JST: Engineering and Technology for Sustainable Development
Vol. 1, Issue 1, March 2021, 021-027

Sử dụng vật liệu tổ hợp trên cơ sở graphene oxide để hấp thu nhiệt

Using Graphene Oxide Based Materials for Thermal Sorption

Bùi Thị Lệ Thuỷ*, Đào Đình Thuần, Phạm Đình Thảo
Trường Đại học Mỏ Địa chất, Hà Nội, Việt Nam
**Email: thuykhai2001@gmail.com*

Tóm tắt

Trong bài báo này, một số vật liệu tổ hợp trên cơ sở graphene oxide (GO) (Al_2O_3/GO, Fe_3O_4/GO, Fe_3O_4–Al_2O_3/GO) được chế tạo và đặc trưng bởi phổ nhiễu xạ tia X và phổ hồng ngoại, SEM và EDX. Các vật liệu được phân tán vào nước muối và đo khả năng hấp thu nhiệt của hỗn hợp. Kết quả chỉ ra rằng sự hấp thu nhiệt của các vật liệu tổ hợp cao hơn các vật liệu riêng lẻ, trong đó Fe_3O_4-Al_2O_3/GO có khả năng hấp thu nhiệt cao nhất (sự chênh lệch về nhiệt độ giữa mẫu trắng và mẫu có vật liệu với hàm lượng 0,5 mg/mL là 6 °C). Ảnh hưởng của hàm lượng vật liệu trong nước muối đến hiệu suất hấp thu nhiệt đã được nghiên cứu và hàm lượng 0,5 mg/mL được đề nghị sử dụng. Do có từ tính nên 98% vật liệu Fe_3O_4-Al_2O_3/GO được thu hồi và tái sử dụng, hiệu suất hấp thu nhiệt giảm không đáng kể sau 5 lần tái sinh và tái sử dụng. Kết quả nghiên cứu chỉ ra tiềm năng sử dụng các vật liệu này để tăng hiệu quả hấp thu năng lượng mặt trời trong quá trình chưng cất nước mặn thành nước ngọt.

Từ khóa: Graphene oxide, hấp thu nhiệt, chưng cất nước mặn.

Abstract

In this work, some nanocomposite materials based on graphene oxide (GO) (Al_2O_3/GO, Fe_3O_4/GO, Fe_3O_4–Al_2O_3/GO) were prepared and characterized by X-ray and infrared spectra, SEM and EDX analysis. GO based materials were dispersed into salty water and the thermal absorption ability of mixtures was measured. Results showed that thermal sorption of composite materials was greater than that of single materials. Fe_3O_4-Al_2O_3/GO gives the highest thermal absorption efficiency (the temperature difference between the blank sample and the sample containing Fe_3O_4-Al_2O_3/GO with content of 0.5 mg/mL is 6 °C). The influence of the material content in salty water on the thermal sorption efficiency was investigated and a suitable concentration of 0.5 mg/mL was found. 98% of Fe_3O_4-Al_2O_3/GO was recovered with the magnet because of its magnetic property and thermal absorption of recovered material are similar to that of the fresh material. The research results show the potential of using these nanocomposite materials to increase the efficiency of thermal sorption in the process of distilling salty water into fresh water.

Keywords: graphene oxide, solar thermal sorption, distilling salty water.

1. Giới thiệu

Cạn kiệt nguồn nước sinh hoạt đang là vấn đề mang tính toàn cầu mà hầu hết các quốc gia trên thế giới đã và đang phải đối mặt. Thật vậy, theo thống kê hiện nay trên thế giới có tới 1,5 tỷ người bị khát nước, 1 tỷ người đang phải sử dụng nước bị ô nhiễm và 120 quốc gia đang bị thiếu nước ngọt. Mỗi năm có hàng triệu người chết vì những căn bệnh liên quan đến việc dùng nước bị ô nhiễm. Dự báo đến năm 2030, lượng nước trên toàn cầu giảm đến 40%. Lượng nước sụt giảm tác động lớn đến sinh hoạt, sản xuất lương thực, vệ sinh và sức khỏe cộng đồng, cũng như 98% hoạt động sản xuất điện năng trên toàn cầu. Việt Nam đang được xếp vào nhóm quốc gia bị thiếu nước, có tới 20% dân số Việt Nam hiện chưa từng được tiếp cận với nguồn nước sạch. Trong khi đó nguồn nước mặn dồi dào chiếm 70% diện tích bề mặt trái đất vẫn chưa được tận dụng triệt để. Hai công nghệ được sử dụng phổ biến để sản xuất nước ngọt từ nước mặn là công nghệ nhiệt và công nghệ màng [1].

Với mục đích tận dụng nguồn năng lượng tự nhiên sẵn có để giảm chi phí, công nghệ chưng cất nước mặn bằng năng lượng mặt trời đã được nghiên cứu và sử dụng từ lâu. Nhược điểm chính của công nghệ này là rất nhiều năng lượng mặt trời bị lãng phí trong quá trình chưng cất, nước chỉ hấp thu được 13% năng lượng bức xạ. Thậm chí những dụng cụ chưng cất tốt nhất cũng cần rộng đến 6m^2 để tạo ra đủ nước cho một người dùng trong một ngày (2,5-5 l/m^2/ngày). Các nhà khoa học đang quan tâm nghiên cứu công nghệ để nâng cao hiệu suất hấp thu nhiệt và hiệu quả bay hơi nước của các hệ thống hấp thu năng lượng mặt trời để sử dụng cho các mục đích khác nhau [2-4]. Một phương pháp hiệu quả là phân tán các vật liệu nano có khả năng nâng cao hiệu suất hấp thu nhiệt vào trong môi trường chất lỏng như: nước, glycol, dầu… gọi là nanofluid [4,5]. Nanofluid chứa các hạt nano khác nhau: kim loại (Cu, Ag, Au, Ni), oxit kim loại (Al_2O_3, Cu_2O, TiO_2…), cacbua kim loại (AlN, SiN), dạng C (carbon nanotubes, graphite…) đã được nghiên cứu [6]. Một số vật liệu

