

NGHIÊN CỨU NÂNG CAO HIỆU QUẢ BÔI TRƠN CHO DẦU NHỜN BẰNG PHỤ GIA NANO GRAPHENE DẠNG TẤM

RESEARCH ON IMPROVEMENT OF LUBRICANT PERFORMANCE BY GRAPHENE NANOPATELETS

PHẠM TIẾN DŨNG¹, TRẦN THẾ NAM^{2*}, VÕ HOÀNG TÙNG^{1*}

¹Viện Môi Trường, Trường Đại học Hàng hải Việt Nam

²Phòng Khoa học - Công nghệ, Trường Đại học Hàng hải Việt Nam

Email liên hệ: thenam@vamaru.edu.vn, tungvh.vmt@vamaru.edu.vn

Tóm tắt

Ngày nay việc sử dụng vật liệu nano làm phụ gia cho dầu nhờn được coi là một phương pháp hiệu quả với giá thành rẻ nhằm nâng cao hiệu quả bôi trơn, tiết kiệm năng lượng nhờ giảm ma sát và mài mòn, đặc biệt với động cơ diesel. Nghiên cứu này bước đầu chứng minh được hiệu quả của việc sử dụng nano graphene dạng tấm trong việc nâng cao hiệu năng bôi trơn của dầu nhờn. Các đặc trưng vật liệu của nano graphene được xác định bằng các phương pháp phân tích hóa lý hiện đại như phổ nhiễu xạ tia X (XRD), kính hiển vi điện tử quét (SEM). Các tấm nano graphene có cấu trúc nhăn và nhàu với đường kính từ 10 đến 30 μ m và độ dày nhỏ hơn 15nm. Mẫu dầu nhờn pha phụ gia tấm nano graphene 0,05% cho hiệu quả giảm mài mòn cao nhất khoảng 35% được xác định bằng phương pháp đường kính vết mài mòn (WSD).

Từ khóa: Nano graphene tấm, phụ gia graphene, chống mài mòn, phụ gia dầu bôi trơn, chống ma sát.

Abstract

The use of nano-additives is widely recognized as a cheap and effective pathway to improve the performance of lubrication by minimizing the energy loss from friction and wear, especially in diesel engines. This work has demonstrated the lubrication performance improvement by graphene nanoplatelets (GNPs). The GNPs additive were characterized using scanning electron microscopy, X-ray diffraction. The prepared GNPs had wrinkled and crumpled structures with a diameter of 10-30 μ m and a thickness of less than 15nm. The highest reduction of 35% was determined for the wear scar diameter with a GNP additive concentration of approximately 0.05%.

Keywords: Graphene nanoplatelets, graphene additives, antifriction, lubricant additives, anti-wear.

1. Giới thiệu

Giảm thiểu ảnh hưởng của khí nhà kính và biến đổi khí hậu là một yêu cầu cấp bách trên toàn thế giới, đòi hỏi các biện pháp mới để cải thiện hiệu suất động cơ [1]. Các tổn thất tự do và ma sát của động cơ diesel chiếm khoảng 10% tổng năng lượng trong nhiên liệu [2]. Việc giảm những tổn thất này rất quan trọng đối với sử dụng tiết kiệm và hiệu quả năng lượng. Một trong những cách tiếp cận chính để giảm ma sát là sử dụng chất bôi trơn, có thể được áp dụng rộng rãi trong ô tô, cơ khí, và các bộ phận khác. Chất bôi trơn làm giảm ma sát giữa giao diện của hai bộ phận kim loại trong chuyển động tương đối [3]. Các chất phụ gia thường được thêm vào hỗn hợp chất bôi trơn để cải thiện hiệu quả bôi trơn [4, 5].

Ngày nay, công nghệ nano đã chứng minh các đặc tính vượt trội so với vật liệu truyền thống và vật liệu nano đã được sử dụng làm chất phụ gia nhiều hơn để tăng cường hiệu suất bôi trơn. Graphene, vật liệu carbon hai chiều (2D) với các tính chất cơ học, điện và nhiệt đáng kể, đã được sử dụng rộng rãi trong một loạt các ứng dụng công nghiệp trong các lĩnh vực kỹ thuật, hóa học và vật lý [3, 6-11]. Ngoài ra, các cấu trúc 2D dễ dàng trượt cùng nhau, làm cho graphene trở thành phụ gia hiệu quả để giảm ma sát trong các bộ phận cơ khí và động cơ xe [1a2, 13].

