành nước ngọt.

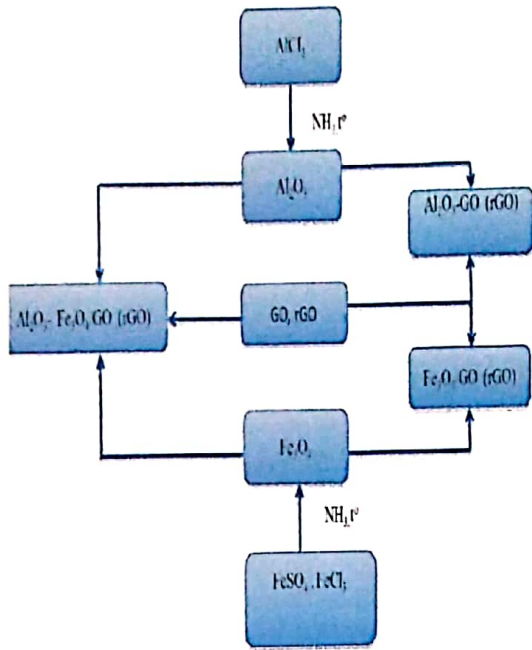
II. THỰC NGHIỆM

1. Hóa chất

Graphite loại tinh khiết (99%) mua của Công ty Sigma-Aldrich, H₂SO₄ (98%), KMnO₄ (loại tinh thể, 99%), H₂O₂ (30%), FeCl₃.6H₂O (99%), HCl (36 - 38%), NaNO₃ (99%), FeSO₄.7H₂O (99%), AlCl₃.6H₂O, ethanol (99,7%), acid ascorbic (99%) và NH₃ (25%) được cung cấp bởi nhà máy hóa chất Guangdong Guanghua, Trung Quốc.

2. Quy trình tổng hợp

Quá trình tổng hợp tham khảo theo các tài liệu đã công bố [5, 6]. Sơ đồ tổng quát được đưa ra ở hình 1.

