



Experimental investigation of thermophysical and rheological properties of water-based nanofluids containing graphene nanoplatelets with different specific surface areas

Tuğçe Fidan Aslan¹, Elif Alyamaç Seydibeyoğlu^{2*}

¹Izmir Katip Çelebi University, Graduate School of Natural and Applied Sciences, Department of Materials Science and Engineering, 35620, Çiğli, Izmir, Turkey

²Izmir Katip Çelebi University, Faculty of Engineering and Architecture, Department of Petroleum and Natural Gas Engineering, 35620, Çiğli, Izmir, Turkey

Highlights:

- Water-based nanofluids containing graphene nanoplatelets
- Stability and rheology analysis
- 3-omega thermal conductivity measurements

Keywords:

- Graphene nanoplatelets
- Rheology
- 3-omega method
- Zeta potential

Article Info:

Research Article
Received: 11.02.2021
Accepted: 13.06.2021

Acknowledgement:

For the thermal conductivity measurements of nanofluids with the 3-omega method, Dokuz Eylul University Department of Mechanical Engineering faculty member Assoc. Dr. Thanks to Alpaslan Turgut. This work was supported by TUBITAK (Project No: 117M953).

DOI:

10.17341/gazimmfd.878229

Correspondence:

Author: Elif Alyamaç Seydibeyoğlu
e-mail: elif.alyamac.seydibeyoglu@ikc.edu.tr
phone: +90 544 369 9874

Graphical/Tabular Abstract

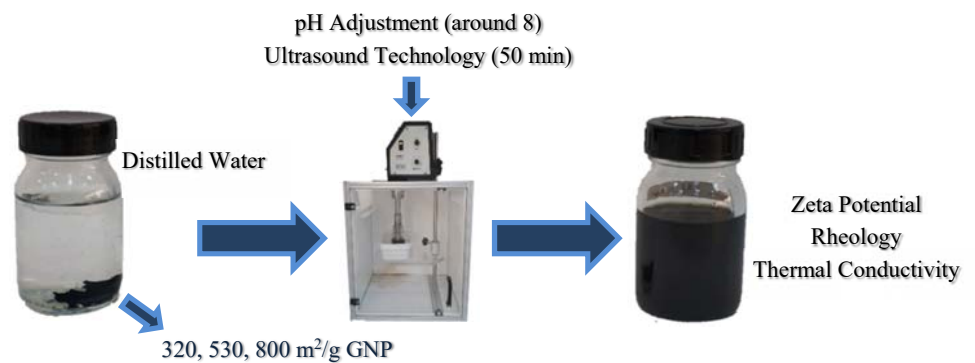


Figure A. Preparation of water-based GNP nanofluids

Purpose: In the current study, the preparation of water-based graphene nanoplatelets (GNP) nanofluids has been in-depth studied with various characterization techniques including zeta potential measurements, surface tension measurements, rheological analysis along with thermal conductivity measurements. It was aimed to investigate the effect of specific surface area and concentration of nanoparticles on thermophysical and rheological properties of aqueous GNP nanofluids.

Theory and Methods:

The two-step method was carried out for the nanofluid preparation. The GNP concentrations of the nanofluids were prepared at 0.5, 1.0, and 2.0 wt% in 50 mL distilled water. The probe type direct ultrasonication device (UP400S, Hielscher Ultrasonics GmbH, Teltow, Germany) was adjusted to 0.5 cycles and 50% amplitude. The ultrasonication was performed in 100 mL wide neck borosilicate glass bottles.

Results:

It has been observed that the zeta potential increases with the increase in the specific surface area of nanoplatelets. While shear thinning behavior was observed at high concentration nanofluids in the low shear rate region with the increase in nanoparticle concentration, shear thickening was observed with the increase in the shear rate. The increase in thermal conductivity was measured with the 3 ω method, and the thermal conductivity increment decreased with increasing GNP specific surface area. As for the surface tension measurements, a decrease in surface tension values compared to distilled water was observed due to the hydrophobic nature of GNP.

Conclusion:

The results show that GNP nanofluids are promising, with increased thermal conductivity values and favorable rheological behavior. However, it is necessary to continue rapidly in nanofluid research for better nanofluidic stability and popularization of use in practical applications.



Farklı özgül yüzey alanlarına sahip grafen nanoplakalar içeren su bazlı nanoakışkanların termofiziksel ve reolojik özelliklerinin deneysel incelenmesi

Tuğçe Fidan Aslan¹, Elif Alyamaç Seydibeyoğlu^{2*}

¹İzmir Katip Çelebi Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Malzeme Bilimi ve Mühendisliği Anabilim Dalı, 35620, Çiğli, İzmir, Türkiye

²İzmir Katip Çelebi Üniversitesi, Mühendislik ve Mimarlık Fakültesi, Petrol ve Doğalgaz Mühendisliği Bölümü, 35620, Çiğli, İzmir, Türkiye

Ö N E Ç İ K A N L A R

- Grafen nanoplakalar içeren su bazlı nanoakışkanlar
- Kararlılık ve reoloji analizi
- 3-omega ısı iletkenlik ölçümleri

Makale Bilgileri

Araştırma Makalesi
Geliş: 11.02.2021
Kabul: 13.06.2021

DOI:

10.17341/gazimmfd.878229

Anahtar Kelimeler:

Grafen nanoplakalar,
reoloji,
3-omega yöntemi,
zeta potansiyeli

ÖZ

Bu çalışmada, farklı özgül yüzey alanlarına (320, 530 ve 800 m²/g) sahip grafen nanoplakalar (GNP) içeren su bazlı nanoakışkanlar hazırlanmıştır. Kütlece %0,5, 1,0 ve 2,0 GNP içeren su bazlı nanoakışkanlar, ultrason teknolojisi kullanılarak üretilmiştir. Nanoakışkan kararlılığının belirlenmesi amacıyla zeta potansiyel ölçümleri yapılmıştır. Reolojik davranışların incelenmesi için geniş kayma hızı aralığında ve farklı sıcaklıklarda viskozite ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Hazırlanan nanoakışkanlarda, nanoplakaların özgül yüzey alanının azalmasıyla beraber kayma incelenmesi davranışı gözlemlenmiştir ve tüm nanoakışkanlarda sıcaklık artışı ile viskozite azalmıştır. En yüksek ısı iletkenlik artışı olan %11, ağırlıkça %1,0 oranında 320 m²/g GNP içeren nanoakışkanlarda, 3-omega yöntemi ile ölçülmüştür. Ayrıca, 800 m²/g özgül yüzey alanına sahip GNP içeren nanoakışkanlarda ısı iletkenlik değerlerindeki artışın en düşük olduğu tespit edilmiştir.

