



(12) BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ

(19) Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11)



1-0047632

(51)^{2006.01} C10G 11/18

(13) B

(21) 1-2022-03089

(22) 17/05/2022

(45) 25/06/2025 447

(43) 27/11/2023 428A

(73) 1. Phòng Thí nghiệm trọng điểm Công nghệ lọc hóa dầu (VN)

Số 2 Phạm Ngũ Lão, Phan Chu Trinh, Hoàn Kiếm, Hà Nội, Việt Nam

2. Viện Khoa học vật liệu - Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam (VN)

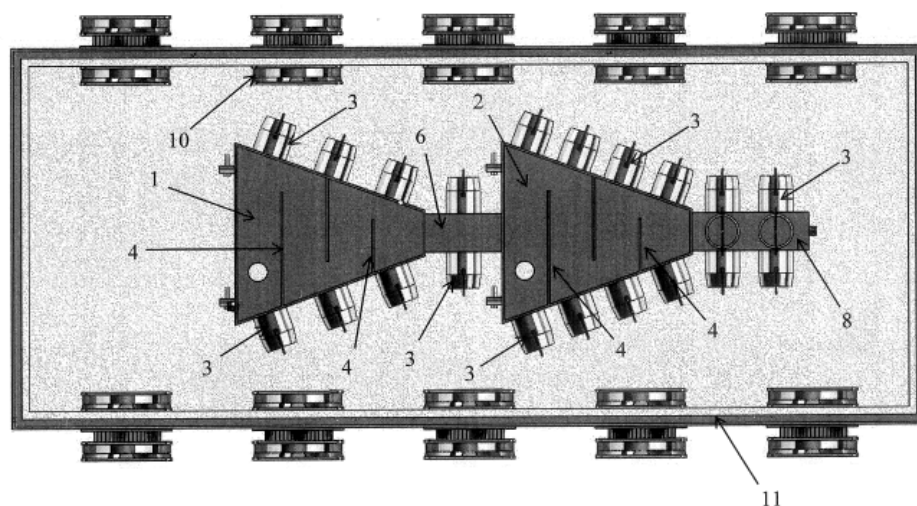
18 Hoàng Quốc Việt, phường Nghĩa Đô, quận Cầu Giấy, TP. Hà Nội, Việt Nam

(72) Bùi Hùng Thắng (VN); Vũ Thị Thu Hà (VN); Âu Thị Hằng (VN); Bùi Anh Tuấn (VN); Nguyễn Thị Vân Anh (VN); Bùi Thị Thùy (VN); Đoàn Đình Phương (VN).

(54) THIẾT BỊ RUNG SIÊU LIÊN HOÀN MẬT ĐỘ CÔNG SUẤT LỚN VÀ QUY TRÌNH CHẾ TẠO GRAPHEN TỪ GRAPHIT

(21) 1-2022-03089

(57) Sáng chế này đề xuất thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn bao gồm các bể rung sơ cấp và bể rung thứ cấp, mỗi bể rung có dạng hình lăng trụ tam giác làm từ vật liệu thép không gỉ, các đầu rung siêu âm được bố trí với số lượng lớn trên bề mặt hai cạnh của các bể rung. Bên trong các bể rung được bố trí các tấm ngăn tạo thành hình zic-zag. Phần kết nối giữa bể rung sơ cấp và bể rung thứ cấp là một ống rung sơ cấp dạng hình hộp chữ nhật làm từ vật liệu thép không gỉ, trên ống có gắn các đầu rung siêu âm. Ở phần đầu ra ở bể rung thứ cấp là một ống rung thứ cấp dạng hình hộp chữ nhật làm từ vật liệu thép không gỉ, trên ống có gắn các đầu rung siêu âm với mật độ lớn. Các đầu rung siêu âm được cấp điện từ các bộ nguồn siêu âm và được tản nhiệt bởi các quạt tản nhiệt, toàn bộ thiết bị rung siêu âm đặt trong một buồng cách âm. Sáng chế cũng đề xuất quy trình chế tạo graphen từ graphit trong pha lỏng ở quy mô lớn sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn.



Hình 1

Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế này đề cập đến thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn và quy trình chế tạo graphene từ graphit trong pha lỏng ở quy mô lớn sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Vật liệu graphene đã thu hút được sự quan tâm của nhiều nhà khoa học trong nhiều lĩnh vực khác nhau do chúng có những tính chất vật lý, hóa học đặc biệt ưu việt. Cụ thể graphene có độ linh động điện tử khá cao, giá trị ở nhiệt độ phòng vào khoảng $15.000 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, so sánh với độ linh động điện tử của silíc (Si) vào khoảng $1.400 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, của ống nano cacbon là xấp xỉ $10.000 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ và của chất bán dẫn hữu cơ vào khoảng $10 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. Điện trở suất của graphene cỡ khoảng $10^{-8} \Omega \cdot \text{m}$, thấp hơn so với điện trở suất của bạc (Ag) là $1,62 \cdot 10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$. Vì vậy graphene được biết đến như là vật liệu có điện trở suất thấp nhất trong các loại vật liệu ở nhiệt độ phòng. Điều này mở ra tiềm năng ứng dụng to lớn của graphene cho các linh kiện điện tử tiên tiến.

Độ dẫn nhiệt của vật liệu graphene đo được ở nhiệt độ phòng vào khoảng $5.000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ cao hơn các dạng thù hình khác của cacbon, than chì và kim cương. Graphene dẫn nhiệt như nhau theo các hướng trong cùng mặt phẳng. Ngày nay, khi kích thước các linh kiện điện tử điển hình như tranzitor, mạch logic ngày càng thu nhỏ, mật độ mạch tích hợp ngày càng cao thì yêu cầu tản nhiệt cho các linh kiện càng trở lên quan trọng. Do đó, với khả năng dẫn nhiệt đặc biệt tốt như vậy, graphene hứa hẹn sẽ là vật liệu tản nhiệt tiềm năng có khả năng ứng dụng trong các linh kiện điện tử công suất lớn.

Vật liệu graphene hầu như trong suốt, với vật liệu graphene ít lớp hấp thụ nhỏ hơn 2% cường độ ánh sáng và hầu như không phụ thuộc vào bước sóng trong vùng quang học. Vì thế màng mỏng trong suốt, dẫn điện cao làm bằng

vật liệu graphen đang được tích cực nghiên cứu và thử nghiệm. Ngoài ra, bề mặt graphen có thể hấp thụ và giải hấp thụ nhiều nguyên tử, phân tử và nhóm chức khác nhau (NO_2 , NH_3 , -K và -OH). Các chất hấp thụ liên kết yếu thể hiện vai trò như các chất cho/nhận và làm thay đổi nồng độ các hạt tải vì thế graphen có tính dẫn điện cao. Điều này có thể được khai thác cho các ứng dụng làm cảm biến hóa học.

Cho đến nay đã có nhiều phương pháp vật lý, hóa học để chế tạo ra vật liệu graphen. Trong số đó phương pháp tách lớp graphit trong pha lỏng tạo thành graphen là phương pháp đơn giản, có thể sản xuất graphen ở số lượng lớn từ nguyên liệu graphit với giá thành rẻ. Phương pháp này có thể tiến hành bằng kỹ thuật điện hóa tách lớp điện cực graphit chế tạo thành màng mỏng graphen phân tán trong dung dịch axit mạnh như H_2SO_4 , sau đó dung dịch axit H_2SO_4 chứa graphen được lọc và rửa nhiều lần để loại trừ axit. Tuy nhiên phương pháp này có hạn chế là phải sử dụng dung dịch axit không thân thiện với môi trường và đòi hỏi phải có công đoạn tách rửa thành phần axit trong quá trình chế tạo màng mỏng graphen. Ngoài ra, một phương pháp khác để chế tạo graphen từ graphit tách lớp trong pha lỏng là sử dụng sự tác động của dung môi lên graphit. Phương pháp này được thực hiện đầu tiên bởi Y. Hernandez với quy trình tách lớp gồm ba giai đoạn: phân tán graphit trong dung môi, tách lớp các lớp graphit thành graphen và cuối cùng là làm sạch sản phẩm graphen. Việc tách lớp các lớp graphit thành công đòi hỏi phải phá vỡ được lực liên kết Vander Waals giữa các lớp graphen liên kề trong graphit. Sử dụng thiết bị rung siêu âm là một phương pháp hiệu quả để tách lớp graphit thành graphen do sự tác động của năng lượng siêu âm tần số cao. Phương pháp tách pha lỏng có thể tiến hành trong nhiều dung môi khác nhau như DMA (Dimethylacetamide), DMSO (Dimethyl sulfoxide), Vinyl Pyrrolidinone (NVP), ...