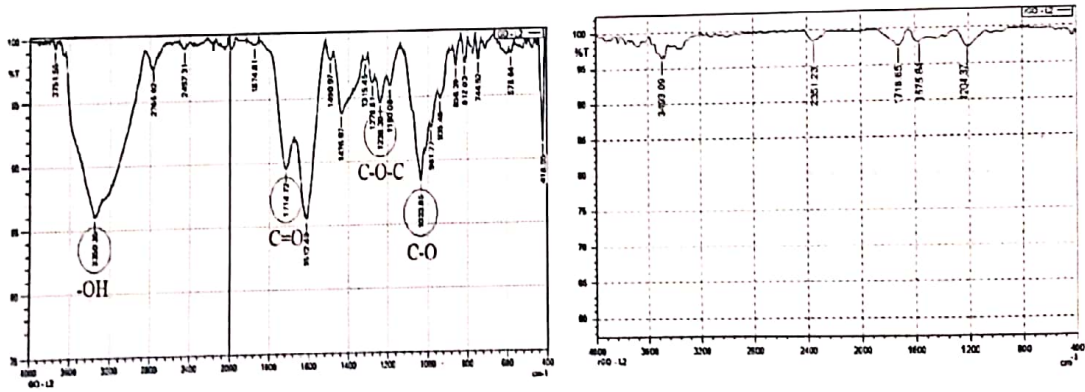


Hình 1. Qui trình tổng hợp các vật liệu nano

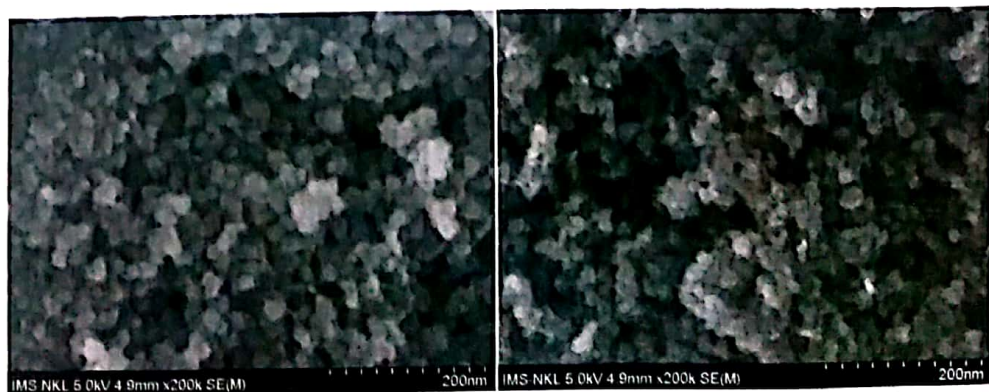
3. Phương pháp nghiên cứu đặc trưng của vật liệu

Phương pháp phổ hồng ngoại được thực hiện trên máy FTIR 4600 JASCO tại Phòng Thí nghiệm bộ môn lọc, Hóa dầu, Trường Đại học Mở - Địa chất. Cấu trúc tinh thể của vật liệu được xác định bằng phương pháp nhiễu xạ tia X bằng máy D8 Advance Bruker tại Bộ môn Hóa vô cơ, Khoa Hóa học, Trường Đại học Khoa học tự nhiên Hà Nội. Hình thái của vật liệu phương pháp kính hiển vi điện tử (SEM) Joel 6490 JED 2300 tại Viện Hóa học vật liệu, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam và kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM) Jeol-1010 tại Viện Vệ sinh dịch tễ. Độ dẫn nhiệt của chất lỏng nano được đo trên máy Flucon Lambda (Flucon Fluid Control GmbH) tại Trường Đại học Mở - Địa chất.

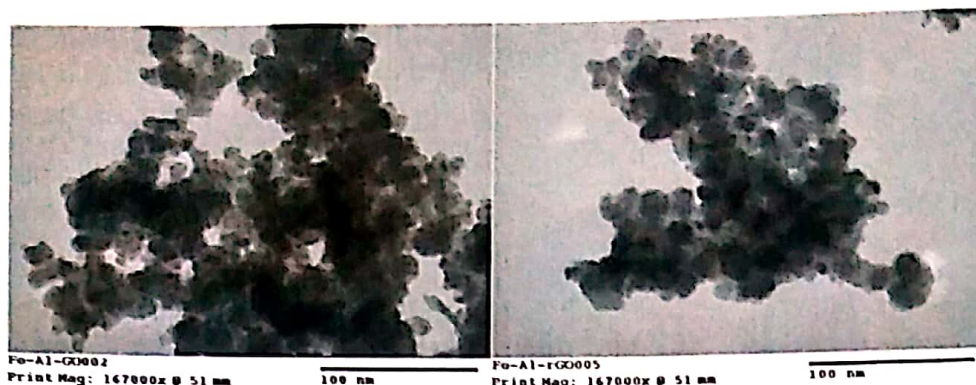
III. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN



Hình 2. FT-IR của $Al_2O_3 - Fe_3O_4/GO$ và $Al_2O_3 - Fe_3O_4/rGO$



Hình 3. Hình ảnh SEM của (a) $Fe_3O_4 - Al_2O_3/GO$ và (b) $Fe_3O_4 - Al_2O_3/rGO$



Hình 4. Hình ảnh TEM của (a) $\text{Fe}_3\text{O}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3/\text{GO}$ và (b) $\text{Fe}_3\text{O}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3/\text{rGO}$

