



Experimental Investigation of Wettability Alteration in Carbonate Reservoirs Using GO-SiO₂-TiO₂ Nanofluids

A. Pourabdol Shahrekordi^{1*}, G. Zargar²

¹Department of Petroleum Engineering, Faculty of Petroleum and Chemical Engineering, Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

²Department of Petroleum Engineering, Ahvaz Faculty of Petroleum Engineering, Petroleum University of Technology, Ahvaz, Iran

Received: 2026-02-21

Revised: 2026-04-15

Accepted: 2026-06-17

Abstract: Wettability alteration from oil-wet to water-wet state in carbonate reservoirs, which are predominantly oil-wet, using nanofluids containing nanoparticles or nanocomposites is considered one of the most effective strategies for releasing oil adhered to rock grain surfaces and thereby enhancing oil recovery from these reservoirs. Accordingly, in this research, a new nanocomposite named graphene oxide-silica-titanium dioxide (GO-SiO₂-TiO₂) was synthesized and used to achieve two main goals: to induce significant wettability alteration and to determine its optimum concentration. Additionally, to obtain information about the mentioned nanocomposite and its thermal stability, six methods were used: Transmission Electron Microscopy (TEM), Field Emission Scanning Electron Microscopy (FESEM), X-ray Photoelectron Spectroscopy (XPS), Thermogravimetric Analysis (TGA), Zeta Potential, and Dynamic light scattering (DLS). According to the results of these methods, it was found that the silica and titanium dioxide nanomaterials had uniformly and regularly covered the surfaces of the graphene oxide nanosheets in the nanocomposite, and the nanocomposite also possessed high thermal stability. Then, using the sessile drop method and also slices from a carbonate core, the contact angle values at concentrations of 0 (reference or oil-wet state), 100, 500, 1500, and 2500 ppm of GO-SiO₂-TiO₂ nanofluid were measured to be 147.46°, 93.28°, 44.13°, 25.02°, and 69.71°, respectively. These results indicate that the new GO-SiO₂-TiO₂ nanocomposite exhibits a remarkable potential to induce significant wettability alteration and, consequently, to markedly improve the oil recovery factor in carbonate reservoirs, especially at the optimum concentration of 1500 ppm, which results in the maximum reduction in contact angle from 147.46° to 25.02°.

Keywords: Nanofluids, GO-SiO₂-TiO₂ nanocomposite, Wettability alteration, Sessile drop method, Carbonate reservoirs.

Corresponding Author. Email: arash.pourabdol@srbiau.ac.ir

How to Cite This Article:

Pourabdol Shahrekordi A, Zargar G. Experimental Investigation of Wettability Alteration in Carbonate Reservoirs Using GO-SiO₂-TiO₂ Nanofluids. Nanomeghyas. 2026;():e737802 (In Persian). doi: 10.22034/ns.2026.2084884.1421



This is an open access article under the CC-BY license (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>)

بررسی آزمایشگاهی تغییر ترشوندگی در مخازن کربناته، با استفاده از نانوسیالات $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$

آرش پورعبدل شهرکردی^{۱*}، قاسم زرگر^۲

۱- گروه مهندسی نفت، دانشکده نفت و مهندسی شیمی، واحد علوم و تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران

۲- گروه مهندسی نفت، دانشکده نفت اهواز، دانشگاه صنعت نفت، اهواز، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۴/۱۲/۰۲ تاریخ بازنگری: ۱۴۰۵/۰۱/۲۶ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۵/۰۳/۲۷

