



(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) 
1-0022758

(51)⁷ **C08K 3/04, 7/04, C08L 95/00**

(13) **B**

(21) 1-2017-03176

(22) 18.08.2017

(45) 27.01.2020 382

(43) 27.11.2017 356

(73) 1. **TRUNG TÂM PHÁT TRIỂN CÔNG NGHỆ CAO - VIỆN HÀN LÂM KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ VIỆT NAM (VN)**

Nhà 2B, số 18 Hoàng Quốc Việt, phường Nghĩa Đô, quận Cầu Giấy, thành phố Hà Nội

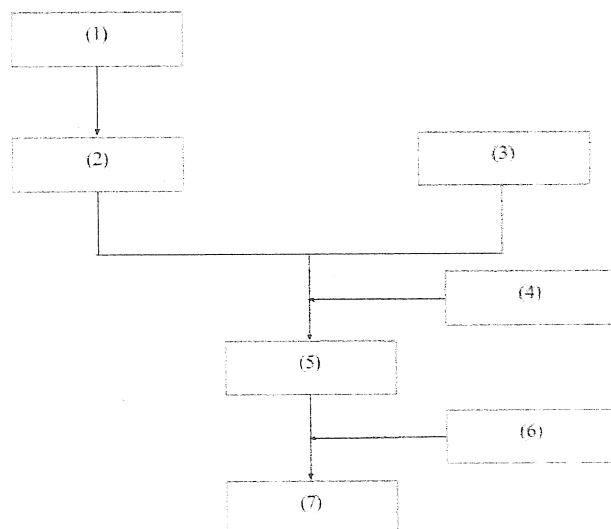
2. **VIỆN KHOA HỌC VẬT LIỆU - VIỆN HÀN LÂM KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ VIỆT NAM (VN)**

Nhà A2, 18 Hoàng Quốc Việt, phường Nghĩa Đô, quận Cầu Giấy, thành phố Hà Nội

(72) Phan Ngọc Minh (VN), Bùi Hùng Thắng (VN), Phan Hồng Khôi (VN), Trương Công Định (VN), Nguyễn Văn Thao (VN)

(54) **QUY TRÌNH CHẾ TẠO VẬT LIỆU TỔ HỢP NỀN BITUM CHỨA THÀNH PHẦN GRAPHEN ỨNG DỤNG TRONG HẤP THỤ NHIỆT MẶT TRỜI**

(57) Sáng chế đề cập đến quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen nhằm mục đích nâng cao khả năng hấp thụ nhiệt từ mặt trời đặt nền móng phát triển những ứng dụng của loại vật liệu này trong tương lai. Vật liệu bitum có các tính chất cơ lý phù hợp và hiệu quả trong hấp thụ nhiệt như màu sắc đen có độ hấp thụ ánh sáng cao nhất trong các dải màu. Sự kết hợp của vật liệu graphen phân tán đều trong chất nền sẽ giúp nâng cao hệ số dẫn nhiệt và hiệu quả hấp thụ nhiệt mặt trời. Quy trình chế tạo tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen bao gồm các bước: tăng nhiệt bitum dạng rắn (1) lên tới nhiệt độ thích hợp thu được bitum nóng chảy (2), đưa từ từ thành phần graphen (3) vào bitum nóng chảy (2) và khuấy đều bằng máy khuấy cơ học ở tốc độ thấp (4) để tạo thành hỗn hợp bitum và ống nano cacbon (5). Bằng cách sử dụng máy khuấy trộn cơ học ở tốc độ cao (6) với thời gian và tốc độ phù hợp để tạo thành vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen (7) với sự phân tán đồng đều của vật liệu graphen trong nền bitum.



Lĩnh vực kĩ thuật được đề cập

Sáng chế tập trung vào mô tả quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen ứng dụng trong hấp thụ nhiệt mặt trời và các lĩnh vực khác. Vật liệu bitum có độ hấp thụ lớn tuy nhiên khả năng truyền nhiệt lại kém khiến cho ứng dụng của loại vật liệu này bị hạn chế. Với các tính chất nổi bật của graphen khi kết hợp đưa vào trong nền bitum sẽ giúp gia tăng các tính chất cơ học, vật lý, đặc biệt là khả năng hấp thụ nhiệt mặt trời của vật liệu tổ hợp.

