

SỰ ẢNH HƯỞNG CỦA ĐIỀU KIỆN TỔNG HỢP LÊN TÍNH CHẤT ĐIỆN CỦA VẬT LIỆU CẤU THÀNH TỪ ỚNG NANO CACBON ĐA VÁCH VÀ CHẤT SẮT ĐIỆN TRIGLYXIN SUNPHAT

NGUYỄN HOÀI THƯƠNG

*Khoa Công nghệ Điện, Đại học Công nghiệp Thành phố Hồ Chí Minh
nguyenthuongfee@iuh.edu.vn*

Tóm tắt. Bài báo nghiên cứu sự ảnh hưởng của hai điều kiện tổng hợp lên tính chất điện của vật liệu nano composit cấu thành từ chất sắt điện triglyxin sunphat (TGS) và ống nano cacbon đa vách (MWCNT). Phương pháp thứ nhất được thực hiện bằng phương khuấy thông thường trong khi phương pháp thứ hai có sự kết hợp giữa khuấy và sóng siêu âm. Các tham số điện của vật liệu được đo ở tần số thấp ($10^{-3} - 10^3$ Hz) trong điện trường yếu (1 V/cm). Kết quả cho thấy, hằng số điện môi có thể đạt cực đại ở một hàm lượng nano cacbon tối ưu tương ứng với 8% khi sử dụng sóng siêu âm và 7.5% khi không sử dụng. Thêm vào đó, điện dẫn suất luôn tăng khi hàm lượng MWCNT tăng.

Từ khóa. Nanocomposite sắt điện, điện dẫn suất, ống nano cacbon đa vách, triglyxin sunphat.

INFLUENCE OF PREPARATION CONDITIONS ON ELECTRICAL PROPERTIES OF MATERIALS CONSISTING OF MULTIWALLED CARBON NANOTUBES AND TRIGLYCINE SULFATE

Abstract. This paper investigates the influence of two preparation conditions on electrical properties of nanocomposites consisting of multiwalled carbon nanotubes (MWCNT) and triglycine sulfate (TGS). The first one was conducted by using the common stirring method and the second one – a combination of stirring and ultrasonication. Dielectric parameters of the two series of MWCNT/TGS samples were measured at low frequencies ($10^{-3} - 10^3$ Hz) in a weak electric field (1 V/cm). It was found that dielectric constant reached maximum at the optimal value of MWCNT content corresponding to 8% in the case of using ultrasonication and 7.5% without it. Meanwhile, the conductivity of materials constantly increased with increasing MWCNT content.

Keywords. Ferroelectric nanocomposites, dielectric constant, electrical conductivity, multiwalled carbon nanotubes, triglycine sulfate.

1. GIỚI THIỆU

Sự phát triển nhanh chóng của công nghệ kỹ thuật điện tử hiện nay luôn song hành cùng quá trình nghiên cứu chế tạo các vật liệu mới cũng như sự cải tiến liên tục các vật liệu sẵn có. Sắt điện nanocomposit là một trong số đó với nhiều tính chất thông minh được ứng dụng rộng rãi trong chế tạo tụ điện, ống dẫn sóng, bộ nhớ sắt điện, RAM máy tính, thẻ RFID, các phần tử áp điện [1,2]. Điểm đặc biệt của dòng vật liệu này chính là sự dễ dàng trong việc điều chỉnh tính chất điện thông qua các tác nhân bên ngoài như nhiệt độ, ánh sáng, điện áp, tần số... từ đó có khả năng đáp ứng tốt các yêu cầu khắc khe trong thực tiễn.

Triglyxin sunphat (TGS) là một trong các vật liệu sắt điện cổ điển đã được phát hiện, nghiên cứu và ứng dụng rộng rãi trong các thiết bị ảnh nhiệt, máy dò hồng ngoại, bộ nhớ [3,4]. Trong một thời gian dài, vật liệu này đã không còn hứng thú đối với hầu hết các nhà nghiên cứu. Tuy nhiên, trong những năm gần đây, triglyxin sunphat một lần nữa trở lại với nhiều tính năng được cải tiến nhờ sự kết hợp với các vật liệu thành phần khác như xenlulo [5,6], hạt nano SiO_2 [7,8] dưới dạng vật liệu nanocomposit. Có rất nhiều phương pháp để cải tiến tính chất của vật liệu sẵn có như giảm kích thước vật liệu xuống cấp độ nano, sử dụng các tác nhân bên ngoài (gia nhiệt, ánh sáng, điện áp) hoặc can thiệp vào thành phần vật liệu bằng cách kết hợp với các vật liệu khác. Trong đó, can thiệp vào thành phần vật liệu được xem là phương pháp tối ưu nhất trong nhiều trường hợp nhờ thực hiện dễ dàng, ít tốn kém trong khi hiệu quả trong rất nhiều trường hợp lại rất cao. Điều thú vị là, nhờ sự tương tác của các vật liệu thêm vào (xenlulo, SiO_2), nhiều tính chất điện của TGS được cải tiến như việc mở rộng pha sắt điện hoặc sự gia tăng đáng kể của hằng số điện môi ở tần số thấp nhờ hiệu ứng Maxwell-Wagner trong môi trường không đồng nhất [5].