Experimental investigation of thermophysical and rheological properties of water-based nanofluids containing graphene nanoplatelets with different specific surface areas

H I G H L I G H T S

- Water-based nanofluids containing graphene nanoplatelets
- Stability and rheology analysis
- 3-omega thermal conductivity measurements

Article Info

Research Article
Received: 11.02.2021
Accepted: 13.06.2021

DOI:

10.17341/gazimmfd.878229

Keywords:

Graphene nanoplatelets,
rheology,
3-omega method,
zeta potential

ABSTRACT

In this study, water-based nanofluids containing graphene nanoplatelets (GNP) with different specific surface areas (320, 530 and 800 m²/g) were prepared. Distilled water-based nanofluids containing 0.5, 1.0 and 2.0 wt% GNP were produced using ultrasound technology. Zeta potential measurements were performed in order to determine the stability of nanofluids. Viscosity measurements were carried out in a wide range of shear rates and at different temperatures to investigate rheological behavior. The shear thinning behavior was observed with the decrease of the specific surface area of the nanoplatelets and the viscosity decreased with temperature rise in all nanofluids. The highest increase in thermal conductivity was measured as 11% by 3-omega method, for 1.0 wt% 320 m²/g GNP nanofluids. In addition, the lowest thermal conductivity increments were determined for 800 m²/g GNP nanofluids.

*Sorumlu Yazar/Yazarlar / Corresponding Author/Authors : *elif.alyamac.seydibeyoglu@ikc.edu.tr, tugcefid@gmail.com /

Tel: +90 544 369 9874

1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

Nanoakışkanlar, elektriksel iletkenliğin ve ısı iletkenliğinin artırılması amacıyla konvansiyonel akışkanların içerisine nanoparçacıklar eklenerek hazırlanmaktadır. Nanoakışkanlar, ısı transferi uygulamaları, medikal, mikro-elektronik ve solar sistemler gibi birçok alanda potansiyel kullanıma sahiptir [1, 2]. Baz akışkanın elektriksel ve ısı özelliklerini artırma fikri Maxwell'in 1873 yılında yaptığı çalışmaya dayanmaktadır [3]. Bu çalışma, mikro boyutlardaki metalik parçacıkların baz akışkan içerisinde çökmesi, kullanılan sistemde erozyon ve korozyona yol açması nedeniyle başarılı olamamıştır. Maxwell'in çalışmasından yıllar sonra, 1995 yılında Choi ve Eastman ilk kez "nanoakışkan" terimini kullanmışlardır ve bu terimi ısı iletkenlikleri artırılmış nanoparçacık içeren dispersiyonlar olarak tanımlamışlardır [4]. Nanoakışkanların, yüksek ısı iletkenliğe sahip nanoparçacıkların eklenmesiyle kazandığı özellikler malzeme bilimcilerden makine ve kimya mühendislerine kadar farklı uygulama alanlarında çalışan bilim insanlarını etkilemiştir [3], [5-7]. Kullanılan nanoparçacıklara bakılacak olursa; grafen, metal oksitler ve karbon nanotüplerden daha sonra keşfedilen bir malzemedir [8]. Kolayca üretilen grafenin yüksek ısı iletkenliği, belirli bir miktarda ısıyı transfer etmek için gereken ısı transferi sıvısı miktarını azaltmaktadır. Düşük erozyon, korozyon ve tıkanma özellikleri ile daha düşük sürtünme katsayısı ve geniş yüzey alanı/hacim oranı ile grafen geleneksel nanoparçacıklara göre birçok avantaja sahiptir [9-11].

Nanoakışkan çalışmaları 20 yılı aşkın süredir ivmelenerek devam etmektedir. Ancak nanoakışkanların kararlılık sorunlarının çözülmemesi nedeniyle pratikteki kullanımları hala kısıtlıdır [12-14]. Nanoakışkanların kararlılığı, nanoparçacık ve baz akışkanın birçok özelliğine bağlı olarak değişmektedir [15]. Nanoparçacıkların özgül yüzey alanı değişimiyle parçacıklar arası farklı etkileşimler, nanoparçacıklar ve baz akışkan arasındaki yoğunluk farkı gibi etmenler nanoparçacık dağılımını etkilemektedir [16, 17]. Öte yandan, nanoakışkanların artan viskozitesi endüstriyel uygulamalarda oldukça önem taşımaktadır. Yüksek viskozite nihai kullanımlarda erozyon, korozyon ve tıkanmalara yol açabilmektedir [18]. Yüksek bir ısı iletkenlik artışı için viskozite artışının belirli bir oranda kalması gerekmektedir [1]. Özellikle ısı eşanjörleri ve soğutucu uygulamaları için, ekipmanın belirli kısımlarında biriken nanoparçacıklara sahip kararsız nanoakışkanların kullanımı risk taşımaktadır [19, 20].

Yapılan literatür araştırmalarında, grafen nanoparçacıkların son beş yıldır nanoakışkan çalışmalarında sıkça kullanıldığı görülmüştür [21]. GNP nanoakışkanların fotovoltaik solar panellerde [22], tüp solar kolektörlerde [23], mikro boyuttaki kanallarda [11, 24], çeşitli tiplerdeki ısı borularında [25-27], ısı değiştiricilerde [28], soğutucu sistemlerde [29] kullanımı ile ilgili deneysel çalışmalar literatürde yer almaktadır. Buna rağmen farklı özgül yüzey

alanlarına sahip grafen nanoplakalar ile hazırlanan karşılaştırmalı deneysel çalışmaların sayısı oldukça azdır. Mehrali vd. yaptıkları çalışmada kütlece %0,025-0,1 arasında düşük konsantrasyonlarda GNP içeren distile su bazlı nanoakışkanlarda kararlılık incelemesini zeta potansiyeli ve UV-Vis spektrofotometrisi ile gerçekleştirirken, nanoakışkanların viskozite ve ısı iletkenlik artışı değerlerini ölçmüşlerdir [16]. Mehrali vd. tamamladıkları bir diğer çalışmada [30], bir önceki çalışmalarının [16] devamı olarak farklı özgül yüzey alanlarına sahip GNP nanoakışkanlarının türbülanslı akış altında ısı iletkenlik performansını incelemiştir. Agarwal vd. kerosen bazlı nanoakışkanları hazırlarken, kütlece %0,005-0,2 arası konsantrasyonlarda GNP kullanmışlardır. Isıl iletkenlik performansı ve dinamik viskozitenin incelendiği bu çalışmada, nanoakışkanların kararlılığı sistematik bir şekilde analiz edilmemiştir, sadece zamana bağlı değişen ısı iletkenlik değeri ölçümleri ile saptanmaya çalışılmıştır [31]. Sınırlı sayıda çalışmalardan anlaşıldığı üzere, farklı özgül yüzey alanlarına sahip GNP nanoakışkanların özellikle yüksek nanoparçacık konsantrasyonlarında kararlılığı yanında termofiziksel ve reolojik özelliklerinin de detaylı incelenmemiş olması bu konularda daha fazla araştırma yapılması gerektiğini göstermektedir. Bu çalışmada kararlı nanoakışkanların hazırlanması, zeta potansiyeli ölçümleri, reolojik analizler, ısı iletkenlik ölçümleri ve yüzey gerilimi ölçümleri gibi çeşitli karakterizasyon teknikleriyle derinlemesine çalışılmıştır. Kararlı bir nanoakışkan üretmek için, pH ayarlamaları ve zorlu zeta potansiyeli ölçümleriyle ilgili tüm hazırlıklar detaylıca anlatılmıştır. Bu çalışmada, 320, 530 ve 800 m²/g özgül yüzey alanına sahip GNP ve distile su ile yüksek konsantrasyonlarda (ağırlıkça %0,5, 1,0 ve 2,0) nanoakışkanlar hazırlanmıştır. Tüm deneysel prosedürler adım adım açıklanmıştır. Zeta potansiyel ölçümleri için Zetasizer Nano cihazı kullanılarak elde edilen sonuçlar kararlılık anlamında değerlendirilmiştir. Reolojik analizler için, viskoziteler 10 ile 800 s⁻¹ arasında kayma hızlarında ölçülmüştür ve sıcaklık değişiminin viskozite üzerindeki etkisi 200 s⁻¹ sabit kayma hızında test edilmiştir. 3-omega yöntemi, ısı iletkenlik ölçümleri için kullanılırken yüzey gerilimi ölçümleri için asılı damla yöntemi uygulanmıştır. Çeşitli konsantrasyonlarda ve farklı özgül yüzey alanlarına sahip nanoplakalar kullanılarak ve nanoakışkanların pH'nın ayarlanmasıyla, termofiziksel ve reolojik özelliklerin karşılaştırmalı bir değerlendirmesi gerçekleştirilmiştir.

