



## Chế tạo và khảo sát tính chất dẫn nhiệt của chất lỏng nano nền coolanol 20 chứa ống nano cacbon

### Preparation and thermal conductivity of nanofluid-based coolanol 20 containing carbon nanotubes

Tô Anh Đức<sup>2,3</sup>, Phan Ngọc Minh<sup>1,2</sup>, Bùi Hùng Thắng<sup>1,2\*</sup>

<sup>1</sup>Viện Khoa học vật liệu, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, 18 Hoàng Quốc Việt, Cầu Giấy, Hà Nội

<sup>2</sup>Học viện Khoa học và Công nghệ, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, 18 Hoàng Quốc Việt, Cầu Giấy, Hà Nội

<sup>3</sup>Trung tâm Vũ trụ Việt Nam, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, 18 Hoàng Quốc Việt, Cầu Giấy, Hà Nội

\*Email: [thangbh@ims.vast.vn](mailto:thangbh@ims.vast.vn)

#### ARTICLE INFO

Received: 10/01/2021

Accepted: 15/5/2021

Published: 15/10/2021

#### Keywords:

Coolanol 20, carbon nanotubes, thermal conductivity, nanofluids, heat transfer

#### ABSTRACT

In this paper, we present the obtained results in the fabrication and thermal properties of nanofluid-based Coolant 20 containing carbon nanotubes (CNTs). To improve dispersion efficiency, CNTs materials were functionalized with an -OH functional group by chemical methods. After the functionalization process, the CNTs-OH materials were dispersed into Coolant 20 based fluid by surfactant and the ultrasonic vibration method. The experimental results of size distribution spectrum and Zeta potential show that carbon nanotubes were dispersed uniformly and stably in the based fluid. The presence of CNTs has improved thermal conductivity of the nanofluid, with a concentration of 1,0 vol.% CNTs showing an increase in thermal conductivity of 65%. Nanofluid-based Coolant 20 containing carbon nanotubes helped to improve heat exchange efficiency for components and devices operating under special conditions, among other applications.

#### Giới thiệu chung

Quản lý nhiệt đóng vai trò quan trọng trong việc nâng cao sự hoạt động ổn định, độ bền và tuổi thọ cho linh kiện và thiết bị điện tử. Hiện nay có nhiều nhiều công nghệ và kỹ thuật trong tản nhiệt, trong đó có phương pháp tản nhiệt bằng chất lỏng là phương pháp được áp dụng cho các linh kiện và thiết bị điện tử công suất lớn [1]. Công nghệ tản nhiệt sử dụng chất lỏng đang nhận được sự quan tâm rất lớn của các nhà nghiên

cứu, phát triển và được ứng dụng trong nhiều sản phẩm thiết bị ... do có hiệu suất trao đổi nhiệt nhanh và giá thành hợp lý.

Tuy nhiên hiện nay các chất lỏng tản nhiệt thông thường như nước, ethylene glycol (EG), propylen glycol (PG) và dầu thường có độ dẫn nhiệt kém, do vậy có giới hạn nhất định trong việc nâng cao hiệu quả tản nhiệt. Gần đây những nhà nghiên cứu đã đưa vào chất lỏng một số vật liệu rắn có kích thước nano để nâng cao độ dẫn nhiệt của các chất lỏng truyền thống qua

đó cải thiện và tăng cường hiệu suất truyền nhiệt của chất lỏng [2]. Từ đây một hệ chất lỏng mới được ra đời và phát triển gọi là chất lỏng nano (nano fluid – NF), định nghĩa của chất lỏng nano là chất lỏng có chứa các hạt có kích cỡ nanomet bao gồm các hạt nano kim loại (Cu, Au, Ag, Ni); oxit kim loại ( $Al_2O_3$ , CuO,  $Fe_2O_3$ ,  $SiO_2$ ,  $TiO_2$ ); hay ceramic (SiC, AlN, SiN) [3]. Chất lỏng nano có độ dẫn nhiệt và hiệu suất truyền nhiệt lớn hơn rất nhiều so với chất lỏng truyền thống được sử dụng trước đó.