Trong bài báo này, chúng tôi sử dụng phương pháp tách lớp hóa học đơn giản than chì tự nhiên, sản xuất nano graphene dạng tấm. Các tấm nano graphene được biến tính với các chất hoạt động bề mặt, phân tán dễ dàng và đồng nhất trong dầu bôi trơn. Hiệu quả bôi trơn của phụ gia được nghiên cứu và thảo luận ở phần sau.

2. Thực nghiệm

2.1. Vật liệu

Mảnh than chì tự nhiên được mua từ Công ty VNgraphene. Acetone khô, axit sunfuric đậm đặc (98%), etanol, natri dodecyl Persulfate (SDS), Natri Persulfate (Na₂S₂O₈) và axit oleic được mua từ Công ty TNHH Văn Minh, Hà Nội, Việt Nam. Dầu HD-50 thương mại được lấy từ trạm xăng. Tất cả các hóa chất đều ở dạng tinh khiết mà không cần tinh chế thêm.

2.2. Tổng hợp nano graphene dạng tấm

Mảnh than chì tự nhiên đã được thêm vào lò phản ứng 1000ml có chứa axit sulfuric đậm đặc và khuấy trong 30 phút. Natri persulfate dần dần được thêm vào hỗn hợp phản ứng và tiếp tục khuấy trong 3 giờ ở nhiệt độ phòng. Hỗn hợp phản ứng kết quả được lọc trực tiếp bằng bộ lọc thiêu kết thủy tinh và rửa kỹ ba lần bằng acetone khô và nước để loại bỏ mọi chất phản ứng còn sót lại. Bột GNP được sấy khô ở 60°C trong không khí và được lưu trữ để xử lý tiếp.

2.3. Phân tích đặc trưng vật liệu và thử nghiệm hiệu quả bôi trơn

Kính hiển vi điện tử quét (SEM), FEI Nova NanoSEM (Hillsboro, OR, Hoa Kỳ), được sử dụng để nghiên cứu hình thái của các tấm nano graphene thu được từ sự bóc ra của các mảnh than chì.

Phổ nhiễu xạ tia X (XRD) được phân tích trên thiết bị Bruker AXS D8 Discover (Texas, Hoa Kỳ).

Thử nghiệm ma sát được đo trên thiết bị đo ma sát bốn bi (MRS-10A, Shandong, Trung Quốc) ở nhiệt độ phòng với lực bi 400N và tốc độ 1450 vòng/phút.

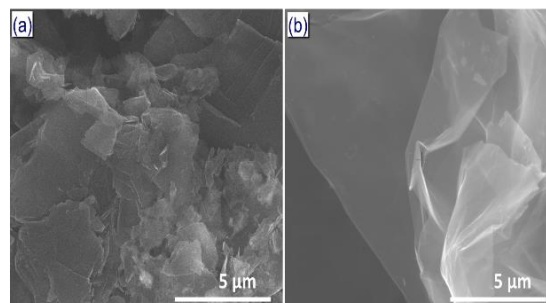
3. Kết quả và thảo luận

Các hạt nano graphene được chế tạo một cách thuận lợi bằng cách sử dụng phương pháp tách lớp hóa học trực tiếp than chì [14]. Phương pháp này thân thiện với môi trường và có thể được sử dụng ở quy mô công nghiệp, điều này rất quan trọng cho các ứng dụng thực tế.

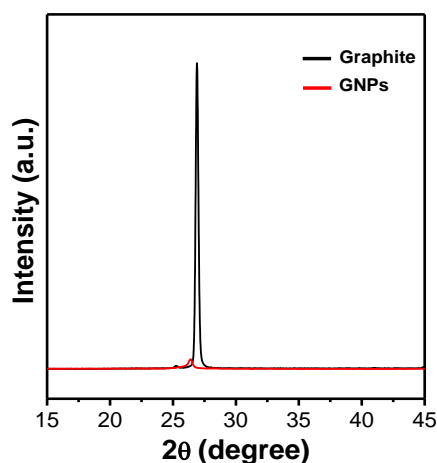
Hình thái của than chì tự nhiên và các GNP được điều chế trong công trình này được quan sát bởi SEM (Hình 1). Các mảnh than chì tự nhiên có cấu trúc tấm dày với các lớp graphene dày đặc (Hình 1a).