1. Kết quả đặc trưng sản phẩm

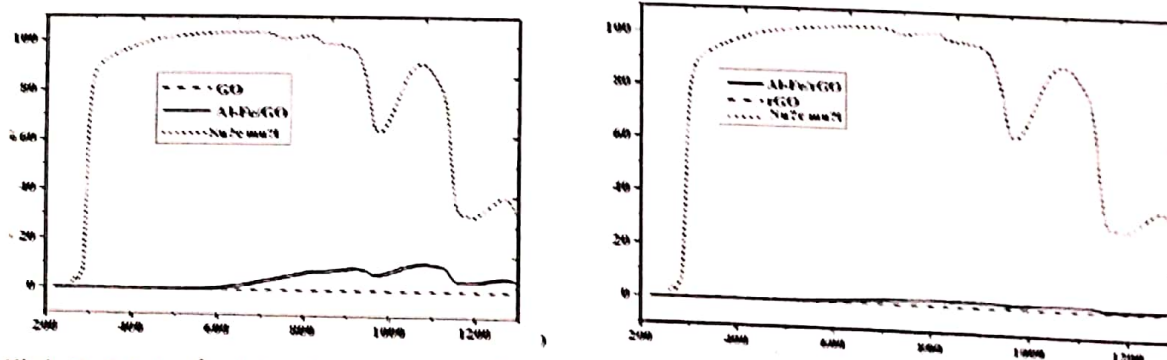
Trong phổ FT-IR của GO, các đỉnh ở 33.580cm^{-1} và 1.400cm^{-1} đặc trưng cho các dao động hóa trị và biến dạng của nhóm O-H [55]. Các dải ở số sóng 17.142cm^{-1} , 1.612cm^{-1} , 1.238cm^{-1} và 1.033cm^{-1} thể hiện sự hấp thụ điển hình của các nhóm C = O, C = C, C-OH và C-O (alkoxy). Những kết quả này cũng phù hợp với công bố khác [7]. Kết quả này chứng tỏ sự có mặt của các nhóm chức chứa oxy trong GO. Kết quả phân tích phổ cho thấy, rGO chứa một lượng nhỏ các nhóm chức oxy hóa thể hiện ở dải chân rộng từ 3.300cm^{-1} đến 3.600cm^{-1} (là dao động kéo dài của nhóm O-H) ở và một dải cường độ yếu ở 1.575cm^{-1} đến 1.716cm^{-1} (dao động giãn dài của các nhóm C=C và -C=O), và một đỉnh cường độ yếu ở 1.204cm^{-1} (dao động giãn dài của nhóm -CO-). Điều này có nghĩa là hầu hết các nhóm chức chứa oxy ở GO đã bị khử bởi acid ascorbic [8].

Từ ảnh SEM và TEM của vật liệu $\text{Fe}_3\text{O}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3/\text{GO}$ và $\text{Fe}_3\text{O}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3/\text{rGO}$ (hình 3 và 4) cho thấy các hạt Al_2O_3 và Fe_3O_4 có dạng hình cầu với đường kính 8-10nm.

2. Tính chất quang học của vật liệu

Sự truyền ánh sáng qua chất lỏng nano phụ thuộc vào độ sẫm màu của các hạt nano trong chất lỏng. Trong dãy vật liệu chứa GO, ở cùng nồng độ, chất lỏng nano chứa GO cho độ truyền qua thấp nhất và có thể hấp thụ được gần 100% ánh sáng tới. rGO có độ sẫm màu cao hơn GO và cũng hấp thụ gần như 100% ánh sáng, vật liệu làm từ rGO có độ truyền qua cao hơn vật liệu dựa trên GO tương ứng (hình 5).

Kết quả tương tự như vậy cũng thu được từ các thí nghiệm đánh giá khả năng hấp thụ nhiệt của vật liệu tổ hợp trên cơ sở rGO, các chất lỏng nano chứa $\text{Fe}_3\text{O}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3/\text{rGO}$ có độ hấp thụ cao hơn và độ truyền qua thấp hơn $\text{Fe}_3\text{O}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3/\text{GO}$ (hình 5).