ISSN: 2734-9381
https://doi.org/10.51316/jst.148.etsd.2021.1.1.5
Received: March 12, 2020; accepted: September 25, 2020

nanocomposite (hybrid nanopaticles) đã được đưa vào chất lỏng và cho hiệu quả hấp thu nhiệt cao hơn vật liệu nano một thành phần [6]. Các nanofluid thường được sử dụng trong chưng cất nước mặn ở dạng: đưa vào thiết bị trao đổi nhiệt để gia nhiệt cho nước mặn hoặc đưa vào trong bình chưng cất chứa nước mặn (phương pháp hấp thu nhiệt trực tiếp).

Theo lý thuyết vật đen tuyệt đối thì các vật liệu chứa GO có màu đen có khả năng hấp thu nhiệt cao. Khi tạo ra vật liệu hỗn hợp thì bề mặt của vật liệu sẽ không đồng đều và phẳng như vật liệu GO (có cấu trúc lớp), càng nhiều cấu tử phối hợp thì bề mặt của vật liệu càng không đồng đều và khả năng phản xạ ánh sáng càng kém. Hơn nữa, khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu còn phụ thuộc vào độ dẫn nhiệt của vật liệu. Theo một số nghiên cứu thì độ dẫn nhiệt của chất lỏng phân tán vật liệu nanocomposite (hybrid nanofluid) cao hơn chất lỏng phân tán các vật liệu đơn [7]. Các vật liệu Fe_3O_4, GO sử dụng trong nghiên cứu này đều có độ dẫn cao, Al_2O_3 cũng đã được kết hợp với Cu để tạo ra Al_2O_3-Cu có độ dẫn nhiệt cao hơn Cu [8]. Fe_3O_4 vừa có độ dẫn nhiệt cao vừa tạo ra từ tính cho vật liệu để có thể thu hồi bằng từ trường sau thời gian sử dụng.

Trong nghiên cứu này, với mong muốn kết hợp nhiều thành phần để tăng hiệu quả hấp thu nhiệt, hệ vật liệu nanocomposite trên cơ sở graphene oxide (Al_2O_3/GO, Fe_3O_4/GO, Fe_3O_4-Al_2O_3/GO) được tổng hợp và đặc trưng bằng các phương pháp X-ray, phổ hồng ngoại, SEM và EDX. Khả năng hấp thu nhiệt của các vật liệu và khả năng thu hồi tái sử dụng vật liệu được nghiên cứu một cách hệ thống.

2. Thực nghiệm

2.1. Nguyên liệu

Graphite loại tinh khiết (99%) mua của Công ty Sigma- Aldrich, H_2SO_4 (98%), $KMnO_4$ (loại tinh thể, 99%), H_2O_2 (30%), $FeCl_3.6H_2O$ (99%), HCl (36-38%), $NaNO_3$ (99%), $FeSO_4.7H_2O$ (99%), $AlCl_3.6H_2O$, ethanol (99,7%) và NH_3 (25%) được cung cấp bởi nhà máy hóa chất Guangdong Guanghua, Trung Quốc.

2.2. Tổng hợp vật liệu nanocomposite để hấp thu năng lượng mặt trời

2.2.1. Tổng hợp GO bằng phương pháp Humers cải tiến [9]

3g bột graphite và 42 mL dung dịch H2SO4 98% được cho vào cốc 1000 mL đã được làm lạnh bằng hỗn hợp nước đá và muối ăn (0ºC). Hỗn hợp được tiếp tục làm lạnh và khuấy liên tục trong 30 phút với tốc độ 350 vòng/phút. 0,45 g KMnO4 được thêm từ từ vào hỗn hợp đang khuấy trên. Tốc độ thêm KMnO4 phải đảm bảo sao cho nhiệt độ của hỗn hợp không vượt quá 0 ± 5 ºC. Tiếp tục thêm từ từ 9 g KMnO4 sao cho nhiệt độ hỗn hợp không vượt quá 35 ºC ± 3 ºC và khuấy trong 30 phút. Sau đó, 120 mL nước cất được thêm từ từ vào hỗn hợp để tránh hiện tượng quá nhiệt cục bộ, nhiệt độ của hệ được giữ ở 90 ºC, hỗn hợp được tiếp tục khuấy trong 30 phút. Sau đó, 80 mL H_2O được cho vào để dừng phản ứng, khi đó nhiệt độ đạt xấp xỉ 50ºC, khuấy tiếp 20 phút. 10,5 mL dung dịch H_2O_2 30% được thêm vào hỗn hợp và hỗn hợp được khuấy khoảng 20 phút. Sản phẩm được lọc rửa với dung dịch HCl 0,1 M sau đó rửa nhiều lần với nước cất và ly tâm đến pH = 7, sấy khô ở 60 ºC trong chân không thu được graphene oxide. Hỗn hợp sấy khô được nghiền mịn bằng cối đá mã não và bảo quản trong bình hút ẩm.