Sau khi tách lớp hóa học bằng chất oxy hóa, các lớp graphene được tách ra từ một tấm than chì dày, như trong Hình 1b. Các GNP có cấu trúc nhẵn và đường kính 10-30µm. Hình thái nhẵn và nhàu nát chỉ ra rằng các GNP thu được bao gồm một vài lớp graphene trong mỗi ngăn xếp, như đã được chứng minh trước đây [15, 16]. Ngoài ra, các tấm GNPs là

bán trong suốt đối với chùm electron (Hình 1b), đây là bằng chứng rõ ràng cho thấy các GNP chứa ít hơn 30 lớp graphene, tương ứng độ dày nhỏ hơn 15nm [17-19].



Hình 1. Ảnh SEM của a) Than chì tự nhiên; b) tấm nano graphene

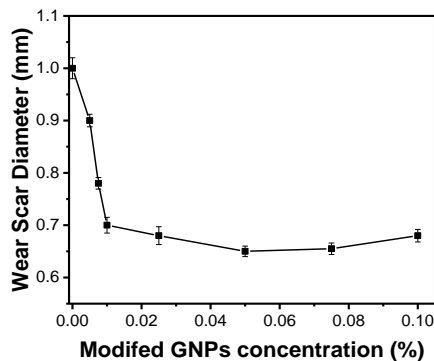


Hình 2. Phổ nhiễu xạ tia X của graphit tự nhiên (đường màu đen) và nano graphene dạng tấm (đường màu đỏ)

Phổ XRD của graphit cho thấy một peak đặc trưng rõ nét ở 26,90, là tín hiệu nhiễu xạ 002 [20]. Hình 2 đồng thời cho thấy trong mẫu XRD của GNP, đỉnh này dịch chuyển đến 26,40 với cường độ được mở rộng và suy yếu đáng kể so với của graphit, cho thấy cấu trúc kém trật tự hơn với graphene nhiều lớp [17]. Kết quả này phù hợp với các hình ảnh SEM đã trình bày ở trên. Các lớp graphene liên tục như cấu trúc tấm trong các mảnh graphit tự nhiên không còn tồn tại [14].

Đường kính vết mòn (WSD) là một thông số quan trọng để xác định tính năng chống mài mòn của dầu bôi trơn. WSD được đánh giá bằng cách sử dụng một tribometer bốn bóng (MRS-10A). Thử nghiệm chống mài mòn được thực hiện ở nhiệt độ phòng dưới tải trọng 400 N và tốc độ 1450 vòng/phút. Một kính hiển vi quang học đã được sử dụng để đo đường

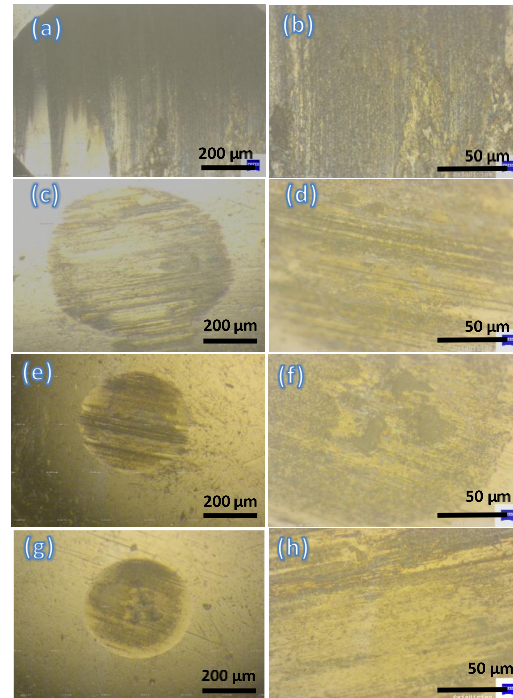
kính của vết sọc mòn trên quả bóng (Hình 3). WSD giảm đáng kể sau khi bổ sung phụ gia GNP với nồng độ từ 0,005 đến 0,01% khối lượng, cho thấy rằng việc bổ sung một lượng nhỏ graphene có thể nâng cao đáng kể tính năng chống mài mòn của dầu bôi trơn. Việc tăng thêm nồng độ GNP từ 0,01-0,05% khối lượng đã làm giảm WSD, đạt đường kính tối thiểu 0,65mm với nồng độ phụ gia 0,05% khối lượng, giảm 35% so với WSD sử dụng dầu gốc HD-50. Tiếp tục tăng hàm lượng GNP từ 0,05 đến 0,1% khối lượng, đặc tính chống mài mòn giảm. Do đó, nồng độ GNPs được điều chỉnh tối đa với đặc tính chống mài mòn cao nhất là xấp xỉ 0,05% trọng lượng. Do đó, nồng độ phụ gia GNPs dưới 0,05% có thể được chọn làm hàm lượng tối ưu cho dầu bôi trơn. Hiệu suất chống mài mòn nâng cao khi bổ sung một lượng nhỏ graphene có thể được giải thích bằng việc hình thành một lớp graphene bảo vệ trên bề mặt thép. Tuy nhiên, khi hàm lượng graphene tăng lên, sự tích tụ của màng graphene không liên tục làm giảm tính chất chống mài mòn và gây ra hiện tượng khô ma sát [21].