4 SỰ ẢNH HƯỞNG CỦA ĐIỀU KIỆN TỔNG HỢP LÊN TÍNH CHẤT ĐIỆN CỦA VẬT LIỆU CẤU THÀNH TỪ ỚNG NANO CACBON ĐA VÁCH VÀ CHẤT SẮT ĐIỆN TRIGLYXIN SUNPHAT

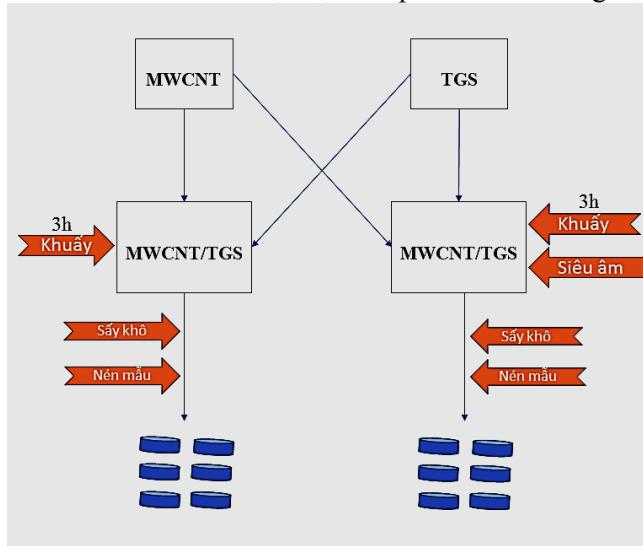
Ớng nano cacbon đa vách (MWCNT) là vật liệu không còn xa lạ đối với các nhà nghiên cứu và đã xuất hiện trong rất nhiều ứng dụng thực tế như bộ chuyển đổi năng lượng, chắn nhiễu điện từ, lưu trữ hydro, tụ lưu trữ điện tích, cảm biến tia cực tím, cảm biến sinh học [9,10]. Khác với xenlulo và SiO₂ không có khả năng dẫn điện, tính ưu việt của MWCNT nằm ở khả năng dẫn điện tốt, độ xốp cao, chịu nhiệt tốt. Hiện nay có rất nhiều nghiên cứu sử dụng MWCNT trong việc cải thiện tính chất điện của nhiều loại vật liệu sắt điện khác nhau (BaTiO₃ [11], PZT [12], PVDF [13]). Tuy nhiên, sự kết hợp của MWCNT và TGS thì chưa được thực hiện. Thêm vào đó, trong hầu hết các nghiên cứu kể trên, mối liên quan giữa điều kiện tổng hợp vật liệu và tính chất điện của vật liệu vẫn chưa được đề cập đến một cách rõ ràng. Chính vì vậy, trong nghiên cứu này, chúng tôi tổng hợp một loại vật liệu mới cấu thành từ MWCNT và TGS, và nghiên cứu sự ảnh hưởng của hai phương pháp tổng hợp khác nhau lên tham số điện của vật liệu. Phương pháp thứ nhất được thực hiện bằng cách khuấy đơn giản đã được sử dụng trong hầu hết các kết quả đã công bố, trong khi phương pháp thứ hai có sự kết hợp giữa khuấy và sóng siêu âm. Ý tưởng này dựa trên đặc tính cơ học của sóng siêu âm có khả năng bẻ gãy sợi nano cacbon, làm tăng sự phân tán các pha vật liệu, từ đó cải thiện sự tương tác điện giữa chúng với nhau.

Bài báo bao gồm các nội dung sau. Đầu tiên là quy trình tổng hợp vật liệu và phương pháp nghiên cứu được trình bày ở mục 2. Ở mục này, bên cạnh các bước tổng hợp vật liệu, các máy đo thực nghiệm cũng được liệt kê. Phần kết quả thực nghiệm được miêu tả chi tiết ở mục 3, trong đó độ tin cậy của vật liệu thu được sẽ được đảm bảo bằng hình ảnh chụp dưới kính hiển vi điện tử quét (Hình 3) và kết quả kiểm tra thành phần hóa học vật liệu được xuất trực tiếp từ máy quang phổ hồng ngoại (Hình 4). Sự ảnh hưởng của điều kiện tổng hợp và tần số điện áp lên các tham số điện của vật liệu được trình bày trên Hình 5,6,7,8. Phần biện luận kết quả được trình bày ở mục 4. Mục 5 là kết luận.

2. QUY TRÌNH TỔNG HỢP VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. Quy trình tổng hợp vật liệu

Các nguyên liệu thành phần dùng để tổng hợp vật liệu bao gồm muối đa tinh thể TGS và MWCNT được đặt mua từ nhà cung cấp Sigma-Aldrich, và có thể sử dụng ngay mà không cần làm sạch thêm. Tuy nhiên, trong bài này chúng tôi vẫn sử dụng phương pháp phổ hồng ngoại để kiểm tra độ tin cậy của vật liệu ban đầu cũng như những thay đổi về nhóm chức của vật liệu composit sau khi tổng hợp.



Hình 1. Quy trình chế tạo hai nhóm mẫu nghiên cứu tương ứng với hai điều kiện tổng hợp khác nhau. Quy trình tổng hợp vật liệu MWCNT/TGS composit được miêu tả tóm tắt trên hình 1 bằng phương pháp khuấy và khuấy kết hợp siêu âm. Trong nghiên cứu này chúng tôi tổng hợp 2 nhóm vật liệu với hàm lượng MWCNT:TGS khác nhau. Đầu tiên, dung dịch TGS bão hòa được pha chế ở nhiệt độ 25 °C. Sau đó, MWCNT được bỏ vào dung dịch với một hàm lượng xác định trong 2 bình khuấy riêng biệt được đậy kín để tránh bay hơi, trong đó một bình có dung thêm sóng siêu âm. Quá trình khuấy được thực hiện bởi máy khuấy từ gia nhiệt (C-MAG) ở tốc độ 700 vòng/phút. Để tạo sóng siêu âm, máy phát siêu âm Qsonica được đưa trực tiếp vào bình khuấy. Thời gian khuấy hoặc khuấy kết hợp siêu âm kéo dài liên tục trong 3h, sau đó nắp được mở và tiếp tục khuấy cho đến khi thu được hỗn hợp ở dạng sên sệt. Cuối cùng, hỗn hợp được

SỰ ẢNH HƯỞNG CỦA ĐIỀU KIỆN TỔNG HỢP LÊN TÍNH CHẤT ĐIỆN CỦA VẬT LIỆU CẤU THÀNH 5 TỪ ỚNG NANO CACBON ĐA VÁCH VÀ CHẤT SẮT ĐIỆN TRIGLYXIN SUNPHAT

tách ra, nung ở nhiệt độ 120 °C trong 2h để khử nước và nén thành mẫu tương ứng với kích thước bề dày 1mm và bề mặt 4 x 4 mm². Quá trình trên được lặp lại với MWCNT:TGS với các hàm lượng khối lượng MWCNT khác gồm 1, 3, 5, 7.5, 8 và 8.2%.