2.2.2. Tổng hợp Al_2O_3/GO [10,11]

Pha 100 mL dung dịch $AlCl_3$ 1 M trong ethanol và khuấy dung dịch trong khoảng 30 phút. Dung dịch NH_3 được nhỏ từ từ vào dung dịch $AlCl_3$ 1 M đến pH = 9 (lúc này xuất hiện kết tủa màu trắng). Hỗn hợp kết tủa được cho vào autoclave và sấy ở 200 ºC trong 3 giờ. Kết tủa được rửa bằng nước cất đến pH = 7 và sấy ở 80 ºC. Cuối cùng, nung kết tủa ở 500 ºC trong 5 giờ thu được Al_2O_3. Để tổng hợp vật liệu hỗn hợp GO và Al_2O_3, 0,15g GO được phân tán trong 200 mL và siêu âm trong 1 giờ. 0,15g Al_2O_3 được thêm vào huyền phù GO và hỗn hợp được khuấy đều trong vòng 6 giờ. Cuối cùng, sản phẩm được sấy ở 70 ºC trong 12 giờ.

2.2.3. Tổng hợp Fe_3O_4/GO

Quá trình tổng hợp được tham khảo các tài liệu [12,13]. FeCl3.6H2O và FeSO4.7H2O được hòa tan vào 150 mL nước cất. Hỗn hợp được khuấy trên bếp từ trong 30 phút để thu được dung dịch màu vàng sáng. Sau 30 phút, dung dịch NH3 được nhỏ từ từ đến pH = 10, hỗn hợp được tiếp tục khuấy ở 65 ºC trong 30 phút. Sau khi phản ứng xảy ra hoàn toàn, các hạt kết tủa màu đen được thu bằng nam châm, rửa nhiều lần với nước và ethanol đến pH = 7. Các hạt nano Fe_3O_4 được sấy ở 60 ºC.

Tổng hợp Fe_3O_4/GO: 0,3g GO được thêm vào 300 mL nước và siêu âm trong 30 phút, thu được huyền phù GO. Sau đó, 0,15g nano Fe_3O_4 được thêm vào huyền phù và siêu âm 30 phút để thu được một huyền phù đồng nhất. Hỗn hợp Fe_3O_4/GO được thu bằng nam châm và sấy ở 60 ºC.

2.2.4. Tổng hợp Fe_3O_4-Al_2O_3/GO

0,3g Al_2O_3/GO được thêm vào 300 mL nước cất và siêu âm trong 30 phút, thu được huyền phù Al_2O_3/GO. Sau đó, 0,15g Fe_3O_4 được thêm vào huyền phù Al_2O_3/GO và siêu âm 30 phút. Cuối cùng thu được một huyền phù đồng nhất Fe_3O_4-Al_2O_3/GO được thu bằng nam châm và để khô tự nhiên.

2.3. Đánh giá khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu

Chuẩn bị 7 cốc thủy tinh sạch dung tích 250 mL. Cho vào mỗi cốc 200 mL dung dịch nước muối 3,5% được. Sau đó cân chính xác 0,1 g mỗi mẫu vật liệu cho vào một cốc. Các mẫu được ký hiệu là M1, M2...

và xếp thành một vòng tròn. Bóng đèn công suất 100 W được lắp ở giữa sao cho khoảng cách từ bóng đèn đến mép trong của cốc là 5 cm. Nhiệt độ ban đầu của dung dịch trong mỗi cốc được đo và ghi lại. Bật bóng đèn và cứ sau 10 phút ghi lại nhiệt độ trong mỗi mẫu thí nghiệm.

Khảo sát sự ảnh hưởng của cường độ ánh sáng đến khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu

Thí nghiệm được bố trí tương tự như thí nghiệm ở mục trên. Vật liệu có khả năng hấp thu nhiệt cao nhất là Fe_3O_4-Al_2O_3/GO được phân tán vào dung dịch muối ăn 3,5%. Hỗn hợp sau đó được siêu âm để vật liệu phân tán tốt trong nước muối. Nhiệt độ ban đầu của các mẫu thí nghiệm được đo và ghi lại. Bật bóng đèn công suất 200W và cứ sau 10 phút ghi lại sự thay đổi nhiệt độ của mẫu thí nghiệm.

2.4. Thực nghiệm đánh giá khả năng thu hồi và tái sinh vật liệu

Đánh giá khả năng thu hồi vật liệu

Sau thí nghiệm đánh giá khả năng hấp thu nhiệt, Fe_3O_4-Al_2O_3/GO được thu hồi bằng nam châm, rửa sạch, làm khô và ghi lại khối lượng để tính hiệu suất thu hồi vật liệu.

Thực nghiệm đánh giá khả năng tái sinh của vật liệu

Vật liệu Fe_3O_4-Al_2O_3/GO sau khi thu hồi được phân tán vào dung dịch muối ăn để đánh giá khả năng hấp thu nhiệt. Kết quả hấp thu nhiệt của vật liệu sau khi tái sinh được so sánh với khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu ban đầu. Quá trình được lặp lại 5 lần.

2.6. Phương pháp nghiên cứu đặc trưng của vật liệu

Các vật liệu được đặc trưng cấu trúc bằng các phương pháp X-ray (D8 ADVANCE BRUKER tại Bộ môn Hóa vô cơ, khoa Hóa Học, trường Đại Học Khoa Học Tự Nhiên Hà Nội), chụp kính hiển vi điện tử quét SEM (Jeol 6490 JED 2300 (Nhật Bản) tại Viện Khoa học vật liệu, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam), EDX trên đế kali (K) (JED-2300 - JEOL (Nhật Bản) tại Viện Khoa học vật liệu, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam) và FT-IR (4600 JASCO tại phòng thí nghiệm bộ môn Lọc-Hóa Dầu, Đại Học Mỏ - Địa Chất).