Gần đây, ống nano cacbon được biết đến là một trong số những loại vật liệu có độ dẫn nhiệt cao nhất được biết đến ( $k_{CNTs} = 2.000W/m.K$ ), điều này đã mở ra hướng nghiên cứu mới về ứng dụng vật liệu này trong chất lỏng tản nhiệt [4]. Rất nhiều nghiên cứu đã được phát triển, nhưng phần lớn tập trung vào việc ứng dụng CNTs trong các chất lỏng nền là nước cất, EG, PG hoặc hỗn hợp của chúng [5-8]. Những chất lỏng này có dải nhiệt độ hoạt động khá hẹp, trong khi những thiết bị điện tử hoạt động trong môi trường khắc nghiệt như không gian đòi hỏi phải có dải nhiệt độ hoạt động rộng hơn [9]. Một trong những loại chất lỏng được sử dụng để quản lý nhiệt cho các thiết bị hoạt động trong môi trường khắc nghiệt là Coolanol 20 [10] với dải nhiệt độ hoạt động từ  $-101^{\circ}C$  đến  $149^{\circ}C$ . Tuy nhiên những nghiên cứu về chất lỏng nền Coolanol 20 chứa thành phần ống nano cacbon đến nay vẫn chưa được thực hiện. Vì vậy trong báo cáo này chúng tôi trình bày những kết quả đạt được trong nghiên cứu chế tạo và khảo sát độ dẫn nhiệt của chất lỏng nano nền Coolanol 20 chứa thành phần ống nano cacbon.

## Thực nghiệm và phương pháp nghiên cứu

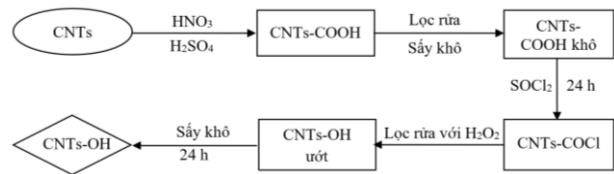
### Vật liệu

Vật liệu CNTs có đường kính trong khoảng từ 20 - 80 nm, độ sạch 98% được cung cấp chế tạo bằng phương pháp CVD nhiệt tại Viện Khoa học vật liệu. Chất lỏng nền Coolanol 20 được cung cấp bởi hãng ExxonMobil. Các hóa chất sử dụng trong biến tính CNTs và phân tán bao gồm  $H_2SO_4$ ,  $HNO_3$ ,  $SOCl_2$ ,  $H_2O_2$  và Tween-80 được cung cấp bởi hãng Sigma-Aldrich.

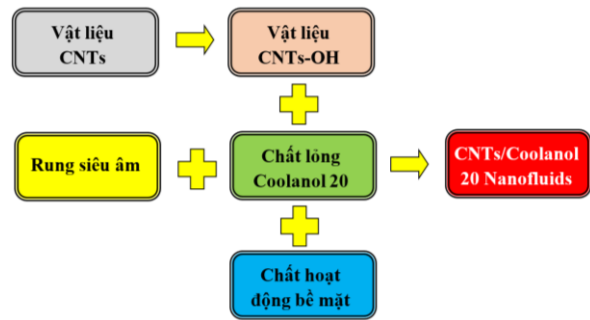
### Chế tạo chất lỏng nano

Để tăng cường khả năng phân tán của CNTs vào chất lỏng nền thì bề mặt của vật liệu CNTs cần được biến tính để gắn với các nhóm chức hóa học. Quy trình biến

tính CNTs với nhóm chức -OH được trình bày như trên hình 1. Trước tiên, CNTs được chức năng hóa với nhóm chức cacboxyl (-COOH) bằng hỗn hợp axit  $HNO_3:H_2SO_4$  (tỉ lệ thể tích tương ứng 1:3) ở nhiệt độ  $70^{\circ}C$ , trong thời gian 5 giờ. Sản phẩm thu được sau quá trình chức năng hóa được lọc sạch bằng nước cất rồi sau đó CNT-COOH được phân tán trong dung dịch  $SOCl_2$  và được khuấy liên tục trong vòng 24 giờ ở nhiệt độ  $60^{\circ}C$  để thu được vật liệu CNT-COCl. Vật liệu CNT-COCl sau khi làm sạch bằng nước cất được lọc rửa với  $H_2O_2$  để tạo thành vật liệu CNT-COOH.