Hình 5. Sự truyền ánh sáng qua các chất lỏng nano (a) $\text{Fe}_3\text{O}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3/\text{GO}$ và (b) $\text{Fe}_3\text{O}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3/\text{rGO}$ ở nồng độ $0,15\text{mg ml}^{-1}$ trong dung dịch NaCl 3,5%

3. Tính dẫn nhiệt của vật liệu

Bên cạnh các tính chất quang học nêu trên, tính dẫn nhiệt của vật liệu cũng là một tính chất quan trọng vì năng lượng của bức xạ mặt trời sau khi được hấp thụ bởi dung dịch chứa vật liệu cần phải được truyền cho nước để tăng nhiệt độ của nước và tăng độ bay hơi của nước muối. Khi năng lượng của bức xạ mặt trời được vật liệu hấp thụ và truyền sang môi trường (nước) thì vật liệu lại tiếp tục hấp thụ nhiệt mặt trời.

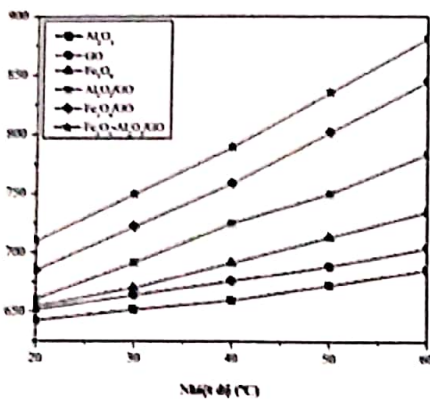
Sự thay đổi về khả năng tăng độ dẫn nhiệt của các chất lỏng nano theo nhiệt độ được trình bày trong hình 6. Có thể thấy rằng độ dẫn nhiệt của chất lỏng nano phụ thuộc mạnh cấu trúc của vật liệu được sử dụng để điều chế chất lỏng nano và nhiệt độ của chất lỏng nano [9, 10].

Ảnh hưởng của nhiệt độ đến sự tăng độ dẫn nhiệt của các chất lỏng nano khác nhau được đo trong khoảng 30°C - 60°C. Có thể thấy rằng độ dẫn nhiệt của tất cả các chất lỏng nano phân tán các vật liệu khác nhau tăng tuyến tính khi nhiệt độ tăng. Kết quả tương tự cũng đã được báo cáo khi sử dụng các chất lỏng nano như Al_2O_3 , CuO ... [11]. Trong khoảng nhiệt độ khảo sát độ dẫn nhiệt của tất cả các chất lỏng nano đạt cao nhất ở 60°C. Độ dẫn nhiệt tăng từ 16% lên 44% và từ 18% lên 49% đối với chất lỏng nano $Al_2O_3 - Fe_3O_4-GO$ và $Al_2O_3 - Fe_3O_4-rGO$ ở nồng độ $0,15mg\ ml^{-1}$. Điều này có thể giải thích là ở nhiệt độ cao, chuyển động Brownian và va chạm giữa các hạt nano trong chất lỏng tăng lên, dẫn đến sự cải thiện của độ dẫn nhiệt [12].

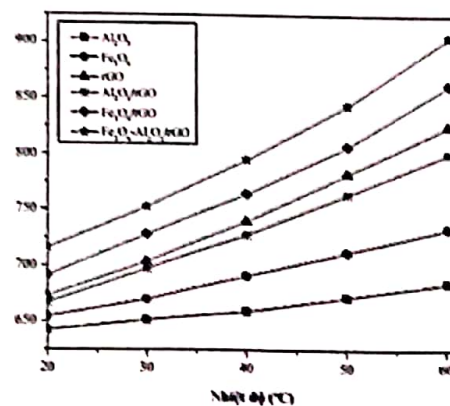
Kết quả thí nghiệm cho thấy GO có khả năng tăng cường độ dẫn nhiệt thấp hơn rGO. Điều này có thể là do một số nguyên tử carbon lai hóa sp^2 của graphite đã được chuyển hóa thành những nguyên tử lai hóa sp^3 trong quá trình oxy hóa graphite để tạo thành các nhóm chức oxy trong GO (làm giảm độ dẫn nhiệt). Hầu hết

các nhóm chức oxy này ở GO bị khử trong quá trình khử GO thành rGO và các nguyên tử carbon lai hóa sp^3 được chuyển đổi trở lại thành sp^2 . Điều đó khiến rGO hiện là một trong những vật liệu dẫn điện tốt nhất [13]. Tương tự, các chất lỏng nano chứa các vật liệu chứa rGO có khả năng tăng cường độ dẫn nhiệt cao hơn so với các chất lỏng nano của vật liệu chứa GO.