Hiệu quả của quá trình tách lớp graphit thành graphen phụ thuộc nhiều vào mật độ công suất siêu âm, nếu mật độ công suất siêu âm càng lớn thì sẽ tạo ra tác động cơ học siêu âm càng mạnh để làm tăng hiệu quả tách lớp các lớp

graphit thành graphen. Tuy nhiên các thiết bị rung siêu âm hiện nay là các thiết bị bể kín, do vậy việc chế tạo liên tục vật liệu graphen từ graphit đòi hỏi phải có một thiết kế hoàn toàn mới để vừa đảm bảo có mật độ công suất siêu âm lớn, lại vừa có khả năng chế tạo liên hoàn. Từ những lý do trên, sáng chế này đề xuất thiết bị rung siêu âm với cấu trúc đặc biệt để có được mật độ công suất lớn và tính liên hoàn thay cho thiết bị rung siêu âm thông thường. Sáng chế này cũng đề xuất quy trình chế tạo graphen từ graphit sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn nêu trên.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Rung siêu âm là công nghệ được sử dụng để tổng hợp các hạt tinh thể nanô, làm sạch nước thải, khử khí, chiết xuất rong biển và dầu thực vật, sản xuất nhiên liệu sinh học, khử lưu huỳnh dầu thô,... Bên cạnh đó công nghệ rung siêu âm còn được dùng để tăng tốc độ hòa tan bằng cách phá vỡ các tương tác giữa các phân tử. Trong quá trình tách lớp graphit thành graphen, phương pháp này cung cấp năng lượng cơ học nhằm phá vỡ liên kết Vander Walls để tách lớp graphit thành graphen thông qua sự tác động của sóng siêu âm tần số cao. Về cơ chế, sóng siêu âm là sóng âm với tần số cao từ 20 – 10.000 kHz với bước sóng ngắn. Trong môi trường chất lỏng sóng siêu âm làm cho dung môi lúc thì bị nén lại, lúc thì bị giãn ra nhanh chóng tạo ra những bọt bong bóng chân không siêu nhỏ, với kích thước siêu nhỏ này nó có thể xâm nhập vào giữa các lớp graphen trong graphit. Năng lượng nhiệt được tạo ra trong suốt quá trình siêu âm cùng với sóng ép và sóng giảm khiến các bọt khí cộng hưởng vỡ ra dẫn đến sự tăng áp suất giữa các lớp graphen trong graphit dẫn đến hệ quả các lớp graphen bị tách ra. Hiệu quả của quá trình tách lớp graphit thành graphen phụ thuộc lớn vào mật độ công suất siêu âm, trong đó mật độ công suất được xác định theo công thức:

$$\rho = \frac{P}{V}$$

Trong đó: P là tổng công suất siêu âm (W)

V là thể tích của bể rung siêu âm (m^3)

ρ là mật độ công suất siêu âm (W/m^3)

Vì vậy, để tạo ra hiệu quả bóc tách graphite thành graphene thì số lượng đầu rung siêu âm sử dụng trong thiết bị phải lớn để đạt được mật độ công suất lớn. Bên cạnh đó để đảm bảo thiết bị rung siêu âm có thể chế tạo vật liệu graphene ở quy mô lớn cho mục đích công nghiệp thì thiết bị phải hoạt động liên hoàn với nguyên liệu vào và sản phẩm ra liên tục trong quá trình chế tạo. Bên cạnh đó dựa trên nguyên lý vật liệu graphite không bị bóc tách sẽ có xu hướng lắng xuống đáy, vật liệu graphene có xu hướng phân tán đều và nổi lên trong dung môi, từ đây thiết bị được thiết kế để thành phần graphite có hiệu quả bóc tách thấp sẽ bị loại bỏ qua một đầu ra ở đáy bể rung, thành phần graphite có hiệu quả bóc tách cao hơn sẽ tiếp tục quá trình siêu âm thông qua lõi ra ở phía trên bể rung để tạo thành vật liệu graphene có chất lượng cao.

Dựa trên cách tiếp cận này chúng tôi đề xuất thiết bị rung siêu âm có mật độ công suất lớn trong đó có cấu tạo gồm hai bể rung là bể rung sơ cấp và bể rung thứ cấp. Mỗi bể rung có dạng hình lăng trụ tam giác, các đầu rung siêu âm được bố trí với số lượng lớn trên bề mặt cạnh của bể rung. Nhờ bể rung có cấu trúc dạng hình lăng trụ tam giác nên mật độ công suất siêu âm sẽ tăng dần ở đầu ra. Bên trong bể rung được bố trí các tấm ngăn tạo thành hình zig-zag để tăng quãng đường đi của chất lỏng trong bể rung siêu âm. Bể rung sơ cấp có tác dụng phân tán và bóc tách sơ bộ vật liệu graphite, từ đây lọc ra thành phần graphite khó bóc tách, phần còn lại được đưa tới bể rung thứ cấp. Phần kết nối giữa bể rung sơ cấp và bể rung thứ cấp là một ống rung sơ cấp dạng hình hộp chữ nhật, trên ống có gắn các đầu rung siêu âm để khi chất lỏng chảy qua sẽ được sóng siêu âm tác động để tiếp tục bóc tách graphite thành graphene ở phần này. Bể rung thứ cấp với mật độ công suất lớn hơn có tác dụng bóc tách graphite thành graphene, đồng thời loại bỏ phần vật liệu graphene có chất lượng thấp, giữ lại phần vật liệu graphene có chất lượng cao. Đặc biệt ở phần đầu ra ở bể rung

thứ cấp là một ống rung thứ cấp dạng hình hộp chữ nhật, trên ống có gắn các đầu rung siêu âm với mật độ lớn để khi chất lỏng chảy qua sẽ được sóng siêu âm mật độ công suất lớn tác động và bóc tách để thu được vật liệu graphen có chất lượng cao.

Sáng chế này cũng đề xuất quy trình chế tạo graphen từ graphit sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn nêu trên.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Hình 1 là bản vẽ mặt cắt của thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn.

Hình 2 là phối cảnh 3D của thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn.

Hình 3 là ảnh chụp các bề rung của một thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn thực tế chế tạo được.

Hình 4 là ảnh chụp kính hiển vi điện tử quét của nguyên liệu graphit.

Hình 5 là ảnh chụp kính hiển vi điện tử quét của vật liệu graphen sau khi tách lớp từ graphit bằng thiết bị rung siêu âm.

Hình 6 là ảnh chụp kính hiển vi điện tử truyền qua của vật liệu graphen sau khi tách lớp từ graphit bằng thiết bị rung siêu âm.