Tình trạng kĩ thuật của sáng chế

Trong tình trạng hiện nay, các nguồn năng lượng hóa thạch được khai thác đã dần trở nên cạn kiệt đặt không chỉ riêng nước ta mà tất cả các quốc gia trên thế giới vào tình trạng báo động. Với những thuận lợi mà năng lượng sạch, năng lượng tái tạo đem lại như thân thiện với môi trường, có thể tái tạo và nguồn năng lượng này đến từ thiên nhiên nên gần như vô hạn, hàng loạt những nghiên cứu tập trung vào khai thác, chuyển đổi sử dụng những nguồn năng lượng này vô cùng được quan tâm. Đặc biệt ở Việt Nam, năng lượng mặt trời là một nguồn cung dồi dào, dễ dàng khai thác và phát triển lâu dài do thời gian nhận ánh sáng mặt trời lớn, vì vậy việc tập trung phát triển những loại vật liệu có khả năng ứng dụng về năng lượng mặt trời có thể nói là thiết thực và phần nào giúp giải quyết vấn đề khan hiếm nguồn tài nguyên năng lượng. Với một bề dày nghiên cứu xuyên suốt thế kỷ 20 về vật liệu ứng dụng cho năng lượng mặt trời, một con số lớn các loại vật liệu có khả năng hấp thụ năng lượng mặt trời đã được công bố và tạo thành sản phẩm đem lại kết quả tích cực trong lĩnh vực này.

Vật liệu bitum là vật liệu có tính chống thấm và kết dính có được từ quá trình lọc, chưng cất dầu, cũng có mặt trong cách trầm tích tự nhiên và có độ nhớt rất cao, gần như ở dạng rắn tại nhiệt độ phòng. Ngoài ra, bitum sở hữu màu đen và độ nhớt cao khiến cho vật liệu này có khả năng hấp thụ ánh sáng tốt, có tiềm năng khai thác ứng dụng hấp thụ nhiệt từ mặt trời. Tuy nhiên bitum lại có độ truyền nhiệt khá thấp do đó các ứng dụng hiện tại của bitum bị giới hạn lại ở các công trình đường xá giao thông. Để khắc phục được những nhược điểm này, chúng tôi kết hợp bitum với vật liệu graphen để tạo ra vật liệu tổ hợp với nhiều tính chất được cải thiện.

Graphen được biết đến là một lớp các nguyên tử cacbon tập hợp lại thành một mạng lưới hai chiều (2D) có cấu trúc lục giác đều xếp cạnh nhau giống tổ ong và là cấu tạo cơ bản để hình thành nên các loại vật liệu ở các chiều khác nhau. Nó có thể tạo được những quả cầu fullurene 0D, hay cuộn lại tạo thành các ống cacbon nanô 1D hoặc chất lại thành khối graphite 3D. Nhờ vào các liên kết π kéo dài trong cấu trúc của graphen đã đem lại cho vật liệu này những đặc tính nhiệt, cơ và điện bất thường từ lâu đã nhận được nhiều sự chú ý từ các nhà nghiên cứu lý thuyết và gần đây là cả thực nghiệm.

Như đã biết bitum sở hữu màu đen là màu có khả năng hấp thụ nhiệt lớn nhất và độ nhớt cao làm cản trở khả năng phản xạ lại của ánh sáng, đây là những yếu tố giúp cho hệ số hấp thụ nhiệt của loại vật liệu này trở nên tốt hơn những loại vật liệu khác. Để làm rõ hơn về điểm này, một số các tính toán đã được hai nhà nghiên cứu người Ấn Độ Vimal Shah và Krishnan Balasubramaniam tại Đại học bang Mississippi đưa ra trong công trình nghiên cứu “Effect of viscosity on ultrasound wave reflection from a solid/liquid interface” được đăng trên tạp chí sciencedirect nằm ở mục Ultrasonics 34 (1996) 817-824 nhằm củng cố và chứng minh mối quan hệ của độ nhớt và hệ số phản xạ. Theo những kết quả thu được, họ kết luận độ nhớt tỷ lệ nghịch với hệ số phản xạ, tức khi độ nhớt tăng cao làm hệ số phản xạ giảm chính vì vậy dẫn đến

độ hấp thụ tăng. Vì vậy độ hấp thụ ánh sáng mặt trời và độ phát xạ của bitum ở mức rất cao với hệ số hấp thụ là 91% và hệ số phản xạ là 9%.

Vật liệu graphen sở hữu nhiều tính chất vượt trội như suất Young khá lớn ~ 1000 GPa, độ cứng ~ 125 GPa, độ dẫn nhiệt ~ 5000 W/mK và diện tích bề mặt ~ 2630 m²/g. Những tính chất này làm cho graphen trở thành một loại vật liệu triển vọng để gia cường cho các loại vật liệu tổ hợp, composite, ... Các nghiên cứu và công bố từ trước đến nay đã đưa ra cùng một kết luận về việc thêm graphen để tạo thành vật liệu tổ hợp mới, những tính chất cơ và nhiệt sẽ được cải thiện rõ rệt. Với những đặc điểm này của graphen khi đưa vào kết hợp với vật liệu bitum sẽ tăng độ cứng, độ bền, ... đặc biệt là độ dẫn nhiệt và hệ số hấp thụ nhiệt. Đây cũng là nhân tố chính giúp nâng cao hiệu quả hấp thụ nhiệt mặt trời của vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen.