چکیده: ایجاد تغییر ترشوندگی از حالت نفت دوست به آب دوست در مخازن کربناته که مخازنی عمدتاً نفت دوست هستند، با استفاده از نانوسیالات حاوی نانوذرات، یا نانوکامپوزیت ها، یکی از موثرترین استراتژی ها جهت آزادسازی نفت چسبیده به سطوح دانه های سنگ و در نتیجه، افزایش ضریب بازیافت نفت از این مخازن محسوب می شود. بر همین اساس و در این پژوهش، نانوکامپوزیت جدیدی به نام اکسید گرافن-سیلیکا-دی اکسید تیتانیوم ($\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$)، به منظور دستیابی به دو هدف اصلی: ایجاد تغییر ترشوندگی شدید و نیز تعیین غلظت بهینه ی آن، سنتز و استفاده گردید. علاوه بر این، جهت دستیابی به اطلاعاتی از نانوکامپوزیت مذکور و نیز میزان پایداری حرارتی آن، از روش: میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (FESEM)، طیف سنجی فوتوالکتریک اشعه ی ایکس (XPS)، توزین حرارتی (TGA)، پتانسیل زتا (Zeta Potential) و پراکندگی نور پویا (DLS) استفاده شد. بر اساس نتایج این روش ها مشخص شد که نانومواد سیلیکا و دی اکسید تیتانیوم، به شکل کاملاً منظم و یکنواختی سطوح نانوصفحات اکسید گرافن در نانوکامپوزیت را پوشانده اند و نانوکامپوزیت نیز از پایداری حرارتی بالایی برخوردار است. سپس، با استفاده از روش قطره ی بی پایه و نیز برش هایی از یک مغزه ی کربناته، مقادیر زاویه ی تماس در غلظت های: ۰ (حالت مرجع یا نفت دوست)، ۱۰۰، ۵۰۰، ۱۵۰۰ و ۲۵۰۰ پی پی ام نانوسیال $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ ، به ترتیب ۱۴۷،۴۸، ۹۳،۳۲، ۴۴،۱۵ و ۶۹،۷۵ درجه اندازه گیری شدند. این نتایج نشان می دهند که نانوکامپوزیت جدید پتانسیل قابل توجهی جهت ایجاد تغییر ترشوندگی شدید و متعاقب آن، افزایش چشمگیر ضریب بازیافت نفت در مخازن کربناته دارد، به ویژه در غلظت بهینه ی آن (۱۵۰۰ پی پی ام) که سبب بیشترین میزان کاهش زاویه ی تماس از ۱۴۷،۴۸ به ۲۵،۱۷ درجه می شود.

واژگان کلیدی: نانوسیالات، نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ ، تغییر ترشوندگی، روش قطره ی بی پایه، مخازن کربناته.

نویسنده مسئول: arash.pourabdol@srbiau.ac.ir

نحوه استناد به این مقاله: پورعبدل شهرکردی آرش، زرگر قاسم. بررسی آزمایشگاهی تغییر ترشوندگی در مخازن کربناته، با استفاده از نانوسیالات

$\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$. Nanomeghyas. 1405;():e737802. doi: 10.22034/ns.2026.2084884.1421

این مقاله تحت مجوز دسترسی آزاد CC-BY منتشر شده است (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>)



۱- مقدمه

هیدروکسیل، سطح تماس بالاتر و ساختار دو بعدی، توانایی قابل توجهی در نفوذ به منافذ سنگ های مخزن و اصلاح ترشوندگی سطح آن ها دارند. بر همین اساس، در مطالعه ای که کاردناس^۸ و همکارانش در سال ۲۰۲۴ بر روی استفاده از نانوسیال GO، جهت کاهش زاویه ی تماس در برشی نفت دوست انجام دادند، نشان دادند که استفاده از نانوسیال GO باعث کاهش زاویه ی تماس از ۱۱۱،۴ به ۶۳،۹ درجه می شود [۱۰].

حال، با توجه به عملکرد قابل قبول هر یک از نانوذرات ذکر شده به صورت جداگانه، ترکیب هدمند آن ها در قالب یک نانوکامپوزیت می تواند به دلیل هم افزایی خواص فیزیکی و شیمیایی، موجب افزایش اثر بخشی آن شود. با این حال، تاکنون پژوهش جامعی که اثر نانوکامپوزیت سه جزئی GO-SiO₂-TiO₂ را بر روی کاهش زاویه ی تماس (تغییر ترشوندگی) در مخازن کربناته بررسی کند، گزارش نشده است. در همین راستا، هدف این پژوهش، نخست، سنتز نانوکامپوزیت جدید GO-SiO₂-TiO₂، به منظور ایجاد تغییر ترشوندگی شدید در سنگ مخزن های کربناته و دوم، تعیین غلظت بهینه ی^۹ این نانوکامپوزیت در نانوسیال است؛ به گونه ای که بیشترین میزان کاهش زاویه ی تماس (بیشترین میزان تغییر ترشوندگی) حاصل شود. شایان ذکر است که نتایج این پژوهش می تواند به عنوان گامی نوین در طراحی نانوسیالات جدید مهندسی شده برای ایجاد تغییر ترشوندگی شدید در مخازن کربناته که منجر به افزایش قابل توجه میزان برداشت نفت از این نوع از مخازن می شود، مورد استفاده قرار گیرد.