2.2. Phương pháp nghiên cứu

Nghiên cứu này được thực hiện bằng phương pháp thực nghiệm. Các phép đo được thực hiện tại trường Đại học Tổng hợp Quốc Gia Voronezh, Liên Bang Nga.

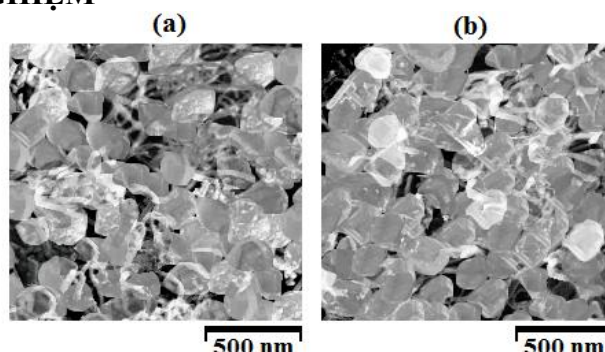
Hình thái vật liệu sau khi tổng hợp được chụp bằng kính hiển vi điện tử quét (A FE-SEM S4800 Hitachi, Japan) có khả năng chụp hình ảnh vật liệu ở kích thước nano. Máy quang phổ Bruker Tensor 37 (USA) được dùng để đo phổ hồng ngoại giúp xác định các nhóm phân tử trong các nguyên liệu đầu vào cũng như vật liệu composit sau khi tổng hợp trong dải số sóng từ 500 đến 4000 cm⁻¹.

Các tham số điện như điện dẫn suất và hằng số điện môi được thực hiện trên hệ thống Solartron trong dải tần số thấp từ 1 mHz đến 1 kHz bằng cách đặt một điện áp xoay chiều phát ra bởi máy phân tích trở kháng Solartron 1260 (UK) kết nối với modul mở rộng INTERFACE 1296 (Hình 2). Tần số điện áp được điều tiết tự động và dữ liệu đo được ghi tự động vào chương trình phân tích trên máy tính bằng phần mềm SMART. Hằng số điện môi được đo bằng máy đo kỹ thuật số LCR-821 (GW Instek) ở các nhiệt độ khác nhau ở tần số 1 kHz.



Hình 2. Hệ thống đo tính chất điện vật liệu Solartron cấu thành từ modul chính Solartron SI 1260 (1) và modul mở rộng Solartron 1296 (2) được đặt tại phòng nghiên cứu thực nghiệm, Đại học Tổng hợp quốc gia Voronezh, Liên Bang Nga

3. KẾT QUẢ THỰC NGHIỆM



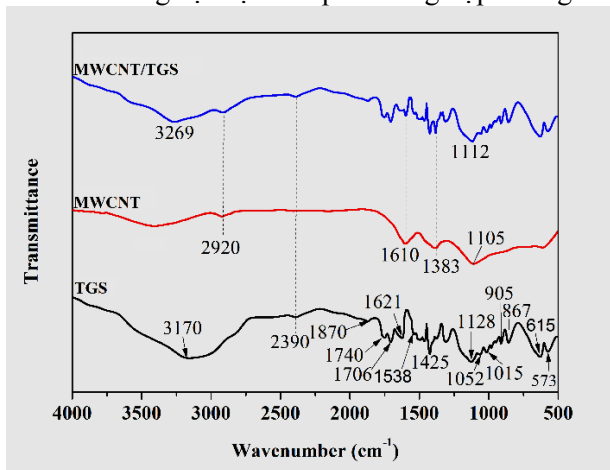
Hình 3. Ảnh chụp từ kính hiển vi điện tử quét đối với vật liệu MWCNT/TGS được tổng hợp bằng phương pháp khuấy (a) và khuấy kết hợp siêu âm (b)

Kết quả ảnh chụp hình thái trên kính hiển vi điện tử quét (Hình 3) cho thấy rõ sự hình thành các hạt TGS và sợi nano cacbon - hai pha cấu thành vật liệu ở kích thước nano. Phần tinh thể TGS tồn tại dưới dạng hạt nano có kích thước khoảng 100 – 250 nm. Đặc biệt, đối với composit MWCNT/TGS được tổng hợp bằng phương pháp khuấy kết hợp siêu âm, sợi nano cacbon có chiều dài ngắn hơn và phân bố đều hơn trong vật

6 SỰ ẢNH HƯỞNG CỦA ĐIỀU KIỆN TỔNG HỢP LÊN TÍNH CHẤT ĐIỆN CỦA VẬT LIỆU CẤU THÀNH TỪ ỚNG NANO CACBON ĐA VÁCH VÀ CHẤT SẮT ĐIỆN TRIGLYXIN SUNPHAT

liệu (Hình 3b). Khi không sử dụng siêu âm, các sợi cacbon có xu hướng co cụm và có chiều dài lớn hơn (Hình 3a). Điều này không khó hiểu bởi dao động cơ học của sóng siêu âm giúp bẻ gãy sợi cacbon và tăng cường sự phân tán vật liệu trong quá trình tổng hợp.