Bên cạnh đó, loại vật liệu này từ lâu đã được ứng dụng rộng rãi ở các lĩnh vực xây dựng cơ sở hạ tầng, đường xá giao thông. Hướng ứng dụng về năng lượng mặt trời vẫn còn khá mới mẻ và độc đáo của loại vật liệu tổ hợp này, hứa hẹn mở ra nhiều khả năng ứng dụng khai thác, chuyển đổi và sử dụng năng lượng mặt trời.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Mục đích của sáng chế là đề xuất quy trình công nghệ chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần ống cacbon nano sở hữu các tính chất cơ, nhiệt vượt trội đặc biệt chú trọng đến khả năng hấp thụ nhiệt mặt trời với hiệu suất cao. Về cơ bản bitum có hệ số hấp thụ ánh sáng tốt nhưng chỉ ở bề mặt do độ truyền nhiệt của loại vật liệu này là kém nên khả năng truyền dẫn và trao đổi nhiệt chưa cao. Ngoài ra, khi ở nhiệt độ cao bitum chuyển dạng lỏng cũng làm hiệu quả hấp thụ giảm sút. Graphen với những tính chất cơ học nổi trội, tính dẫn nhiệt cao, diện tích bề mặt lớn khi được đưa vào phân tán đều trong bitum sẽ khắc phục những nhược điểm còn tồn tại về độ dẫn nhiệt và khả năng hấp thụ

hiệu suất mặt trời. Sáng chế cũng là nền tảng định hướng tiếp tục phát triển các ứng dụng khác của loại vật liệu tổ hợp này trong tương lai.

Do đó, sáng chế đề xuất quy trình chế tạo tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen bao gồm các bước: tăng nhiệt bitum dạng rắn (1) lên tới nhiệt độ thích hợp thu được bitum nóng chảy (2), đưa từ từ thành phần graphen (3) vào bitum nóng chảy (2) và khuấy đều bằng máy khuấy cơ học ở tốc độ thấp (4) để tạo thành hỗn hợp bitum và ống nano cacbon (5). Sau đó, bằng cách sử dụng máy khuấy trộn cơ học ở tốc độ cao (6) với thời gian và tốc độ phù hợp để tạo thành vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen (7) với sự phân tán đồng đều của vật liệu graphen trong nền bitum.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Hình 1 là sơ đồ thể hiện quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen.

Hình 2 là sơ đồ thể hiện quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen, trong đó graphen được biến tính bề mặt trước khi đưa vào trong bitum.

Hình 3 là sơ đồ thể hiện quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen, trong đó kết hợp phương pháp rung siêu âm cùng với khuấy cơ học để tăng khả năng phân tán của graphen trong bitum.

Hình 4 là sơ đồ thể hiện quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen, trong đó các chất hỗ trợ phân tán được sử dụng để tăng hiệu quả khả năng phân tán graphen trong bitum.

Mô tả chi tiết sáng chế

Sơ đồ thể hiện quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen được mô tả như hình 1. Ban đầu gia nhiệt bitum ở dạng rắn 1 lên đến nhiệt độ thích hợp để tạo thành bitum nóng chảy 2. Vật liệu graphen 3 được

đưa từ từ vào bitum nóng chảy 2 và đồng thời khuấy liên tục bằng máy khuấy cơ học ở tốc độ thấp 4 từ 100 – 300 vòng/phút cho đến khi vật liệu graphen được cho hết vào bitum và hỗn hợp đạt trạng thái đồng đều sơ bộ nhằm tạo thành hỗn hợp bitum chứa thành phần graphen 5. Sau đó tiến hành khuấy hỗn hợp bitum và graphen 5 bằng máy khuấy cơ học ở tốc độ cao 6 từ 1.000 - 5.000 vòng/phút, trong đó buồng khuấy được đóng nắp kín để hỗn hợp không bị bắn ra ngoài khi khuấy ở tốc độ cao. Trong sáng chế này bitum chiếm 60-99% về khối lượng, graphen 1-40% về khối lượng. Quá trình khuấy trộn được duy trì trong một khoảng thời gian thích hợp, sau khi kết thúc ta sẽ thu được vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen 7.

Trong một phương án khác, vật liệu graphen được biến tính với các nhóm chức -OH, -COOH, -NH₂, hoặc các nhóm chức khác để tạo thành graphen biến tính 8, qua đó giúp nâng cao sự tương tác hóa học và khả năng phân tán của graphen trong nền vật liệu tổ hợp. Quy trình được minh họa chính xác như ở hình 2.