Kết quả thử nghiệm cho thấy các chất lỏng nanocomposite có khả năng tăng cường độ dẫn nhiệt tốt hơn các chất lỏng nano đơn lẻ. Để so sánh, độ dẫn nhiệt của bốn loại chất lỏng nano được điều chế từ bốn vật liệu đơn lẻ Al_2O_3 , Fe_3O_4 , GO, và rGO đã được đo. Độ dẫn nhiệt của các chất lỏng nano đơn thuần theo thứ tự $Al_2O_3 < GO < Fe_3O_4 < rGO$. Vật liệu composite hai thành phần Al_2O_3/GO , Fe_3O_4/GO , Al_2O_3/rGO , Fe_3O_4/rGO làm tăng khả năng dẫn nhiệt của nước muối nhiều hơn so với các vật liệu đơn lẻ. Đặc biệt, vật liệu composite ba thành phần $Al_2O_3 - Fe_3O_4/GO$ và $Al_2O_3 - Fe_3O_4/rGO$ có tính dẫn nhiệt cao nhất. Kết quả tương tự cũng được quan sát đối với các chất lỏng nanocomposite $Al_2O_3 - MWCNT$ [14], chất lỏng nano chứa các hạt nano bạc mang trên silica [15], và chứa $Al_2O_3 - CuO$ [11]. Tính chất truyền nhiệt của các hạt nano bạc phủ lên hỗn hợp cacbon nanotube đa mao quản - graphene đã được nghiên cứu. Độ dẫn nhiệt tăng tới $\approx 8\%$ khi nồng độ thể tích hạt nano là $0,04\%$ ở $25^\circ C$. Sự tăng độ dẫn nhiệt của các chất lỏng nanocomposite trong nghiên cứu này là do graphene có diện tích bề mặt cao và độ dẫn nhiệt cao, hơn nữa Al_2O_3 vừa có độ dẫn nhiệt cao vừa hoạt động như chất kết nối giữa các tấm graphene, tránh sự xếp chồng các tấm GO và rGO, đồng thời tăng độ ổn định của GO và rGO trong nước muối. Ngoài ra, việc bổ sung Fe_3O_4 có độ dẫn nhiệt cao cũng vừa làm tăng độ dẫn nhiệt tổng cộng của các chất lỏng nano và vừa tạo ra từ tính cho vật liệu.



(a)



(b)

Hình 6. Sự tăng độ dẫn nhiệt của các chất lỏng nano chứa: (a) các vật liệu trên cơ sở GO (b) vật liệu trên cơ sở rGO với nồng độ $0,15mg\ ml^{-1}$ trong dung dịch NaCl 3,5%