Hình 4 là kết quả chụp phổ hồng ngoại FTIR của nguyên liệu ban đầu (TGS, MWCNT) và composit MWCNT/TGS tổng hợp bằng phương pháp khuấy kết hợp siêu âm. Do kết quả của composit trong trường hợp sử dụng phương pháp khuấy thông thường không cho thấy sự ảnh hưởng đến phổ FTIR nên hình trên chỉ đưa kết quả một trường hợp làm đại diện. Kết quả phổ hồng ngoại của TGS hoàn toàn trùng khớp với kết quả đã công bố với các dải và đỉnh đặc trưng tại 3300 - 2800 cm^{-1} (N-H, C-H, O-H), 1706 cm^{-1} (C=O), 1621 cm^{-1} (COO^-) và 1128 cm^{-1} (SO_4^{2-}) [14]. Tương tự, MWCNT chứa các đỉnh đặc trưng ở 3436 cm^{-1} (OH), 2920 cm^{-1} (C-H), 1610 cm^{-1} (COOH), 1383 và 1105 cm^{-1} (C=C) [15]. Từ đó có thể kết luận về độ tin cậy của các chất dùng để tổng hợp vật liệu. Đối với vật liệu composit MWCNT/TGS sau khi tổng hợp, hầu hết các đỉnh đặc trưng của hai vật liệu thành phần đều xuất hiện trong phổ FTIR. Mặc dù vậy, kết quả cho thấy sự dịch chuyển nhẹ ở số sóng 1128 cm^{-1} xuống số sóng thấp hơn 1112 cm^{-1} , rất có khả năng, là do sự chồng chất với đỉnh 1105 cm^{-1} của MWCNT (Hình 2). Thêm vào đó, đỉnh hấp phụ của dải từ 2800 – 3500 cm^{-1} có sự dịch chuyển khác so với TGS và MWCNT thành phần. Điều này cũng hoàn toàn bình thường do thành phần của nhóm chức O-H trong vật liệu composit tổng hợp không thể giống với vật liệu ban đầu.



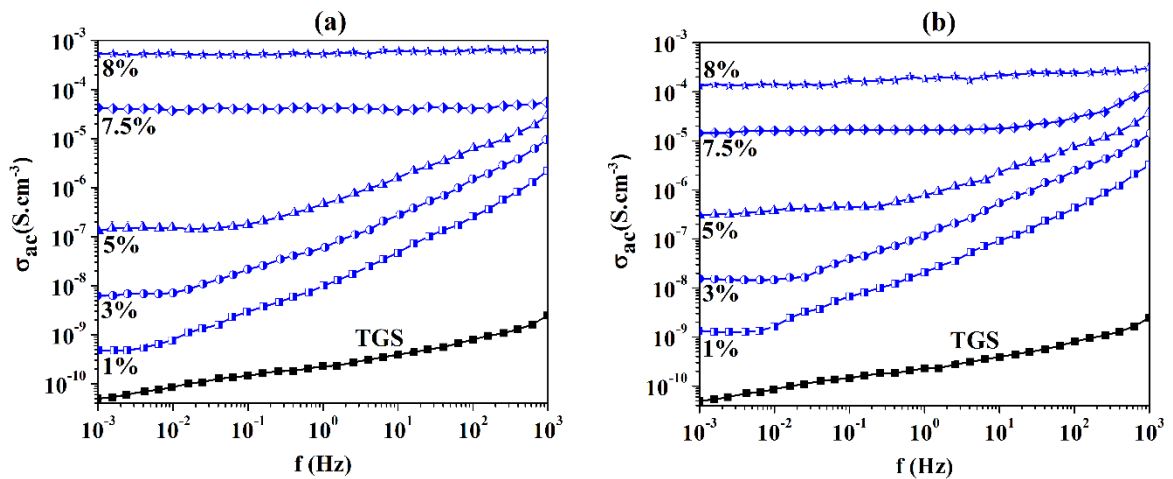
Hình 4. Phổ hồng ngoại đối với các mẫu TGS, MWCNT và vật liệu composit MWCNT/TGS

Sự phụ thuộc của điện dẫn suất vào tần số điện áp đối với TGS nguyên chất và MWCNT/TGS ở các hàm lượng khác nhau bằng phương pháp khuấy và khuấy kết hợp siêu âm được thể hiện trên Hình 5. Có thể thấy trong cả hai trường hợp, điện dẫn suất của vật liệu tăng khi hàm lượng MWCNT tăng. Thêm vào đó, sự phụ thuộc của điện dẫn suất vào tần số điện áp có thể được miêu tả bằng phương trình sau [16]:

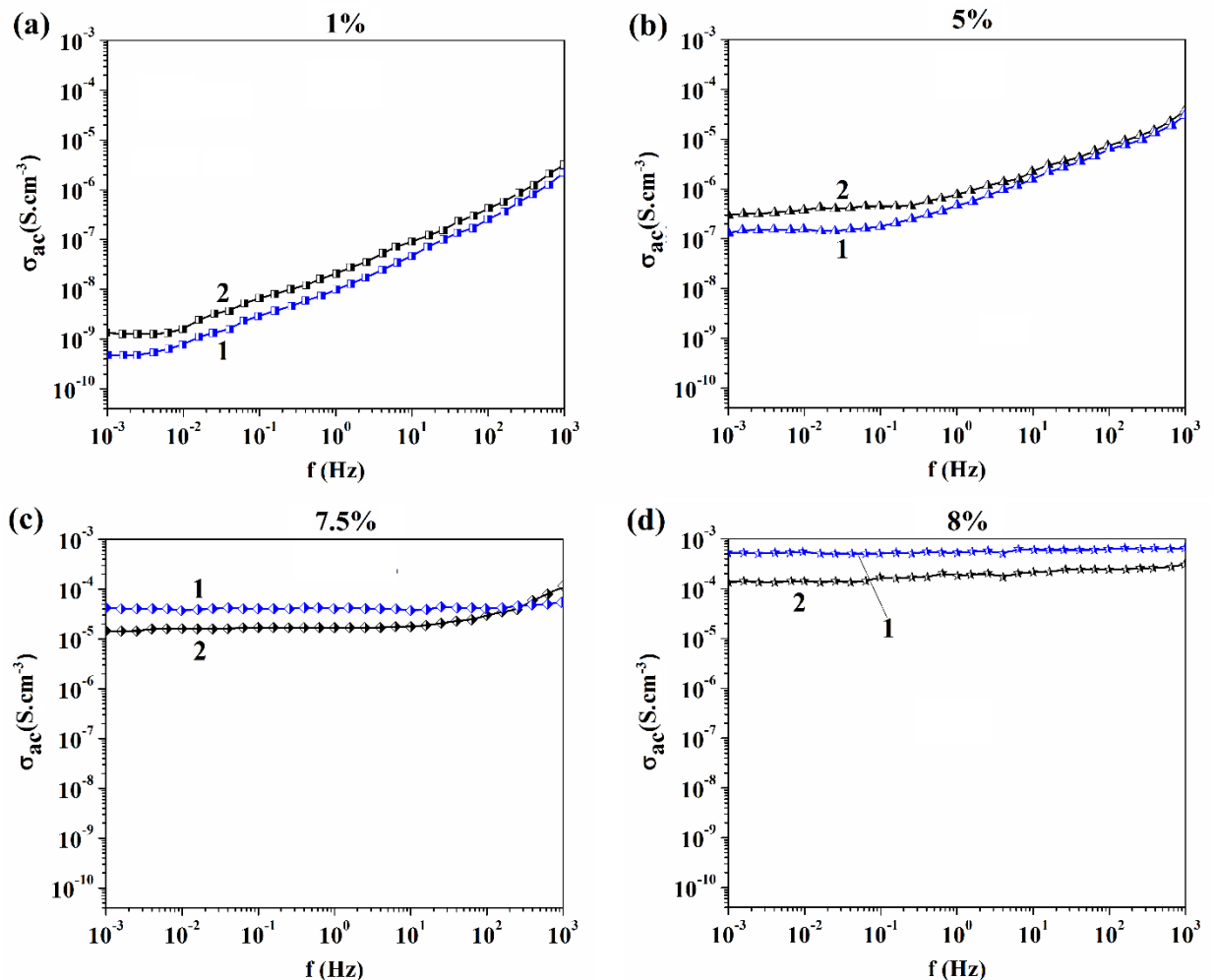
$$\sigma_{ac}(f) = \sigma_{dc} + Af^n \quad (1)$$