Mô tả chi tiết sáng chế

Thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn có cấu tạo được như mô tả như trên hình 1. Thiết bị bao gồm hai bề rung siêu âm là bề rung sơ cấp 1 và bề rung thứ cấp 2, mỗi bề rung có dạng hình lăng trụ tam giác làm từ vật liệu thép không gỉ, phần chất lỏng đi vào ở phía đáy và phần chất lỏng đi ra ở phía đỉnh của lăng trụ bề rung. Các đầu rung siêu âm 3 được bố trí với số lượng lớn trên bề mặt hai cạnh của các bề rung. Bên trong các bề rung được bố trí các tấm ngăn 4 tạo thành hình zic-zag để tăng quãng đường đi của chất lỏng trong bề rung siêu âm. Bề rung sơ cấp 1 với số lượng đầu rung siêu âm 3 ít hơn bề

rung thứ cấp 2 nhằm tác dụng phân tán và bóc tách sơ bộ vật liệu graphit, từ đây lọc ra thành phần graphit khó bóc tách thông qua một đầu thải sơ cấp 5 ở đáy bể rung sơ cấp, phần graphit còn lại phân tán trong dung môi được đưa tới bể rung thứ cấp. Phần kết nối giữa bể rung sơ cấp 1 và bể rung thứ cấp 2 là một ống rung sơ cấp 6 dạng hình hộp chữ nhật làm từ vật liệu thép không gỉ, trên ống có gắn các đầu rung siêu âm 3 để khi chất lỏng chảy qua sẽ được sóng siêu âm tiếp tục tác động để bóc tách graphit thành graphen. Bể rung thứ cấp 2 với số lượng đầu rung siêu âm 3 nhiều hơn bể rung sơ cấp 1 nhằm tạo mật độ công suất lớn hơn có tác dụng bóc tách graphit thành graphen, đồng thời loại bỏ phần vật liệu graphen có chất lượng thấp thông qua một đầu thải thứ cấp 7 ở đáy bể rung thứ cấp, và giữ lại phần vật liệu graphen có chất lượng cao. Đặc biệt ở phần đầu ra ở bể rung thứ cấp 2 là một ống rung thứ cấp 8 dạng hình hộp chữ nhật làm từ vật liệu thép không gỉ, trên ống có gắn các đầu rung siêu âm 3 với mật độ lớn để khi chất lỏng chảy qua sẽ được sóng siêu âm mật độ công suất lớn nhất tác động và bóc tách để thu được vật liệu graphen có chất lượng cao. Các đầu rung siêu âm 3 được cấp nguồn điện từ các bộ nguồn siêu âm 9 và được tản nhiệt bởi các quạt tản nhiệt 10. Thiết bị rung siêu âm đặt trong một buồng cách âm 11 để đảm bảo sóng siêu âm với cường độ lớn không ảnh hưởng đến tai của người vận hành thiết bị.

Trong một phương án khác, xung quanh đầu rung siêu âm 3 được lắp thêm các vây tản nhiệt để nâng cao hiệu quả tản nhiệt cho đầu rung siêu âm 3, qua đó giúp đầu rung siêu âm 3 hoạt động ổn định hơn.

Trong một phương án khác, đầu rung siêu âm 3 được tản nhiệt bằng hệ thống tản nhiệt sử dụng chất lỏng, qua đó đạt hiệu quả cao hơn so với phương pháp tản nhiệt bằng quạt thông thường.

Trong một phương án khác, thiết bị bao gồm nhiều bể rung thứ cấp 2 nối tiếp nhau bằng các ống rung thứ cấp 8 để nâng cao hơn nữa chất lượng vật liệu graphen chế tạo được.

Sáng chế cũng đề xuất quy trình chế tạo graphen từ graphit trong pha lỏng

ở quy mô lớn sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn, quy trình này bao gồm các bước như sau:

- Vật liệu bột graphit 12 được phân tán sơ bộ vào dung môi 13 bằng thiết bị khuấy từ hoặc siêu âm để thu được hỗn hợp 14. Vật liệu bột graphit 12 đảm bảo có kích thước vảy hoặc kích thước hạt nhỏ hơn 10 μm . Dung môi 13 có thể là nước cất, DMA (Dimethylacetamide), DMSO (Dimethyl sulfoxide), NVP (Vinylpyrrolidinone), DMFD (Dimethylformamide), hay các dung môi hữu cơ khác từ dẫn xuất của benzen, toluen, nitrobenzen, pyridine, hoặc các dung môi tương đương khác, hoặc là hỗn hợp của chúng.

- Đưa hỗn hợp 14 vào bể rung sơ cấp 1 của thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn và tiến hành bật các đầu rung siêu âm của bể rung sơ cấp 1, các đầu rung khác của thiết bị ở trạng thái tắt do chưa có chất lỏng ở bể rung thứ cấp 2, ống rung sơ cấp 6 và ống rung thứ cấp 8.

- Đến khi hỗn hợp 14 chiếm gần đầy bể rung sơ cấp 1 thì hỗn hợp 14 bắt đầu chảy vào bể rung thứ cấp 2, lúc này tiến hành bật các đầu rung siêu âm của bể rung thứ cấp 2.

- Đến khi hỗn hợp 14 chiếm đầy bể rung thứ cấp 2 thì hỗn hợp 14 tiếp tục dâng lên cao và chiếm dần thể tích của ống rung sơ cấp 6 và ống rung thứ cấp 8, lúc này tiến hành bật các đầu rung siêu âm của ống rung sơ cấp 6 và ống rung thứ cấp 8.

- Đến khi hỗn hợp 14 chiếm đầy thể tích của ống rung sơ cấp 6 và ống rung thứ cấp 8, lúc này bắt đầu mở các đầu thải sơ cấp 5 và đầu thải thứ cấp 7 ở lưu lượng nhỏ, tổng lưu lượng của đầu thải sơ cấp 5 và đầu thải thứ cấp 7 phải nhỏ hơn lưu lượng vào của hỗn hợp 14, mục đích là để loại bỏ thành phần graphit khó bóc tách khỏi bể rung sơ cấp 1 và loại bỏ phần vật liệu graphen có chất lượng thấp khỏi bể rung thứ cấp 2, phần còn lại thu được là hỗn hợp sau tách lớp 15 ở đầu ra của ống rung thứ cấp 8. Quá trình siêu âm bóc tách chế tạo graphen từ graphit được thực hiện liên tục trên thiết bị ở trạng thái này.

- Hỗn hợp sau tách lớp 15 được loại bỏ dung môi bằng máy quay ly tâm

16 để thu được vật liệu sau tách lớp 17.

- Vật liệu sau tách lớp 17 được phân tán vào nước cất 18 bằng thiết bị khuấy từ hoặc rung siêu âm, sau đó tiếp tục sử dụng thiết bị quay ly tâm 16 để loại bỏ nước cất và dung môi còn dư thừa, quá trình này được lặp lại nhiều lần cho đến khi loại bỏ được dung môi để thu được vật liệu graphen 19.

- Vật liệu graphen 19 được đưa vào tủ sấy 20 trong thời gian thích hợp để loại bỏ nước cất và thu được vật liệu graphen 21.

Trong một phương án khác, thiết bị quay ly tâm 16 trong quy trình trên được thay bằng thiết bị lọc hút chân không 22.

Trong một phương án khác, vật liệu bột graphit 12 trước khi phân tán vào dung môi 13 được ngâm vào chất hoạt động bề mặt 23 trong một khoảng thời gian thích hợp để chất hoạt động bề mặt 23 hấp thụ lên vật liệu bột graphit 12 tạo thành graphit sau xử lý bề mặt 24, sau đó mới phân tán sơ bộ graphit sau xử lý bề mặt 24 vào dung môi 13. Chất hoạt động bề mặt được sử dụng có thể là CTAB (Cetyl Trimethylammonium Bromua), CPC (Cetyl Pyridinium Clorua), POEA (Polyethoxylated Tallow Amin), BAC (Benzalkonium Clorua), BZT (Benzethonium Clorua), Natri Dodecyl Sulfat (SDS), Amoni Lauryl Sulfat (ALS), Natri Laureth Sulfat, Natri Lauryl Ete Sulfat (SLES), Ankyll Benzen Sulfonat, Ankyll Poly (etylen oxit), Octyl Glucozit, Decyl Maltosit, xà phòng, các muối của axit béo, các muối ankyll sulfat, các rượu béo, rượu cetyl, rượu oleyl, hoặc các chất hoạt động bề mặt tương đương khác.