2. DENEYSEL METOT (EXPERIMENTAL METHOD)

2.1. Malzemeler ve Hazırlama Teknikleri (Materials and Preparation Techniques)

Farklı özgül yüzey alanlarına (320, 530 ve 800 m²/g) sahip GNPler (sırasıyla; NG01GNP0107, NG01GNP0108 NG01GNP0109 kodlarıyla) Nanografi (Ankara, Türkiye) firmasından sağlanmıştır. Susuz amonyak (ACS reagent grade, ≥ %99,98) Sigma Aldrich firmasından satın alınmıştır. Baz akışkan olarak distile su kullanılmıştır.

Malzemelerin tümü ileri bir saflaştırma işleminden geçirilmeden kullanılmıştır. Üretici firmadan sağlanan nanoparçacıkların özellikleri Tablo 1’de verilmiştir.

Nanoakışkanların hazırlanmasında iki adım yöntemi kullanılmıştır. Baz akışkan olarak 50 mL distile suyun kullanıldığı nanoakışkanlarda, farklı özgül yüzey alanlarına sahip tüm nanoparçacıklar için konsantrasyon %0,5, %1,0 ve %2,0’dır. Prob tipi direkt ultrasonikasyon cihazı (UP400S, Hielscher Ultrasonics GmbH, Teltow, Germany), %50 amplitüd ve 0,5 çevrim süresi ile dispersiyon hazırlamada kullanılmıştır. Dispersiyonlar 100 mL geniş boyunlu borosilikat cam içerisinde hazırlanmışlardır. Hazırlama aşamasında ilk olarak nanoparçacıklar distile suya eklenmiştir ve 5 dakika boyunca ön ultrasonikasyon işlemine tabi tutulmuştur. Bu ön ultrasonikasyonun amacı, pH ölçümü öncesinde nanoparçacık dispersiyonunun sağlanmasıdır. pH ayarlanması için distile su ile 0,1 M’lık amonyum hidroksit (NH₄OH) çözeltisi hazırlanmıştır. Ön ultrasonikasyona tabi tutulan dispersiyonların pH’ı Innolab Multi 9310 pHmetre ile ölçülerek, değeri 8 civarında tutmak için gerekli miktarda 0,1 M NH₄OH çözeltisi dispersiyonlara eklenmiştir. Daha yüksek pH değerlerinin tercih edilmemesinin nedeni, dispersiyonların ısı transfer sisteminde korozyona sebep olması ve operatör için cilt tahrişini engellemektir. pH ayarlama işlemi sonrasında dispersiyonlara tekrar 50 dakikalık ultrasonikasyon uygulanmıştır. Aşırı ısınmayı önlemek için buz banyosu kullanılmıştır ve tüm ölçümler oda sıcaklığında yapılmıştır.

2.2. Ölçüm Cihazları (Instruments)

Zeta potansiyeli ölçümlerinde Malvern marka Zetasizer Nano ZS90 model cihaz kullanılmıştır. Ölçüm için gerekli olan minimum numune hacmi 150 µL’dir. Opak numunelerin zeta potansiyeli ölçümündeki en kritik noktalardan biri numunenin konsantrasyonudur. Zeta potansiyeli ölçümü parçacıkların optik özelliklerine ve parçacık boyut dağılımının polidispersitesine bağlı olarak gönderilen lazer ışınının numune içinde dağılımıyla gerçekleştirilmektedir. GNPLerin yüksek refraktivitesi nedeniyle lazer ışığı yüksek bir saçılma gösterdiği için daha doğru ölçüm yapmak adına numuneler seyreltilmiştir. Ancak, seyreltilme işlemi sırasında, iyon dengesini bozmamak için numuneler Wise Spin CF 10 (Wisd Laboratory Instruments) cihazı ile 1350 rpm’lik bir hızda 3 saat boyunca santrifüj edilmiştir. Santrifüj işleminden sonra üst kısımda kalan seyreltik bölgeden alınan numunelerin zeta potansiyeli ölçülmüştür. Zetasizer Nano ZS90 cihazı her bir numune için üç ölçüm yapmak üzere ayarlanmıştır ve ölçümler gerçekleştirilmiştir. Reoloji ölçümleri için TA

Instruments marka, Hybrid Rheometer Discovery HR-2 model cihaz kullanılmıştır. Cihazda kullanılan ölçüm türleri kayma hızı artırılması ve sabit kayma hızında sıcaklık artışıdır. Düşük ve orta viskozitelere sahip akışkanların reolojik analizlerinde kullanılan konsantrik silindir ile ölçümler gerçekleştirilmiştir. Her testten önce cihaz kalibrasyonu yapılmıştır. Kayma hızı etkisinin incelenmesinde akışkan 10 ile 810 s⁻¹ arasında kayma hızına maruz bırakılmıştır. Sıcaklığın viskozite üzerindeki etkisini görmek için ise 200 s⁻¹ sabit kayma hızında 25°C’den 65°C’ye kadar 5°C/dakikalık artış ile ısıtma gerçekleştirilmiştir. Isıl iletkenlik ölçümleri, bir ısı prob, Wheatstone köprüsü, faz kilitlemeli amplifikatör ve tampon amplifikatörden oluşan bir laboratuvar tipi 3-omega (3ω) ısıl iletkenlik ölçüm düzeneği ile gerçekleştirilmiştir. Isıl probun ucunda 19 mm uzunluğunda ve 50 µm çapında bir nikel tel bulunmaktadır ve bu tel tamamen nanoakışkan içerisine daldırılarak ölçüm yapılmaktadır. Nikel tel aynı anda hem bir ısıtıcı hem bir termometre olarak çalışır ve kabloya gönderilen f/2 frekansında bir sinüs çıkış akımı (AC) uygulanmaktadır. İyi bir sinyal-gürültü oranı elde etmek için birinci harmonik (1ω) Wheatstone köprü düzenlemesi ile iptal edilmektedir, üçüncü harmonik (3ω) ise aynı frekansa ayarlanmış Standford SR-850 faz kilitli amplifikatör tarafından köprü boyunca devam eden diferansiyel sinyalden seçilmektedir. Her ölçüm öncesinde cihaz kalibre edilmiştir. 3ω ölçüm cihazı ile ilgili daha fazla ayrıntı [32-34]’de açıklanmıştır.