۲- بخش آزمایشگاهی

۲-۱- مواد

۲-۱-۱- مواد آزمایشگاهی لازم برای سنتز نانوکامپوزیت، ساخت نانوسیالات، شستشوی مغزه و آزمایشات اندازه گیری مقادیر زاویه ی تماس

نانوصفحات اکسید گرافن ۶ تا ۱۰ لایه، با ضخامت ۳،۴ تا ۷ نانومتر و خلوص بالاتر از ۹۹ درصد و نانومواد دی اکسید تیتانیوم آنتاتاز، با اندازه ی ۱۰ تا ۲۵ نانومتر و خلوص ۹۹،۵ درصد، هر دو از شرکت یواس نانو^{۱۰} آمریکا خریداری گردیدند که تصاویر FESEM مربوط به آنها، به ترتیب در شکل های ۱ و ۲ نمایش داده شده اند. موادی از قبیل: آب دیونیزه^{۱۱}، اتانول مطلق^{۱۲} با خلوص

مخازن کربناته^۱ با دارا بودن بیش از ۶۰ درصد از ذخایر نفتی جهان، نقش بسیار مهمی در تأمین انرژی جهانی ایفا می کنند [۱]. اما، یکی از مهمترین چالش هایی که همواره بر سر راه تولید نفت از این نوع از مخازن وجود دارد، موضوع ترشوندگی آنهاست، به طوری که اکثر این مخازن (۸۰ درصد) نفت دوست هستند و همین امر سبب ضریب بازیافت نفت معمولاً کمتر از ۴۰ درصد از این مخازن می شود [۲-۴]. در نتیجه، در چنین شرایطی بیشتر نفت موجود در این مخازن تولید نشده و به صورت نفت باقی مانده^۲ در می آید [۵]. بنابراین، از آنجاییکه بسیاری از روش های متداول ازدیاد برداشت نفت، مانند: تزریق آب یا گاز، بدون اصلاح شرایط سطحی سنگ در مخازن کربناته، کارایی لازم را در این نوع از مخازن ندارند، بنابراین ایجاد تغییر ترشوندگی^۳ در سنگ مخزن های کربناته از حالت نفت دوست به آب دوست، به عنوان یک راهبرد کلیدی برای افزایش برداشت نفت باقی مانده از این نوع از مخازن مطرح می شود [۶]. در دهه های اخیر، نانوسیالات ساخته شده از نانوذرات، به دلیل ویژگی های منحصر به فرد نانوذرات، نظیر: سطح ویژه ی بالا^۴، قابلیت اصلاح ویژگی های سطحی سنگ مخزن های کربناته و نیز، نانومقیاس بودن و در نتیجه نفوذ به خلل و فرج ریز موجود در سنگ مخزن های کربناته، به عنوان یکی از مؤثرترین ابزارها در ایجاد تغییر ترشوندگی در مخازن کربناته معرفی شده اند [۷، ۸]. با این حال، عملکرد نانوسیالات ساخته شده از نانوذرات مختلف در این زمینه، متفاوت بوده، زیرا که چنین عملکردی وابسته به نوع و ساختار نانوذرات به کار رفته در آن ها می باشد. بر همین اساس، در میان نانوذرات بررسی شده، برخی از آنها مانند: TiO₂، SiO₂ و GO، عملکرد برجسته تری در ایجاد تغییر ترشوندگی در سنگ مخزن های نفت دوست داشته اند [۹، ۱۰]. برای مثال، مطالعه ای که نوروزی و همکارانش در سال ۲۰۲۰ انجام دادند، نشان داد که نانوسیال دی اکسید تیتانیوم (TiO₂)^۵ موجب کاهش زاویه ی تماس از ۱۳۶،۷۳ به ۳۷،۱۸ درجه در یک برش از یک مغزه ی نفت دوست می شود [۱۱]. همچنین، نانوذرات سیلیکا (SiO₂)^۶ به دلیل وجود گروه های فعال هیدروکسیلی بر روی سطحشان، با سطح سنگ های مخزن واکنش داده و سبب کاهش شدید زاویه ی تماس در آنها می شوند. در این ارتباط، مرادی و همکارانش در سال ۲۰۱۵ طی پژوهشی نشان دادند که زاویه ی تماس در برشی نفت دوست، در پی استفاده از نانوسیال SiO₂ از ۱۲۲ به ۲۴ درجه کاهش می یابد [۱۲]. از سوی دیگر، نانوذرات اکساید گرافن (GO)^۷ نیز به دلیل برخورداری از گروه های عاملی فعال مانند: کربوکسیل، اپوکسی و

⁷ Graphene oxide (GO)

