

Kem tản nhiệt với độ dẫn nhiệt cao nền silicon chứa thành phần graphene

Mai Thị Phụng^{1,2}, Nguyễn Tuấn Hồng³, Bùi Hùng Thắng^{1,3*},
Phạm Văn Trình¹, Nguyễn Việt Tuyên⁴, Nguyễn Năng Định², Phan Ngọc Minh^{1,3,5}

¹Viện Khoa học Vật liệu, Viện Hàn lâm KH&CN Việt Nam

²Trường Đại học Công nghệ, Đại học Quốc gia Hà Nội

³Trung tâm Phát triển Công nghệ cao, Viện Hàn lâm KH&CN Việt Nam

⁴Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội

⁵Học viện Khoa học và Công nghệ, Viện Hàn lâm KH&CN Việt Nam

Ngày nhận bài 31/5/2019; ngày chuyển phản biện 3/6/2019; ngày nhận phản biện 1/7/2019; ngày chấp nhận đăng 18/7/2019

Tóm tắt:

Kem tản nhiệt nền silicon là vật liệu giao diện nhiệt điển hình được sử dụng để nâng cao hiệu quả trao đổi nhiệt ở lớp tiếp giáp giữa nguồn nhiệt và bộ tản nhiệt của linh kiện điện tử. Để tăng hệ số dẫn nhiệt của kem nền silicon, các chất đệm có độ dẫn nhiệt cao được thêm vào và phân tán đồng đều trong nền kem, chẳng hạn như nhôm oxit, kẽm oxit, graphit, bột nhôm... Graphene là vật liệu có nhiều tính chất cơ lý ưu việt, trong đó có hệ số dẫn nhiệt cao ($k \sim 5000$ W/m.K), do vậy vật liệu này có tiềm năng ứng dụng lớn trong lĩnh vực tản nhiệt cho các linh kiện và thiết bị công suất lớn nói chung, trong kem tản nhiệt nói riêng. Bài báo này trình bày một số kết quả thu được trong việc chế tạo và khảo sát tính chất của kem tản nhiệt nền silicon chứa thành phần graphene. Để tăng khả năng phân tán của graphene trong nền kem silicon, graphene được biến tính gắn nhóm chức -COOH và sử dụng thiết bị nghiền bi năng lượng cao 8000D Mixer/Mill trong quá trình phân tán. Kết quả khảo sát cho thấy, độ dẫn nhiệt của kem tăng lên theo hàm lượng của graphene, ứng với 1% thể tích của graphene thì độ dẫn nhiệt của kem tản nhiệt tăng lên đến 230%. Như vậy, vật liệu graphene đã giúp cải thiện tính dẫn nhiệt của kem tản nhiệt nền silicon, có tiềm năng ứng dụng lớn trong việc nâng cao hiệu quả tản nhiệt cho các linh kiện điện tử và các thiết bị công suất lớn.

Từ khóa: graphene, hệ số dẫn nhiệt, kem tản nhiệt, silicon.

Chỉ số phân loại: 1.8

Đặt vấn đề

Gần đây, sự phát triển của công nghệ vi điện tử, nano điện tử cho phép các linh kiện điện tử và quang tử tăng mạnh cả về mật độ linh kiện, công suất và tốc độ hoạt động [1]. Tuy nhiên, các linh kiện điện tử công suất cao như diode phát quang công suất cao High Brightness LED (HB-LED) hay vi xử lý máy tính (CPU) khi hoạt động trong một thời gian dài sẽ tiêu tốn năng lượng và giải phóng nhiệt lượng lớn, làm ảnh hưởng đến tuổi thọ của thiết bị [2]. Do vậy việc cải tiến, nâng cao hiệu quả tản nhiệt sẽ giúp kéo dài tuổi thọ, tăng hiệu suất và công suất phát quang, nâng cao tốc độ và hiệu quả hoạt động của linh kiện và thiết bị điện tử công suất [3, 4].

Do giữa bề mặt của nguồn nhiệt và bộ tản nhiệt không bằng phẳng, có độ nhám tạo thành các khe không khí với độ dẫn nhiệt thấp ($0,026$ W/m.K), nên việc sử dụng kem tản nhiệt để nâng cao hiệu quả trao đổi nhiệt tại lớp tiếp giáp là rất cần thiết [5]. Kem tản nhiệt có cấu tạo từ hai thành phần chính là nền polyme và chất đệm, trong đó silicon là một hợp chất polyme thường được sử dụng làm chất nền do sự ổn định nhiệt độ, đặc tính ướt, năng lượng bề mặt thấp để có thể trải đều trên bề mặt lớp tiếp giáp giữa

linh kiện điện tử và hệ thống tản nhiệt [6-7]. Thành phần dẫn nhiệt chính trong kem tản nhiệt silicon là chất đệm, chúng là các hạt kích thước μm với độ dẫn nhiệt cao được phân tán đồng đều trong nền silicon như hạt cacbon, nhôm oxit, kẽm oxit, graphit... [8-12]. Để nâng cao hơn nữa hệ số dẫn nhiệt của kem thì một số vật liệu nano đã được nghiên cứu sử dụng làm chất đệm như hạt cầu nano cacbon, ống nano cacbon... [13, 15].