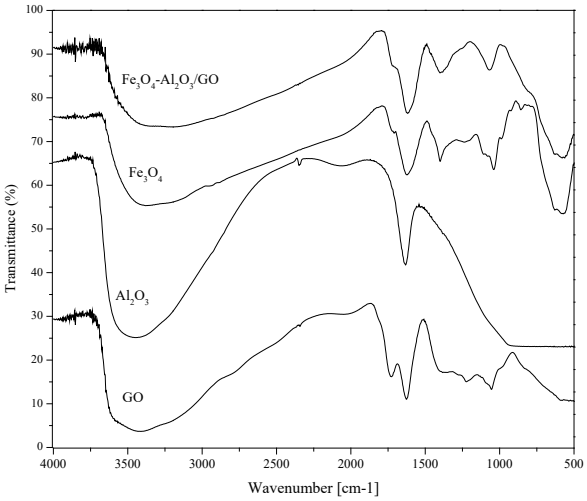
3. Kết quả và thảo luận

3.1. Kết quả đặc trưng vật liệu

3.1.1. Phổ hồng ngoại của các vật liệu

Phổ hồng ngoại của GO (Hình 1) có khoảng phổ chân rộng với đỉnh ở 3480 cm^{-1} là dao động của nhóm –OH trong axit và nước [14]. Các đỉnh phổ tại 1692 cm^{-1}, 1572 cm^{-1}, 1258 cm^{-1}, 1062 cm^{-1} là hấp thụ đặc trưng của các nhóm C=O, C=C, C-OO và C-H tương ứng [8]. Các dao động này chứng tỏ sự có mặt của các nhóm chức chứa oxy trong GO. Phổ hồng ngoại của Al2O3 thể hiện đầy đủ các đỉnh đặc trưng của Al2O3. Đỉnh có chân rộng ở 3487 cm^{-1} là do sự có mặt của nhóm Al-OH, đỉnh ở 1636 cm^{-1} là của nhóm OH trong H-O-H, đỉnh đặc trưng của nhóm Al-O và Al-O-Al ở trong khoảng 600 – 800 cm^{-1} [15]. Đỉnh hấp thụ ở 571 cm^{-1} là dao động hóa trị của nhóm chức Fe-O. Kết quả này phù hợp với các số liệu đã được công bố trước đây [13,16]. Số sóng trong khoảng 1625 cm^{-1} đến 1400 cm^{-1} chỉ ra sự có mặt của dao động biến dạng của nhóm H-O-H, trong khi đó nhóm O-H có dao động hoá trị ở khoảng 3380 cm^{-1}.

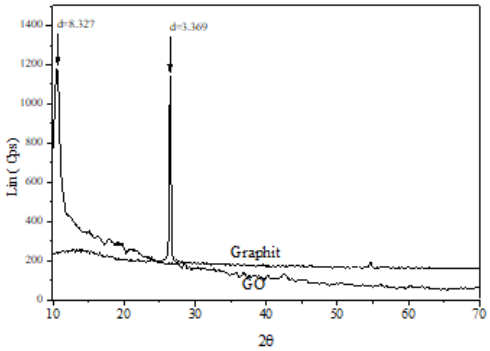
Sự so sánh phổ của các vật liệu GO, Al_2O_3, Fe_3O_4 và Fe_3O_4-Al_2O_3/GO cho thấy phổ hồng ngoại của Fe_3O_4-Al_2O_3/GO có đầy đủ đỉnh đặc trưng của các vật liệu riêng rẽ là GO, Al_2O_3 và Fe_3O_4 nhưng với cường độ giảm đi. Ví dụ, cường độ của các đỉnh phổ đặc trưng cho GO (1692 cm^{-1}, 1572 cm^{-1}, 1258 cm^{-1} và 1062 cm^{-1} của các nhóm C = O, C = C, C-OH và C-O) bị giảm do nồng độ GO trong mẫu giảm đi.



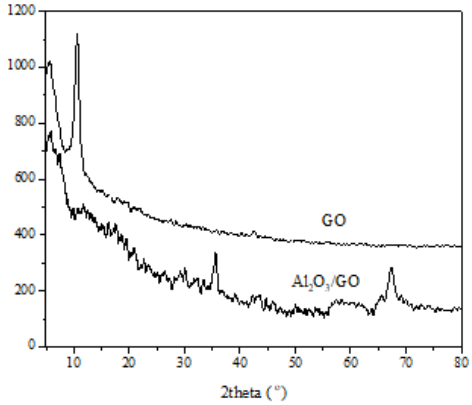
Hình 1. Phổ hồng ngoại GO (a), Al_2O_3 (b), Fe_3O_4 (c) và vật liệu tổ hợp Fe_3O_4-Al_2O_3/GO (d)

3.1.2. Nhiễu xạ tia X của các vật liệu

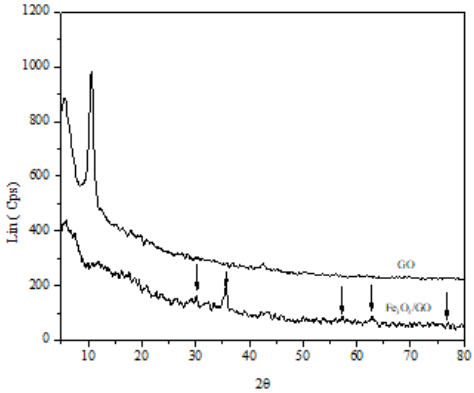
Từ giản đồ XRD (Hình 2) ta thấy góc 2θ=11,2° là đỉnh nhiễu xạ đặc trưng cho vật liệu GO. Trong khi với graphite, đỉnh nhiễu xạ đặc trưng ở 2θ=26,5°, khoảng cách giữa các lớp chỉ là 3,35 Å. Kết quả đo này phù hợp với kết quả thu được từ các nghiên cứu trước [17,18]. Khi phối trộn các vật liệu với nhau, các nhóm chức OH trên bề mặt Al_2O_3 có thể tương tác với các nhóm chức chứa oxy (-COOH, -OH…) trên bề mặt hoặc giữa các lớp của GO. Điều này làm giảm tính tinh thể của GO. Kết quả nhiễu xạ tia X của Al_2O_3/GO ở Hình 3 cho thấy việc đưa Al_2O_3 đã làm cho đỉnh nhiễu xạ đặc trưng của GO ở góc 2θ=11,2° giảm đi, thay vào đó là sự xuất hiện các đỉnh mới ở giá trị 2θ tương ứng là 37,1°; 45,6° và 67,1° phù hợp với dữ liệu nhiễu xạ tia X của γ- Al_2O_3. Điều này thể hiện cho sự tổ hợp γ - Al_2O_3 lên bề mặt GO [19].