Trong một phương án khác, để tối ưu hóa độ phân tán của các tấm graphen trong nền bitum máy rung siêu âm 9 được đưa vào sử dụng như trên sơ đồ hình 3. Cụ thể là cùng quá trình khuấy bằng máy khuấy cơ học ở tốc độ cao 6, hỗn hợp được rung siêu âm bằng máy rung siêu âm với thời gian thích hợp để giúp các tấm graphen phân tán đồng đều hơn. Quá trình rung siêu âm được thực hiện trước hoặc sau quá trình khuấy cơ học ở tốc độ cao.

Trong một phương án khác, để giúp cho khả năng phân tán của vật liệu graphen trong chất nền bitum được hiệu quả và đồng đều, các chất hỗ trợ phân tán 10 được sử dụng như trên sơ đồ hình 4. Chất hỗ trợ phân tán là các chất hoạt động bề mặt và dung môi hữu cơ như DMF (Dimethylformamide), NMP (N-Methyl-2-pyrrolidone), SDS (Sodium dodecyl sulfate), SC (Sodium cholate), SDOC (Sodium deoxycholate), SDBS (Sodium dodecylbenzenesulfonate), 1,2-Dichloroethane (DCE), 1,2-Dichlorobenzene (DCB), DMA (N,N-

dimethylacetamide), methanol, aceton, toluen, clorofom, epoxy, GBL (Gamma butyrolacone), THF (Tetrahydrofuran), DCM (Dichloromethane), rượu isopropyl, PEA (Phenyl Ethyl Alcohol), CHP (1-Cyclohexyl-2- pyrrolidone) và các chất tương tự khác.

Ví dụ thực hiện sáng chế

Sáng chế được sáng tỏ hơn thông qua ví dụ cụ thể sau đây về quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen:

- Chuẩn bị 350g bitum và 4,2g graphen để tiến hành chế tạo mẫu vật liệu tổ hợp.
- Tăng nhiệt bitum dạng rắn lên đến 185°C để thu được bitum dạng lỏng.
- Vật liệu graphen được thêm từ từ vào trong bitum và đồng thời khuấy liên tục bằng một máy khuấy cơ học ở tốc độ thấp 100 vòng/phút cho đến khi vật liệu graphen được cho hết vào bitum và hỗn hợp đạt trạng thái đồng đều sơ bộ nhằm tạo thành hỗn hợp bitum và graphen.
- Hỗn hợp này tiếp tục được khuấy trộn đều bằng máy khuấy tốc độ cao ở tốc độ 4.000 vòng/phút, trong đó buồng khuấy được đóng nắp kín để hỗn hợp không bị bắn ra ngoài khi khuấy ở tốc độ cao. Quá trình trộn được duy trì trong một khoảng thời gian 30-60 phút giúp cho graphen phân tán đều trong nền bitum để tạo thành vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen.

Hiệu quả kĩ thuật của sáng chế

Sáng chế được đề ra nhằm mục đích đưa quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen ứng dụng trong hấp thụ nhiệt mặt trời và các lĩnh vực khác. Hiệu quả hấp thụ mặt trời được nâng cao qua những yếu tố sau:

Thứ nhất: Bitum sở hữu màu đen lý tưởng, màu có độ hấp thụ nhiệt mặt trời rất tốt, khả năng hấp thụ đạt khoảng 91%.

Thứ hai: Graphen với tính dẫn nhiệt và diện tích bề mặt lớn sẽ góp phần tăng độ dẫn nhiệt, hiệu quả truyền nhiệt và quá trình trao đổi nhiệt của khối vật liệu.

Thứ ba: Thành phần vật liệu graphen được phân tán đồng đều trong bitum góp phần vào cơ chế hấp thụ trực tiếp. Cụ thể ở nhiệt độ cao, bitum chuyển sang dạng lỏng, trong khi graphen ở dạng rắn với diện tích bề mặt lớn, do vậy phần ánh sáng xuyên vào bitum dạng lỏng sẽ tiếp tục bị graphen hấp thụ nhiệt năng qua đó nâng cao khả năng hấp thụ nhiệt.

Thứ tư: Độ nhớt cao làm giảm khả năng phản xạ ánh sáng khiến độ dẫn nhiệt tăng khi thêm graphen vào trong bitum.