Graphene là vật liệu nano cacbon hai chiều, tạo thành từ các lớp nguyên tử cacbon được sắp xếp theo mạng lục giác với liên kết sp^2 [16]. Graphene đã thu hút được sự quan tâm sâu sắc trong nhiều lĩnh vực do các tính chất vật lý và hóa học đặc biệt của chúng. Nghiên cứu của Baladin và cộng sự chỉ ra rằng, độ dẫn nhiệt trong mặt phẳng của graphene đơn lớp lên tới 5200 W/m.K [17] (so với độ dẫn nhiệt của CNTs là 2000 W/m.K và Ag là 410 W/m.K) [18, 19]. Tính dẫn nhiệt ưu việt của graphene [20, 21] đã mở ra tiềm năng ứng dụng lớn trong tản nhiệt cho các thiết bị công suất cao [22-24].

Trên thế giới đã có nghiên cứu về ứng dụng graphene trong kem tản nhiệt silicon, tuy nhiên nghiên cứu này sử dụng graphene

*Tác giả liên hệ: Email: thangbh@ims.vast.vn

High thermal conductive silicone grease containing graphene

Thi Phuong Mai^{1,2}, Tuan Hong Nguyen³,
Hung Thang Bui^{1,3*}, Van Trinh Pham¹,
Viet Tuyen Nguyen⁴, Nang Dinh Nguyen³, Ngoc Minh Phan^{1,3,5}

¹Materials Science Institute,

Vietnam Academy of Science and Technology

²University of Technology, Vietnam National University, Hanoi

³High Technology Development Center,

Vietnam Academy of Science and Technology

⁴University of Sciences, Vietnam National University, Hanoi

⁵Graduate of Science and Technology,

Vietnam Academy of Science and Technology

Received 31 May 2019; accepted 18 July 2019

Abstract:

Silicone grease is a typical thermal interface material, which is used to improve the heat exchange efficiency in the junction between the heat source and the heat sink of electronic components. To increase the thermal conductivity of silicone grease, high thermal conductive additives (aluminum oxide, zinc oxide, graphite, aluminum powder...) are added and evenly dispersed in the based grease. Graphene is known as the material owning many excellent properties such as low density, high hardness, and high thermal conductivity. It suggests an approach to the application of graphene as an additive to enhance thermal conductivity of silicone grease. In this paper, we present some obtained results in the fabrication of high thermal conductive grease containing graphene. The 8000D Mixer/Mill (High-Energy Ball Mill) equipment was used to mix carboxylated graphene nanoplatelets (GNPs) and silicone. The thermal conductivity of the obtained grease was examined by Transient Hot Bridge THB-100 equipment. The results exhibited that GNPs was efficient for the thermal conductivity enhancement of silicone grease, and it provided a thermal conductivity enhancement upto 230% with 1.00 vol.% of GNPs. The obtained results confirmed the advantages of graphene as an additive in grease for the heat dissipation of high power electronic devices.

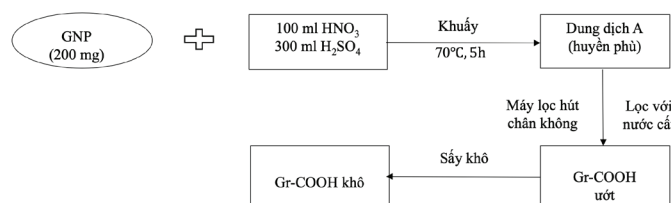
Keywords: graphene, silicone, thermal conductivity coefficient, thermal grease.

Classification number: 1.8

để phân tán trực tiếp vào dầu silicon bằng thiết bị khuấy trộn cơ học [25]. Việc sử dụng thiết bị nghiền bi năng lượng cao để phân tán graphene vào nền kem silicon vẫn chưa được nghiên cứu. Trong báo cáo này, chúng tôi trình bày các kết quả thu được trong chế tạo và khảo sát tính chất kem tản nhiệt chứa thành phần graphene nanoplatelets bằng cách sử dụng phương pháp biến tính chức năng hóa nhóm -COOH và sử dụng thiết bị nghiền bi năng lượng cao 8000D Mixer/Mill để nâng cao hiệu quả phân tán của graphene trong nền kem tản nhiệt silicon.

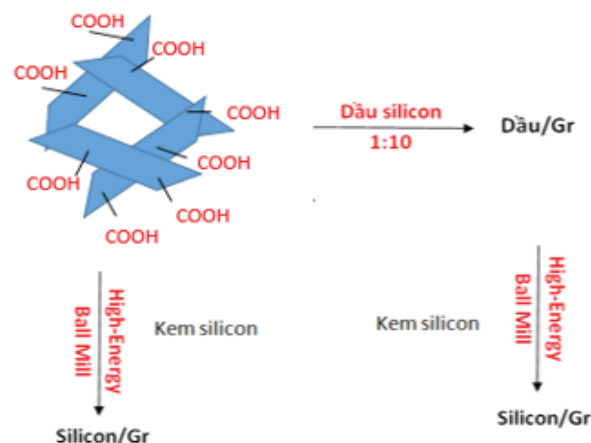
Nội dung nghiên cứu

Vật liệu graphene nanoplatelets (GNP) được mua từ Hãng ACS Material với độ sạch là 99,5%, độ dày 2-10 nm, đường kính khoảng 5 μm , khối lượng riêng 2,3 g/cm^3 , diện tích bề mặt 20-40 m^2/g . Bề mặt của graphene được biến tính gắn nhóm chức carboxyl để nâng cao hiệu quả phân tán trong nền kem tản nhiệt silicon [26]. Các hóa chất được sử dụng để thực hiện quy trình biến tính bao gồm HNO_3 (Merck), H_2SO_4 (Merck). Dầu silicon sử dụng trong nghiên cứu là polydimethylsiloxane của Hãng Momentive với độ nhớt 350 cst và nhiệt độ bay hơi khoảng 300°C. Quá trình graphene biến tính gắn nhóm chức được thực hiện theo quy trình như hình 1.



