



## Grafen Oksit-Su Nanoakışkanlarının Reolojik Davranışlarının İncelenmesi

Neşe KEKLİKÇİOĞLU ÇAKMAK<sup>1</sup>\*, Ümit Nazlı TEMEL<sup>2</sup>, Kerim YAPICI<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Cumhuriyet Üniversitesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, Sivas / TÜRKİYE

<sup>2</sup>Cumhuriyet Üniversitesi, Enerji Sistemleri Mühendisliği Bölümü, Sivas / TÜRKİYE

<sup>3</sup>Süleyman Demirel Üniversitesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, Isparta / TÜRKİYE

Received: 02.05.2017; Accepted: 27.11.2017

<http://dx.doi.org/10.17776/csj.358469>

**Özet:** Bu çalışmada iyileştirilmiş Hummers metodu ile üretilen Grafen oksit nanoparçacıkların kütlece %0.1-1 bölüntülerinde su taban akışkan içerisine katılınması suretiyle elde edilen nanoakışkanların reolojik özellikleri incelenmiştir. Nanoakışkanların kararlılık analizi zeta potansiyel ölçüm değerleri göz önüne alınarak gerçekleştirilmiş olup tüm nanoakışkanların oldukça kararlı oldukları belirlenmiştir. Reolojik ölçümler stress kontrollü reometre kullanılarak 5°C, 15°C, 25°C, 35°C sıcaklıklarda gerçekleştirilmiştir. Reolojik ölçümler, doğrusal olmayan viskoelastik ve doğrusal viskoelastik ölçümler olmak üzere iki farklı yöntem için yürütülmüştür. Doğrusal olmayan viskoelastik deneylerde akışkanın kayma hızına karşı viskozitesinin değişimi, hem farklı nanoparçacık kütle bölüntüleri için hemde sabit bir kütle bölüntüsünde farklı sıcaklıklar için incelenmiştir. İkinci tip deneylerde ise frekans bağımlı depolama  $G'$  ve kayıp modülü  $G''$ , küçük salınım kayma gerilimi altında ölçülerek akışkanın elastik davranışı belirlenmiştir. Gerçekleştirilen detaylı reolojik analizler sonucunda; kütlece %0.1 bölüntüde grafen oksit nanoparçacık katılan nanoakışkanın Newton kuralına uyan akış davranışı gösterdiği buna karşılık grafen oksit kütle bölüntüsünün artmasına bağlı olarak akış davranışının değişerek Newton kuralına uymayan sanki-plastik davranışına dönüştüğü belirlenmiştir. Buna ek olarak yüksek grafen oksit kütle bölüntülerinde, görünür viskozitenin artan sıcaklıkla azaldığı görülmüştür. Gerçekleştirilen doğrusal reolojik ölçümler sonucunda yüksek bölüntülerde grafen oksit katılan nanoakışkanların, viskoelastik davranış özelliği gösterdiği gözlenmiştir.

**Anahtar Kelimeler:** Grafen oksit nanoparçacık, nanoakışkan, reoloji, zeta potansiyel.

## Examination of Rheological Behavior of Water-Based Graphene Oxide Nanofluids

**Abstract:** In this study, the rheological properties of nanofluids obtained by loading of Graphene oxide nanoparticles produced by the improved Hummers method into the deionized water base fluid in a mass fraction range of 0.1-1% were investigated. The stability analysis of the nanofluids were conducted through considering the zeta potential measurement values, and all nanofluids were determined as quite stable. Rheological measurements were carried out at 5°C, 15°C, 25°C, and 35°C with using stress-controlled rheometer. Rheological measurements were conducted for two different methods, nonlinear viscoelastic and linear viscoelastic measurements. In nonlinear viscoelastic experiments, the variation of viscosity with the shear rate of the fluid was investigated for both different nanoparticles mass fractions and a fixed constant mass fraction at different temperatures. In the second type of experiments, the elastic behavior of the fluid was determined by measuring frequency-dependent storage  $G'$  and loss modulus  $G''$  under small oscillation shear stress. As a result of detailed rheological analysis, it was determined that water based graphene oxide nanofluids containing nanoparticles mass fractions of 0.1% shows a flow behavior that conforms to the Newton's rule, whereas, due

\* Corresponding author. Email address: [nkeklkcioglu@cumhuriyet.edu.tr](mailto:nkeklkcioglu@cumhuriyet.edu.tr)  
<http://dergipark.gov.tr/csj> ©2016 Faculty of Science, Cumhuriyet University

to the increase of graphene oxide mass fractions, the flow behavior changes to the pseudoplastic behavior that does not conform to the Newton's rule. In addition, at high graphene oxide mass fractions, it was seen that the visible viscosity decreased with the increasing temperature. As a result of the conducted linear rheological measurements, it was observed that nanofluids having high concentrated nanoparticle showed viscoelastic behavior properties.