Ngoài ra một số các tính chất khác của vật liệu còn được cải thiện qua các yếu tố sau:

- *Độ bền, độ cứng và độ kéo dãn*: Nhờ tính chất vượt trội của graphen như độ cứng lớn, độ bền cao, suất Young và diện tích bề mặt lớn khi đưa vật liệu này vào phân tán đều trong bitum làm các tính chất của vật liệu tổ hợp tăng lên.
- *Điểm mềm*: Là nhiệt độ mà tại đó bitum từ trạng thái rắn bị mềm, nhờ vào suất Young và sự ổn định cao của graphen giúp bitum trở nên ổn định hơn và làm điểm mềm tăng lên. Điểm mềm của vật liệu càng cao thì có thể chịu đựng được nhiệt độ càng cao, khó bị biến dạng.
- *Độ kim lún*: Chỉ số thông qua đó biết được trạng thái, chất lượng của bitum (mm) ví dụ như loại bitum 30/40, bitum 60/70, ... các số 30/40, 60/70 chính là chỉ độ thâm nhập. Chỉ số này càng cao thì bitum càng mềm và ngược lại. Giá trị này giảm dần khi khối lượng graphen trong bitum tăng lên, điều này được giải thích là do lượng graphen lớn, có diện tích bề mặt cao và độ bền kéo cao. Điều này khiến vật liệu bitum sẽ trở nên cứng hơn.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen bao gồm các bước sau:

gia nhiệt vật liệu bitum dạng rắn (1) lên đến một nhiệt độ thích hợp để thu được bitum nóng chảy (2);

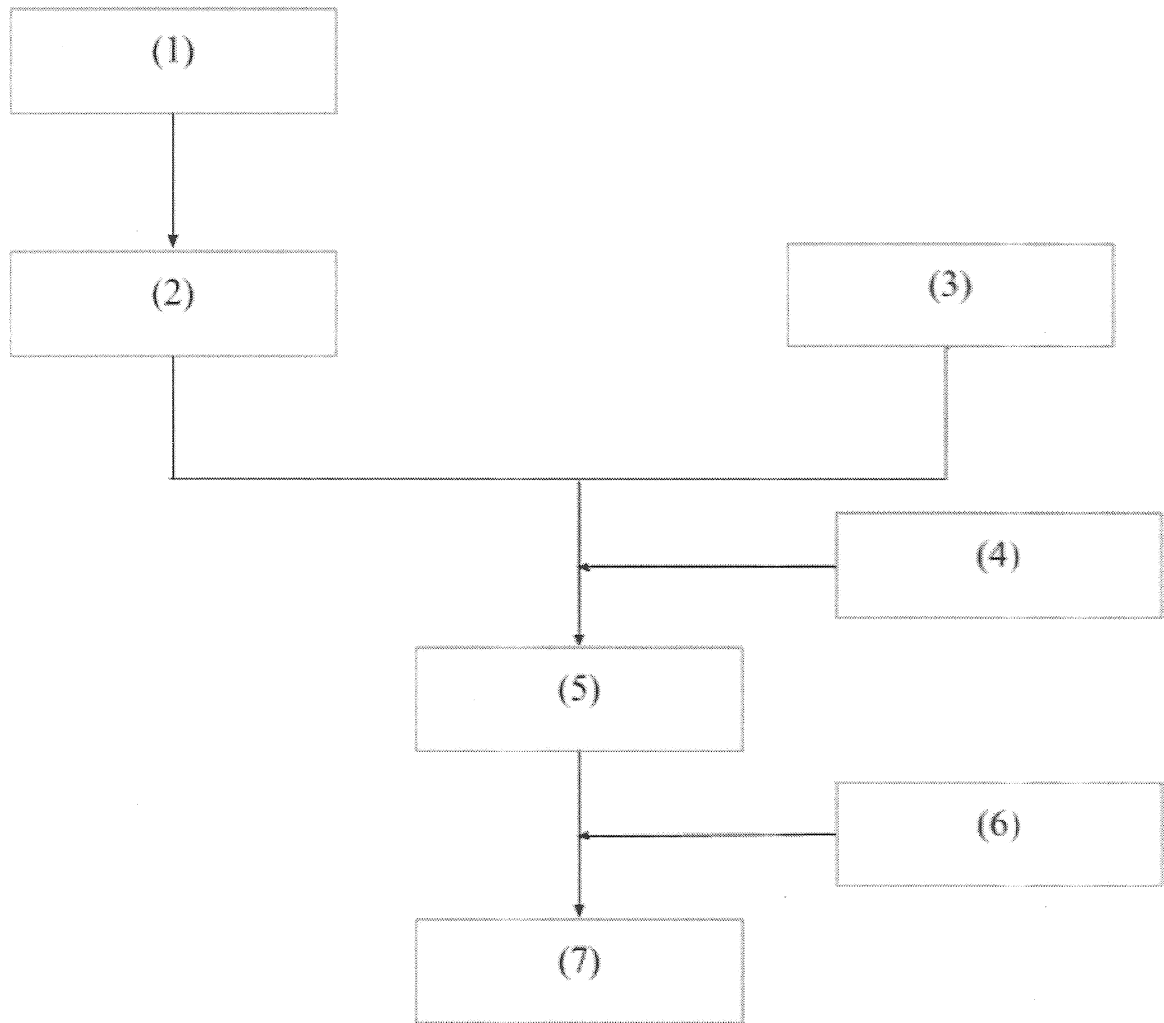
cho từ từ vật liệu graphen (3) vào trong bitum nóng chảy (2) và đồng thời khuấy liên tục bằng máy khuấy cơ học ở tốc độ thấp (4) từ 100 - 300 vòng/phút cho đến khi vật liệu graphen được cho hết vào bitum và hỗn hợp đạt trạng thái đồng đều sơ bộ nhằm tạo thành hỗn hợp bitum và graphen (5);