Hình 1. Quy trình biến tính graphene với nhóm chức Gr-COOH.

Sau khi gắn nhóm chức thành công, nhóm nghiên cứu chế tạo kem tản nhiệt theo hai quy trình như hình 2 và so sánh kết quả giữa hai quy trình này để tìm được quy trình phù hợp trong việc chế tạo kem.



Hình 2. Quy trình tổng hợp kem tản nhiệt nền silicon chứa thành phần graphene.

• Quy trình 1:

- Bước 1: khuấy trộn vật liệu Gr-COOH với kem nền silicon bằng phương pháp cơ học thông thường để thu được hỗn hợp.

- Bước 2: nghiền hỗn hợp thu được ở bước 1 bằng thiết bị 8000D Mixer/Mill (High-Energy Ball Mill) trong thời gian từ 0,5-3 giờ để thu được kem tản nhiệt nền silicon chứa thành phần graphene.

• Quy trình 2:

- Bước 1: pha trộn vật liệu Gr-COOH vào dầu silicon với tỷ lệ 1:10 thu được hỗn hợp dầu/Gr.

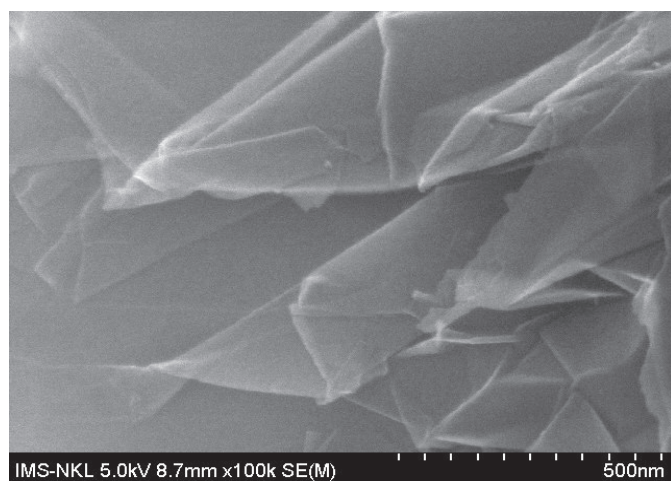
- Bước 2: khuấy trộn hỗn hợp dầu/Gr với kem nền silicon.

- Bước 3: nghiền hỗn hợp thu được ở bước 2 bằng thiết bị 8000D Mixer /Mill (High-Energy Ball Mill) trong thời gian từ 0,5-3 giờ để thu được kem tản nhiệt nền silicon chứa thành phần graphene.

Kính hiển vi điện tử quét phân giải siêu cao (FESEM) được sử dụng để kiểm tra hình thái học bề mặt và sự phân tán của graphene trong nền kem tản nhiệt. Thành phần hóa học trong kem tản nhiệt được kiểm tra bởi thiết bị quang phổ chuyển đổi hồng ngoại FTIR. Phổ tán xạ Raman được sử dụng để kiểm tra những biến đổi cấu trúc vật liệu graphene sau khi biến tính gắn nhóm chức -COOH. Độ dẫn nhiệt của kem tản nhiệt được xác định bằng thiết bị Transient Hot Bridge THB-100.

Kết quả

Hình 3 là ảnh FESEM của các hạt graphene nanoplatelets, độ dày của graphene trong phạm vi từ 2-10 nm, đường kính trung bình khoảng 5 μm với độ sạch cao và độ tinh khiết 99%.

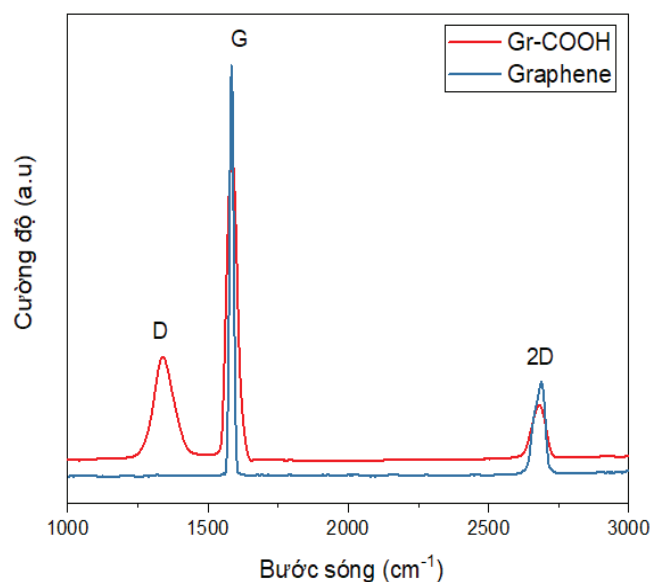


Hình 3. Ảnh FESEM của graphene nanoplatelets.