**Keywords:** Grafen oxide nanoparticle, nanofluids, rheology, zeta potential.

## 1. GİRİŞ

Nanoakışkan, 100 nm ve daha küçük boyutlardaki metal, metal oksit veya karbon tabanlı nanoparçacıkların, Newton kuralına uyan (su, etilen glikol, yağ, vb.) taban akışkanlar içerisine farklı kütleli veya hacimsel bölüntülerde dağıtılması ile elde edilen süspansiyon akışkanına verilen isimdir [1]. Endüstriyel uygulamalarda soğutucu akışkan olarak kullanılan su ve etilen glikol gibi geleneksel akışkanların zayıf termal özelliklerinin geliştirilmesinin gerektiği uzun yıllardır bir tartışma konusudur. Bu amaçla öncelikle, geleneksel akışkanlar içerisine milimetre ve mikrometre büyüklüğünde katı parçacıklar eklenerek ısı aktarım performansının iyileştirilmesine yönelik metotlar geliştirilmiştir. Fakat bir süre sonra bu yöntemle oluşturulan akışkanların zayıf kararlılıkları nedeniyle kanallarda ve borularda tıkanma, yüksek aşınma, basınç düşüşü gibi negatif etkilere yol açtığı gözlenmiştir. Son yıllarda nanoteknoloji alanındaki gelişmelere paralel olarak nano ölçekte parçacık sentezlenmesi konusunda önemli gelişmeler kaydedilmiştir. Bu durum geleneksel akışkanlar içerisine eklenen milimetre ve mikrometre büyüklüğündeki parçacıkların yerine nanoparçacıkların kullanılması fikrini ortaya çıkarmış olup "nanoakışkan" olarak tanımlanan yenilikçi bir akışkan sınıfının oluşmasına öncülük etmiştir. Nanoakışkanlar, ısıtma ya da soğutma süreçlerinin olduğu birçok endüstride (kimya, gıda, malzeme vb.) geleneksel çalışma akışkanı olarak kullanılan ve Newton kuralına uyan özellik gösteren su, etilen glikol, makine yağı vb. akışkanların yerine kullanılacak çalışma akışkanlarıdır. Taban akışkanı ile kıyaslandığında nanoakışkanlar yüksek kararlılık, yüksek ısı iletkenlik, düşük basınç düşüşü gibi birçok avantaj sağlamaktadır. Nanoparçacık olarak; metalik, metalik olmayan nanoparçacıkların yanı sıra,

karbür, seramik, karbonik, farklı nanoparçacıkların karışımı (hibrid) ve hatta nano boyutta sıvı damlacıklar kullanılmaktadır. Karbon tabanlı nanoparçacıklar sahip oldukları üstün fiziksel özellikleri nedeniyle taban akışkanlarının ısı performans özelliklerinin iyileştirilmesi konusunda kullanılacak en önemli katkı maddelerinden birisidir. Karbon tabanlı nanoparçacıklar arasında grafen, karbon atomlarının tek düzlemde altıgen yapıda dizilmesiyle oluşan bir atom kalınlığında iki boyutlu bir karbon allotropudur. Karbon atomları, 2s ve 2p orbitallerinin birleşimi ile  $120^\circ$  açılı  $sp^2$  melezleşmesi yaparken boşta kalan pz orbitalleri grafenin fiziksel özelliklerini belirleyerek ona sıra dışı yüzey alanı ( $2630 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$ , gram başına yaklaşık yarım futbol sahasının kapladığı alan), yüksek mekanik sertlik (Young modülü  $\sim 1.0 \text{ TPa}$ ), yüksek elektriksel ve termal iletkenlik ( $\sim 5000 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ) ve optik transparanlık ( $\sim \%97.7$ ) gibi özellikler kazandırmaktadır [2]. Kendine özgü üstün özelliklerinden dolayı grafen uzaydan savunmaya, otomotivden, ilaç endüstrilerine kadar çok geniş uygulama alanlarına sahip olup günümüzde literatürde üzerinde çalışılan en sıcak araştırma konularından birisidir.

Endüstride birçok mühendislik alanında kullanılacak olan nanoakışkanların termal ve reolojik özelliklerinin ayrıntılı olarak bilinmesi gerekmektedir. Literatürde karbon tabanlı nanoparçacıklarla ile üretilen nanoakışkanların termal özelliklerini içeren pek çok çalışma [3-7] vardır fakat reolojik özellikleri ile alakalı çok az sayıda çalışma vardır. Reoloji uygulanan gerilim altında deformasyon ve akış hidrodinamiğini inceleyen bilim dalıdır [8]. Reolojik analiz sonrasında akışkanın akış hidrodinamiğine ilişkin ayrıntılı bilgi edinilebilmektedir. Nanoakışkanın reolojik davranışı; nanoparçacık tipine, nanoparçacık şekline, kayma hızı aralığına ve