Hình 1: Quy trình biến tính CNTs-OH



Hình 2: Quy trình phân tán CNTs trong chất lỏng

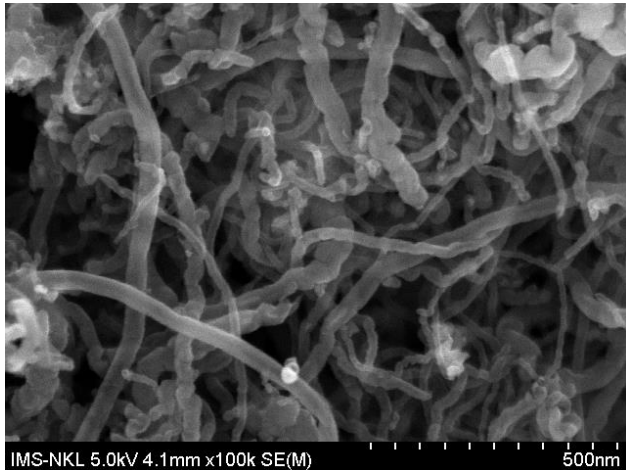
Để phân tán cacbon nano trong chất lỏng, chúng tôi sử dụng quy trình phân tán được mô tả như trên hình 2. Trong quy trình này, vật liệu CNTs được biến tính gắn nhóm chức -OH như đã trình bày ở trên, sau đó CNTs-OH được phân tán đồng đều vào nền chất lỏng Coolanol 20 bằng việc sử dụng chất hoạt động bề mặt Tween-80 kết hợp với thiết bị rung siêu âm trong thời gian 30 - 90 phút.

### Các phép đo phân tích

Hình thái học của các mẫu được khảo sát bằng kính hiển vi điện tử quét hiệu ứng trường (FESEM, Hitachi S4800). Các nhóm chức được phân tích bằng phổ hồng ngoại (Prestige 21-SHIMADZU FTIR spectrometer) trong dải số sóng  $1000 - 4000\text{ cm}^{-1}$ . Phổ tán xạ Raman được đo bằng thiết bị iHR550 Jobin-Yvon dưới bước sóng kích thích của laser Ar là  $514\text{ nm}$ . Chất lỏng nano được đánh giá khả năng phân tán và sự ổn định bằng thiết bị ZetaSizer. Độ dẫn nhiệt (k) của dung dịch nano được đo bằng thiết bị Transient Hot Bridge THB-100.

## Kết quả và thảo luận

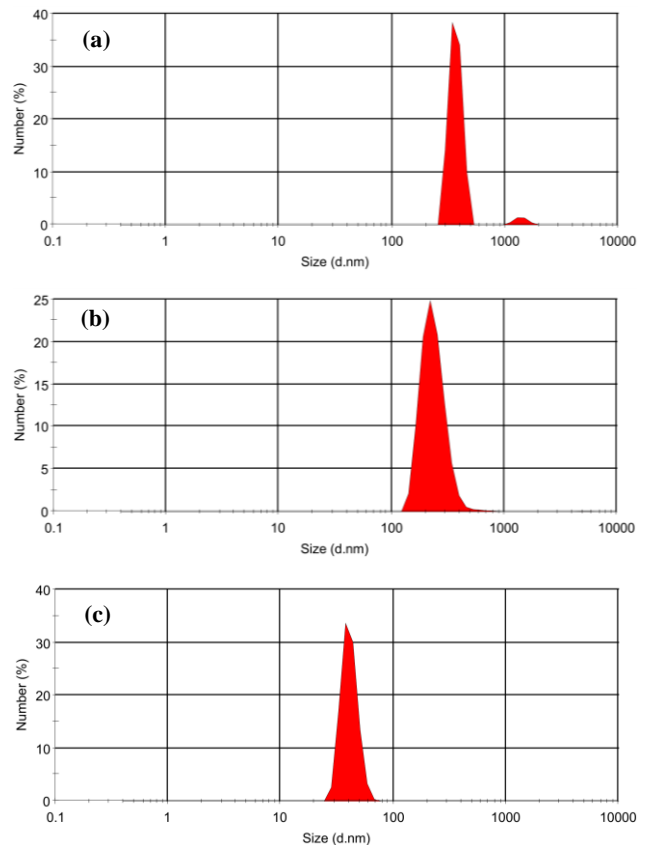
Hình 3 cho thấy hình thái học bề mặt của CNTs được khảo sát bởi kỹ thuật SEM với độ phóng đại 100.000 lần. Hình ảnh cho thấy vật liệu CNTs có cấu trúc dạng sợi với đường kính phân bố trong khoảng 20 nm – 80 nm và có độ sạch cao khi không có sự tồn tại của các tạp chất bẩn như thành phần cacbon vô định hình.