với σ_{ac} là điện dẫn suất tổng cộng, σ_{dc} là điện dẫn suất không đổi và không phụ thuộc tần số, A là hằng số, f là tần số góc, n là bậc của hàm mũ ($n \geq 0$). Tại $n = 0$, điện dẫn suất sẽ không phụ thuộc vào tần số điện áp. Điều này có thể xảy ra khi tần số quá cao dẫn đến sự đảo cực quá nhanh của điện áp, từ đó các điện tích không kịp chuyển động dẫn đến sự sụt giảm điện dẫn suất. Giá trị n đặc trưng cho mức độ kết nối các rãnh dẫn điện trong vật liệu giúp cho các hạt mang điện có thể chuyển động và tạo thành dòng [17]. Theo công thức (1), σ_{ac} chứa 2 thành phần bao gồm thành phần một chiều không phụ thuộc tần số σ_{dc} và thành phần xoay chiều $A\omega^n$ đặc trưng bởi độ dốc trên hình. Giá trị n càng lớn thì độ dốc càng lớn – sự phụ thuộc của dòng điện vào tần số càng lớn. Sự phụ thuộc theo công thức (1) được tìm thấy trong hầu hết các vật liệu ở tần số thấp [17]. Mặc dù vậy, sự thay đổi của điện dẫn suất vào hàm lượng MWCNT trong vật liệu có nhiều điểm cần lưu ý ở đây. Trước hết, hàm lượng MWCNT càng lớn thì σ_{dc} càng chiếm ưu thế, độ dốc của $A\omega^n$ càng giảm (Hình 5). Khi hàm lượng MWCNT đạt đến 7.5% trong trường hợp mẫu tổng hợp bằng phương pháp khuấy (Hình 5a) và 8% đối với trường hợp khuấy kết hợp siêu âm (Hình 5b) thì sự phụ thuộc $\sigma_{ac}(f)$ biến thành đường nằm ngang, nghĩa là chỉ chứa thành phần không đổi σ_{dc} . Các giá trị 7.5% và 8% được gọi là ngưỡng hàm lượng cực đại và nguyên nhân dẫn đến sự khác nhau giữa hai hàm lượng trên sẽ được giải thích trong nghiên cứu này.

SỰ ẢNH HƯỞNG CỦA ĐIỀU KIỆN TỔNG HỢP LÊN TÍNH CHẤT ĐIỆN CỦA VẬT LIỆU CẦU THÀNH 7 TỪ ỚNG NANO CACBON ĐA VÁCH VÀ CHẤT SẮT ĐIỆN TRIGLYXIN SUNPHAT



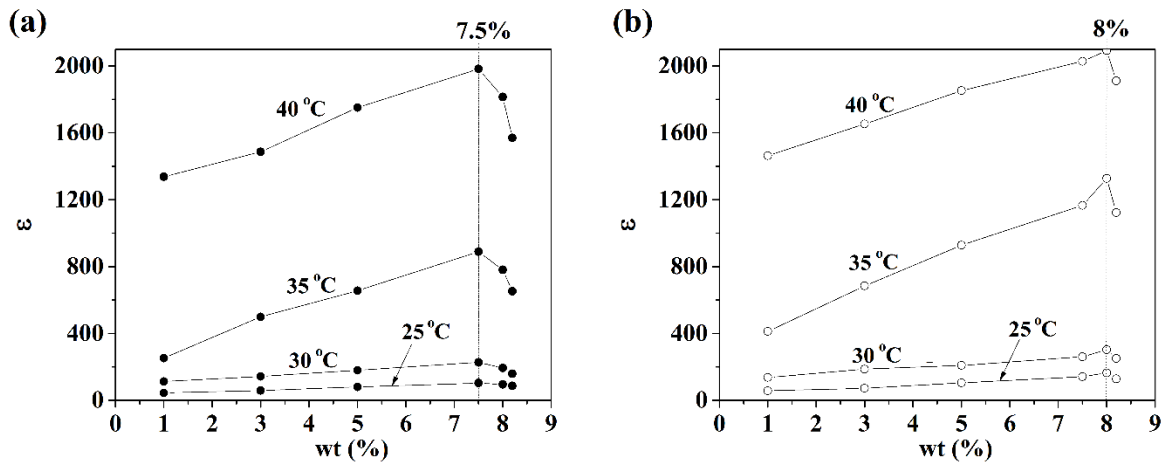
Hình 5. Sự phụ thuộc của điện dẫn suất vào tần số điện áp đối với vật liệu composite MWCNT/TGS ở các hàm lượng MWCNT khác nhau được tổng hợp bằng phương pháp khuấy (a) và khuấy kết hợp sóng siêu âm (b). Kết quả của TGS đưa vào để so sánh