Hình 2. Nhiễu xạ tia X của (a) graphit và GO.



Hình 3. Nhiễu xạ tia X của GO và Al_2O_3/GO

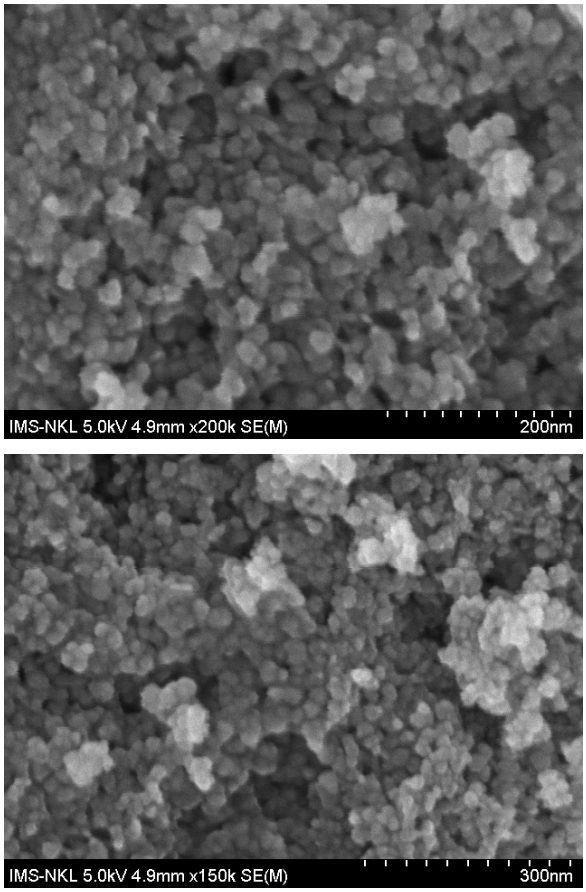


Hình 4. Nhiễu xạ tia X của GO và Fe_3O_4/GO

Tương tự như khi phối trộn với Al_2O_3, việc phối trộn GO với Fe_3O_4 có thể đã làm giảm tính tinh thể của GO. Kết quả nhiễu xạ tia X của Fe_3O_4/GO ở Hình 4 cũng cho thấy việc đưa Fe_3O_4 đã làm cho đỉnh nhiễu xạ đặc trưng của GO ở góc 2θ=11,2° giảm đi đáng kể. Mặt khác có thể quan sát thấy các tín hiệu đặc trưng của Fe_3O_4 của 2θ tại 30,23°; 35,69°; 57,41°; 62,87° [18,20]. Khi phối trộn, GO và oxit sắt từ tương tác và xen phủ tốt nên có thể thu hồi tới 98% bằng từ trường (mục 3.3). Kết quả tương tự cũng thu được khi đo phổ X-ray của mẫu Fe_3O_4-Al_2O_3/GO.

3.1.3 Kết quả đo SEM của vật liệu

Kết quả đo SEM của vật liệu Fe_3O_4- Al_2O_3/GO (Hình 5) cho thấy Fe_3O_4 và Al_2O_3 có dạng cầu kích thước khoảng 10 - 15 nm.



Hình 5. Ảnh SEM của vật liệu Fe_3O_4-Al_2O_3/GO.

3.1.4 Kết quả đo EDX của các vật liệu

Kết quả EDX của Fe_3O_4- Al_2O_3/GO cho thấy vật liệu chứa 4 nguyên tố C, O, Al và Fe (Bảng 1). Trong đó hàm lượng của O cao nhất. Nguyên tố O có mặt chủ yếu trong Al_2O_3, Fe_3O_4, ngoài ra nó còn tồn tại trong các nhóm chức (C=O, COOH...) trên bề mặt GO. Hàm lượng nguyên tố C trong mẫu là nhỏ nhất, điều này có thể gợi ý rằng mẫu đo chứa nhiều nhóm chức chứa oxi và các hạt nano Al_2O_3 và Fe_3O_4. Kết quả này có thể được giải thích là do một lượng lớn các hạt nano Al_2O_3 và Fe_3O_4 xen vào giữa các hốc trống và/hoặc bao phủ lên bề mặt của vật liệu GO.

Bảng 1. Kết quả đo EDX của vật liệu Fe_3O_4-Al_2O_3/GO

Nguyên tố	Thành phần khối lượng (%)	Thành phần nguyên tố (%)
C	34,40	22,55
O	45,79	53,82
Al	8,41	19,80
Fe	11,40	3,83
Totals	100,00	100,00

Thông qua quy trình tổng hợp và các phép đo định tính cũng như định lượng ta có thể xác nhận các

vật liệu đã điều chế được là GO, Al_2O_3, Al_2O_3/GO, Fe_3O_4, Fe_3O_4/GO, Fe_3O_4-Al_2O_3/GO.