Ví dụ thực hiện sáng chế

Sáng chế trở nên sáng tỏ hơn qua ví dụ sau:

Thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn có mô tả cấu tạo dạng 3D như trên hình 2 và hình ảnh thực tế chế tạo như trên hình 3. Thiết bị bao gồm hai bề rung siêu âm là bề rung sơ cấp và bề rung thứ cấp làm từ vật liệu thép không gỉ, mỗi bề rung có dạng hình lăng trụ tam giác với kích thước cạnh đáy 24 cm, cạnh bên 25 cm và chiều cao 26 cm. Các đầu rung siêu âm có

tần số 40 kHz, công suất 100W được bố trí với số lượng lớn trên bề mặt hai cạnh của các bể rung. Bên trong các bể rung được bố trí 3 tấm ngăn tạo thành hình zig-zag để tăng quãng đường đi của chất lỏng trong bể rung siêu âm. Bể rung sơ cấp có số lượng đầu rung siêu âm ít hơn bể rung thứ cấp, cụ thể bể rung sơ cấp có 12 đầu rung và bể rung thứ cấp có 18 đầu rung. Ở đáy và phía cuối bể rung sơ cấp có một đầu thải sơ cấp. Phần kết nối giữa bể rung sơ cấp và bể rung thứ cấp là một ống rung sơ cấp dạng hình hộp chữ nhật làm từ vật liệu thép không gỉ với chiều cao 5 cm, chiều rộng 5 cm và chiều dài 10 cm, trên ống có gắn 2 đầu rung siêu âm để khi chất lỏng chảy qua sẽ được sóng siêu âm tiếp tục tác động để bóc tách graphit thành graphen. Ở đáy và phía cuối bể rung thứ cấp có một đầu thải thứ cấp. Ở phần đầu ra ở bể rung thứ cấp là một ống rung thứ cấp dạng hình hộp chữ nhật làm từ vật liệu thép không gỉ với chiều cao 5 cm, chiều rộng 5 cm và chiều dài 14 cm, trên ống có gắn 8 đầu rung siêu âm để khi chất lỏng chảy qua sẽ được sóng siêu âm mật độ công suất lớn nhất tác động và bóc tách để thu được vật liệu graphen có chất lượng cao. Các đầu rung siêu âm được cấp nguồn điện từ các bộ nguồn siêu âm công suất 100 W, tần số 40 kHz và được tản nhiệt bởi các quạt tản nhiệt. Thiết bị rung siêu âm đặt trong một buồng cách âm để đảm bảo sóng siêu âm với cường độ lớn không ảnh hưởng đến tai của người vận hành thiết bị.

Với thiết kế này mật độ công suất của thiết bị có thể đạt giá trị lớn nhất ở ống rung thứ cấp để bóc tách graphit thành graphen có chất lượng tốt là:

$$\rho = \frac{P}{V} = \frac{800W}{0,35l} = 2.286 (W/l)$$

Quy trình chế tạo vật liệu graphen bằng phương pháp tách lớp graphit trong pha lỏng ở quy mô lớn sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn bao gồm các bước như sau:

- Vật liệu bột graphit ban đầu ở dạng vảy với kích thước trong dải từ 2 - 5 μm (Hình 4) được khuấy vào dung môi là DMF (Dimethylformamide) bằng thiết bị khuấy từ để thu được hỗn hợp Graphit/DMF.

- Đưa hỗn hợp Graphit/DMF với lưu lượng 100 ml/phút vào bể rung sơ cấp của thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn và tiến hành bật các đầu rung siêu âm của bể rung sơ cấp, các đầu rung khác của thiết bị ở trạng thái tắt.

- Đến khi hỗn hợp Graphit/DMF chiếm gần đầy bể rung sơ cấp thì hỗn hợp Graphit/DMF bắt đầu chảy vào bể rung thứ cấp, lúc này tiến hành bật các đầu rung siêu âm của bể rung thứ cấp.

- Đến khi hỗn hợp Graphit/DMF chiếm đầy bể rung thứ cấp thì hỗn hợp Graphit/DMF tiếp tục dâng lên cao và chiếm dần thể tích của ống rung sơ cấp và ống rung thứ cấp, lúc này tiến hành bật các đầu rung siêu âm của ống rung sơ cấp và ống rung thứ cấp.

- Đến khi hỗn hợp Graphit/DMF chiếm đầy thể tích của ống rung sơ cấp và ống rung thứ cấp, lúc này bắt đầu mở các đầu thải sơ cấp ở lưu lượng 20 ml/phút và đầu thải thứ cấp ở lưu lượng 10 ml/phút, phần còn lại thu được là hỗn hợp sau tách lớp ở đầu ra của ống rung thứ cấp với lưu lượng 70 ml/phút. Quá trình siêu âm bóc tách chế tạo graphen từ graphit được thực hiện liên tục trên thiết bị ở trạng thái này.

- Hỗn hợp sau tách lớp được loại bỏ dung môi DMF bằng máy quay ly tâm để thu được vật liệu sau tách lớp.

- Vật liệu sau tách lớp được phân tán vào nước cất bằng thiết bị khuấy từ và rung siêu âm, sau đó tiếp tục sử dụng thiết bị quay ly tâm để loại bỏ nước cất và dung môi DMF còn dư thừa, quá trình này được lặp lại nhiều lần cho đến khi loại bỏ được dung môi DMF để thu được vật liệu graphen ướt.

- Vật liệu graphen ướt được đưa vào tủ sấy trong 24 giờ nhằm loại bỏ nước cất còn dư thừa để thu được vật liệu graphen.

Sau các bước thực hiện như trên, kết quả thu được là vật liệu graphen với kích thước vảy từ 1 - 5 μm và bề dày từ 3 – 8 nm như được thể hiện ở trên các Hình 5 và Hình 6.

Hiệu quả kỹ thuật của sáng chế

Sáng chế này đề xuất thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn và quy trình chế tạo graphen từ graphit trong pha lỏng ở quy mô lớn sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn với hiệu quả kỹ thuật cao được thể hiện qua các điểm như sau:

- Thứ nhất: Sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn có ưu điểm là thiết bị có thể thực hiện quá trình tách lớp graphit chế tạo graphen một cách liên tục và liên hoàn, qua đó nâng cao được công suất và quy mô của quá trình chế tạo.

- Thứ hai: Thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn bao gồm bể rung sơ cấp và bể rung thứ cấp, trong đó bể rung sơ cấp có tác dụng phân tán và bóc tách sơ bộ vật liệu graphit, từ đây lọc ra thành phần graphit khó bóc tách, phần còn lại được đưa tới bể rung thứ cấp. Bể rung thứ cấp với mật độ công suất lớn hơn có tác dụng bóc tách graphit thành graphen, đồng thời loại bỏ phần vật liệu graphen có chất lượng thấp, giữ lại phần vật liệu graphen có chất lượng cao. Với sự kết hợp này sản phẩm graphen thu được sẽ có chất lượng tốt hơn so trường hợp chỉ có một bể rung siêu âm.

- Thứ ba: Đặc biệt ở phần đầu ra ở bể rung thứ cấp là một ống rung thứ cấp dạng hình hộp chữ nhật, trên ống có gắn các đầu rung siêu âm với mật độ lớn, giúp tăng tới đa mật độ công suất của thiết bị, qua đó nâng cao đáng kể hiệu quả tách lớp graphit thành vật liệu graphen trong pha lỏng.