hacimsel veya kütleli bölüntüye bağlıdır. Nanoakışkanın detaylı reolojik analizi ile akışkanın Newton kuralına uyan yada Newton kuralına uymayan akış davranışı gösterip göstermediği açıkça anlaşılabilir. Meng vd. [9] etilen glikol (EG) taban akışkanını içerisine kütlece %0.5-4 bölüntüde MWCNTs katkılayarak elde ettikleri nanoakışkanların viskozite değişimlerini 10-120s<sup>-1</sup> kayma hızı aralığında incelemiştir. Tüm nanoakışkanların Newton tipi davranış gösterdiğini bununla birlikte viskozitenin sıcaklıkla azaldığını bildirmişlerdir. Öyleki kütlece %4 MWCNTs/EG nanoakışkanının 55°C'deki viskozitesinin 25°C'deki EG viskozitesinden daha düşük olduğunu tespit etmişlerdir. Duan vd. [10] katkı malzemesi olarak 3-4nm boyutunda grafit nanoparçacıkları deiyonize su taban akışkanını içerisine hacimce %1-4 bölüntülerde ekleyerek nanoakışkanlar hazırlamışlardır. Elde edilen nanoakışkanların reolojik ölçümleri kayma hızının 1-100s<sup>-1</sup> aralığı için gerçekleştirilmiştir. Tüm hacimce bölüntüler için nanoakışkanların incelen akış davranışı gösterdiği belirlenmiş olup nanoparçacık derişiminin artmasına bağlı olarak viskozitenin arttığını bildirmişlerdir. Aynı hacim derişimindeki nanoakışkanların birkaç gün bekletilmesi durumunda viskozitenin başlangıç viskozitesine göre arttığını belirlemişlerdir. Moghaddam vd. [11] gliserol taban akışkanını içerisine hacimce 0.0025-0.02 bölüntülerde grafit katkılacakları nanoakışkanların viskozitelerinin kayma hızlarına göre değişimlerini 1-180s<sup>-1</sup> aralığında belirlemişlerdir. Yukarıda bahsedilen çalışmaların tam tersine nanoakışkanların düşük kayma hızlarında incelen akış davranışı gösterdiğini, yüksek kayma hızlarında ise Newton kuralına uyan akış davranışı gösterdiğini belirlemişlerdir. Buna ek olarak grafit nanoparçacık derişiminin artmasına bağlı olarak incelen davranışının daha belirgin hale geldiği tespit edilmiştir.

Yukarıdaki literatür özetinden anlaşılacağı üzere grafit esaslı nanoparçacıkların bir taban akışkanını içerisine katılanması suretiyle elde edilen nanoakışkanların ayrıntılı reolojik davranışlarına ilişkin çalışma sayısı oldukça kısıtlıdır. Bu amaçla bu çalışma kapsamında iyileştirilmiş Hummers metodu [12] ile üretilen Grafit oksit (GO)

nanoparçacıkların kütlece %0.1-1 bölüntülerde deiyonize su taban akışkanını içerisine katılanması suretiyle elde edilen GO/DI su nanoakışkanlarının ayrıntılı reolojik özellikleri 5°C, 15°C, 25°C, 35°C sıcaklıklarda incelenmiş ve ayrıntılı bilgiler sunulmuştur.

## 2. MATERYAL VE YÖNTEM

Çalışmada kullanılan Grafit tozu, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, KMnO<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ve HCl Sigma-Aldrich (USA) firmasından tedarik edilmiş olup herhangi bir işleme tabi tutulmadan kullanılmıştır. GO nanoparçacıkları; +100 mesh (≥75% min) boyutuna sahip Grafit tozunun iyileştirilmiş Hummers metodu kullanılarak sentezlenmesi ile elde edilmiştir. İyileştirilmiş Hummers metodu kısaca aşağıdaki adımlardan oluşmaktadır: i) İlk olarak 1g Grafit tozu 9:1 oranında H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>/H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> karışımı içerisine eklenerek sıcaklık kontrollü olarak 5 saat süresince karıştırılır, ii) devam eden karıştırma süresince 6g KMnO<sub>4</sub> kademeli olarak karışım içerisine eklenir, iii) karışım H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>/Deiyonize su (DI) karışımına eklenerek santrifüj işlemi ile çöktürülür, iv) elde edilen çökelek 0.1M HCl ve Deiyonize su ile GO nötr hale gelinceye kadar yıkanır, v) son olarak 55°C'de kurutularak GO nanoparçacıklar elde edilir.

Nanoakışkanların hazırlanması sırasında iki adımdan oluşan bir yöntem gerçekleştirilmiştir. Öncelikle elde edilen GO nanoparçacıklar taban akışkanını olarak kullanılan DI su (18.2MΩ) içerisine Eşitlik 1 kullanılarak kütlece %0.1-1 bölüntülerde eklenmiştir.

$$\frac{x}{100} = \frac{m_{GO}}{m_{GO} + m_{su}} \quad (1)$$

Burada;

x : GO kütle bölüntüsü (%),

m<sub>GO</sub> : GO miktarı (g),

m<sub>su</sub> : DI su miktarı (g),

İkinci adımda eklenen GO nanoparçacıkların deiyonize su taban akışkanını içerisinde homojen olarak dağılmasını sağlamak amacıyla 750W gücündeki prob sonifikatör (Sonics&materials