Yüzey gerilimi analizlerinde Attention Theta Lite Gonyometre (Biolin Scientific AB, Vastra Frolunda, İsveç) cihazı kullanılmıştır. Deneyler 25°C’de gerçekleştirilmiştir. Young Denklemine göre, yüzey gerilimi değerleri asılı damla yöntemiyle hesaplanmıştır. Analizler 10 saniye boyunca, saniyede 12 görüntü alınarak gerçekleştirilmiştir. Her numune için beş deneme yapılmış olup, ortalama sonuçlar standart sapmalarla verilmiştir. Ölçümlere ait düzenek görüntüsü Şekil 1’de verilmiştir.

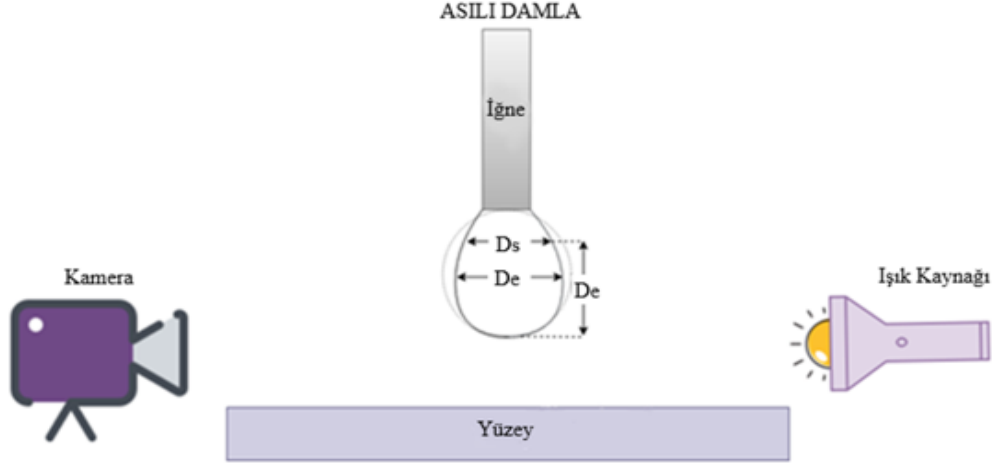
3. SONUÇLAR VE TARTIŞMALAR (RESULTS AND DISCUSSIONS)

3.1. Zeta Potansiyel Ölçümleri (Zeta Potential Measurements)

GNP nanoparçacıklarının özgül yüzey alanına ve konsantrasyonuna bağlı olarak değişen zeta potansiyelinin grafiği Şekil 2’de verilmiştir. Her bir örnek için üç ölçümün standart sapması 0,1 ile 0,5 mV arasında olduğu için, Şekil 2’de hata çubukları gösterilmemiştir. Genel olarak, +/- 30 mV’lik zeta potansiyeli değeri, koloidal kararlılık için uygun bir eşik değeri olarak kabul edilir. Nanoparçacık özgül yüzey alanı artışı ile zeta potansiyelinde artış görülmüştür. Küttele

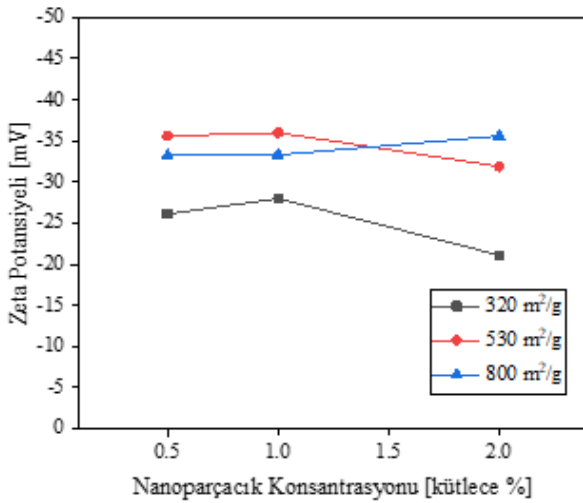
Tablo 1. Nanoparçacık özellikleri (Nanoparticle properties)

GNP	320 m ² /g	530 m ² /g	800 m ² /g
Görünüm	Siyah toz	Siyah toz	Siyah toz
Safılık	> %99,9	%99,9	%99,9
Kalınlık	3 nm	3 nm	3 nm
Parçacık çapı	1,5 µm	1,5 µm	1,5 µm



Şekil 1. Asılı damla yöntemi deney düzeneği (Pendant drop method experimental setup)