- Thứ tư: Sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn để tách lớp graphit trong pha giúp sử dụng hiệu quả nguồn nguyên liệu graphit phong phú và phổ biến tại Việt Nam.

- Thứ năm: Sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn để tách lớp graphit trong pha lỏng còn có thể thực hiện được với nước cất mà không cần đến các dung môi hữu cơ khác, qua đó giúp giảm thiểu công đoạn chế tạo làm sạch, không gây ô nhiễm môi trường, đồng thời làm giảm giá thành của sản phẩm.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn có cấu tạo bao gồm những bộ phận sau:

các bể rung siêu âm là bể rung sơ cấp (1) và bể rung thứ cấp (2), mỗi bể rung có dạng hình lăng trụ tam giác làm từ vật liệu thép không gỉ, phần chất lỏng đi vào ở phía đáy và phần chất lỏng đi ra ở phía đỉnh của lăng trụ bể rung;

các đầu rung siêu âm (3) được bố trí với số lượng lớn trên bề mặt hai cạnh của các bể rung; bên trong các bể rung được bố trí các tấm ngăn (4) tạo thành hình zic-zag để tăng quãng đường đi của chất lỏng trong bể rung siêu âm;

bể rung sơ cấp (1) với số lượng đầu rung siêu âm (3) ít hơn bể rung thứ cấp (2) nhằm tác dụng phân tán và bóc tách sơ bộ vật liệu graphit, từ đây lọc ra thành phần graphit khó bóc tách thông qua một đầu thải sơ cấp (5) ở đáy bể rung sơ cấp, phần graphit còn lại phân tán trong dung môi được đưa tới bể rung thứ cấp;

phần kết nối giữa bể rung sơ cấp (1) và bể rung thứ cấp (2) là một ống rung sơ cấp (6) dạng hình hộp chữ nhật làm từ vật liệu thép không gỉ, trên ống có gắn các đầu rung siêu âm (3) để khi chất lỏng chảy qua sẽ được sóng siêu âm tiếp tục tác động để bóc tách graphit thành graphen;

bể rung thứ cấp (2) với số lượng đầu rung siêu âm (3) nhiều hơn bể rung sơ cấp (1) nhằm tạo mật độ công suất lớn hơn có tác dụng bóc tách graphit thành graphen, đồng thời loại bỏ phần vật liệu graphen có chất lượng thấp thông qua một đầu thải thứ cấp (7) ở đáy bể rung thứ cấp, và giữ lại phần vật liệu graphen có chất lượng cao;

ở phần đầu ra ở bể rung thứ cấp (2) là một ống rung thứ cấp (8) dạng hình hộp chữ nhật làm từ vật liệu thép không gỉ, trên ống có gắn các đầu rung siêu âm (3) với mật độ lớn để khi chất lỏng chảy qua sẽ được sóng siêu âm mật độ công suất lớn nhất tác động và bóc tách để thu được vật liệu graphen có chất

lượng cao;

các đầu rung siêu âm (3) được cấp nguồn điện từ các bộ nguồn siêu âm (9) và được tản nhiệt bởi các quạt tản nhiệt (10);

thiết bị rung siêu âm đặt trong một buồng cách âm (11) để đảm bảo sóng siêu âm với cường độ lớn không ảnh hưởng đến tai của người vận hành thiết bị.

2. Thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn theo điểm 1, trong đó xung quanh đầu rung siêu âm (3) được lắp thêm các vây tản nhiệt để nâng cao hiệu quả tản nhiệt cho đầu rung siêu âm (3), qua đó giúp đầu rung siêu âm (3) hoạt động ổn định hơn.

3. Thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn theo điểm 1 hoặc điểm 2, trong đó đầu rung siêu âm (3) được tản nhiệt bằng hệ thống tản nhiệt sử dụng chất lỏng, qua đó đạt hiệu quả cao hơn so với phương pháp tản nhiệt bằng quạt thông thường.

4. Thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn theo một trong số các điểm trên, trong đó thiết bị bao gồm nhiều bể rung thứ cấp (2) nối tiếp nhau bằng các ống rung thứ cấp (8) để nâng cao hơn nữa chất lượng vật liệu graphen chế tạo được.

5. Quy trình chế tạo graphen từ graphit trong pha lỏng ở quy mô lớn sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn theo một trong số các điểm trên, bao gồm các bước sau:

vật liệu bột graphit (12) được phân tán sơ bộ vào dung môi (13) bằng thiết bị khuấy từ hoặc siêu âm để thu được hỗn hợp (14), vật liệu bột graphit 12 đảm bảo có kích thước vảy hoặc kích thước hạt nhỏ hơn 10 μm , dung môi 13 có thể là nước cất, DMA (Dimethylacetamide), DMSO (Dimetyl sulfoxide), NVP (Vinylpyrrolidinone), DMFD (Dimetylformamide), hay các dung môi hữu cơ khác từ dẫn xuất của benzen, toluen, nitrobenzen, pyridine, hoặc các dung môi tương đương khác, hoặc là hỗn hợp của chúng;

đưa hỗn hợp (14) vào bể rung sơ cấp (1) của thiết bị rung siêu âm liên

hoàn mật độ công suất lớn và tiến hành bật các đầu rung siêu âm của bể rung sơ cấp (1), các đầu rung khác của thiết bị ở trạng thái tắt do chưa có chất lỏng ở bể rung thứ cấp (2), ống rung sơ cấp (6) và ống rung thứ cấp (8);

đến khi hỗn hợp (14) chiếm gần đầy bể rung sơ cấp (1) thì hỗn hợp (14) bắt đầu chảy vào bể rung thứ cấp (2), lúc này tiến hành bật các đầu rung siêu âm của bể rung thứ cấp (2);

đến khi hỗn hợp (14) chiếm đầy bể rung thứ cấp (2) thì hỗn hợp (14) tiếp tục dâng lên cao và chiếm dần thể tích của ống rung sơ cấp (6) và ống rung thứ cấp (8), lúc này tiến hành bật các đầu rung siêu âm của ống rung sơ cấp (6) và ống rung thứ cấp (8);

đến khi hỗn hợp (14) chiếm đầy thể tích của ống rung sơ cấp (6) và ống rung thứ cấp (8), lúc này bắt đầu mở các đầu thải sơ cấp (5) và đầu thải thứ cấp (7) ở lưu lượng nhỏ, tổng lưu lượng của đầu thải sơ cấp (5) và đầu thải thứ cấp (7) phải nhỏ hơn lưu lượng vào của hỗn hợp (14), mục đích là để loại bỏ thành phần graphit khó bóc tách khỏi bể rung sơ cấp (1) và loại bỏ phần vật liệu graphen có chất lượng thấp khỏi bể rung thứ cấp (2), phần còn lại thu được là hỗn hợp sau tách lớp (15) ở đầu ra của ống rung thứ cấp (8), quá trình siêu âm bóc tách chế tạo graphen từ graphit được thực hiện liên tục trên thiết bị ở trạng thái này;

hỗn hợp sau tách lớp (15) được loại bỏ dung môi bằng máy quay ly tâm (16) để thu được vật liệu sau tách lớp (17);

vật liệu sau tách lớp (17) được phân tán vào nước cất (18) bằng thiết bị khuấy từ hoặc rung siêu âm, sau đó tiếp tục sử dụng thiết bị quay ly tâm (16) để loại bỏ nước cất và dung môi còn dư thừa, quá trình này được lặp lại nhiều lần cho đến khi loại bỏ được dung môi để thu được vật liệu graphen ướt (19);