Hình 3: Ảnh SEM của vật liệu CNTs

Kết quả khảo sát phổ FTIR và phổ Raman của CNTs, CNTs-COOH, và CNTs-OH đã được nhóm tác giả công bố trong nhiều công trình trước đây [11 -12]. Kết quả đo phổ Raman của CNTs, CNTs-COOH và CNTs-OH xuất hiện đỉnh D ở số sóng  $1351\text{cm}^{-1}$  và đỉnh G ở số sóng  $1591\text{cm}^{-1}$  trong phổ ở tất cả các mẫu. Tuy nhiên, tỉ lệ cường độ đỉnh D so với cường độ đỉnh G ( $I_D/I_G$ ) là khác nhau đối với các mẫu khác nhau. Tỉ lệ  $I_D/I_G$  của CNTs-OH cao nhất (1,87) do để chức năng hóa với nhóm chức OH mẫu đã được xử lý với axit mạnh 2 lần dẫn đến mẫu thu được có nhiều sai hỏng làm tỷ lệ  $I_D/I_G$  lớn. Trong khi đó tỷ lệ  $I_D/I_G$  của mẫu CNTs-COOH là 0,99 và của mẫu CNTs là thấp nhất ứng với 0,79. Kết quả khảo sát phổ FTIR cho thấy một số đỉnh đặc trưng của các liên kết, trong đó đỉnh xung quanh số sóng  $3431\text{cm}^{-1}$  do dao động của nhóm OH, vùng này được mở rộng ra hơn đối với CNTs-COOH và CNTs-OH. Đỉnh xung quanh số sóng  $1624\text{cm}^{-1}$  do dao động của liên kết C=C đặc trưng của mạng graphit trong cấu trúc của CNTs. Đối với CNTs-COOH xuất hiện đỉnh xung quanh  $1728\text{cm}^{-1}$  và  $1581\text{cm}^{-1}$  tương ứng với dao động của liên kết C=O và C-O của nhóm carboxyl. Các đỉnh đặc trưng trên không còn tìm thấy ở mẫu CNT-OH, điều này là do các nhóm chức OH đã thế hoàn toàn vị trí của các nhóm COOH trên bề mặt của CNTs. Như vậy, kết quả cho thấy quá trình biến tính nhóm chức COOH và OH đã thành công trên bề mặt của CNTs.

Hình 4 là kết quả khảo sát phổ phân bố theo kích thước của CNTs trong nền chất lỏng Coolanol 20 với thời gian rung siêu âm khác nhau là 30 phút, 60 phút và 120 phút. Kết quả khảo sát trên hình 4a với thời gian rung siêu âm 30 phút cho thấy sự tồn tại của 2 đỉnh là 320 nm và 1,6  $\mu\text{m}$ , điều này khẳng định có sự tụ đám của CNTs trong chất lỏng. Với thời gian rung siêu âm là 60 phút như trên hình 4b cho thấy CNTs đã có sự phân tán tốt hơn với sự xuất hiện chỉ một đỉnh duy nhất là 240 nm, tuy nhiên kết quả phân tán chưa đạt yêu cầu và vẫn còn tụ đám do kích thước của CNTs nằm trong khoảng 20 – 80 nm không phù hợp với đỉnh 240nm. Kết quả phân tán với thời gian 90 phút như trên hình 4c cho thấy kích thước CNTs phân bố trong dải từ 16 nm - 80 nm, dải này là phù hợp với kích thước của vật liệu CNTs nằm trong khoảng 20 – 80 nm, điều này cho thấy thời gian rung siêu âm 90 phút là cần thiết để đạt được sự phân tán đồng đều của CNTs trong nền chất lỏng Coolanol.