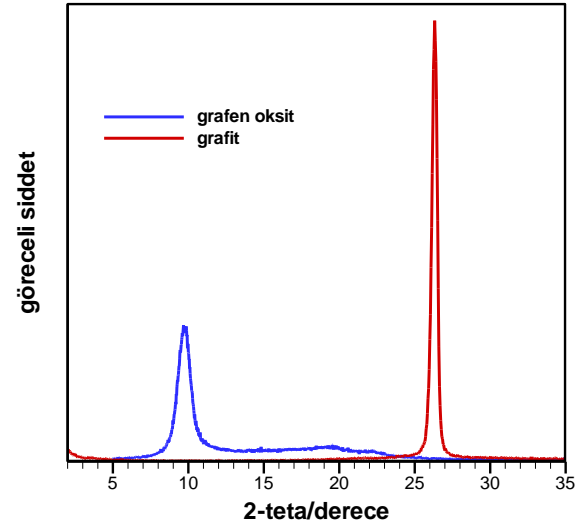
INC, USA) kullanılarak 4 saat boyunca bir karıştırma işlemi gerçekleştirilmiştir.

Kütlece farklı bölüntülerde hazırlanan GO/DI su nanoakışkanlarının kararlılık analizleri hem gözlemsel olarak hem de zeta potansiyel ölçüm (Malvern Zetasizer Nano Z) değerleri göz önüne alınarak gerçekleştirilmiştir. Tüm reolojik ölçümler bir koni – plaka sistemi ile donatılmış gerilme kontrollü reometre (Malvern Kinexus Pro, United Kingdom) kullanılarak 5°C, 15°C, 25°C, 35°C sıcaklıklarda gerçekleştirilmiştir. Kullanılan koninin açısı ve çapı sırasıyla 1° ve 60mm'dir. Koni ve plaka arasındaki aralık 0.05mm olarak sabit tutulmuştur. Ölçümler sırasında sıcaklık kontrolü  $\pm 0.1$  hassasiyete sahip peltier plaka aracılığıyla sağlanmıştır. Kütlece %0.1-1 bölüntüde GO katkılanan GO/DI su nanoakışkanları için doğrusal olmayan viskoelastik ve doğrusal viskoelastik ölçümler olmak üzere iki farklı ölçüm tipi gerçekleştirilmiştir.

### 3. DENEYSEL BULGULAR VE TARTIŞMA

İyileştirilmiş Hummers metodu ile sentezlenen GO nanoparçacıkların karakterizasyonu, XRD analizi ile gerçekleştirilmiştir. Grafit ve grafen oksit nanoparçacıkların X-ışını kırınım (XRD) analizi; grafit monokromotör, aralık (DS and 1°, RS 0.30 mm, RSM 0.80 mm), CuK $\alpha$  ışınım (1.541871 Å), Ni filtre veya kırınım demeti monokromatörü, hızlanan voltaj 35 kV, ışın akımı 20 mA ve tarama hızı of 2° 2 $\theta$ /dk aralık 5-65° 2 $\theta$  ° özelliklerinde Rigaku DMAX IIIC ile Cumhuriyet Üniversitesi Mühendislik Fakültesi Jeoloji Mühendisliği Bölümü'nde yapılmıştır. XRD, grafitin Grafen oksite yükseltilmesi için bir gösterge olarak ara katman aralığının genişlemesini doğrulamak için kullanılmıştır. Grafit ve grafen oksit nanoparçacığının XRD sonuçları Şekil 1'de gösterilmiştir. Grafitin oksidasyonu, grafen tabakalarının yüzeylerinde polar oksijen işlevlerine yol açmaktadır. Şekil 1'den Grafitin görülen pik değerinin  $2\theta=26,5^\circ$  ( $d=0,34$  nm) olduğu belirlenmiştir. Bu işlevselliklerin varlığı ve adsorblanan suyun araya ilave edilmesiyle, grafen oksitin görülen pik noktası  $2\theta=11^\circ$  ( $d=0,8$  nm) olmuştur. Elde edilen sonuçlar grafitin grafen

oksit dönüşümünün tamamlandığını göstermektedir [13-15].



Şekil 1. Grafit ve grafen oksitin XRD diyagramları.

Kütlece farklı bölüntülerde hazırlanan GO/DI su nanoakışkanlarının kararlılıklarını uzun bir zaman boyunca korumaları onların uygulamada kullanılabilir olması için gereken en önemli özelliklerinden birisidir. Bu amaçla elde edilen GO/DI su nanoakışkanlarının kararlılık analizleri hem gözlemsel olarak hem de zeta potansiyel ölçümleri gerçekleştirilerek belirlenmiştir. Literatürde nanoakışkanların kararlılıkları için kritik zeta potansiyel değerinin 25mV üstü olduğu bildirilmektedir. Farklı bölüntülerde hazırlanan tüm GO/DI su nanoakışkanlarının zeta potansiyel değerleri 45-65mV aralığında ölçülmüş olup bu durum hazırlanan tüm nanoakışkanların oldukça kararlı olduklarını göstermektedir. Buna ilave olarak Şekil 2'den görüleceği üzere, gözle yapılan kontrollerde tüm nanoakışkanların herhangi bir faz ayrımına uğramadığı ve kararlılıklarını uzun bir süre boyunca korudukları gözlenmiştir. Benzer bir sonuç Park vd'nin [16] yapmış oldukları çalışmada da elde edilmiştir. Park vd. hacimce %0.0001 bölüntüde grafen oksit ile katkılanan ve pH 9 için zeta potansiyel değerini 40 mV olarak belirledikleri nanoakışkanın kararlılığını uzun süre koruduğunu bildirmişlerdir.