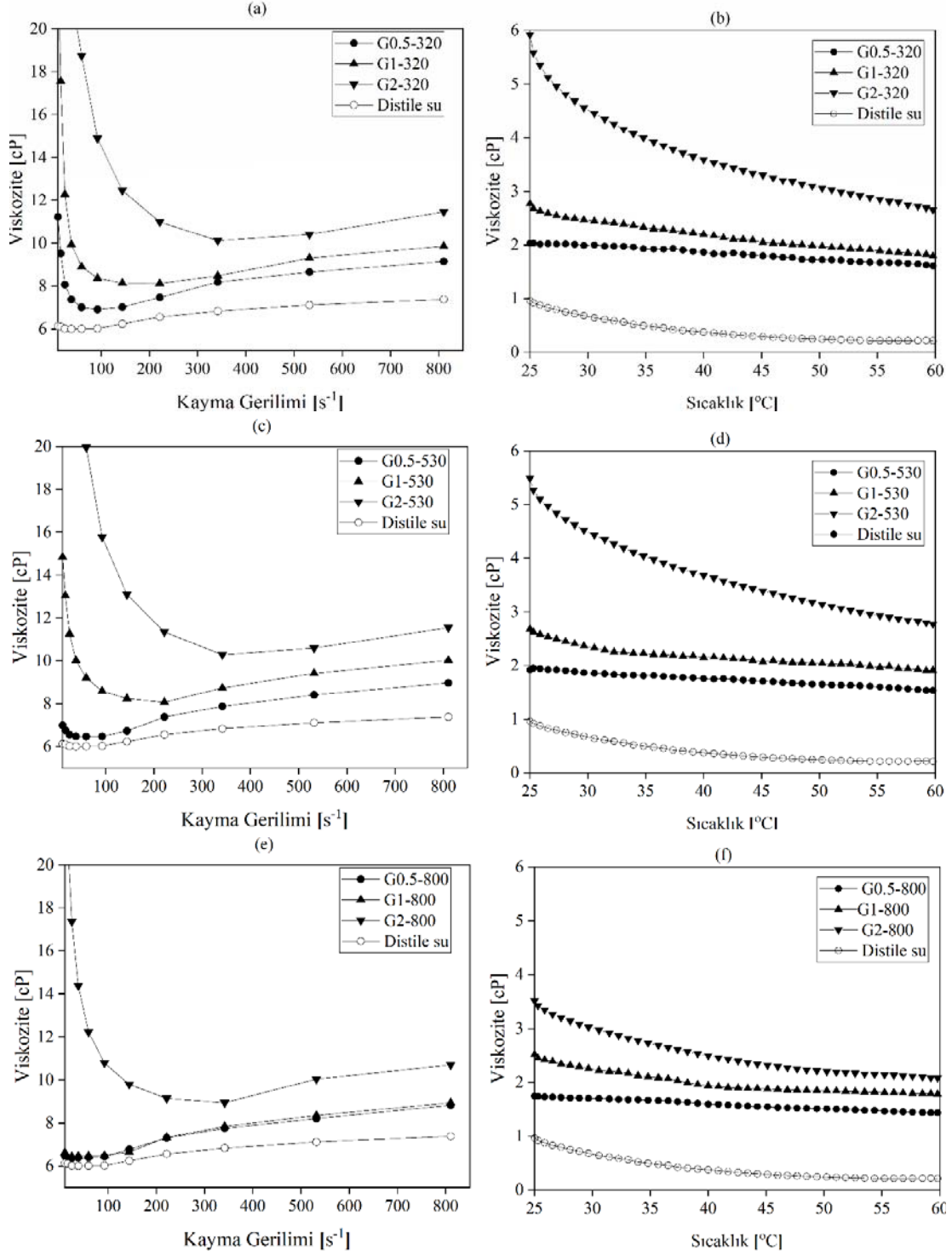
%0,5 ve 1,0 oranında 530 ve 800 m²/g GNP içeren nanoakışkanların zeta potansiyeli değerleri birbirine çok yakın ölçülmüştür. Nanoparçacık konsantrasyonunun kütlece %2,0'ye artmasıyla birlikte sadece 800 m²/g GNP içeren nanoakışkanın zeta potansiyeli artmış; 320 ve 530 m²/g GNP içeren nanoakışkanların zeta potansiyeli azalmıştır. Azalan zeta potansiyeli, parçacıklar arasındaki düşük elektrostatik kuvveti ifade eder. Düşük elektrostatik kuvvetler, parçacıklar arasındaki Van der Waals kuvvetlerini aşamaz ve bu durum serbest parçacıkların oluşumuna engel olur. Van der Waals kuvvetleri dolayısıyla parçacıklar arasındaki güçlü etkileşim, iki parçacık arasındaki mesafeyi azaltır ve parçacıkların çökme olasılığını daha da artırır. 320 ve 530 m²/g GNP nanoparçacıkları arasındaki etkileşim de, yine aynı prensiple parçacıkların baz akışkan içerisindeki hareket kabiliyetini azaltmıştır, bu nedenle zeta potansiyeli değerlerinde azalma gözlenmiştir [35].



Şekil 2. GNP özgül yüzey alanına ve konsantrasyonuna bağlı olarak zeta potansiyeli değişim grafiği (Zeta potential as a function of GNP specific surface area and concentration)

3.2. Reoloji Ölçümleri (Rheology Measurements)

Bu çalışmada, GNP nanoparçacıklarının özgül yüzey alanı ve konsantrasyon değişimi, nanoakışkanların sıcaklık artışı ve kayma hızının değişmesi ile nanoakışkanların reolojisinde meydana gelen farklılıklar incelenmiştir. Şekil 3a, 3c ve 3e sırasıyla 320 m²/g, 530 m²/g ve 800 m²/g nanoparçacık içeren nanoakışkanların viskozitesinin kayma gerilimi değişimini göstermektedir. 25°C'de yapılan bu ölçümlerde, artan nanoparçacık konsantrasyonu ile viskozitede artış gözlemlenmiştir. Konsantrasyon artışı ile baz akışkanın maruz kaldığı kuvvet, sürtünme ve akma direnci artar ve bu durum nanoakışkanda daha yüksek iç kayma gerilimi oluşturur [36]. Şekil 3a'da kütlece % 0,5, 1,0 ve 2,0 oranında 320 m²/g nanoparçacık içeren nanoakışkanlar kayma incelmeleri davranışı göstermiştir. Bu durum nanoparçacıkların topaklaşmasının bir göstergesidir ve artan kayma hızı altında topaklaşan parçacıkların ayrılması ile kayma incelmeleri meydana gelir [37]. Şekil 2'de verilen zeta potansiyeli grafiğinde de mutlak zeta potansiyeli değeri kütlece %1,0'lik nanoakışkan için hafifçe artmasına rağmen, konsantrasyon artışı ile zeta potansiyeli azalma eğilimindedir. Kütlece %0,5 ve 1,0'lik nanoakışkanlar yaklaşık 110 s⁻¹ ve kütlece % 2,0'lik nanoakışkan yaklaşık 320 s⁻¹ kayma gerilimi sonrasında kayma kalınlaşması davranışına sahiptir. Belirli bir kayma gerilimi altında, nanoparçacıklar akışkan içerisinde bir film tabakası gibi hizalanma eğilimindedir. Belirli bir değerden sonra kayma hızındaki artış, nanoparçacıkların paketlenmiş yapısını bozar ve tekrar hizalanma davranışının görülebilmesi için nanoakışkan içerisinde daha fazla alan gerekir. Nanoparçacıkların düzenindeki bu bozulma ve tekrar düzenli hizalanma için yeterli alanın bulunmaması viskozitede artışa neden olur [37]. Şekil 3c'de kayma incelmeleri davranışı kütlece %1,0 ve 2,0 oranında 530 m²/g özgül yüzey alanına sahip GNP içeren nanoakışkanlarda görülmüştür. Bu durum Şekil 2'de verilen zeta potansiyeli grafiğinde de görüleceği üzere; kütlece %0,5'lik 530 m²/g GNP nanoakışkanının aynı oranda 320 m²/g GNP içeren nanoakışkana göre daha kararlı



Şekil 3. (a) 320 m²/g, (c) 530 m²/g ve (e) 800 m²/g GNP içeren nanoakışkanların kayma gerilimi değişimine göre viskozite grafiği ve (b) 320 m²/g, (d) 530 m²/g ve (f) 800 m²/g GNP içeren nanoakışkanların sıcaklık artışına göre viskozite değişim grafiği (Viscosity as a function of shear rate for GNP nanofluids with (a) 320 m²/g, (c) 530 m²/g, and (e) 800 m²/g; as a function of temperature for GNP nanofluids with (b) 320 m²/g, (d) 530 m²/g, and (f) 800 m²/g)

olduğunu gösterir. Kütlece %0,5, 1,0 ve 2,0 oranında 530 m²/g GNP içeren nanoakışkanlarda da sırasıyla 150, 220 ve 340 s⁻¹ kayma hızı sonrasında kalınlaşma davranışı

gözlemlenmiştir. Şekil 3e’de, sadece kütlece %2,0 oranında 800 m²/g GNP içeren nanoakışkanda kayma incilmesi davranışı tespit edilmiştir. Kalınlaşma davranışı ise kütlece