Hình 3. Khả năng chống mài mòn khi sử dụng hàm lượng GNP khác nhau

Bề mặt các vết sọc mòn khi sử dụng chất bôi trơn với các hàm lượng GNP khác nhau đã được nghiên cứu bằng kính hiển vi quang học như trong Hình 4. Có thể thấy rõ qua hình rằng khi chỉ sử dụng dầu gốc, vết sọc mòn lớn và bề mặt thô ráp với những rãnh sâu, hẹp. Khi bổ sung một lượng nhỏ GNP (0,005%), đường kính của vết sọc mòn giảm và bề mặt trở nên mịn hơn, nhưng vẫn còn những rãnh sâu. Tuy nhiên, khi tăng hàm lượng phụ gia GNP lên 0,01%, đường kính vết mòn giảm đáng kể xuống còn khoảng 0,7mm và bề mặt trở nên mịn hơn nhiều (Hình 4e & f). Sự gia tăng hơn nữa của hàm lượng phụ gia làm giảm đáng kể WSD và độ nhẵn của bề mặt sọc mòn. Tuy nhiên, 0,01% trọng lượng của phụ gia GNP cho dầu bôi trơn được chọn là nồng độ tối ưu hóa về mặt kinh tế.

4. Kết luận



Hình 4. Hình thái bề mặt của vết sọc mòn được quan sát bằng kính hiển vi quang học sử dụng chất bôi trơn khác nhau: (a, b) dầu gốc, (c, d) 0,005% GNP, (e, f) 0,01% GNP và (g, h) 0,05% GNP

Nghiên cứu đã tổng hợp thành công vật liệu nano graphene dạng tấm bằng phương pháp tách lớp hóa học than chì tự nhiên với ưu điểm dễ thực hiện và có tính kinh tế cao. Các tấm nano graphene có cấu trúc nhẵn và nhàu với đường kính từ 10 đến 30μm và độ dày nhỏ hơn 15nm. Nghiên cứu cũng bước đầu chứng minh được hiệu quả của việc sử dụng nano graphene dạng tấm nhằm nâng cao hiệu năng bôi trơn của dầu nhờn. Mẫu dầu nhờn pha phụ gia tấm nano graphene 0,05% cho hiệu quả giảm mài mòn cao nhất khoảng 35%.

Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Trường Đại học Hàng hải Việt Nam trong đề tài mã số: **DT20-21.106**.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Wong, V.W.; Tung, S.C., *Overview of automotive engine friction and reduction trends- Effects of surface, material, and lubricant-additive technologies*. Friction, 4, pp. 1-28. 2016.
- [2] Holmberg, K.; Andersson, P.; Erdemir, A., *Global energy consumption due to friction in passenger cars*. Tribol. Int. Vol.47, pp. 221-234. 2012.