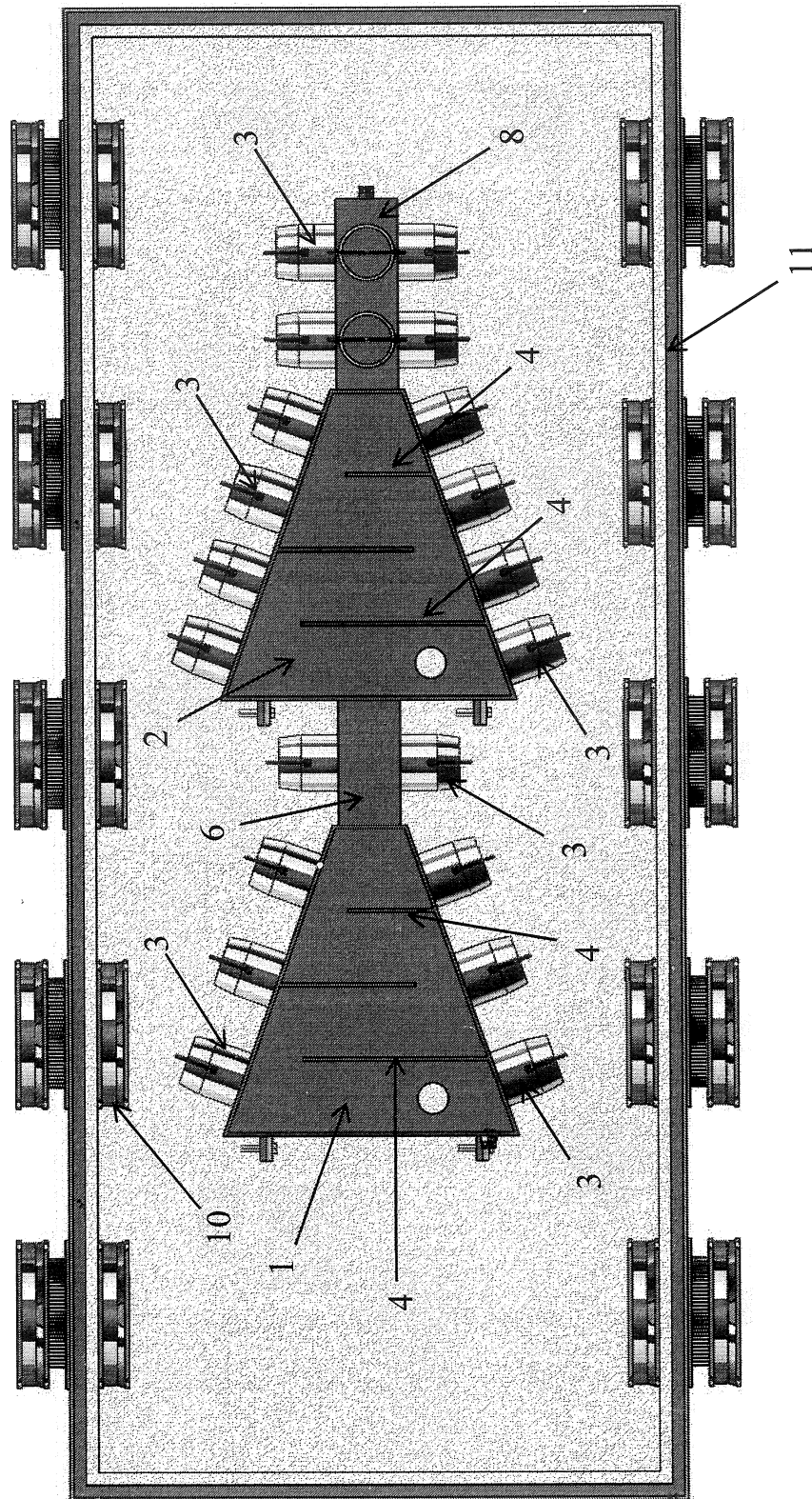
vật liệu graphen ướt (19) được đưa vào tủ sấy (20) trong thời gian thích hợp để loại bỏ nước cất và thu được vật liệu graphen (21).

6. Quy trình chế tạo graphen từ graphit trong pha lỏng ở quy mô lớn sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn theo điểm 5, trong

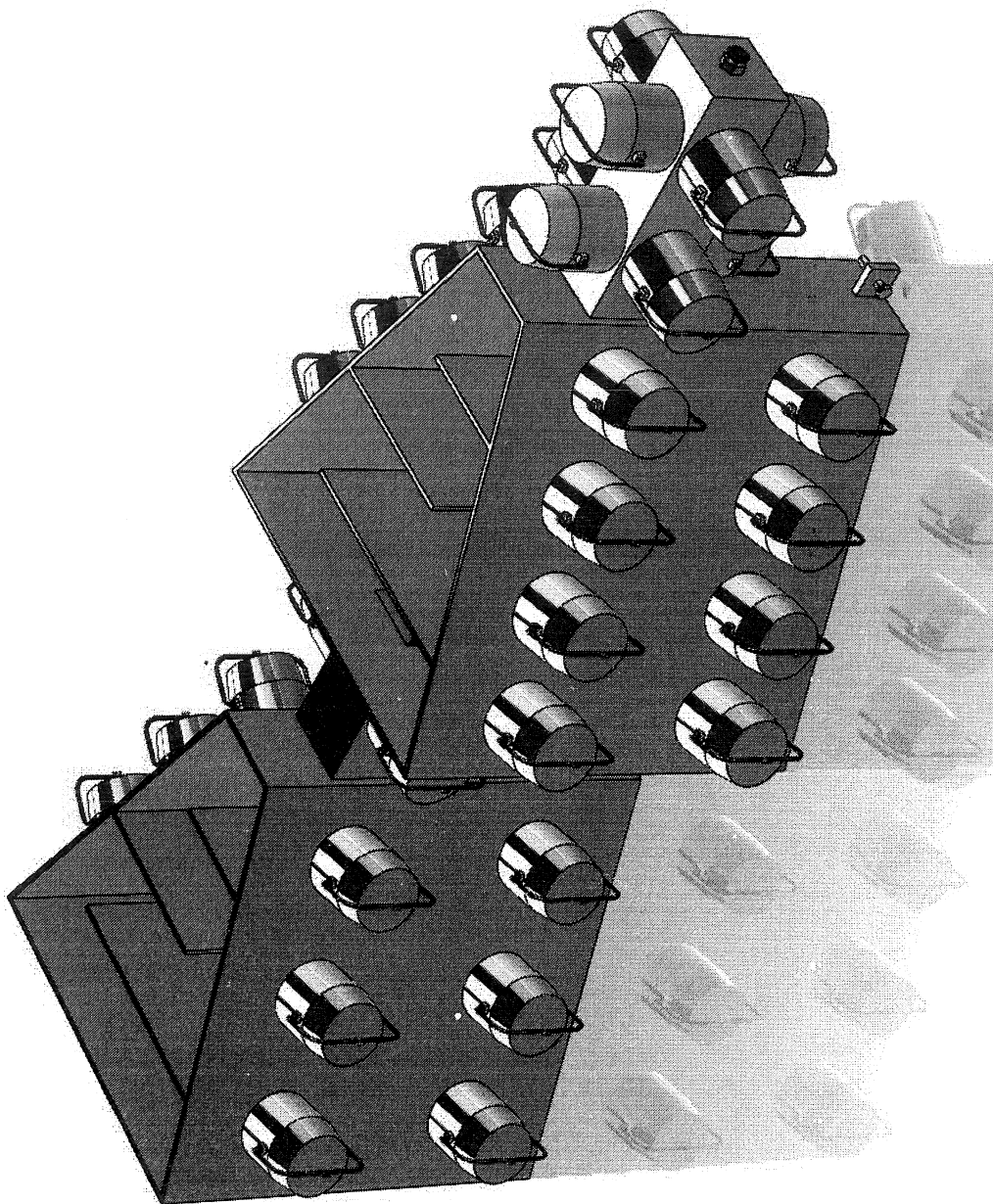
đó thiết bị quay ly tâm (16) trong quy trình trên được thay bằng thiết bị lọc hút chân không (22).