Hình 4 là phổ tán xạ Raman của vật liệu trước và sau khi biến tính gắn nhóm chức -COOH. Với vật liệu graphene kết quả cho thấy, các đặc điểm nổi bật nhất của graphene ở bước sóng 1584 cm^{-1} là dải G (graphit) và dải 2D ở bước sóng 2682 cm^{-1} [26]. Đỉnh

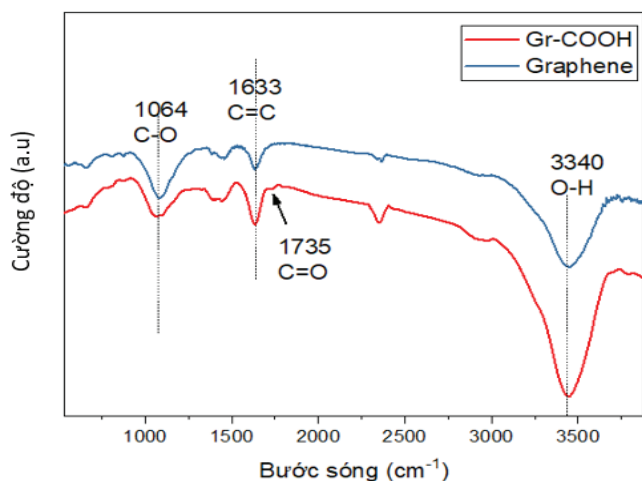
G sinh ra từ mạng graphene đặc trưng cho tính trật tự của cấu trúc trong đó các nguyên tử cacbon sắp xếp theo trật tự dạng vòng sáu cạnh. Đỉnh 2D là dải đặc trưng của graphene, nó được hình thành từ dao động của các nguyên tử cacbon ở trạng thái sp^2 [26]. Như vậy, với graphene chưa biến tính kết quả cho thấy graphene không xuất hiện dải D, thể hiện rằng graphene có độ tinh khiết cao.

Kết quả Raman của Gr-COOH xuất hiện dải D tại bước sóng 1340 cm^{-1} thể hiện khiếm khuyết của vật liệu graphene. Điều này cho thấy sự tấn công của axit vào mạng graphene, do đó tạo điều kiện cho sự neo đậu của các nhóm -COOH trên graphene. Tỷ lệ cường độ dải D so với dải G (I_D/I_G) thể hiện độ sai hỏng của graphene [27]. Sự gia tăng tỷ lệ cường độ đỉnh I_D/I_G cho thấy sự biến đổi từ liên kết sp^2 (C=C) thành liên kết sp^3 (C-C) trên bề mặt graphene sau khi xử lý biến tính trong hỗn hợp dung dịch axit HNO_3 và H_2SO_4 [28].

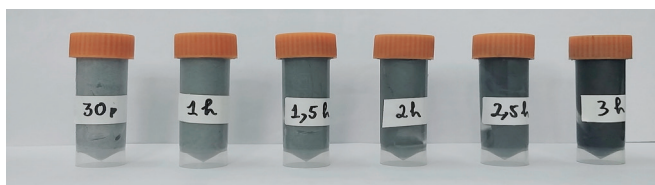


Hình 4. Phổ Raman của GNP và Gr-COOH.

Hình 5 là kết quả đo phổ hồng ngoại biến đổi FTIR của vật liệu graphene và Gr-COOH. Kết quả cho thấy tồn tại các đỉnh đặc trưng ở bước sóng 3340 cm^{-1} , đây là đỉnh đặc trưng cho sự dao động kéo dài của liên kết O-H trong H_2O [29]. Các đỉnh dao động trong vùng 3340 cm^{-1} có xu hướng mở rộng về phía tần số thấp sau khi biến tính là do ảnh hưởng của các liên kết O-H trong nhóm -COOH. Kết quả cho thấy, sự xuất hiện thêm đỉnh ở bước sóng 1633 cm^{-1} được cho là sự rung động trong mặt phẳng (C=C) của than chì và đỉnh 1064 cm^{-1} hiển thị sự rung động của liên kết C-O. Kết quả phổ hồng ngoại của Gr-COOH cho thấy xuất hiện thêm đỉnh 1708 cm^{-1} tương ứng với dao động của liên kết C=O trong nhóm -COOH [29]. Các đỉnh đặc trưng trên phổ FTIR đã cho thấy sự tồn tại của nhóm carboxyl trên bề mặt graphene sau khi được xử lý gắn nhóm chức bằng hỗn hợp axit HNO_3 và H_2SO_4 .



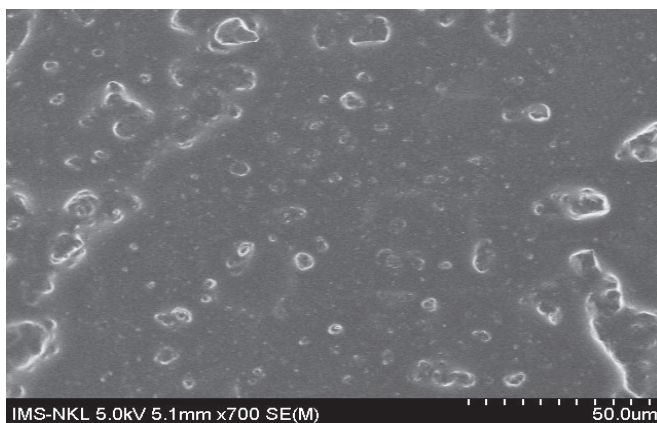
Hình 5. Phổ FTIR của graphene và Gr-COOH.