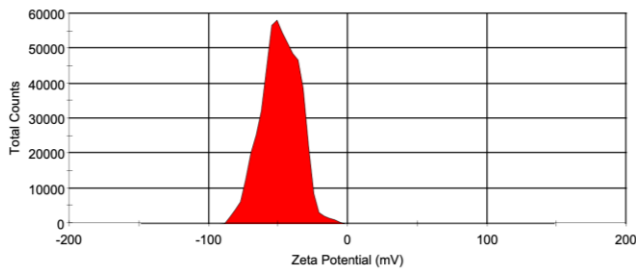
Hình 4: Kết quả khảo sát phổ phân bố CNTs theo kích thước trong chất lỏng với thời gian rung siêu âm: 30 phút (a), 60 phút (b) và 90 phút (c)

Hình 5 là kết quả khảo sát thế Zeta của chất lỏng nano nền Coolanol 20 chứa thành phần CNTs với giá trị đo được là 48,4 mV. Thế Zeta nằm trong khoảng  $\pm 40$  mV đến  $\pm 60$  mV cho thấy vật liệu cacbon nano có sự phân tán bền vững trong nền chất lỏng Coolanol 20.

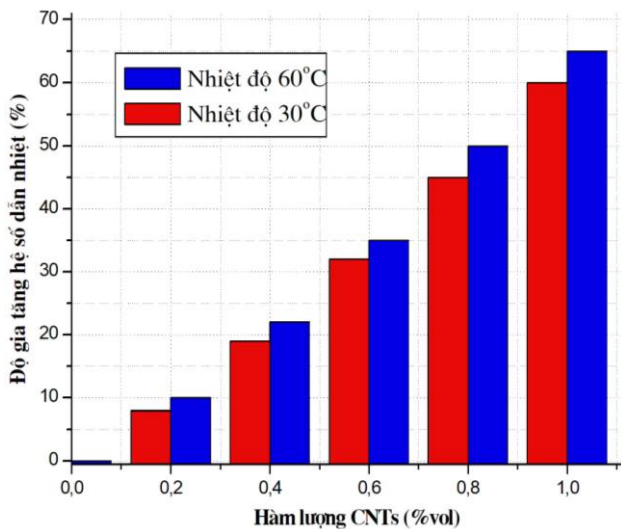
Sự gia tăng độ dẫn nhiệt của chất lỏng nano nền Coolanol 20 chứa CNTs-OH được thể hiện như trên hình 6. Trong đó sự tăng hệ số dẫn nhiệt được tính theo công thức:

$$\%k = [(k - k_0) \times 100] / k_0 \quad (1)$$

Với  $k_0$  là độ dẫn nhiệt của Coolanol 20;  $k$  là độ dẫn nhiệt của chất lỏng nano khi có thêm thành phần CNTs.



Hình 5: Kết quả khảo sát thế Zeta của chất lỏng nano nền Coolanol 20 chứa thành phần CNTs



Hình 6: Sự gia tăng hệ số dẫn nhiệt của chất lỏng nano nền Coolanol 20 chứa CNT-OH

Từ đồ thị hình 5 cho thấy các mẫu đều có độ dẫn nhiệt tăng dần khi hàm lượng CNTs tăng và nhiệt độ tăng. Sự tăng độ dẫn nhiệt của chất lỏng nano theo nhiệt độ có thể giải thích theo Li và cộng sự [13]. Li báo cáo rằng sự thay đổi sự kết đám của các thành phần nano và độ nhớt theo nhiệt độ cùng với chuyển động Brown là các yếu tố quan trọng ảnh hưởng đến độ dẫn nhiệt của chất lỏng [13]. Theo Li, khi nhiệt độ tăng lên sẽ dẫn tới những hiệu ứng sau: (i) giảm sự tụ đám của các thành phần nano do sự giảm năng lượng bề mặt, (ii) tăng cường chuyển động Brownian do sự giảm độ nhớt [10]. Sự tăng cường chuyển động Brown là cơ sở để dẫn đến sự tăng cường độ dẫn nhiệt của chất lỏng khi nhiệt độ tăng. Hình 6 so sánh sự tăng cường độ

dẫn nhiệt của các chất lỏng khác nhau ở 30°C và 60°C cho thấy nhiệt độ cao thì độ dẫn nhiệt tăng lên. Ứng với hàm lượng 1,0%vol của CNTs-OH ở 30°C, ta thấy độ dẫn nhiệt của chất lỏng nano có độ tăng cường là 59%. Độ dẫn nhiệt của chất lỏng nano đạt giá trị lớn nhất là 65% ứng với hàm lượng của CNTs là 1,0 %vol và nhiệt độ là 60°C.