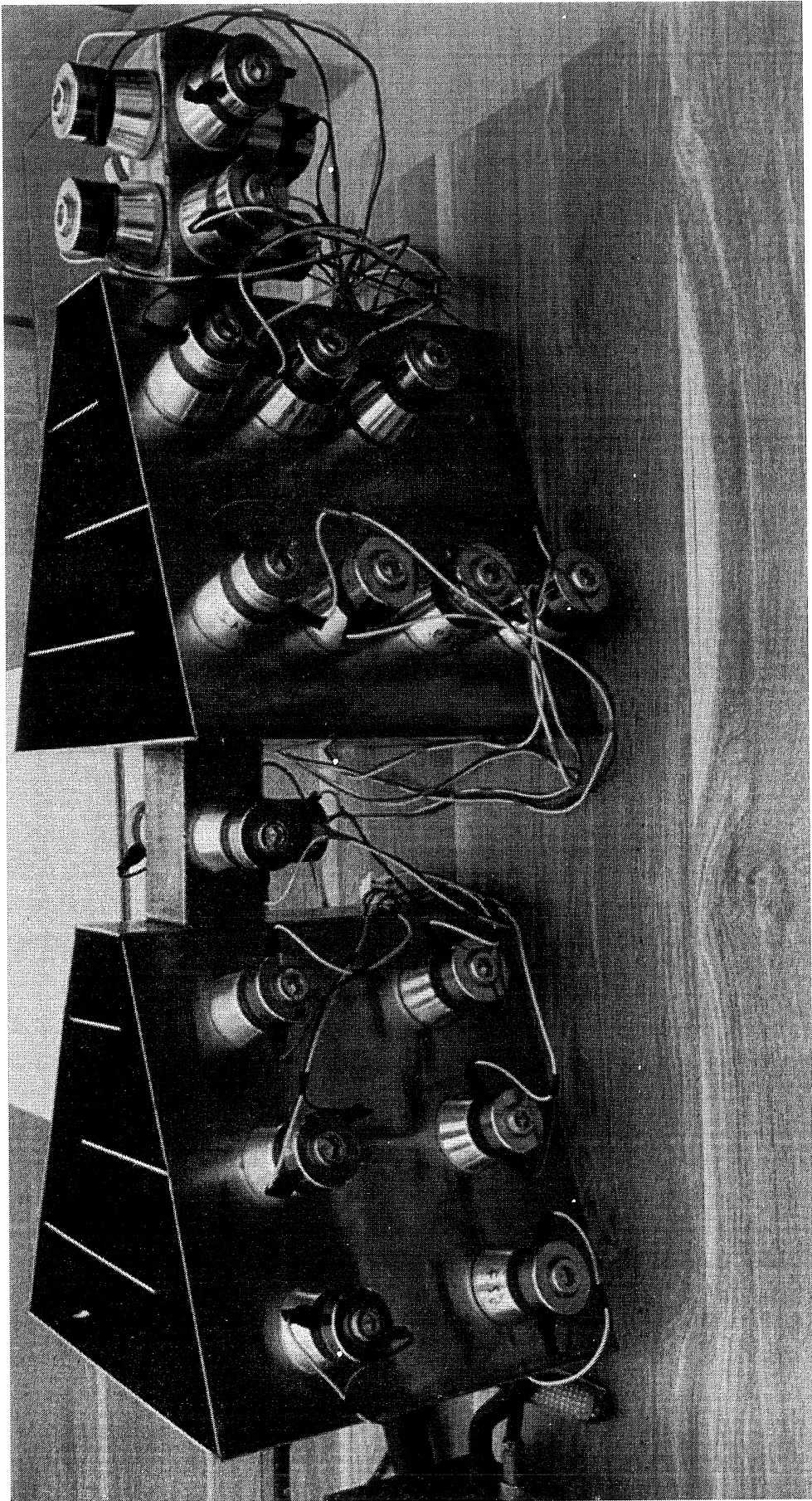
7. Quy trình chế tạo graphen từ graphit trong pha lỏng ở quy mô lớn sử dụng thiết bị rung siêu âm liên hoàn mật độ công suất lớn theo điểm 5 hoặc điểm 6, trong đó vật liệu bột graphit (12) trước khi phân tán vào dung môi (13) được ngâm vào chất hoạt động bề mặt (23) trong một khoảng thời gian thích hợp để chất hoạt động bề mặt (23) hấp thụ lên vật liệu bột graphit (12) tạo thành graphit sau xử lý bề mặt (24), sau đó mới phân tán sơ bộ graphit sau xử lý bề mặt (24) vào dung môi (13);

chất hoạt động bề mặt được sử dụng có thể là CTAB (Cetyl Trimethylammonium Bromua), CPC (Cetyl Pyridinium Clorua), POEA (Polyethoxylated Tallow Amin), BAC (Benzalkonium Clorua), BZT (Benzethonium Clorua), Natri Dodecyl Sulfat (SDS), Amoni Lauryl Sulfat, Natri Laureth Sulfat, Natri Lauryl Ete Sulfat (SLES), Ankyt Benzen Sulfonat, Ankyt Poly(etylen oxit), Octyl Glucozit, Decyl Maltosit, xà phòng, các muối của axit béo, các muối ankyt sulfat, các rượu béo, rượu cetyl, rượu oleyl, hoặc các chất hoạt động bề mặt tương đương khác.