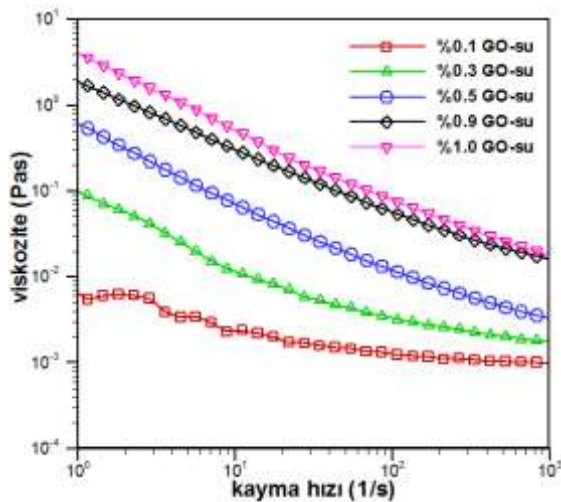


Şekil 2. Farklı kütlece bölüntülerde (%0.5-1) hazırlanmış GO/DI su nanoakışkanlarının 30 gün sonraki görünümü.

Aşağıdaki bölümde kütlece farklı bölüntülerde GO nanoparçacık katkılanmış GO/DI su nanoakışkanlarının doğrusal ve doğrusal olmayan viskoelastik ölçüm sonuçları değerlendirilmiştir.

### 3.1. Doğrusal Olmayan Viskoelastik Ölçümler

İyileştirilmiş Hummers metodu ile sentezlenen GO nanoparçacıklarla kütlece %0.1-1 bölüntülerde katkılanan GO/DI su nanoakışkanlarının doğrusal olmayan viskozite ölçümleri, kayma hızına bağlı viskozite değişimini ve sıcaklığa bağlı viskozite değişimlerini belirlemek amacıyla elde edilmiştir. Doğrusal olmayan viskozite ölçümleri kayma hızının  $1-1000s^{-1}$  aralığı için gerçekleştirilmiştir. Şekil 3'de kütlece farklı bölüntülerde hazırlanan GO/DI su nanoakışkanlarının  $T= 25^{\circ}C$ 'de görünür viskozitelerinin kayma hızı ile değişimi verilmiştir.



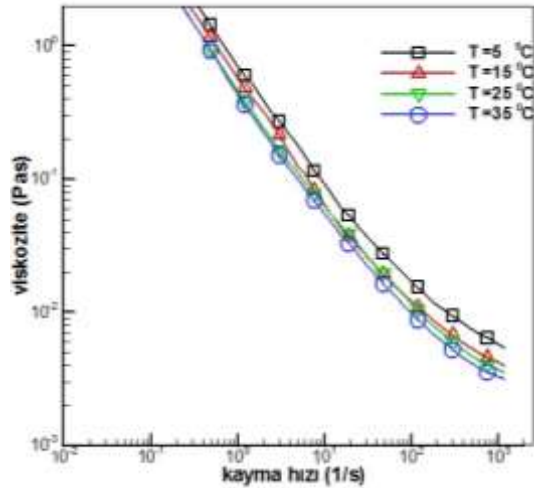
Şekil 3. Kütlece %0.1-1 bölüntülerde GO/DI su nanoakışkanlarının viskozitelerinin kayma hızı ile değişimi ( $T= 25^{\circ}C$ ).

Şekil 3 incelendiğinde kütlece %0.1 bölüntüde GO katkılanan DI su nanoakışkanının Newton kuralına uyan akışkan davranışı gösterdiği belirlenmiştir. Diğer bir ifadeyle akışkan viskozitesi sabit olup kayma hızına göre değişmemektedir. Buna karşın GO kütle bölüntüsünün artmasına bağlı olarak görünür viskozitenin, artan kayma hızına göre azaldığı yani sanki-plastik akış davranışı olarak bilinen incelen akışkan özelliği gösterdiği tespit edilmiştir. Şekil 3 ayrıntılı olarak incelendiğinde aşağıdaki sonuçlara varılabilir; i) sabit kayma hızı altında GO kütle bölüntüsü arttıkça viskozite artmaktadır. Buna ilave olarak viskozitedeki artış düşük kayma hızı bölgesinde daha belirgindir. ii) nanoakışkanların sanki-plastik akış davranışı (incelen özelliği), kütlece GO bölüntüsü arttıkça daha etkin hale gelmektedir. Benzer sonuçlar literatürde farklı tipte nanoparçacık katkılanan taban akışkanları içinde elde edilmiştir. Wang vd. [17] karbon tabanlı nanoparçacık olarak, deiyonize taban akışkanı içerisine hacimce 0.05, 0.24 ve 1.27 bölüntülerde ve 20-30nm dış çapa sahip MWCNTs katkılayarak elde ettikleri nanoakışkanların viskozitelerinin kayma hızlarına göre değişimlerini  $1-120s^{-1}$  kayma hızı aralığı için araştırmışlardır. Yüksek MWCNTs derişimlerinde nanoakışkanların incelen akış davranışı gösterdiğini bildirmişlerdir.