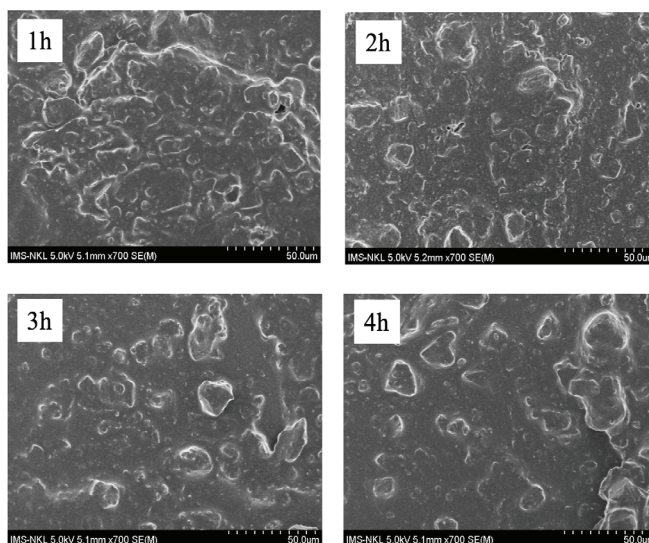
Hình 6. Hình ảnh mẫu kem được chế tạo với thời gian nghiền khác nhau.

Hình 6 là ảnh chụp của kem tản nhiệt silicon chứa 1 vol.% với thời gian nghiền khác nhau theo quy trình 1. Có thể nhận thấy, về mặt trực quan khi tăng thời gian nghiền từ 30 phút lên đến 3 giờ thì màu sắc của kem tản nhiệt sẫm dần, điều này cho thấy hiệu quả phân tán tăng theo thời gian nghiền và đạt được giá trị tối ưu sau thời gian nghiền đủ lớn. Vì vậy, phương pháp SEM đã được sử dụng để khảo sát sự phân tán của graphene trong nền kem để xác định thời gian nghiền tối ưu.

Hình 7 là ảnh SEM của kem tản nhiệt silicon được sử dụng trong nghiên cứu, kết quả cho thấy kem chứa một số chất độn có kích thước lớn và nhỏ phân bố trong kem. Sự tồn tại của chất độn kích thước khác nhau có tác dụng hình thành cấu trúc xen kẽ dày đặc trong kem silicon, thuận lợi cho việc dẫn nhiệt trong nền kem.



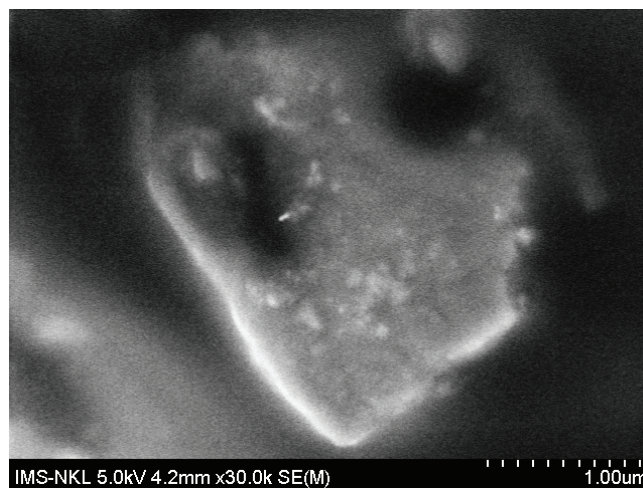
Hình 7. Ảnh FESEM của kem nền silicon.



Hình 8. Ảnh FESEM của kem tản nhiệt chứa Gr-COOH theo thời gian nghiền.

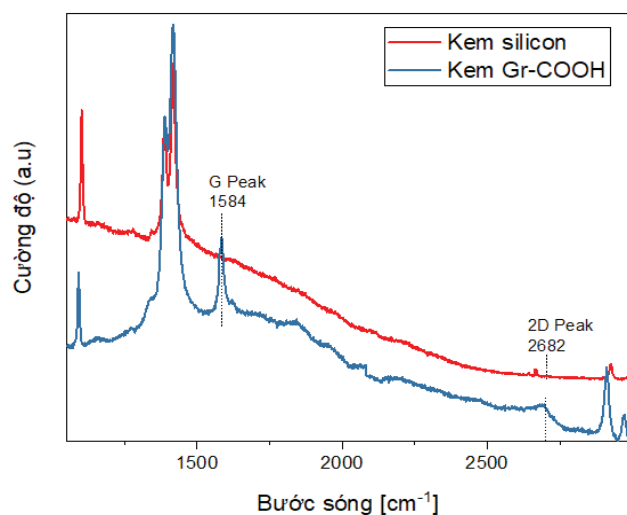
Hình 8 là ảnh SEM của kem tản nhiệt chứa Gr-COOH ở độ phân giải cao theo thời gian nghiền từ 1 giờ đến 4 giờ theo quy trình 1. Kết quả cho thấy với thời gian nghiền 1 giờ thì vẫn còn hiện tượng tụ đám của graphene trong nền kem tản nhiệt. Khi tăng thời gian nghiền lên thì hiện tượng tụ đám giảm xuống và graphene đạt hiệu quả phân tán tốt ở thời gian nghiền ít nhất 3 giờ. So sánh giữa kết quả nghiền trong thời gian 3 giờ và 4 giờ thì thấy có sự tương đồng nhau về sự phân tán, vì vậy có thể kết luận thời gian nghiền tối ưu để phân tán graphene trong nền kem tản nhiệt silicon là 3 giờ.