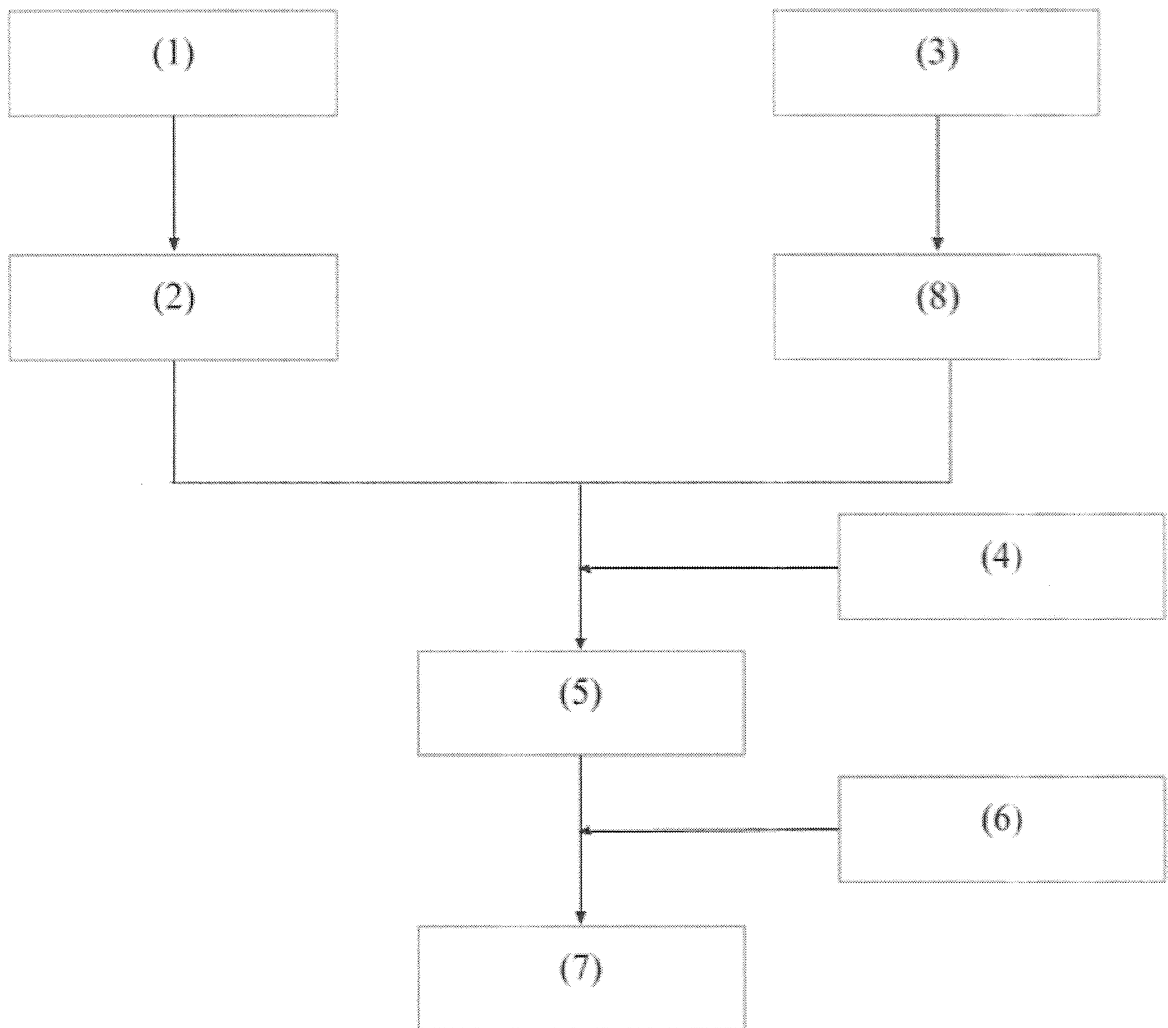
khuấy hỗn hợp bitum và graphen (5) bằng máy khuấy cơ học ở tốc độ cao (6) từ 1.000 - 5.000 vòng/phút, trong đó buồng khuấy được đóng nắp kín để hỗn hợp không bị bắn ra ngoài khi khuấy ở tốc độ cao, quá trình khuấy được duy trì trong thời gian thích hợp giúp phân tán đồng đều graphen để tạo thành vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen (7).