Mehrali vd., [18] grafen nanoplakaları kullanarak hazırlanmış oldukları nanoakışkanların reolojik analizi sonucunda, nanoparçacık konsantrasyonun artmasına bağlı olarak viskozitenin daha yüksek olduğunu ve kütlece % 0.1 nanoparçacık içeren nanoakışkanın viskozitesinin taban akışkanı olan suya göre %44 daha yüksek olduğu sonuçlarını ortaya koymuşlardır. Nanoparçacıklar, taban akışkanı içerisinde kütlece/hacimsel bölüntüsü arttıkça kümeleşmektedirler. Nanoparçacık bölüntüsü arttıkça katı parçacıkların dağıtılması için gereken kuvvetten daha fazla iç kayma gerilmesi olduğundan viskozite artmaktadır. Düşük kayma hızı bölgesinde akışkan moleküllerinin yapısı geçici olarak değişmekte ve akışkan içerisinde bulunan parçacıklar artan kayma hızı yönünde yavaş yavaş hizalanmaktadır[19]. Kayma hızının artmasına bağlı olarak kümeleşme eğiliminde olan parçacıkların ayrılmaya

başlamasıyla akışkan içerisinde daha küçük boyutlu parçacıklar meydana gelmektedir. Bu durum akışkan içerisinde sürtünme kuvvetinin azalmasına dolayısıyla viskozitenin azalmasına neden olmaktadır. Bununla birlikte kayma hızının daha da artırılması durumunda viskozitede herhangi bir değişim olmadığı görülmektedir. Bu noktadan sonra tüm nanoparçacık kütle bölüntüsü katkılı nanoakışkanların Newton kuralına uyan akışkan davranışı gösterdiği söylenebilir. GO nanoparçacıkların küçük boyutları ve geniş yüzey alanlarından dolayı düşük kayma hızı bölgelerinde yapılanma, yüksek kayma hızı bölgelerinde ise deformasyon ve yeniden yapılanma olasılığı vardır.

Sıcaklığın nanoakışkan reolojisine etkisini incelemek için kütlece %1 bölüntüde GO/DI su nanoakışkanının görünür viskozitesinin kayma hızı ile değişimi bir dizi ölçüm sonucunda 5°C ile 35°C sıcaklık aralığında farklı sıcaklıklar için elde edilerek Şekil 4'te verilmiştir. Tüm sıcaklık değerleri için nanoakışkan viskozitesinin artan kayma hızı ile azaldığı yani sanki-plastik akış davranışı gösterdiği buna ilaveten sabit kayma hızı değerinde artan sıcaklık ile viskozitenin azaldığı görülmüştür. İncelme etkisinin sıcaklık artışına bağlı olarak arttığı da gözlemlenen bir diğer etkidir. Bir başka deyişle sıcaklık artışına bağlı viskozite değişimi yüksek kayma hızlarında daha belirgindir.



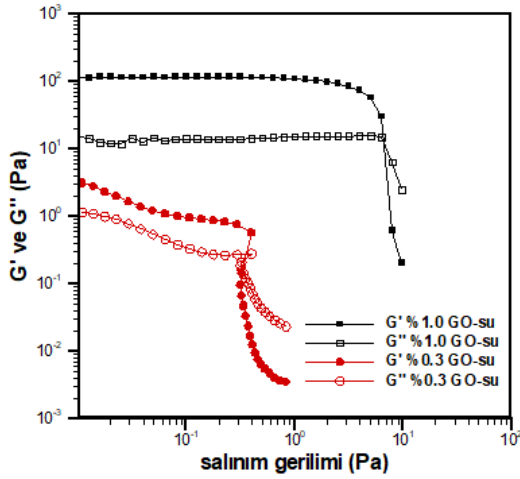
Şekil 4. Kütlece %1 GO/DI su nanoakışkanının farklı sıcaklıklarda viskozite kayma hızı değişimi.

Benzer bir sonuç olarak Moghaddam vd., [11] yapmış oldukları çalışmada kütlece 0.0025-0.02 bölüntü aralığında değişen grafen/gliserol nanoakışkanı ile yaptıkları çalışmada nanoparçacıkların taban akışkanı içerisinde kütlece bölüntüsü arttıkça viskozitenin arttığını ve viskozitenin artan sıcaklıkla azaldığı sonucuna ulaşmışlardır. Sabit kayma hızında artan sıcaklığa bağlı olarak viskozitenin azalmasının nedeni, moleküler hareketin ve Brownian hareketinin artması ile moleküler arası etkileşim ve adezyon kuvvetinin zayıflaması olabilmektedir.