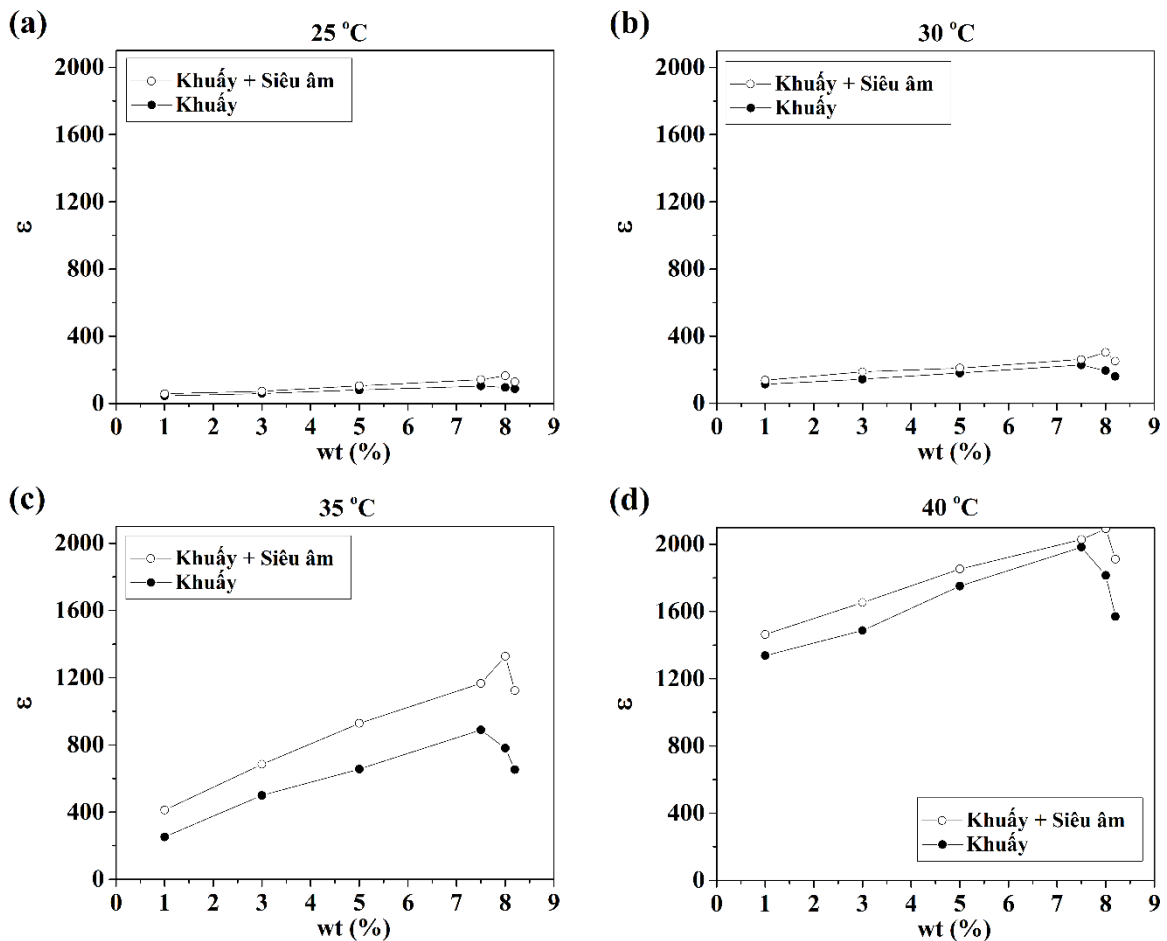
Hình 6. So sánh giá trị điện dẫn suất đối với vật liệu composite MWCNT/TGS có cùng hàm lượng nhưng tổng hợp bằng phương pháp khuấy (1) và khuấy kết hợp sóng siêu âm (2). Nhằm so sánh sự khác nhau của hai nhóm mẫu được tổng hợp ở hai điều kiện khác nhau, kết quả được vẽ lại ở từng hàm lượng 1%, 5%, 7.5% và 8% (Hình 6). Điều đặc biệt là, khi chưa đạt đến ngưỡng, giá trị điện

8 SỰ ẢNH HƯỞNG CỦA ĐIỀU KIỆN TỔNG HỢP LÊN TÍNH CHẤT ĐIỆN CỦA VẬT LIỆU CẦU THÀNH TỪ ỚNG NANO CACBON ĐA VÁCH VÀ CHẤT SẮT ĐIỆN TRIGLYXIN SUNPHAT

dẫn suất của nhóm mẫu được tổng hợp bằng phương pháp khuấy kết hợp siêu âm có giá trị cao hơn. Khi hàm lượng MWCNT đạt ngưỡng 7.5%, giá trị điện dẫn suất của mẫu tổng hợp bằng phương pháp khuấy chiếm ưu thế (Hình 6c). Điều này cũng đúng khi MWCNT đạt 8% đối với nhóm mẫu có sử dụng sóng siêu âm (Hình 6c).



Hình 7. Sự phụ thuộc của hằng số điện môi của vật liệu MWCNT/TGS vào hàm lượng MWCNT ở các nhiệt độ khác nhau được tổng hợp bằng phương pháp khuấy (a) và khuấy kết hợp siêu âm (b)



Hình 8. Sự phụ thuộc của hằng số điện môi của vật liệu MWCNT/TGS vào hàm lượng MWCNT được tổng hợp bằng phương pháp khuấy và khuấy kết hợp siêu âm ở các nhiệt độ khác nhau.