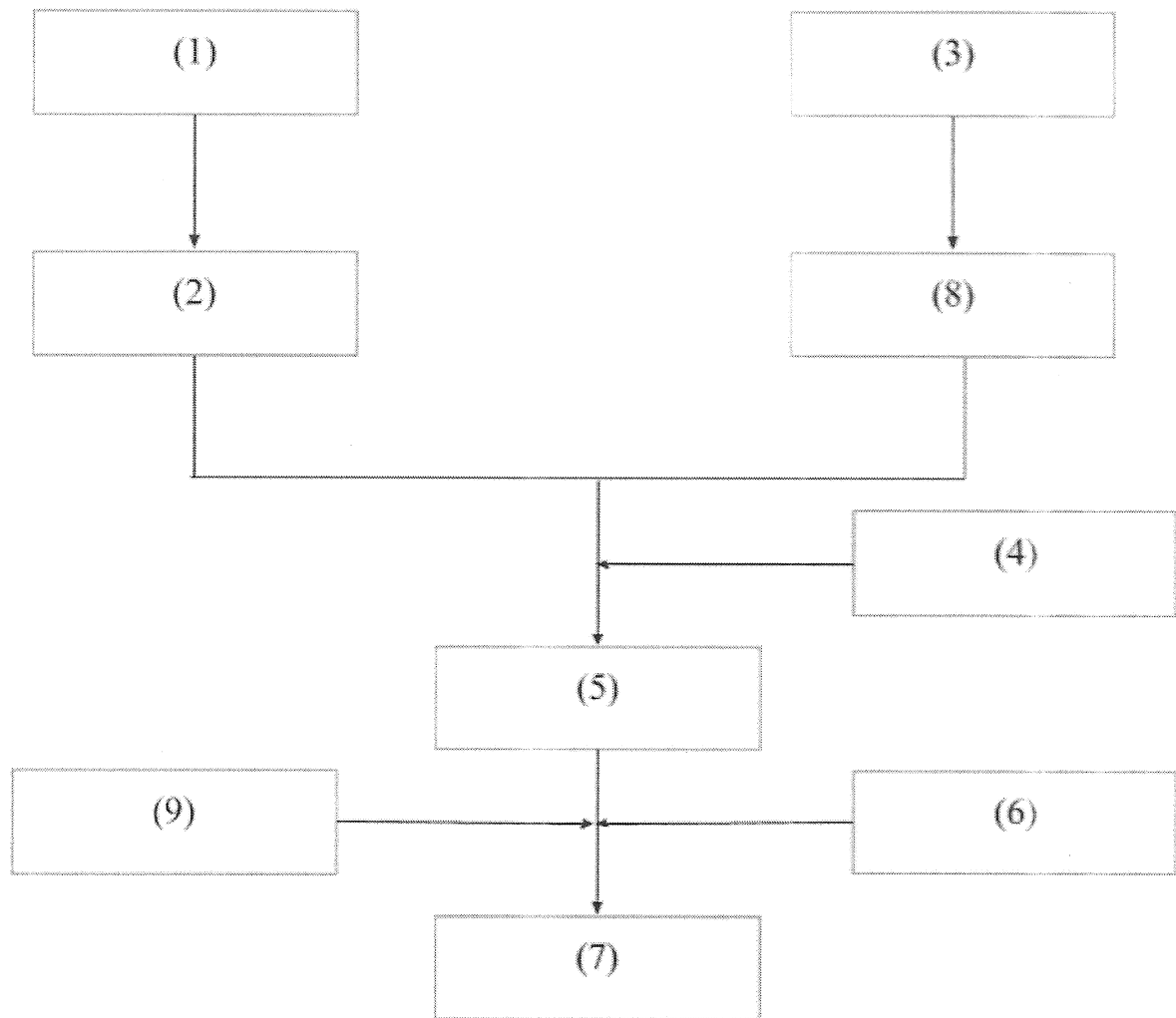
2. Quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen theo điểm 1, trong đó bitum chiếm 60-99% khối lượng, graphen chiếm 1-40% về khối lượng.
3. Quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen theo một trong số các điểm nêu trên, trong đó graphen được gắn thêm các nhóm chức -OH, -COOH, -NH₂, hoặc các nhóm chức khác trên bề mặt tạo thành graphen biến tính (8).
4. Quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen theo một trong số các điểm trên, trong đó có sử dụng tích hợp phương pháp rung siêu âm (9) cùng với khuấy cơ học để tăng khả năng phân tán của