Hình 9 là ảnh SEM của kem tản nhiệt chứa Gr-COOH ở độ phân giải cao, thể hiện graphene phân tán đồng đều trong kem và nền silicon phủ đều lên các tấm graphene. Như vậy, graphene có khả năng tương thích tốt và phân tán tốt trong kem silicon, do đó làm tăng khả năng dẫn nhiệt của kem.



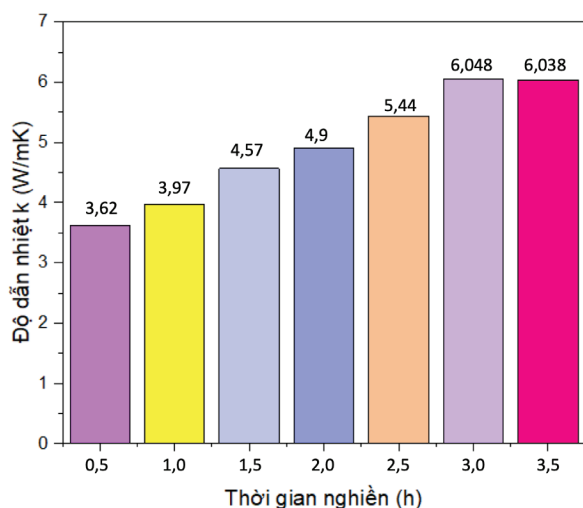
Hình 9. Ảnh FESEM của kem tản nhiệt chứa Gr-COOH ở độ phân giải cao.

Hình 10 là phổ Raman của kem nhiệt chứa 1 vol.% Gr-COOH. Trên kết quả Raman của kem xuất hiện đỉnh đặc trưng của graphene, đỉnh G ở bước sóng 1584 cm^{-1} và đỉnh đặc trưng cho liên kết sp^2 2D ở bước sóng 2682 cm^{-1} . Như vậy, các đỉnh đặc trưng graphene xuất hiện trong phổ Raman của kem tản nhiệt đã khẳng định rằng graphene có sự tương thích, phân tán tốt và không biến đổi về mặt hóa học khi pha trộn vào nền kem tản nhiệt silicon.



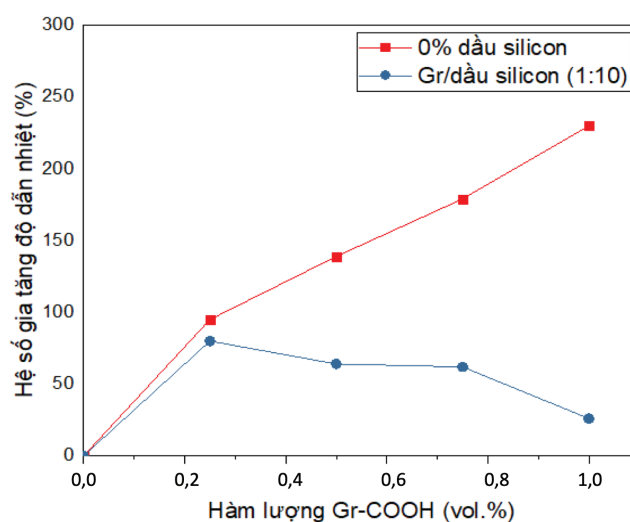
Hình 10. Phổ Raman của kem tản nhiệt.

Hình 11 là kết quả khảo sát độ dẫn nhiệt của kem tản nhiệt chứa 1% graphene theo thời gian nghiền khác nhau từ 30 phút đến 3,5 giờ. Kết quả khảo sát độ dẫn nhiệt của kem với thời gian nghiền khác nhau cho thấy độ dẫn nhiệt tăng khi thời gian nghiền mẫu tăng. Với thời gian nghiền 3 giờ độ dẫn đạt giá trị cao nhất là $6,048\text{ W/mK}$. Điều này cho thấy sự ảnh hưởng của hiệu quả phân tán graphene đến độ dẫn nhiệt của kem tản nhiệt là rất lớn. Khi tăng thời gian nghiền hơn 3 giờ thì độ dẫn nhiệt không có sự thay đổi nhiều và đạt tới giá trị bão hòa, điều này là phù hợp và một lần nữa khẳng định thời gian nghiền tối ưu là 3 giờ.



Hình 11. Kết quả độ dẫn nhiệt với thời gian nghiền khác nhau.