3.2. Đánh giá khả năng hấp thu nhiệt của các vật liệu tổng hợp được

Việc khảo sát khả năng hấp thu nhiệt của các vật liệu gồm các bước sau: đo khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu, khảo sát sự ảnh hưởng của hàm lượng vật liệu đến khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu, khảo sát sự ảnh hưởng của cường độ ánh sáng đến khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu.

3.2.1 Kết quả đo khả năng hấp thu nhiệt của các vật liệu khác nhau

Để đánh giá sự tăng khả năng hấp thu nhiệt của các vật liệu tổng hợp được, các vật liệu được phân tán vào nước muối 3,5% với nồng độ 0,5 mg/mL. Đem chiếu sáng các hỗn hợp và đo nhiệt độ định kỳ tại các thời điểm khác nhau để so sánh. Kết quả được trình bày ở Bảng 2.

Từ kết quả đo cho thấy, tất cả các vật liệu nghiên cứu đều làm tăng khả năng hấp thu nhiệt của nước muối 3,5%. So sánh các mẫu M2, M3 và M4 ta thấy dung dịch chứa hỗn hợp Al_2O_3 và GO hấp thu nhiệt cao hơn so với dung dịch chỉ có GO hoặc Al_2O_3. Tương tự, việc so sánh các mẫu M2, M5, M6 cho thấy hỗn hợp của Fe_3O_4 với GO cũng làm tăng khả năng hấp thu nhiệt của nước muối so với mẫu chỉ có GO hoặc Fe_3O_4. Đặc biệt, mẫu hỗn hợp chứa cả ba vật liệu Fe_3O_4, Al_2O_3 và GO có khả năng hấp thu nhiệt cao nhất, cao hơn 6 ºC so với mẫu trắng. Sự khác biệt này sẽ càng tăng khi nhiệt độ môi trường càng cao. Đây là mẫu vật liệu có khả năng hấp thu nhiệt và dẫn nhiệt tốt nhất trong các mẫu vật liệu tổng hợp được.

3.2.2 Kết quả khảo sát sự ảnh hưởng của hàm lượng đến khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu.

Kết quả thử nghiệm đánh giá khả năng hấp thu nhiệt của dãy vật liệu trên cơ cở graphene oxide cho thấy, vật liệu Fe_3O_4-Al_2O_3/GO có khả năng hấp thu nhiệt tốt nhất. Vì vậy, vật liệu này được lựa chọn dùng trong thí nghiệm khảo sát sự ảnh hưởng của hàm lượng vật liệu đến khả năng hấp thu nhiệt của chúng. Từ đó sẽ xác định tỷ lệ m vật liệu/m H_2O thích hợp để có hiệu suất hấp thu cao nhất đồng thời tránh lãng phí vật liệu. Kết quả thu được ở Bảng 3.

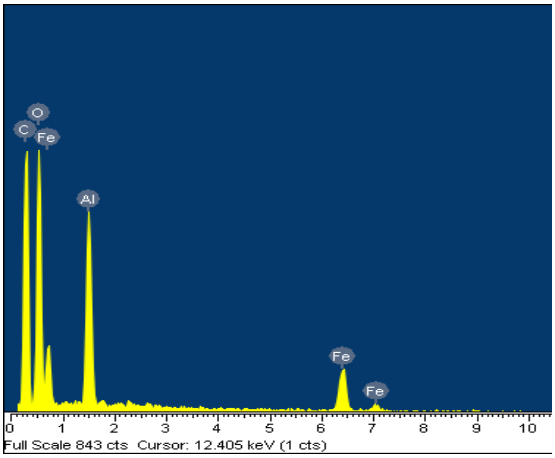
Khi tăng hàm lượng vật liệu phân tán trong nước muối từ 0,5 mg/mL đến 1,5 mg/mL thì nhiệt độ tăng lên 1-2 độ. Tuy nhiên khi tăng nồng độ của chất hấp thu lên 2 mg/mL và ở nhiệt độ cao trên 80 ºC thì khả năng hấp thu nhiệt lại giảm. Điều này có thể giải thích là nhiệt độ cao và hàm lượng chất hấp thu lớn dẫn đến các hạt có xu hướng hút nhau và kết tụ với nhau tạo thành các hạt lớn hơn và lắng xuống dưới, vì vậy, làm giảm khả năng hấp thu nhiệt và dẫn nhiệt của cả hệ thống. Kết quả cho thấy, khi hàm lượng Fe_3O_4-Al_2O_3/GO là 1,5 mg/mL thì mẫu thí nghiệm có hiệu quả hấp thu nhiệt cao nhất. Tuy nhiên, để tiết kiệm chi phí và giảm sự kết tụ của vật liệu khi dùng thời gian dài thì nên dùng nồng độ chất hấp thu trong nước là 0,5 mg/mL.

Bảng 2. Khả năng hấp thu nhiệt của các vật liệu trên cơ sở GO (hàm lượng: 5 mg /mL) (M1: Mẫu trắng; M2: GO; M3: Al_2O_3; M4: Al_2O_3/GO; M5: Fe_3O_4; M6: Fe_3O_4/GO; M7: Fe_3O_4-Al_2O_3/GO)

Thời gian (phút)	Nhiệt độ (ºC)						
	M1	M2	M3	M4	M5	M6	M7
0	27	27	27	27	27	27	27
10	28	28	28	29	30	30	30
20	29	30	30	32	32	33	34
30	30	32	32	34	34	35	36
40	32	34	34	35	35	37	38
50	33	36	34	36	36	38	39
60	34	38	35	38	37	39	40
70	35	38	37	39	38	39	42
80	36	39	38	40	39	40	42
90	37	39	40	41	40	41	43
100	38	40	40	41	40	42	44
110	38	40	40	41	41	42	44
120	38	40	40	41	41	42	44