### 3.2. Doğrusal Viskoelastik Ölçümler

Bu bölümde nanoakışkanlar için doğrusal viskoelastik bölgenin belirlenmesi amacıyla, depolama ( $G'$ ) ve kayıp ( $G''$ ) modülüs ölçümleri 0.01-10Pa salınımlı gerilme aralığında 1Hz frekans için ölçülmüştür.  $G'$  (elastik modülüs) yapısal bütünlüğün bir ölçüsü olup  $G'$  değerinde gözlemlenen ani azalma yapının bozulduğu ve doğrusal olmayan bölgeye geçildiğini göstermektedir.  $G''$  (viskoz modülüs) malzeme içerisindeki viskoz bileşenin bir ölçüsüdür. Viskoelastik ölçümler kütlece %0.3 ve %1 bölüntüde GO katkılanan GO/DI su nanoakışkanlar için gerçekleştirilerek Şekil 5'te verilmiştir. Her iki kütle bölüntüsü için eğrilerin değişimi birbirine benzer olup, modülüs eğrilerinin sabit kaldığı viskoelastik bölge ve yüksek salınım gerilmelerinde ani azalmanın meydana geldiği doğrusal olmayan viskoelastik bölge ile karakterize edilmektedir. Kütlece %0.3 GO katkılanan GO/DI su nanoakışkanı için salınım gerilmesinin 0.1-0.3Pa aralığında depolama modülü ( $G'$ ) ve kayıp modülü ( $G''$ ) değerlerinin sabit olduğu ve salınım gerilmesinden etkilenmediği belirlenmiştir. Salınım gerilmesinin 0.3Pa değerini geçmesi durumunda depolama modülü  $G'$  aniden azalmakta, kayıp modülü  $G''$  ise önce artmakta sonra azalmaktadır. Bu durumda doğrusal viskoelastik bölgenin 0.01-0.3Pa aralığında olduğu söylenebilir. Diğer bir ifade ile, salınım geriliminin % 0.01-0.3 aralığı güvenli bölge olarak kabul edilebilir [20,21]. Kütlece GO bölüntüsünün artmasına bağlı olarak  $G'$  ve  $G''$  değerlerinin arttığı ve doğrusal viskoelastik bölgenin daha da uzadığı Şekil 5'ten görülmektedir. Kütlece %1 GO

katkılanan GO/DI su nanoakışkanı için viskoelastik bölgenin salınım geriliminin 0.01-10Pa aralığında olduğu belirlenmiştir. Doğrusal viskoelastik bölgede nanoakışkanın elastik doğasının viskoz etkiyi bastırması nedeniyle nanoakışkan yapısının jel benzeri olduğundan bahsedilebilir. Bununla birlikte yüksek salınım gerilmelerinde  $G'$  değerinin,  $G''$  değerinin altına düşmesiyle jel yapısının kaybolduğunu göstermektedir.



Şekil 5. Kütlece %0.3 ve %1.0 GO/DI su nanoakışkanlarının depolama ( $G'$ ) ve kayıp ( $G''$ ) modülüslerinin, sabit 1Hz frekansta ve 25°C 'de, salınım gerilmeleri ile değişimi.

#### 4. SONUÇLAR

Bu çalışmada iyileştirilmiş Hummers metodu ile üretilen Grafen oksit nanoparçacıkların kütlece %0.1-1 bölüntülerinde su taban akışkanı içerisine katkılanması suretiyle elde edilen nanoakışkanların reolojik özellikleri incelenmiştir. Tüm reolojik analizler koni ve plaka sistemi ile donatılmış gerilme kontrollü reometre ile gerçekleştirilmiştir. Elde edilen nanoakışkanların kararlılık analizleri zeta potansiyel ölçümleri yapılarak belirlenmiş olup tüm nanoakışkanların oldukça kararlı oldukları sonucuna ulaşılmıştır.

Gerçekleştirilen detaylı reolojik analizler sonucunda kütlece %0.1 bölüntüde GO/DI su nanoakışkanının, Newton kuralına uyan akış davranışı gösterdiği buna karşın kütlece yüzde bölüntüsünün artırılması durumunda GO/DI su nanoakışkanının karakteristiğinin değişerek

Newton kuralına uymayan sanki-plastik akış davranışına dönüştüğü belirlenmiştir. Sabit kayma hızı altında GO kütle bölüntüsünün artmasının viskozitede artış, sıcaklıktaki artışın ise viskozitede azalma ile sonuçlandığı belirlenmiştir. Buna ilave olarak yüksek kütle bölüntüsünde GO katkılanan nanoakışkanların incelen akış davranışlarının sıcaklık artışına bağlı olarak arttığı tespit edilmiştir. Yüksek GO kütle bölüntülerinde katkılanan GO/DI su nanoakışkanlarının yapılan doğrusal reolojik ölçümleri sonucunda, viskoelastik davranış özelliği gösterdiği sonucuna ulaşılmıştır.