- [3] Abdalla, H.; Patel, S., *The performance and oxidation stability of sustainable metalworking fluid derived from vegetable extracts*. Proc. Inst. Mech. Eng., Part B, 220, pp. 2027-2040, 2006.
- [4] Rizvi, S., *Lubricant additives and their functions*. Mater. Park, OH: ASM International. 1992, pp. 98-112. 1992.
- [5] Li, C.; Li, M.; Wang, X.; Feng, W.; Zhang, Q.; Wu, B.; Hu, X., *Novel Carbon Nanoparticles Derived from Biodiesel Soot as Lubricant Additives*. Nanomaterials. Vol.9, 2019.
- [6] Wu, T.; Chen, M.; Zhang, L.; Xu, X.; Liu, Y.; Yan, J.; Wang, W.; Gao, J., *Three-dimensional graphene-based aerogels prepared by a self-assembly process and its excellent catalytic and absorbing performance*. J. Mater. Chem. A. 1, pp.7612-7621, 2013.
- [7] Kopelevich, Y.; Esquinazi, P., *Graphene physics in graphite*. Adv. Mater. Vol.19, pp. 4559-4563. 2007.
- [8] Yang, K.; Huang, L.-j.; Wang, Y.-x.; Du, Y.-c.; Zhang, Z.-j.; Wang, Y.; Kipper, M.J.; Belfiore, L.A.; Tang, J.-g., *Graphene Oxide Nanofiltration Membranes Containing Silver Nanoparticles: Tuning Separation Efficiency via Nanoparticle Size*. Nanomaterials. Vol.10, 2020.
- [9] La, D.D.; Hangarge, R.V.; V Bhosale, S.; Ninh, H.D.; Jones, L.A.; Bhosale, S.V, 2017. *Arginine-mediated self-assembly of porphyrin on graphene: a photocatalyst for degradation of dyes*. Appl. Sci. Vol. 7, 2017.
- [10] [La, D.D.; Nguyen, T.A.; Nguyen, T.T.; Ninh, H.D.; Thi, H.P.N.; Nguyen, T.T.; Nguyen, D.A.; Dang, T.D.; Rene, E.R.; Chang, S.W., *Absorption Behavior of Graphene Nanoplates toward Oils and Organic Solvents in Contaminated Water*. Sustainability. Vol.11, 2019
- [11] La, D.D.; Patwari, J.M.; Jones, L.A.; Antolasic, F.; Bhosale, S.V., *Fabrication of a GNP/Fe-Mg binary oxide composite for effective removal of arsenic from aqueous solution*. ACS Omega. Vol.2, pp.218-226, 2017.
- [12] Berman, D.; Erdemir, A.; Sumant, A.V., *Graphene: a new emerging lubricant*. Mater. Today. Vol.17, pp.31-42, 2014.
- [13] Kiu, S.S.K.; Yusup, S.; Soon, C.V.; Arpin, T.; Samion, S.; Kamil, R.N.M., *Tribological investigation of graphene as lubricant additive in vegetable oil*. J. Phys. Sci. Vol.28, 2017.
- [14] La, M.D.D.; Bhargava, S.; Bhosale, S.V., *Improved and a simple approach for mass production of graphene nanoplatelets material*. Chemistry Select. Vol.1, pp.949-952, 2016.
- [15] Parvez, K.; Wu, Z.-S.; Li, R.; Liu, X.; Graf, R.; Feng, X.; Müllen, K., *Exfoliation of graphite into graphene in aqueous solutions of inorganic salts*. Journal of the American Chemical Society. Vol.136, pp.6083-6091, 2014.
- [16] Sheka, E.F.; Hołderna-Natkaniec, K.; Natkaniec, I.; Krawczyk, J.X.; Golubev, Y.A.; Rozhkova, N.N.; Kim, V.V.; Popova, N.A.; Popova, V.A., *Computationally Supported Neutron Scattering Study of Natural and Synthetic Amorphous Carbons*. The Journal of Physical Chemistry C. Vol.123, pp.15841-15850, 2019.
- [17] Lotya, M.; Hernandez, Y.; King, P.J.; Smith, R.J.; Nicolosi, V.; Karlsson, L.S.; Blighe, F.M.; De, S.; Wang, Z.; McGovern, I., *Liquid phase production of graphene by exfoliation of graphite in surfactant/water solutions*. Journal of the American Chemical Society. Vol.131, pp. 3611-3620, 2009.
- [18] Dimiev, A.; Kosynkin, D.V.; Sinitskii, A.; Slesarev, A.; Sun, Z.; Tour, J.M., *Layer-by-layer removal of graphene for device patterning*. Science. Vol.331, pp.1168-1172, 2011.
- [19] Genorio, B.; Lu, W.; Dimiev, A.M.; Zhu, Y.; Raji, A.-R.O.; Novosel, B.; Alemany, L.B.; Tour, J.M., *In situ intercalation replacement and selective functionalization of graphene nanoribbon stacks*. ACS nano. Vol.6, pp.4231-4240, 2012.
- [20] Sayah, A.; Habelhames, F.; Bahloul, A.; Nessark, B.; Bonnassieux, Y.; Tendelier, D.; El Jouad, M, *Electrochemical synthesis of polyaniline-exfoliated graphene composite films and their capacitance properties*. J. Electroanalytical Chem. Vol.818, pp.26-34, 2018.
- [21] Zhang, W.; Zhou, M.; Zhu, H.; Tian, Y.; Wang, K.; Wei, J.; Ji, F.; Li, X.; Li, Z.; Zhang, P., *Tribological properties of oleic acid-modified graphene as lubricant oil additives*. J. Phys. D Appl. Phys. Vol.44, 2011.

Ngày nhận bài:	26/12/2020
Ngày nhận bản sửa:	16/01/2021
Ngày duyệt đăng:	21/01/2021