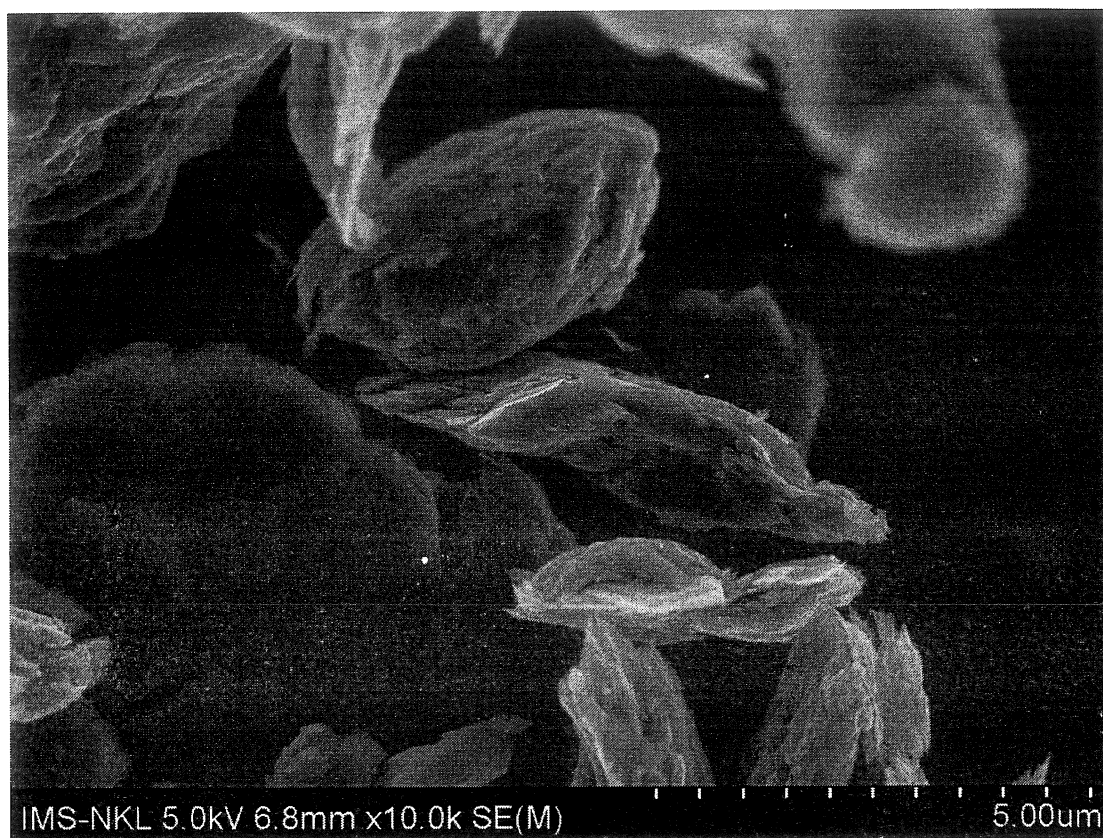
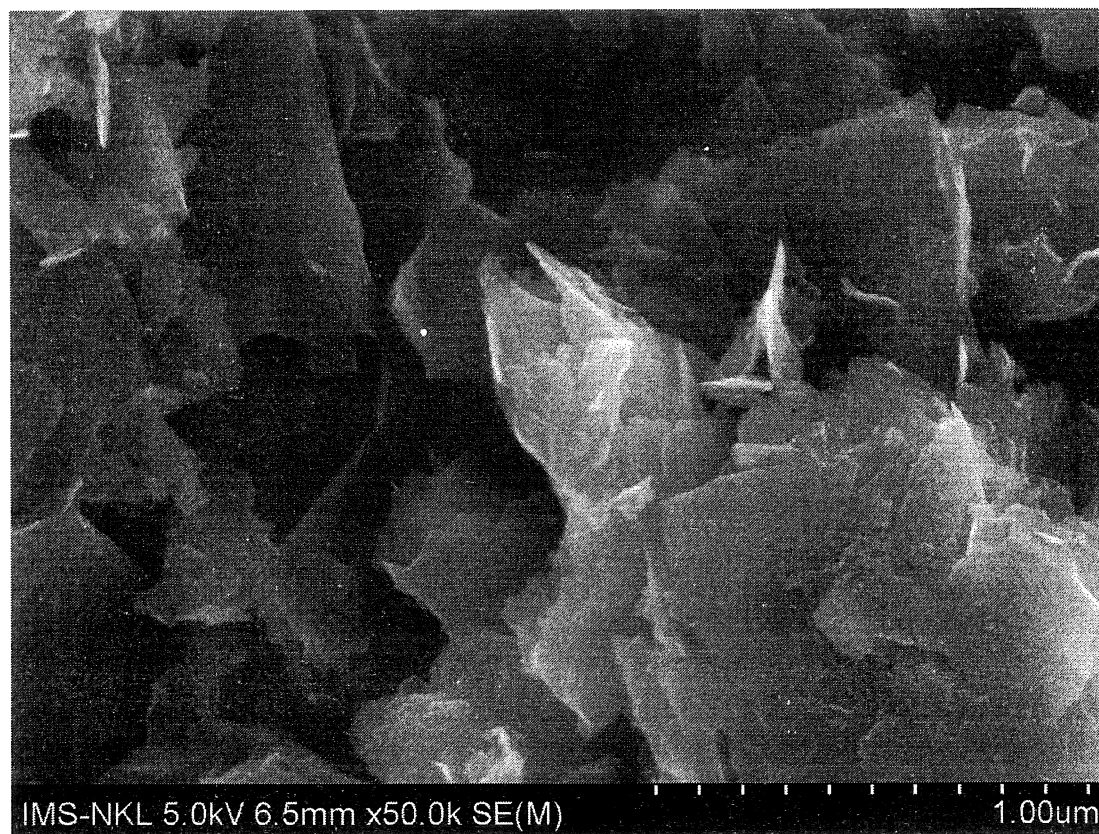


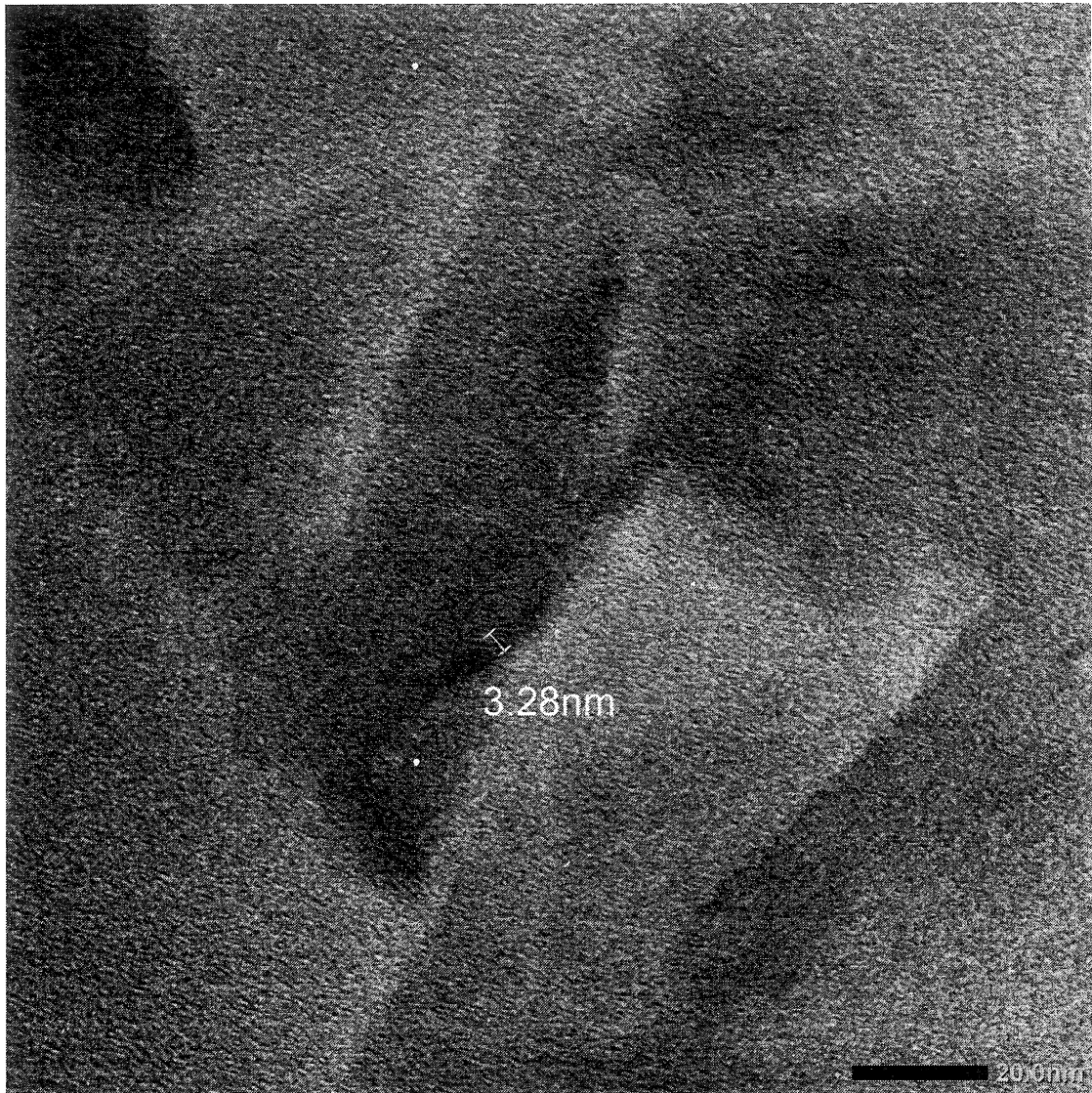
Hình 1

**Hình 2**



Hình 3

**Hình 4****Hình 5**



Hình 6