⁸ Cárdenas

⁹ Optimum concentration

¹⁰ US Nano Company

¹¹ Deionized water (H₂O)

¹² Absolute ethanol (C₂H₅OH)

¹ Carbonate reservoirs

² Residual oil

³ Wettability alteration

⁴ High specific surface area

⁵ Titanium dioxide (TiO₂)

⁶ Silica (SiO₂)

۲-۱-۲- مغزه

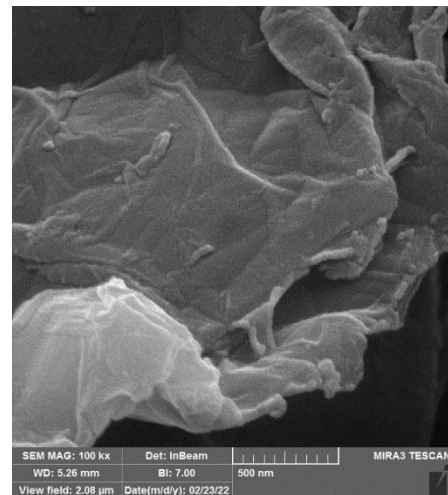
مغزه ی مورد استفاده در این تحقیق، با طول ۷٫۵ سانتی متر و قطر ۳٫۸ سانتی متر، از رخنمون آسماری^{۱۷}، واقع شده در جنوب غربی ایران به دست آمده است. جنس سنگ این مغزه، از نوع کربناته است که به طور دقیق تر، حاوی ۷۵ درصد دولومیت^{۱۸} و ۲۵ درصد کلسیت^{۱۹} است. در ضمن، مقدار تخلخل و تراوایی آن، به ترتیب، ۱۲٫۸ درصد و ۱۳ میلی داری می باشد.

۲-۲- روش ها

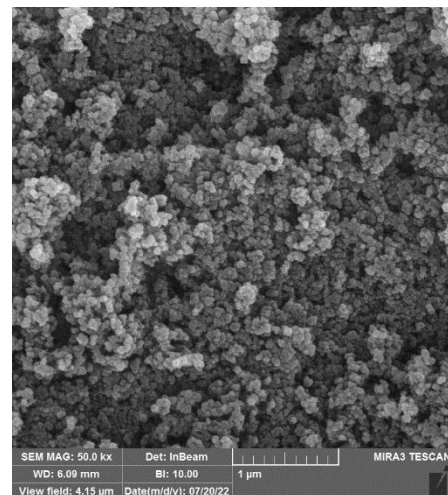
۲-۲-۱- روش سنتز پودر نانوکامپوزیت سه جزئی GO-SiO₂-TiO₂

در سنتز پودر نانوکامپوزیت سه جزئی GO-SiO₂-TiO₂، ۲ مرحله وجود داشت که در مرحله ی اول، نانوکامپوزیت GO-SiO₂، به وسیله ی هیدرولیز درجا^{۲۰} و میعان^{۲۱} تترا اتیل اورتو سیلیکات، بر روی سطوح نانوصفحات اکسید گرافن، ساخته شد [۱۳]، به اینصورت که: ابتدا مقدار ۰٫۰۷ گرم نانوصفحات اکسید گرافن، به همراه ۱۵۰ سی سی اتانول مطلق و نیز ۳۰ سی سی آب دیونیزه، به مدت ۳۵ دقیقه، توسط همزن مغناطیسی^{۲۲} همزده شدند، تا با یکدیگر مخلوط گردند، سپس جهت همگن سازی مخلوط و نیز جداسازی نانوصفحات اکسید گرافن از یکدیگر، مخلوط مذکور به مدت ۱ ساعت در دستگاه حمام فراصوت^{۲۳} قرار داده شد. سپس، با افزودن قطره چکانی محلول آمونیاک به مخلوط مذکور، pH آن در مقدار ۹ تنظیم گردید. سپس ۲ سی سی تترا اتیل اورتو سیلیکات، به عنوان منبع سیلیکا، به شکل قطره چکانی به مخلوط مذکور افزوده شد و مخلوط حاصل، دوباره در حمام فراصوت قرار گرفت، اما این بار به مدت ۴۰ دقیقه. پس از آن، مخلوط نهائی، به مدت یک روز در دمای محیط قرار داده شد تا واکنش انجام شده و سوسپانسیون GO-SiO₂ به وجود بیاید. در انتها، محتوای جامد موجود در سوسپانسیون (نانوکامپوزیت GO-SiO₂)، با استفاده از سانتریفیوژ، جداسازی شد و ۳ بار با استفاده از اتانول مطلق و پس از آن، ۱ بار با استفاده از آب دیونیزه شسته شد و برای انجام مرحله ی دوم سنتز پودر نانوکامپوزیت GO-SiO₂-TiO₂، در ۱۵ سی سی اتانول مطلق، گذاشته شد. در مرحله ی دوم سنتز پودر نانوکامپوزیت GO-SiO₂-TiO₂، از روش هیدروترمال^{۲۴} استفاده شد [۱۳]، به اینصورت که: ۳۵ سی سی آب دیونیزه به مخلوط (نانوکامپوزیت GO-SiO₂ و ۱۵ سی سی اتانول مطلق) اضافه گردید و پس از آن ۰٫۳۵ گرم نانوماده ی دی اکسید تیتانیوم آنتاز به مخلوط اضافه شد، سپس مخلوط