SỰ ẢNH HƯỞNG CỦA ĐIỀU KIỆN TỔNG HỢP LÊN TÍNH CHẤT ĐIỆN CỦA VẬT LIỆU CẦU THÀNH 9 TỪ ỚNG NANO CACBON ĐA VÁCH VÀ CHẤT SẮT ĐIỆN TRIGLYXIN SUNPHAT

Sự phụ thuộc của hằng số điện môi vào hàm lượng MWCNT cũng được khảo sát và so sánh (Hình 7) ở các nhiệt độ khác nhau: 25, 30, 35 và 40 °C. Khác với điện dẫn suất, hằng số điện môi chỉ tăng theo hàm lượng MWCNT đến một giá trị xác định: 7.5% đối với phương pháp khuấy (Hình 7a) và 8% đối với phương pháp khuấy kết hợp siêu âm (Hình 7b). Nếu tiếp tục thêm MWCNT, hằng số điện môi sẽ giảm. Điều này trái ngược với điện dẫn suất vì giá trị của nó tiếp tục tăng khi hàm lượng MWCNT tăng vượt ngưỡng trên. Trong cả hai nhóm vật liệu composit, hằng số điện môi đều tăng theo nhiệt độ (Hình 7). Nguyên nhân dẫn đến hiện tượng này là do trong pha sắt điện của TGS ($T < 49$ °C), nhiệt độ sẽ giúp cho các domen sắt điện dịch chuyển dễ dàng hơn theo sự thay đổi chiều điện áp bên ngoài [18]. Ngoài ra, sự kết hợp sóng siêu âm làm cho hằng số điện môi tăng cao hơn so với phương pháp khuấy thông thường ở tất cả các nhiệt độ nghiên cứu (Hình 8).

4. BIỆN LUẬN KẾT QUẢ

Sự tăng của điện dẫn suất khi tăng hàm lượng MWCNT không khó hiểu bởi ống nano cacbon đa vách có khả năng dẫn điện tốt. Điều này dẫn đến việc thành phần không đổi σ_{dc} mở rộng ra khi hàm lượng MWCNT tăng. Tuy nhiên, vấn đề khó hiểu hơn nằm ở chỗ tại sao ngưỡng hàm lượng MWCNT đối với nhóm mẫu tổng hợp bằng phương pháp khuấy thông thường (7.5%) lại thấp hơn khi sử dụng sóng siêu âm (8%). Dễ dàng nhận thấy, đối với quá trình tổng hợp vật liệu nói chung, sóng siêu âm giúp cho quá trình phân tán vật liệu tốt hơn. Thêm vào đó, dưới áp lực cơ học của sóng siêu âm, MWCNT có thể bị đứt gãy. Điều này dẫn đến một thực tế là, để hình thành một cầu nối dẫn điện giữa hai cực, các mẫu MWCNT/TGS trong trường hợp sử dụng sóng siêu âm phải chứa hàm lượng MWCNT cao hơn (8%). Đối với nhóm mẫu sử dụng phương pháp khuấy thông thường, chỉ cần một lượng MWCNT nhỏ hơn (7.5%) thì vẫn có thể hình thành một cầu nối dẫn điện giữa hai cực. Việc tồn tại ngưỡng hàm lượng của ống nano cacbon đa vách cũng được tìm thấy trong rất nhiều loại vật liệu khác nhau [19].

Giải thích trên hoàn toàn trùng khớp với kết quả thu được đối với sự giảm của hằng số điện môi khi hàm lượng MWCNT vượt ngưỡng (Hình 7). Do hằng số điện môi đặc trưng bởi sự phân cực của TGS trong pha sắt điện, khi hình thành cầu nối dẫn điện giữa 2 cực (nếu hàm lượng MWCNT đạt ngưỡng) sự phân cực này sẽ giảm mạnh. Khi đó, các điện tích sẽ di chuyển về hai cực và môi trường composit trở thành môi trường dẫn điện.

Sự tăng của hằng số điện môi khi tăng hàm lượng MWCNT dưới ngưỡng có thể liên quan đến sự phân cực Maxwell-Wagner. Trong trường hợp này, các điện tích sẽ tập trung tại lớp phân cách MWCNT/TGS tạo thành các vùng phân cực cục bộ phân bố trên toàn mẫu, dẫn đến sự phân cực tổng cộng của vật liệu composit tăng đáng kể. Sự phân cực theo cơ chế Maxwell-Wagner đối với TGS nói riêng [5] và trong các môi trường không đồng nhất nói chung đã công bố rộng rãi [20].

Cơ chế Maxwell-Wagner có thể dùng để giải thích tại sao giá trị hằng số điện môi trong trường hợp sử dụng sóng siêu âm lại cao hơn phương pháp khuấy thông thường. Do sóng siêu âm giúp cho quá trình phân tán các ống nano cacbon tốt hơn, từ đó làm tăng số vùng phân cực cục bộ nằm ở lớp phân cách MWCNT/TGS, kéo theo sự gia tăng phân cực trong toàn bộ phân vật liệu.

5. KẾT LUẬN

Kết quả thu được cho thấy việc thêm vào ống nano cacbon đa vách đã ảnh hưởng rõ rệt đến tính chất điện của chất sắt điện triglyxin sunphat. Trước hết, hằng số điện môi sẽ đạt giá trị cực đại khi hàm lượng nano cacbon được điều chỉnh đến một giá trị tối ưu tương ứng với 7.5% trong trường hợp tổng hợp mẫu bằng phương pháp khuấy và 8% khi dùng khuấy kết hợp sóng siêu âm. Các hàm lượng khác đều làm giảm hằng số điện môi của vật liệu. Thêm vào đó, việc thêm vào sợi nano cacbon đa vách làm tăng điện dẫn suất của vật liệu – điều này trong nhiều trường hợp có thể dẫn đến sự tỏa nhiệt lớn và ảnh hưởng đến hiệu suất hoạt động của thiết bị. Như vậy, việc sử dụng phương pháp tổng hợp phù hợp và điều chỉnh hàm lượng nano cacbon hợp lý sẽ giúp tối ưu hóa các tham số điện của vật liệu, từ đó mở ra triển vọng về việc cải tiến các thiết bị hiện tại có sử dụng triglyxin sunphat.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] C. S. Hwang and T. Mikolajick, *Advances in Non-Volatile Memory and Storage Technology (Second Edition)*, (Woodhead Publishing, 2019), pp. 393-441.