## Kết luận

Vật liệu CNTs được biến tính thành công với nhóm chức -OH để phân tán vào chất lỏng nền Coolanol 20. Bằng phương pháp rung siêu âm kết hợp với chất hoạt động bề mặt cho thấy CNTs-OH được phân tán đồng đều vào chất lỏng, phép đo Zeta cho thấy sự ổn định của CNTs-OH trong nền chất lỏng. Độ dẫn nhiệt của chất lỏng Coolanol 20 chứa vật liệu CNTs-OH gia tăng 65% so với chất lỏng thông thường với hàm lượng 1,0%vol của CNTs-OH tại nhiệt độ 60°C. Chất lỏng Coolanol 20 chứa vật liệu CNTs-OH có độ dẫn nhiệt tăng cao và có tiềm năng ứng dụng trong quản lý nhiệt cho linh kiện thiết bị hoạt động ở điều kiện khắc nghiệt và nhiều ứng dụng khác.

## Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được thực hiện với sự tài trợ kinh phí từ Sở Khoa học và Công nghệ Hà Nội theo nhiệm vụ mã số 01C-02/05-2019-3.

## Tài liệu tham khảo

1. X.Q. Wang, A.S. Mujumdar, *Int. J. Ther. Sci.*, 46 (2007) 1–19 <https://doi.org/10.1016/j.jthermalsci.2006.06.010>
2. M. Raja, R. Vijayan a, P. Dineshkumar b, M. Venkatesan, 64 (2016) 163–173. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2016.05.079>
3. H.E. Patel, T. Sundararajan, S.K. Das. 12 (2010) 1015–1031. <https://doi.org/10.1007/s11051-009-9658-2>
4. A.K. Rasheed, M. Khalid, W. Rashmi, T.C.S.M. Gupta, A. Chan. 63 (2016) 346–362. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2016.04.072>
5. E. Sadeghinezhad, M. Mehrali, R. Saidur, M. Mehrali, S.T. Latifbari, A.R. Akhiani, H.S.C. Metselaar, 111 (2016) 466–487. <https://doi.org/10.1016/j.enconman.2016.01.004>
6. A. Ghozatloo, M.S. Niasar, A. Rashidi. 42 (2013) 89–94. <https://doi.org/10.1016/j.jicheatmasstransfer.2012.12.007>
7. P. V. Trinh, N. N. Anh, B. H. Thang, L. D. Quang, N.

- T. Hong, N. M. Hong, P. H. Khoi, P. N. Minh, P. N. Hong, 7 (2017) 318–326.  
<https://doi.org/10.1039/C6RA25625B>
8. S. Baskar, M. Chandrasekaran, T. Vinod Kumar, P. Vivek, L. Karikalan 41 3 (2020) 296–299.  
<https://doi.org/10.1080/01430750.2018.1451381>.
  9. Cyril ReubenRaj, S.Suresh, Vivek Kumar Singh, R.R.Bhavsar, Midhun V. C, Sudharshan Vasudevan, V. Archita. 167 (2021) 107007  
<https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2021.107007>
  10. Tucson, Arizona. Fluid selection for space thermal control systems, ICES (2014) 13-17.
  11. Bui Hung Thang, Pham Van Trinh, Le Dinh Quang, Nguyen Thi Huong, Phan Hong Khoi and Phan Ngoc Minh, 65 3 (2014) 312–316.  
<https://doi.org/10.3938/jkps.65.312>
  12. Pham Van Trinh, Nguyen Ngoc Anh, Nguyen Tuan Hong, Phan Ngoc Hong, Phan Ngoc Minh, Bui Hung Thang, 269 (2018) 344–353.  
<https://doi.org/10.1016/j.molliq.2018.08.071>
  13. Y.H. Li, W. Qu, J.C. Feng, Temperature Dependence of Thermal Conductivity of Nanofluids, Chinese Phys Lett, 25 (2008) 3319.