KẾT LUẬN

Đã tổng hợp thành công các dây vật liệu trên cơ sở GO và rGO từ graphite và đặc trưng sản phẩm bằng phổ X-ray, SEM và TEM. Kết quả của phổ truyền qua cho thấy độ sẫm màu của vật liệu kiểm soát khả năng hấp thụ ánh sáng tới của chất lỏng nano. Các chất lỏng nano chứa vật liệu rGO hoặc GO có thể thu nhận 100% ánh sáng tới. Độ dẫn nhiệt của chất lỏng nano phụ thuộc vào cấu trúc và thành phần của vật liệu tổng hợp và tăng lên khi tăng nồng độ của hạt nano và nhiệt độ của chất lỏng. Chất lỏng nano lai cho độ dẫn nhiệt cao hơn chất lỏng nano đơn, trong đó vật liệu 3 thành phần cho kết quả tốt nhất.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. A. H. M. Saadat, M. S. Islam, F. Parvin, A. Sultana, *Desalination Technologies for Developing Countries: A Review*, J. Sci. Res. 10 (1) (2018) 77-97.
2. S. Al-Kharabsheh, S. *Theoretical and experimental analysis of water desalination system using low grade solar heat*. PhD dissertation - University of Iorlida, USA,(2003).
3. Lei Ni, Jianqiang Meng n, Xiaogang Li, Yufeng Zhang, *Surface coating on the polyamide TFC RO membrane for chlorine resistance and antifouling performance improvement*, Journal of Membrane Science 451, 205-215 (2014)
4. Syam Sundar, L., Hashim Farooky, Md., Naga Sarada, S., & Singh, M.K., (2013). *Experimental thermal conductivity of ethylene glycol and water mixture based low volume concentration of Al_2O_3 and CuO nanofluids*, International Communications in Heat and Mass Transfer, 41, 41-46.
5. Elango, T., Kannan, A., & Kalidasa Murugavel, K. (2015) *Performance study on single basin single slope solar still with different water nanofluids*, Desalination, 360, 45-51, 16.
6. Aoran Gao, *Desalination of High-salinity Water by Membranes*, Master thesis, University of Waterloo, Canada, 2016.
7. Bùi Thị Lệ Thủy*, Đào Đình Thuần, Phạm Đình Thảo, *Sử dụng vật liệu tổ hợp trên cơ sở graphene oxide để hấp thụ nhiệt*, Tạp chí Khoa học và Công nghệ, đã chấp nhận đăng, 2020.
8. Bùi Thị Lệ Thủy. *Nghiên cứu tổng hợp và sử dụng vật liệu nanocomposite trên cơ sở graphene oxide khử để nâng cao hiệu quả hấp thụ nhiệt mặt trời trong quá trình chưng cất nước mặn thành nước ngọt*, Tạp chí Xúc tác và hấp phụ, 9 (1) (2020) 39-46.
9. Wang, X., Ou G., Wang, N., & Wu, H. (2018). *Graphene-based Recyclable Photo-Absorbers for High-Efficiency Seawater Desalination*, ÁC Appl. Mater. Interfaces 8,14, 9194-9199.
10. Hojjat, M., Etemad, S.G., Bagheri, R., & Thibault, J., (2010). *The thermal conductivity of non-Newtonian nanofluids*, International Journal of Heat and Mass Transfer, 54, 1017-1023.
11. Senthilraja, S., Vijayakumar, K., & Gangadevi, R., (2015). *A comparative study on thermal conductivity of Al_2O_3 /water, CuO/water and Al_2O_3 -CuO/water nanofluids*, Digest Journal of Nanomaterials and Biostructures, 10(4), 1449 - 1458.
12. Subelia, S. Botha, P.N., & Bladergroen B.J., (2011). *Physicochemical Properties of Oil-Based Nanofluids Containing Hybrid Structures of Silver Nanoparticles Supported on Silica*, Ind. Eng. Chem. Res, 50(6), 3071-3077.
13. Syam Sundar, L., Hashim Farooky, Md., Naga Sarada, S., & Singh, M.K., (2013). *Experimental thermal conductivity of ethylene glycol and water mixture based low volume concentration of Al_2O_3 and CuO nanofluids*, International Communications in Heat and Mass Transfer, 41, 41-46.
14. Nine, M. J., Batmunkh, M., Kim, J., Chung, H., & Jeong, H.M., (2012). *Investigation of Al_2O_3 -MWCNTs Hybrid Dispersion in Water and Their Thermal Characterization*, Journal of Nanoscience and Nanotechnology, volume12, number 6, pages 4553-4559, 2012.
15. Hojjat, M., Etemad, S.G., Bagheri, R., & Thibault, J., (2010). *The thermal conductivity of non-Newtonian nanofluids*, International Journal of Heat and Mass Transfer, 54, 1017-1023. ♣

Người phản biện: TS ĐÀO ĐÌNH THUẦN