Để đánh giá sự ảnh hưởng của dầu silicon trong quy trình chế tạo, chúng tôi tiến hành khảo sát độ dẫn nhiệt của kem tản nhiệt nền silicon chứa thành phần graphene theo hai quy trình chế tạo đã nêu ở trên (hình 12). Kết quả đo độ dẫn nhiệt của kem tản nhiệt graphene ứng với quy trình 1 cho thấy, với hàm lượng thể tích của graphene là 0,25%, 0,5%, 0,75%, 1% thì độ dẫn nhiệt của kem tản nhiệt tăng lên lần lượt là 95%, 139%, 179%, 230%. Kết quả đo độ dẫn nhiệt của kem tản nhiệt graphene ứng với quy trình 2 cho thấy, khi hàm lượng thể tích của graphene là 0,25%, 0,5%, 0,75%, 1% thì độ dẫn nhiệt của kem tản nhiệt tăng lên lần lượt là 80%, 64,28%, 62%, 26%. Những kết quả này đã cho thấy sự khác biệt về độ dẫn nhiệt giữa hai quy trình: với quy trình 1 thì độ dẫn nhiệt của kem tăng theo hàm lượng graphene, trong khi theo quy trình 2 thì độ dẫn nhiệt của kem lại giảm dần khi hàm lượng của graphene vượt quá 0,25%. Điều này được giải thích do quy trình 2 nhóm nghiên cứu sử dụng dầu silicone để hỗ trợ sự phân tán của graphene trong nền kem tản nhiệt. Tuy nhiên, việc đưa thêm dầu silicon vào nền kem sẽ càng làm loãng kem tản nhiệt, làm giảm tỷ lệ của chất đệm có độ dẫn nhiệt cao và tăng tỷ lệ của dầu silicon có độ dẫn nhiệt thấp, dẫn đến độ dẫn nhiệt tổng thể của kem giảm.



Hình 12. Kết quả độ dẫn nhiệt của kem chứa Gr-COOH.

Với phương pháp khuấy trộn cơ học mà Wei Yu và cộng sự đã thực hiện kết quả cho thấy độ dẫn nhiệt của kem tăng lên đến 668% với nồng độ graphene cao 4,25%. Kết quả nghiên cứu của chúng tôi tuy thực hiện với nồng độ graphene thấp là 1% nhưng độ dẫn nhiệt đã được cải thiện đáng kể, tăng lên 230%, tức là gấp 3,3 lần so với kem nền silicon ban đầu. Trong khi đó ở hàm lượng graphene 1% tương ứng thì kết quả mà nhóm Wei Yu đạt được có độ dẫn nhiệt chỉ tăng lên khoảng 160%. Như vậy có thể thấy, phương pháp nghiền bi năng lượng cao cho hiệu quả phân tán graphene rất tốt và giúp nâng cao đáng kể hệ số dẫn nhiệt cho kem tản nhiệt chứa thành phần graphene.

Kết luận

Chúng tôi đã chế tạo thành công kem tản nhiệt nền silicon gia cường vật liệu Gr-COOH. Kết quả phân tích Raman, FTIR cho