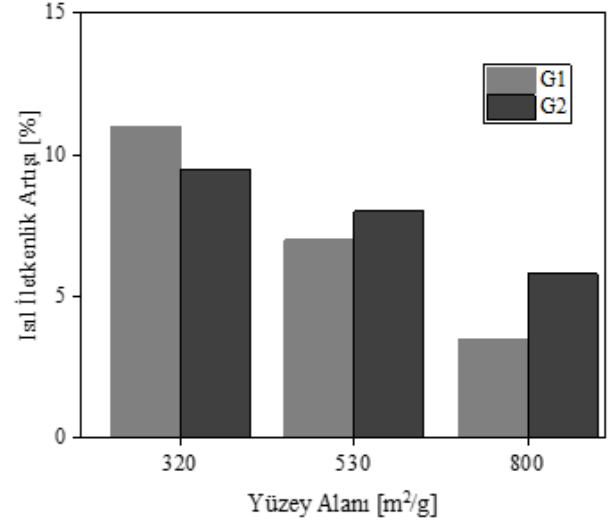
%0,5 ve 1,0'lik nanoakışkanlarda yaklaşık 150 s^{-1} , kütlece %2,0'lik nanoakışkanlarda yaklaşık 340 s^{-1} kayma hızı sonrasında gözlemlenmiştir. Tüm kayma hızı ve viskozite grafiklerinden anlaşılacağı gibi topaklanma oranı en az olan nanoakışkanlar $800 \text{ m}^2/\text{g}$ GNP içerenlerdir ve bu durum Şekil 2'de verilen zeta potansiyeli grafiği ile de desteklenmektedir. Şekil 3b, 3d ve 3f grafiklerinde, sırasıyla $320 \text{ m}^2/\text{g}$, $530 \text{ m}^2/\text{g}$ ve $800 \text{ m}^2/\text{g}$ GNP içeren nanoakışkanların viskozitesinin sıcaklık (25°C ve 60°C arası, sabit 200 s^{-1} kayma hızında) ile değişim grafiği verilmiştir. Tüm nanoakışkanlar için sıcaklık artışı ile birlikte viskozite azalması görülmüştür. Sıcaklık arttıkça, moleküller arası etkileşimler zayıflayarak baz akışkanın viskozitesi azalmaktadır ve bu azalışın derecesi baz akışkanın türüne, nanoparçacıkların türüne ve boyutuna da bağlıdır [1, 38]. Sıcaklık artışı ile en yüksek viskozite düşüşü $320 \text{ m}^2/\text{g}$ GNP içeren nanoakışkanlar için görülmüş olup daha sonra $520 \text{ m}^2/\text{g}$ ve $800 \text{ m}^2/\text{g}$ GNP içeren nanoakışkanlarda bu düşüş azalarak devam etmiştir.

3.3. Isıl İletkenlik Ölçümleri

(Thermal Conductivity Measurements)

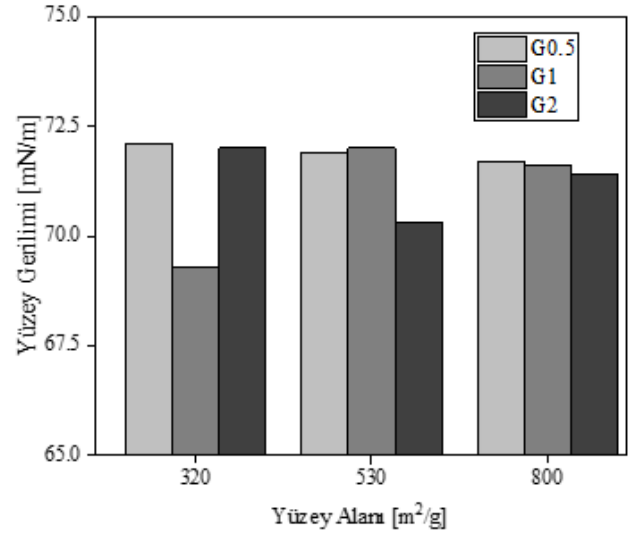
Nanoakışkanların ısı transfer sistemlerinde kullanılmasının en önemli koşulu kararlılıktır. Nanoparçacıkların çökmesi ve faz ayrımı, korozyona sebebiyet ve ısıtma sistemlerinin tıkanması gibi sorunlara yol açması nedeniyle istenmeyen bir durumdur [3]. Öte yandan, nanoakışkanlar üç fazdan oluşur: baz akışkan, nanoparçacıklar ve ara yüz; ara yüzdeki topaklaşmanın dengesi, ısı iletkenlik artışını olumlu yönde etkiler [39]. 3ω yöntemi ile ölçülen ısı iletkenlik değerleri, baz akışkanın iletkenliği ile karşılaştırılarak hesaplanmıştır. Farklı yüzey alanlarına sahip GNP nanoakışkanlarının ısı iletkenlik artışı Şekil 4'te verilmiştir. Isıl iletkenlik değerleri, sadece kütlece %1,0 ve 2,0 oranında GNP içeren nanoakışkanlar için ölçülebilmştir, kütlece %0,5'lik nanoakışkanlar için doğru bir ölçüm alınamamıştır. Artan nanoparçacık konsantrasyonu ile 530 ve $800 \text{ m}^2/\text{g}$ GNP içeren nanoakışkanların ısı iletkenlikleri artmıştır. Ancak, $320 \text{ m}^2/\text{g}$ GNP içeren nanoakışkanlarda konsantrasyon artışı ile ısı iletkenlik azalmıştır. Düşük zeta potansiyeline sahip kütlece %2,0'lik $320 \text{ m}^2/\text{g}$ GNP içeren nanoakışkanlarda oluşan çökeltme optimum seviyeyi aşması sebebiyle, ısı iletkenlik artışı konsantrasyon artışı ile birlikte azalmıştır. En yüksek ısı iletkenlik artışı %11 ile ağırlıkça %1,0 oranında $320 \text{ m}^2/\text{g}$ GNP içeren nanoakışkan için gözlenmiştir. Nanoparçacıkların yüzey alanının artışı ile ısı iletkenlikte azalma görülmüştür. Ara yüzey direnci ısı iletkenlik artışını azaltmaktadır. Bununla birlikte, topaklanmanın belirlendiği nanoakışkanlarda ara yüzey direncinin azaldığı gözlenmektedir. Belirli bir hızda nanoparçacık topaklanması, herhangi bir çökeltme oluşmadıkça ısı iletkenliği artırabilir [40]. Bu durum reoloji ölçümlerinde özgül yüzey alanı azaldıkça artan kayma incelmeleri davranışı, topaklanma eğiliminin artmış olmasıyla da desteklenmektedir. Literatürde, nanoakışkanların ısı iletkenlik ölçümü için genellikle Transient Hot Wire (THW) tekniği kullanılmaktadır [3, 40-42]. Kütlece %0,005-0,02 aralığındaki düşük nanoparçacık konsantrasyonlarında bile, ısı iletkenlik artışları %3 ila %22,9 arasında değişmektedir

[5]. Çalışmamızda elde edilen ısı iletkenlik artışları, birbirleriyle bağdaşmayan birçok sonuç verdiği iddia edilen THW yöntemi ile ölçülen önceki sonuçlara kıyasla daha düşüktür [43]. Hazırlık aşamasından itibaren sistematik bir şekilde yürütülen deneysel çalışmalarımızın sonuçları bir bütünlük içindedir. Aynı zamanda reoloji ölçümlerinde nanoparçacık konsantrasyonunun artmasıyla gözlenen topaklaşma, nanoparçacıklar arasında daha fazla ısı transferi sağlayacak ve ısı iletkenliği artıracak bir ağ yapısı oluşturmuştur.