- 10 SỰ ẢNH HƯỞNG CỦA ĐIỀU KIỆN TỔNG HỢP LÊN TÍNH CHẤT ĐIỆN CỦA VẬT LIỆU CẤU THÀNH TỪ ỚNG NANO CACBON ĐA VÁCH VÀ CHẤT SẮT ĐIỆN TRIGLYXIN SUNPHAT
- [2] E. Tang, H. Luo, Y. Cheng, Y. Han and C. Chen, Research on thermal evolution of typical ferroelectric RAM irradiated by femtosecond pulsed laser, *Materials Science in Semiconductor Processing*, vol. 121, pp. 105358, 2021.
- [3] M. Banan, R. B. Lal and A. Batra, Modified triglycine sulphate (TGS) single crystals for pyroelectric infrared detector applications, *Journal of Materials Science*, vol. 27, pp. 2291-2297, 1992.
- [4] R. V. Gainutdinov, E. S. Ivanova, E. A. Petrzhik, A. K. Lashkova and T. R. Volk, Magnetic memory effects in triglycine sulfate ferroelectric crystals, *JETP Letters*, vol. 106, pp. 97-102, 2017.
- [5] N. H. Thu'o'ng, A. S. Sidorkin and S. D. Milovidova, Dispersion of Dielectric Permittivity in a Nanocrystalline Cellulose–Triglycine Sulfate Composite at Low and Ultralow Frequencies, *Physics of the Solid State*, vol. 60, pp. 559-565, 2018.
- [6] H. T. Nguyen, M. T. Chau, N. T. Luu and N. Van Anh, Effects of Carbonization on Electrophysical Properties of Cellulose-Based Nanocomposites with Triglycine Sulfate, *MATERIALS TRANSACTIONS*, vol. 61, pp. 1580-1583, 2020.
- [7] B. D. Mai, H. T. Nguyen and A. Y. Milinskiy, Influence of silicon dioxide nanoparticles on dielectric relaxation of triglycine sulfate, *Ferroelectrics*, vol. 559, pp.141-149, 2020.
- [8] S. D. Milovidova, O. V. Rogazinskaya, A. S. Sidorkin, E. V. Vorotnikov, K. T. Nguen and A. P. Lazarev, Dielectric properties of mixed composites prepared from nanodisperse silica and triglycine sulfate, *Physics of the Solid State*, vol. 57, pp. 510-512, 2015.
- [9] S. Salaeh, A. Thitithammawong and A. Salae, Highly enhanced electrical and mechanical properties of methyl methacrylate modified natural rubber filled with multiwalled carbon nanotubes, *Polymer Testing*, vol. 85, pp. 106417, 2020.
- [10] N. George, B. Venugopal, H. John, A. Mathiazhagan and R. Joseph, Nanosilica decorated multiwalled carbon nanotubes (CS hybrids) in natural rubber latex, *Polymer*, vol. 161, pp. 170-180, 2019.
- [11] M. Nadafan and M. R. Tohidifar, Evaluation of structural, optical and dielectric properties of MWCNT-BaTiO₃/silica ceramic nanocomposites, *Ceramics International*, vol. 46, pp. 12243-12248, 2020.
- [12] A. Pal, A. Sasmal, B. Manoj, D. S. D. P. Rao, A. K. Haldar and S. Sen, Enhancement in energy storage and piezoelectric performance of three phase (PZT/MWCNT/PVDF) composite, *Materials Chemistry and Physics*, vol. 244, pp. 122639, 2020.
- [13] L. Yang, J. Qiu, H. Ji, K. Zhu and J. Wang, Enhanced dielectric and ferroelectric properties induced by TiO₂@MWCNTs nanoparticles in flexible poly(vinylidene fluoride) composites, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 65, pp. 125-134, 2014.
- [14] N. Sinha, S. Bhandari, H. Yadav, G. Ray, S. Godara, N. Tyagi, J. Dalal, S. Kumar and B. Kumar, Performance of crystal violet doped triglycine sulfate single crystals for optical and communication applications, *CrystEngComm*, vol. 17, pp. 5757-5767, 2015.
- [15] J. Tao and S.-a. Cao, Flexible high dielectric thin films based on cellulose nanofibrils and acid oxidized multi-walled carbon nanotubes, *RSC Advances*, vol. 10, pp. 10799-10805, 2020.
- [16] A. K. Jonscher, Dielectric relaxation in solids. *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 32, 57-70, 1999.

SỰ ẢNH HƯỞNG CỦA ĐIỀU KIỆN TỔNG HỢP LÊN TÍNH CHẤT ĐIỆN CỦA VẬT LIỆU CẤU THÀNH 11
TỪ ỚNG NANO CACBON ĐA VÁCH VÀ CHẤT SẮT ĐIỆN TRIGLYXIN SUNPHAT

- [17] B. M. Greenhoe, M. K. Hassan, J. S. Wiggins and K. A. Mauritz, Universal power law behavior of the AC conductivity versus frequency of agglomerate morphologies in conductive carbon nanotube-reinforced epoxy networks, *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, vol. 54, pp. 1918-1923, 2016.
- [18] J. A. Gonzalo and J. R. Lopez-Alonso, Statistical theory for ferroelectricity in tri-glycine sulfate, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 25, pp. 303-310, 1964.
- [19] F. Lai, L. Zhao, J. Zou and P. Zhang, High positive temperature coefficient effect of resistivity in conductive polystyrene/polyurethane composites with ultralow percolation threshold of MWCNTs via interpenetrating structure, *Reactive and Functional Polymers*, vol. 151, pp. 104562, 2020.
- [20] B. H. Nguyen, X. Zhuang and T. Rabczuk, Numerical model for the characterization of Maxwell-Wagner relaxation in piezoelectric and flexoelectric composite material, *Computers & Structures*, vol. 208, pp. 75-91, 2018.

Ngày nhận bài: 10/09/2020

Ngày chấp nhận đăng: 04/03/2021