thấy sự tồn tại của nhóm carboxyl trên bề mặt graphene sau khi được xử lý gắn nhóm chức hóa học bằng hỗn hợp axit HNO_3 và H_2SO_4 . Các ảnh FESEM đã chứng minh rằng, vật liệu graphene sau khi gắn nhóm chức -COOH đã phân tán tốt trong kem bằng cách sử dụng thiết bị nghiền bi năng lượng cao. Kết quả khảo sát thời gian nghiền cho thấy thời gian nghiền tối ưu là 3 giờ để đạt được sự phân tán tốt của graphene trong nền kem tản nhiệt. Độ dẫn nhiệt được khảo sát bởi thiết bị Transient Hot Bridge THB-100 đã cho thấy độ dẫn nhiệt của kem tăng theo hàm lượng của Gr-COOH, ứng với tỷ lệ 1% thể tích Gr-COOH cho sự gia tăng độ dẫn nhiệt của kem silicon lên đến 230%. Các kết quả thu được đã khẳng định graphene là phụ gia ưu việt cho kem tản nhiệt silicon và có tiềm năng ứng dụng lớn trong lĩnh vực tản nhiệt cho các thiết bị điện tử công suất cao.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được thực hiện với sự tài trợ kinh phí từ tiêu dự án mã số 16/FIRST/1.a/IMS thuộc Dự án “Đẩy mạnh đổi mới sáng tạo thông qua nghiên cứu, khoa học và công nghệ” - FIRST.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] M. Lundstrom (2002), “Is nanoelectronics the future of microelectronics?”, *Proceedings of the International Symposium on Low Power Electronics and Design*, pp.172-177.
- [2] M. Iyengar, K.J.L. Geisler, and B. Sammakia (2014), *Cooling of Microelectronic and Nanoelectronic Equipment*, 3, World Scientific Publishing Company.
- [3] R. Viswanath, M. Group, and I. Corp (2000), “Thermal Performance Challenges from Silicon to Systems”, *Intel Technol. J.* **Q3**, pp.1-16.
- [4] F. Sarvar, D. Whalley, and P. Conway (2006), “Thermal Interface Materials - A Review of the State of the Art”, *2006 1st Electron. Syst. Technol. Conf.*, 2, pp.1292-1302.
- [5] C.P. Feng, et al. (2019), “Superior thermal interface materials for thermal management”, *Compos. Commun.*, **12**, pp.80-85.
- [6] D.D. Chung (2001), “Materials for thermal conduction”, *Appl. Therm. Eng.*, **21(16)**, pp.1593-1605.
- [7] J. Hansson, T.M.J. Nilsson, L. Ye, and J. Liu (2018), “Novel nanostructured thermal interface materials: a review”, *Int. Mater. Rev.*, **63(1)**, pp.22-45.
- [8] C.-K. Leong and D.D.L. Chung (2003), “Carbon black dispersions as thermal pastes that surpass solder in providing high thermal contact conductance”, *Carbon N.Y.*, **41(13)**, pp.2459-2469.
- [9] W. Zhou, S. Qi, C. Tu, H. Zhao, C. Wang, and J. Kou (2007), “Effect of the particle size of Al_2O_3 on the properties of filled heat-conductive silicone rubber”, *J. Appl. Polym. Sci.*, **104(2)**, pp.1312-1318.
- [10] L.C. Sim, S.R. Ramanan, H. Ismail, K.N. Seetharamu, and T.J. Goh (2005), “Thermal characterization of Al_2O_3 and ZnO reinforced silicone rubber as thermal pads for heat dissipation purposes”, *Thermochim. Acta*, **430(1-2)**, pp.155-165.
- [11] W.-Y. Zhou, S.-H. Qi, H.-Z. Zhao, and N.-L. Liu (2007), “Thermally conductive silicone rubber reinforced with boron nitride particle”, *Polym. Compos.*, **28(1)**, pp.23-28.
- [12] S. Seki, R. Endoh, and M. Takeda (2018), “Evaluation of thermal resistance of various thermal grease”, *2018 International Conference on Electronics Packaging and iMAPS All Asia Conference (ICEP-IAAC)*, pp.576-578.
- [13] S. Shaikh, K. Lafdi, and E. Silverman (2007), “The effect of a CNT interface on the thermal resistance of contacting surfaces”, *Carbon N.Y.*, **45(4)**, pp.695-703.
- [14] H. Chen, H. Wei, M. Chen, F. Meng, H. Li, and Q. Li (2013), “Enhancing the effectiveness of silicone thermal grease by the addition of functionalized carbon nanotubes”, *Appl. Surf. Sci.*, **283**, pp.525-531.
- [15] T. Tomimura, S. Nomura, and M. Okuyama (2007), “Simple Measuring Method of Thermal Conductivity of Silicone Grease and Effect of Carbon Nanomaterials on Its Thermal Conductivity”, *ASME/JSME 2007 Thermal Engineering Heat Transfer Summer Conference*, 3, pp.449-453.
- [16] K.S. Novoselov (2004), “Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films”, *Science*, **306(5696)**, pp.666-669.
- [17] A.A. Baladin, et al. (2008), “Superior Thermal Conductivity of Single-Layer Graphene”, *Nano Lett.*, **8(3)**, pp.902-907.
- [18] H.T. Bui, V.C. Nguyen, V.T. Pham, T.T.T. Ngo, and N.M. Phan (2011), “Thermal dissipation media for high power electronic devices using a carbon nanotube-based composite”, *Adv. Nat. Sci. Nanosci. Nanotechnol.*, **2(2)**, p.025002.
- [19] J.R. Gaier, Y. YoderVandenberg, S. Berkebile, H. Stueben, and F. Balagadde (2003), “The electrical and thermal conductivity of woven pristine and intercalated graphite fiber-polymer composites”, *Carbon N.Y.*, **41(12)**, pp.2187-2193.
- [20] K.I. Bolotin, et al. (2008), “Ultrahigh electron mobility in suspended graphene”, *Solid State Commun.*, **146(9-10)**, pp.351-355.
- [21] C. Lee, X. Wei, J.W. Kysar, and J. Hone (2008), “Measurement of the Elastic Properties and Intrinsic Strength of Monolayer Graphene”, *Science*, **321(5887)**, pp.385-388.
- [22] A. Mura, F. Curà, and F. Adamo (2018), “Evaluation of graphene grease compound as lubricant for spline couplings”, *Tribol. Int.*, **117**, pp.162-167.
- [23] S.-Y. Lee, P. Singh, and R.L. Mahajan (2019), “Role of oxygen functional groups for improved performance of graphene-silicone composites as a thermal interface material”, *Carbon N.Y.*, **145**, pp.131-139.
- [24] W. Yu, H. Xie, L. Yin, J. Zhao, L. Xia, and L. Chen (2015), “Exceptionally high thermal conductivity of thermal grease: Synergistic effects of graphene and alumina”, *Int. J. Therm. Sci.*, **91**, pp.76-82.
- [25] W. Yu, H. Xie, L. Chen, Z. Zhu, J. Zhao, and Z. Zhang (2014), “Graphene based silicone thermal greases”, *Phys. Lett. A*, **378(3)**, pp.207-211.
- [26] B.H. Thang, P.V. Trinh, N.T. Huong, P.H. Khoi, P.N. Minh (2014), “Heat dissipation for the Intel Core i5 processor using multiwalled carbon-nanotube-based ethylene glycol”, *J. Korean Phys. Soc.*, **65**, pp.312-316.
- [27] Pham Van Trinh, Nguyen Ngoc Anh, Nguyen Tuan Hong, Phan Ngoc Hong, Phan Ngoc Minh, Bui Hung Thang (2018), “Experimental study on the thermal conductivity of ethylene glycol-based nanofluid containing Gr-CNT hybrid material”, *Journal of Molecular Liquids*, **269**, pp.344-353.
- [28] J. Jang, J. Bae, S. Yoon (2003), “A study on the effect of surface treatment of carbon nanotubes for liquid crystalline epoxide-carbon nanotube composites”, *J. Mater. Chem.*, **13**, pp.676-681.
- [29] J. Zhang, H. Zou, Q. Qing, Y. Yang, Q. Li, Z. Liu, X. Guo, Z. Du (2003), “Effect of chemical oxidation on the structure of single-walled carbon nanotubes”, *J. Phys. Chem. B*, **107**, pp.3712- 3718.