Şekil 4. Nanoparçacık özgül yüzey alanı değişimine göre ısı iletkenlik artışı grafiği

(Thermal conductivity enhancement as a function of GNP specific surface area)



Şekil 5. Nanoparçacık özgül yüzey alanı değişimine göre yüzey gerilimi grafiği

(Surface tension as a function of GNP specific surface area)

3.4. Yüzey Gerilimi Ölçümleri (Surface Tension Measurements)

Nanoparçacıkların yüzey alanı değişimine ve konsantrasyonlarına göre yüzey gerilimi değişimleri Şekil

5'te verilmiştir. Hidrofobik malzemelerde, baz akışkan ile nanoparçacık arasındaki itme kuvvetleri arttığı için ara yüz bölgesindeki baz akışkan molekülleri arasındaki boşluk artarak yüzey gerilimini azaltan bir etki yaratır. Hidrofilik malzemeler için durum tam tersidir ve yüksek nanoparçacık ve baz sıvı etkileşimi yüzey gerilimini artırır [44]. Suyun normal şartlarda yüzey gerilimi 72 mN/m'dir. GNP nanoparçacıkları hidrofobik olarak nitelendirilmektedir. Tüm nanoakışkanların yüzey gerilimi sudan görece olarak küçük değerlere sahiptir. Kolloidal stabilitenin artışı dolayısıyla nanoparçacıkların yüzey alanı arttıkça, konsantrasyon artışı ile birlikte yüzey gerilimi azalış eğilimi daha düzenlidir.

4. SONUÇLAR (CONCLUSIONS)

Farklı özgül yüzey alanlarına (320, 530, 800 m²/g) sahip ve yüksek konsantrasyonda GNP içeren su bazlı kararlı nanoakışkanlar ultrason teknolojisi ile başarılı bir şekilde hazırlanmıştır. Literatürde çokça yer bulamayan farklı özgül yüzey alanlarına sahip nanoparçacıkların karşılaştırılması; ayrıntılı kararlılık, reoloji ve ısı iletkenlik çalışmaları yürütülmüştür. Nanoakışkanların kararlılığının değerlendirilmesi zeta potansiyeli ölçümleriyle gerçekleştirilmiştir. Nanoparçacıkların yüzey alanı artışı ile birlikte zeta potansiyelinde de artış gözlemlenmiştir. Nanoparçacık konsantrasyonu ve yüzey alanı, kayma hızı ve sıcaklık değişiminin bir fonksiyonu olarak nanoakışkanların viskozitesindeki değişimler incelenmiştir. Nanoparçacık konsantrasyonu artışı ile birlikte düşük kayma hızı bölgesinde yüksek konsantrasyonlu nanoakışkanlarda kayma incelenmesi davranışı gözlenirken, kayma hızı artışıyla kalınlaşma tespit edilmiştir. Isıl iletkenlik artışları 3-omega yöntemi ile ölçülmüş olup, artan nanoparçacık yüzey alanı ile birlikte ısı iletkenlik artışı azalmıştır. Yapılan yüzey gerilimi ölçümlerinde, GNP nanoparçacıklarının hidrofobik yapısı dolayısıyla yüzey gerilimi değerlerinde suya göre bir azalma gözlemlenmiştir. Sonuç olarak, GNP nanoakışkanlarının artan ısı iletkenlik değerlerinin ve uygun reolojik davranışlarının umut verici olduğu gösterilmiştir. Ancak, yüksek kararlılıktaki nanoakışkanların endüstriyel uygulamalarda kullanımının yaygınlaştırılması için nanoakışkan araştırmalarının hızla devam etmesi gerekmektedir.

5. TEŞEKKÜR (ACKNOWLEDGEMENT)

Nanoakışkanların 3-omega yöntemiyle ısı iletkenlik ölçümleri için Dokuz Eylül Üniversitesi Makine Mühendisliği Bölümü öğretim üyesi Doç. Dr. Alpaslan Turgut'a teşekkür ederiz. Bu çalışma TÜBİTAK tarafından desteklenmiştir (Proje No:117M953).

KAYNAKLAR (REFERENCES)