Bảng 3. Ảnh hưởng của hàm lượng Fe_3O_4-Al_2O_3/GO đến khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu

Thời gian (phút)	Nhiệt độ (ºC)				
	0 mg/mL	0,5 mg/mL	1 mg/mL	1,5 mg/mL	2 mg/mL
0	27	27	27	27	27
10	28	30	30	31	32
20	29	34	33	34	35
30	30	36	36	37	38
40	32	38	38	39	40
50	33	39	40	40	42
60	34	40	41	42	44
70	35	42	42	43	45
80	36	42	42	44	45
90	37	43	44	46	45
100	38	44	45	46	45
110	38	44	45	46	45
120	38	44	45	46	45



Hình 6. Kết quả đo EDX của vật liệu Fe_3O_4-Al_2O_3/GO

3.2.3 Kết quả khảo sát sự ảnh hưởng của cường độ ánh sáng đến khả năng hấp thu nhiệt

Vật liệu Fe_3O_4-Al_2O_3/GO được phân tán trong nước muối với hàm lượng 1,5 mg/mL và hỗn hợp được hiếu sáng với cường độ khác nhau. Kết quả thu được ở Bảng 4 cho thấy khi tăng cường độ chiếu sáng thì nhiệt độ của mẫu có chứa vật liệu tăng lên nhanh hơn.

Bảng 4. Kết quả hấp thu nhiệt với cường độ chiếu sáng khác nhau

Thời gian (phút)	Nhiệt độ (°C)	
	Bóng đèn 100 W	Bóng đèn 200 W
0	27	27
10	30	39
20	34	45
30	36	49
40	38	53
50	39	55
60	40	57
70	42	59
80	42	61
90	43	63
100	44	65
110	44	67
120	44	67

3.3. Kết quả thử nghiệm đánh giá khả năng thu hồi và tái sinh vật liệu

3.3.1 Kết quả thử nghiệm đánh giá khả năng thu hồi

Như đã trình bày trong phần tổng quan, trong quá trình chưng cất, khi nước bay hơi để tạo nước ngọt thì nước muối mới được bổ sung, vì vậy, nồng độ muối trong hệ tăng lên dẫn đến vật liệu hấp thu bị dính muối NaCl làm giảm khả năng phân tán cũng như hấp thu nhiệt, truyền nhiệt của vật liệu. Do đó, vật liệu cần được thu hồi, làm sạch muối và tái sử dụng.

Để quá trình thu hồi xảy ra nhanh và triệt để, oxide sắt từ được đưa vào thành phần vật liệu để tạo ra vật liệu có từ tính và có thể thu hồi bằng từ trường. Việc đưa oxide sắt từ còn tạo hiệu ứng hiệp đồng làm tăng khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu.

Kết quả cho thấy, mẫu vật liệu nếu để lắng tự nhiên thì quá trình thu hồi vật liệu chậm và không hoàn toàn. Tuy nhiên, khi sử dụng nam châm ở đáy để thu hồi thì sau 10 phút, vật liệu đã bị nam châm hút hết về phía đáy cốc. Kết quả sau khi gạn bỏ nước, làm sạch và sấy, hiệu suất thu hồi đạt 98%. Điều này chứng tỏ vật liệu chế tạo được có khả năng thu hồi tốt.

3.3.2. Kết quả đánh giá khả năng tái sinh vật liệu

Sau khi thu hồi, vật liệu được rửa bằng nước sạch, sấy khô và đánh giá khả năng hấp thu nhiệt. Bảng 3 và 5 cho thấy, sau khi tái sinh 5 lần khả năng hấp thu nhiệt của vật liệu giảm không đáng kể.

Bảng 5 Kết quả hấp thu nhiệt của vật liệu Fe_3O_4-Al_2O_3/GO sau khi tái sinh 5 lần

Thời gian (phút)	Nhiệt độ (°C)				
	0 mg/mL	0,5 mg/mL	1 mg/mL	1,5 mg/mL	2 mg/mL
0	29	29	29	29	29
10	30	31	32	33	32
20	32	34	36	36	35
30	34	34	38	39	38
40	34	35	40	40	39
50	36	38	42	42	41
60	38	39	44	43	42
70	39	40	45	44	43
80	40	40	46	45	44
90	40	41	46	46	44
100	40	42	46	46	44
110	40	42	46	46	44
120	40	42	46	46	44

4. Kết luận

Nhóm tác giả đã tổng hợp thành công các vật liệu hấp thu nhiệt trên cơ sở GO là: Al_2O_3/GO, Fe_3O_4/GO và Fe_3O_4-Al_2O_3/GO. Các kết quả phân tích bằng phổ FT-IR, X-ray, SEM, EDX đã chứng tỏ sự tạo thành của các vật liệu. Kết quả đo khả năng hấp thu nhiệt cho thấy các vật liệu khi dùng phối hợp cho hiệu quả hấp thu nhiệt cao hơn khi dùng đơn lẻ. Fe_3O_4-Al_2O_3/GO cho hiệu quả hấp thu cao nhất (chênh lệch nhiệt độ giữa mẫu trắng và mẫu có phân

tán vật liệu nồng độ 0,5 mg/mL là 6 ºC. Kết quả khảo sát sự ảnh hưởng của nồng độ vật liệu đến khả năng hấp thu nhiệt cho thấy khi tăng nồng độ hơn 1,5 mg/mL và chiếu sáng lâu hơn 80 phút thì hiệu suất hấp thu giảm. Khi dùng bóng đèn công suất cao gấp hai lần thì chênh lệch nhiệt độ giữa mẫu có phân tán vật liệu và mẫu trắng tăng lên nhiều. Vật liệu có từ tính nên hiệu quả thu hồi cao tới 98% và hiệu quả hấp thu nhiệt của vật liệu sau thu hồi xấp xỉ vật liệu mới.