#### TEŞEKKÜR

Bu çalışmanın yapılması için REHİS-IA-2012-105 numaralı proje ile finansal destek sağlayan ASELSAN' a teşekkürlerimizi sunarız.

#### KAYNAKLAR

- [1]. Choi S.U.S., Eastman J.A., Enhancing thermal conductivity of fluids with nanoparticles, *ASME International Mechanical Engineering Congress&Exposition*, San Francisco, CA, 1995.
- [2]. Yanwu Z., Murali S., Cai W., Li X., Suk J.W, Potts J.R., Ruoff R.S., Graphene and Graphene oxide synthesis, Properties and applications, *Adv. Materials*, 2010, 22,3906.
- [3]. Etefaghi E., Rashidi A., Ahmadi H., Mahtasebi S.S., Pourkhalil M., Thermal and rheological properties of oil-based nanofluids different carbon nanostructures, *Int. Comm. Heat and Mass* 2013,48,178-82.
- [4]. Choi S.U.S., Zhang Z.G., Yu W., Lockwood F.E., Grulke E.A., Anomalous thermal conductivity enhancement in nanotube suspensions, *Applied Phys. Letter*, 2001, 79,141, 2252-4.
- [5]. Kakac S., Pramuanjaroenkij A., A Review of convective heat transfer enhancement with nanofluids, *Int. J. Heat Mass transfer*, 2009, 52,3187-96.
- [6]. Eastman J.A., Choi S.U.S., Li S., Yu W., Thompson L.J., Anomalous increased effective thermal conductivities of ethylene

- glycol-based nanofluids containing copper nanoparticles, *Appl. Phys. Letter*, 2001, 78, 718-20.
- [7]. Tiwari A.K., Ghosh P., Sarkar J., Particle concentration levels of various nanofluids in plate heat exchanger for best performance, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 2015, 89, 110-8.
- [8]. Morrison F.A., *Understanding Rheology*, NY, Oxford University, 2001.
- [9]. Meng Z., Wu D., Wang L., Zhu H., Li Q., Carbon nanotube glycol nanofluids: photo-thermal properties, *Thermal conductivities and rheological behaviour Particuology* 2012, 10,614-8.
- [10]. Duan F., Wong T.F., Crivoi A., Dynamic viscosity measurement in Newtonian graphite nanofluids, *Nanoscale Res. Lett.* 2012,7,360.
- [11]. Moghaddam M.B., Goharshadi E.K., Entezari M.H., Nacarrow P., Preparation, characterization and rheological properties of graphene-glycerol nanofluids, *Chem. Eng. J.*, 2013, 365-72.
- [12]. Hummers J.R.S., Offeman R.E., Preparation of graphitic oxide, *Journal of the American Chemical Society*, 1958,80,1339.
- [13]. Kyotani T., Moriyama H., Tomita A., High temperature treatment of polyfurfuryl alcohol/graphite oxide intercalation compound, *Carbon*,1997, 35, 1185-1187.
- [14]. Manivela P., Kanagarajb S., Balamurungana A., Ponpandiana N., Mangalaraja D., Viswanathana C., Rheological behavior and electrical properties of polypyrrole/thermally reduced graphene oxide nanocomposite, *Colloids and surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 441,20614-622.
- [15]. Tesfai W., Singh P., Shatilla Y., Iqbal M.Z., Abdala A.A., Rheology and microstructure of dilute graphene oxide suspension, *J. Nanopart Res.* 2013, 15,1989.
- [16]. Park S.D., Lee S.W., Kang S., Kim S.M., Bang I.C., Pool Boiling CHF Enhancement by graphene-oxide nanofluid under nuclear coolant chemical environments, *Nuclear Engineerig and design*, 2012, 184-191.
- [17]. Wang J., Zhu J., Zhang X., Chen Y., Heat transfer and pressure drop of nanofluids containing carbon nanotubes in laminar flows, *Exp. Therm. Fluid Sci.* 2013, 44,716-21.
- [18]. Mehrali M., Sadeghinezhad E., Latibari S.T., Kazi S.N., Mehrali M., Zubir M.N.B.M, Metselaar H.S.C., Investigation of thermal conductivity and rheological properties of nanofluids containing graphene nanoplatelets, *Nanoscale Res. Lett.*, 2014, 9,15.
- [19]. Rashin M.N., Hemalatha J., Viscosity studies on novel copper oxide-coconut oil nanofluid', *Experimental Thermal and Fluid Science*, 2013,48, 67-42.
- [20]. Yapıcı K., Çakmak N.K., İlhan N., Uludag Y., Rheological characterization of polyethylene glycol based TiO<sub>2</sub> nanofluids, *Korea Aust. Rheol. J.*, 2014,26, 355–363.
- [21]. Çakmak N.K., Temel Ü.N., Ova O., Yapıcı K. 2016 Su tabanlı grafen oksit nanoakışkanının reolojik davranışlarının incelenmesi, *Ulusal Kimya Mühendisliği Kongresi, Özet Bildiri.*