1. Murshed S.M.S., Estellé P., A state of the art review on viscosity of nanofluids, *Renew. Sust. Energ. Rev.*, 76, 1134–1152, 2017.
2. Çakır M.T., Improving the efficiency performance of heat pipes using alumina containing nano-fluids, *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, 30 (4), 547–556, 2015.
3. Tawfik M.M., Experimental studies of nanofluid thermal conductivity enhancement and applications: A review, *Renew. Sust. Energ. Rev.*, 75, 1239–1253, 2017.
4. Choi S.U.S., Eastman J.A., Enhancing thermal conductivity of fluids with nanoparticles, *International mechanical engineering congress and exhibition*, San Francisco CA-United States, 1995.
5. Sadeghinezhad E., Mehrali M., Saidur R., Mehrali M., Tahan Latibari S., Akhiani A.R., Metselaar H.S.C., A comprehensive review on graphene nanofluids: Recent research, development and applications, *Energy Convers. Manag.*, 111, 466–487, 2016.
6. Raja M., Vijayan R., Dineshkumar P., Venkatesan M., Review on nanofluids characterization, heat transfer characteristics and applications, *Renew. Sust. Energ. Rev.*, 64, 163–173, 2016.
7. Çiloğlu D., Bölükbaşı A., Çifci H., Experimental investigation of pool boiling heat transfer in nanofluids around spherical surfaces, *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, 30 (3), 405–415, 2015.
8. Novoselov K.S., Geim A.K., Morozov S.V., Jiang D., Zhang Y., Dubonos S.V., Grigorieva I.V., Firsov A.A., Electric field effect in atomically thin carbon films, *Science*, 306 (5696), 666, 2016.
9. Singh V., Joung D., Zhai L., Das S., Khondaker S., Seal S., Graphene based materials: past, present and future, *Mater. Sci.* 56 (8), 1178–1271, 2011.
10. Zhang T., Xue Q., Zhang S., Dong M., Theoretical approaches to graphene and graphene-based materials, *Nano Today*, 7 (3), 180–200, 2012.
11. Balaji T., Selvam C., Lal D.M., Harish S., Enhanced heat transport behavior of micro channel heat sink with graphene based nanofluids, *Int. Commun. Heat Mass*, 117, 104716, 2020.
12. Fuskele V., Sarviya R.M., Recent developments in nanoparticles synthesis, preparation and stability of nanofluids, *Mater. Today*, 4 (2, Part A), 4049–4060, 2017.
13. Sezer N., Atieh M.A., Koç M., A comprehensive review on synthesis, stability, thermophysical properties, and characterization of nanofluids, *Powder Technol.*, 344, 404–431, 2019.
14. Sharifpur M., Meyer J., Aybar H., Nanofluids; Opportunities and Challenges, 11th International Conference on Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics (HEFAT 2015), Kruger National Park-South Africa, 2015.
15. Mukherjee S., Mishra P.C., Chaudhuri P., Stability of Heat Transfer Nanofluids – A Review, *ChemBioEng Rev.*, 5 (5), 312–333, 2018.
16. 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.*, 9 (1), 15, 2014.
17. Ilyas S.U., Narahari M., Theng J.T.Y., Pendyala R., Experimental evaluation of dispersion behavior, rheology and thermal analysis of functionalized zinc oxide-paraffin oil nanofluids, *J. Mol. Liq.*, 294, 111613, 2019.
 18. Sharma A.K., Tiwari A.K., Dixit A.R., Rheological behaviour of nanofluids: A review, *Renew. Sust. Energ. Rev.*, 53, 779–791, 2016.
 19. López L.H., Monzonís L.M., Vicente L.B., Report about industries perspectives on nanofluids market uptake, 2019.
 20. Ahmadi A., Ganji D.D., Jafarkazemi F., Analysis of utilizing Graphene nanoplatelets to enhance thermal performance of flat plate solar collectors, *Energy Convers. Manag.*, 126, 1–11, 2016.
 21. Le Ba T., Mahian O., Wongwises S., Szilágyi I.M., Review on the recent progress in the preparation and stability of graphene-based nanofluids, *J. Therm. Anal. Calorim.*, 142 (3), 1145–1172, 2020.
 22. Moh T.S.Y., Ting T.W., Lau A.H.Y., Graphene Nanoparticles (GNP) nanofluids as key cooling media on a flat solar panel through micro-sized channel, *Energy Rep.*, 6, 282–286, 2020.
 23. Iranmanesh S., Ong H.C., Ang B.C., Sadeghinezhad E., Esmailzadeh A., Mehrali M., Thermal performance enhancement of an evacuated tube solar collector using graphene nanoplatelets nanofluid, *J. Clean. Prod.*, 162, 121–129, 2017.
 24. Sarafraz M.M., Yang B., Pourmehran O., Arjomandi M., Ghomashchi R., Fluid and heat transfer characteristics of aqueous graphene nanoplatelet (GNP) nanofluid in a microchannel, *Int. Commun. Heat Mass*, 107, 24–33, 2019.
 25. Zhou Y., Cui X., Weng J., Shi S., Han H., Chen C., Experimental investigation of the heat transfer performance of an oscillating heat pipe with graphene nanofluids, *Powder Technol.*, 332, 371–380, 2018.
 26. Sadeghinezhad E., Akhiani A.R., Metselaar H.S.C., Tahan Latibari S., Mehrali M., Mehrali M., Parametric study on the thermal performance enhancement of a thermosyphon heat pipe using covalent functionalized graphene nanofluids, *Appl. Therm. Eng.*, 175, 115385, 2020.
 27. Sadeghinezhad E., Mehrali M., Rosen M.A., Akhiani A.R., Tahan Latibari S., Mehrali M., Metselaar H.S.C., Experimental investigation of the effect of graphene nanofluids on heat pipe thermal performance, *Appl. Therm. Eng.*, 100, 775–787, 2006.
 28. Wang Z., Wu Z., Han F., Wadsö L., Sundén B., Experimental comparative evaluation of a graphene nanofluid coolant in miniature plate heat exchanger, *Int. J. Therm. Sci.*, 130, 148–156, 2018.
 29. Arshad W., Ali H.M., Graphene nanoplatelets nanofluids thermal and hydrodynamic performance on integral fin heat sink, *Int. J. Heat Mass Trans.*, 107, 995–1001, 2017.
 30. Mehrali M., Sadeghinezhad E., Rosen M.A., Tahan Latibari S., Mehrali M., Metselaar H.S.C., Kazi S.N., Effect of specific surface area on convective heat transfer of graphene nanoplatelet aqueous nanofluids, *Exp. Therm. Fluid Sci.*, 68, 100–108, 2015.
 31. Agarwal D.K., Vaidyanathan A., Sunil Kumar S., Experimental investigation on thermal performance of kerosene–graphene nanofluid, *Exp. Therm. Fluid Sci.*, 71, 126–137, 2016.
 32. Turgut A., Sauter C., Chirtoc M., Henry J.F., Tavman S., Tavman I., Pelzl J., AC hot wire measurement of thermophysical properties of nanofluids with ω method, *Eur. Phys. J. Spec. Top.* 153 (1), 349–352, 2008.
 33. Turgut A., Tavman I., Chirtoc M., Schuchmann H.P., Sauter C., Tavman S., Thermal conductivity and viscosity measurements of water-based TiO₂ nanofluids, *Int. J. Thermophys.*, 30 (4), 1213–1226, 2009.
 34. Turgut A., Sağlanmak Ş., Doğanay S., Experimental investigation on thermal conductivity and viscosity of nanofluids: particle size effect, *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, 31 (1), 95–103, 2016.
 35. Kim D.H., Yun Y.S., Jin H.-J., Difference of dispersion behavior between graphene oxide and oxidized carbon nanotubes in polar organic solvents, *Curr. Appl. Phys.*, 12 (3), 637–642, 2012.
 36. Shah J., Ranjan M., Davariya V., Gupta S. K., Sonvane Y., Temperature-dependent thermal conductivity and viscosity of synthesized α -alumina nanofluids, *Appl. Nanosci.*, 7 (8), 803–813, 2017.
 37. Tseng W.J., Wu C.H., Aggregation, rheology and electrophoretic packing structure of aqueous Al₂O₃ nanoparticle suspensions, *Acta Mater.*, 50 (15), 3757–3766, 2002.
 38. Murshed S.M.S, Tan S.-H., Nguyen N.-T., Temperature dependence of interfacial properties and viscosity of nanofluids for droplet-based microfluidics, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 41 (8), 085502, 2008.
 39. Timofeeva E.V., Yu W., France D.M., Singh D., Routbort J.L., Nanofluids for heat transfer: an engineering approach, *Nanoscale Res. Lett.*, 6 (1) 182, 2011.
 40. Özeriç S., Kakaç S., Yazıcıoğlu A.G., Enhanced thermal conductivity of nanofluids: a state-of-the-art review, *Microfluid. Nanofluidics*, 8 (2), 145–170, 2010.
 41. Putnam S.A., Cahill D.G., Braun P.V., Ge Z., Shimmin R.G., Thermal conductivity of nanoparticle suspensions, *J. Appl. Phys.*, 99 (8), 084308, 2006.
 42. Xing M., Yu J., Wang R., Experimental study on the thermal conductivity enhancement of water based nanofluids using different types of carbon nanotubes, *Int. J. Heat Mass Transf.*, 88, 609–616, 2015.
 43. Antoniadis K.D., Tertsinidou G.J., Assael M.J., Wakeham W.J., Necessary Conditions for Accurate, Transient Hot-Wire Measurements of the Apparent Thermal Conductivity of Nanofluids are Seldom Satisfied, *Int. J. Thermophys.*, 37 (8), 78,2016.

44. Ilyas S. U., Ridha S., Abdul Kareem F.A., Dispersion stability and surface tension of SDS-Stabilized saline nanofluids with graphene nanoplatelets, Colloids Surf. A Physicochem. Eng. Asp., 592, 124584, 2020.