Lời cảm ơn

Nhóm tác giả xin trân trọng cảm ơn Bộ Giáo dục và Đào tạo đã tài trợ cho nghiên cứu này.

Tài liệu tham khảo

[1] Mohammad Al-harahsheh, Mousa Abu-Arabi, Hasan Mousa, Zobaidah Alzghoul, Solar desalination using solar still enhanced by external solar collector and PCM, Applied Thermal Engineering 128 (2018) 1030–1040

[2] Nửa Thế Giới đang "khát" nguồn nước sạch, https://apollo.edu.vn/news_cat/nua-the-gioi-dang-khat-nguon-nuoc-sach

[3] Nguồn nước ngọt thế giới đang cạn dần?, https://www.bbc.com/vietnamese/vert-fut-39817160

[4] Raj P, Subudhi S., A review of studies using nanofluids in flat-plate and direct absorption solar Collectors, Renewable and Sustainable Energy Reviews, 84 (2018) pp 54–74.

[5] Sarsam W.S., Kazi S.N., A. Badarudin, A review of studies using nanofluids in flat-plate and direct absorption solar Collectors, Solar Energy, 122 (2015) pp 1245–1265.

[6] Syam Sundara L., Sharmab K.V., Singha Manoj K., Sousaa A.C.M., Hybrid nanofluids preparation, thermal properties, heat transfer and friction factor – A review, Renewable and Sustainable Energy Reviews 68 (2017) pp 185–198.

[7] Suresh, S., Venkitaraj, K.P., Selvakumar, P., & Chandrasekar, M., (2012). Effect of Al_2O_3–Cu/water hybrid nanofluid in heat transfer, Experimental Thermal and Fluid Science 38, 54-60.

[8] Selvakumar, P. & Suresh, S., (2012). Use of Al_2O_3-Cu/Water Hybrid Nanofluid in an Electronic Heat Sink, IEEE Transactions On Components, Packaging And Manufacturing Technology, 2(10), 1600-1607.

[9] L. Shahriary, A.A. Athawale, Grapheneoxide synthesized by using modified hummers approach, International Journal of Renewable Energy and Environmental Engineering, 2, 58 - 63 (2014).

[10] Neethumol Varghese, Manjusha Hariharan, A. Benny Cherian, Dr. P.V. Sreenivasan, Jenish Paul, Asmy Antony. K.A, PVA - Assisted Synthesis and Characterization of Nano α -Alumina, International Journal of Scientific and Research Publications, Volume 4, Issue 10, October 2014.

[11] Stephen F. Bartoluccia,., Joseph Parasa, Mohammad A. Rafieeb, Javad Rafieec, Sabrina Leea,Deepak Kapoora, Nikhil Koratkarc, Graphene–aluminum nanocomposites, Material Science and Engineering A vol. 528, pp. 7933– 7937, 2011.

[12] Ferni Malega, I.Putu Tedy Indrayana, Edi Suharyadi, Synthesis and characterization of the microstructure and functional group bond of Fe_3O_4 nanoparticles form natural iron sand in tobelo North Halmahera, Jurnal Ilmiah Pendidikan Fisika Al-BiRuNi, 7 (2018) pp 13-22.

[13] Ferni Malega, I.Putu Tedy Indrayana, Edi Suharyadi, Synthesis and characterization of the microstructure and functional group bond of Fe_3O_4 nanoparticles form natural iron sand in tobelo North Halmahera, Jurnal Ilmiah Pendidikan Fisika Al-BiRuNi, 7 (2018) pp 13-22

[14] S. Shiva Kumar, S.U.B. Ramakrishna, B. Rama Devi & V. Himabindu, Phosphorus-doped graphene supported palladium (Pd/PG) electrocatalyst for the hydrogen evolution reaction in PEM water electrolysis, International Journal of Green Energy, vol.15, 2018, pp. 558-567, DOI. 10.1080/15435075.2018.1508468

[15] Rogojan, R., Andronescu, E., Ghitulică, C., & Vasile, B. S., (2011). Synthesis And Characterization Of Alumina Nano-Powder Obtained By Sol-Gel Method, U.P.B. Sci. Bull, series B, 73(2), 2011.

[16] Omid M., Kianifar A., Heris S. Z., Wen D., Sahin Ahmet Z., Wongwises S., Nanofluids effects on the evaporation rate in a solar still equipped with a heat exchanger, Nano Energy 36 (2017) pp 134–155.

[17] Sun L., Structure and Synthesis of graphene oxide, Chinese Journal of Chemical Engineering, vol. 27, no. 10, pp. 2251-2260, 2019, DOI. 10.1016/j.cjche.2019.05.003

[18] Hà Quang Ánh, Nghiên cứu tổng hợp và đặc trưng vật liệu mới cấu trúc nano trên cơ sở graphene ứng dụng trong xử lý môi trường, Luận án tiến sĩ hóa học, Viện Hàn Lâm Khoa Học và Công Nghệ Việt Nam (2016).

[19] Xi Liu, Ling Xue, Xiaoquan Chen, Jisheng Liu, Hanhan Wang, Jianwei Xue, Fuxiang Li, Zhiping Lv, Iron oxide and Fe_2O_3/Al_2O_3 used to catalyze removing hydrogen from tail chlorine at low temperature, College of Chemistry and Chemical Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan.

[20] Nguyễn Hữu Hiếu, Đặng Thị Minh Kiều, Phan Thị Hoài Diễm, Tổng hợp Fe_3O_4/graphene oxide nanocomposite để xử lý nước thải nhiễm kim loại nặng, Đại học Bách Khoa, Đại học Quốc Gia Hồ Chí Minh.