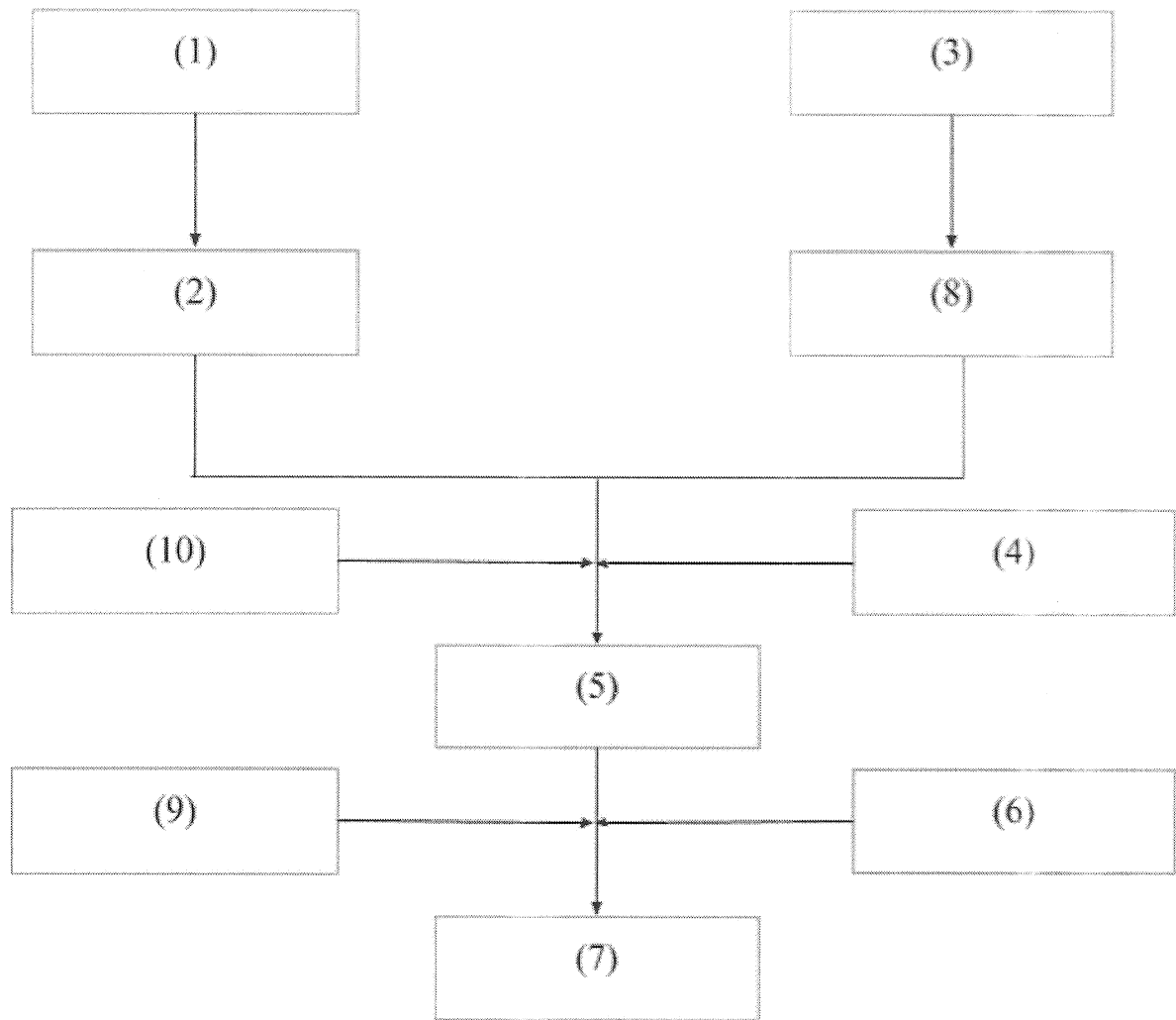
graphen, phương pháp này có thể sử dụng linh hoạt trước hoặc sau quá trình khuấy cơ học.

5. Quy trình chế tạo vật liệu tổ hợp nền bitum chứa thành phần graphen theo một trong số các điểm trên, trong đó có sử dụng thêm chất hỗ trợ phân tán (10) bao gồm ít nhất một trong số các chất sau: DMF (Dimethylformamide), NMP (N-Methyl-2-pyrrolidone), SDS (Sodium dodecyl sulfate), SC (Sodium cholate), SDOC (Sodium deoxycholate), SDBS (Sodium dodecylbenzenesulfonate), 1,2-Dichloroethane (DCE), 1,2-Dichlorobenzene (DCB), DMA (N,N-dimethylacetamide), methanol, acetone, toluene, chloroform, epoxy, GBL (Gamma butyrolactone), THF (Tetrahydrofuran), DCM (Dichloromethane), rượu isopropyl, PEA (Phenyl Ethyl Alcohol), CHP (1-Cyclohexyl-2-pyrrolidone) và các chất tương tự khác.

*Hình 1*

*Hình 2*

*Hình 3*

*Hình 4*