بالتر یا برابر ۹۹٫۹ درصد، محلول آمونیاک^{۱۳} با خلوص ۲۵ درصد و تترا اتیل اورتو سیلیکات^{۱۴} با خلوص ۹۸ درصد، همگی از شرکت مرک^{۱۵} آلمان خریداری شدند. نفت سفید^{۱۶} نیز از شرکت پالایش نفت شیراز تهیه گردید. لازم به ذکر است که در این تحقیق، از آب دیونیزه در فرایند سنتز نانوکامپوزیت، به عنوان سیال پایه در ساخت نانوسیالات با غلظت های مختلف نانوکامپوزیت و به عنوان فاز آب در آزمایشات اندازه گیری مقادیر زاویه ی تماس استفاده شد. همچنین، از نفت سفید نیز به عنوان فاز نفت در آزمایشات اندازه گیری مقادیر زاویه ی تماس استفاده گردید.



شکل ۱- تصویر FESEM نانوصفحات اکسید گرافن



شکل ۲- تصویر FESEM نانومواد دی اکسید تیتانیوم آنتاز

¹⁹ Calcite (CaCO₃)

²⁰ In-situ hydrolysis

²¹ Condensation

²² Magnetic stirrer

²³ Ultrasonic bath

²⁴ Hydrothermal method

¹³ Ammonia solution (NH₄OH)

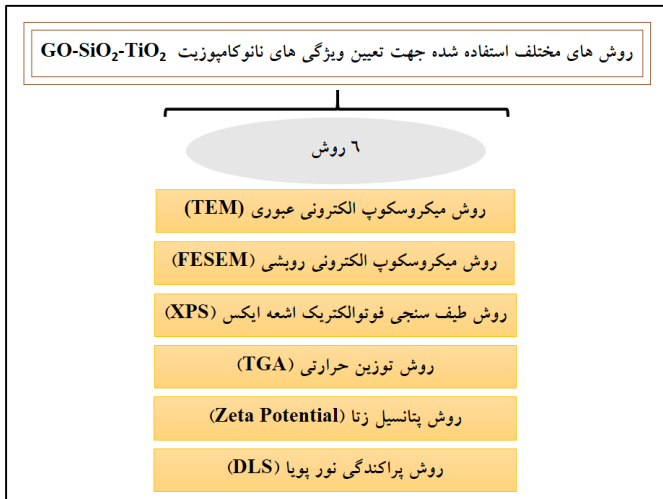
¹⁴ Tetraethyl orthosilicate (TEOS)

¹⁵ Merck Company

¹⁶ Kerosene

¹⁷ Asmari outcrop

¹⁸ Dolomite (CaMg(CO₃)₂)



شکل ۴- معرفی روش های مختلف استفاده شده جهت تعیین ویژگی های نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$

۲-۲-۳- روش تهیه ی نانوسیالات حاوی غلظت های مختلف نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$

برای این کار ابتدا به شکل مجزا، مقادیر ۰,۰۰۵، ۰,۰۲۵، ۰,۰۷۵ و ۰,۱۲۵ گرم از نانوکامپوزیت ذکر شده را به بشرهای حاوی حجم مشخصی (۵۰ سی سی) آب دیونیزه افزوده و سپس، به منظور پراکنده سازی کامل نانوکامپوزیت، از دستگاه سونیکاتور^{۲۷} تنظیم شده در توان ۷۰ درصد استفاده نموده که پس از گذشت مدت زمان ۲۰ دقیقه، نانوسیالاتی یکنواخت و پایدار و در غلظت های به ترتیب: ۱۰۰، ۵۰۰، ۱۵۰۰ و ۲۵۰۰ پی پی ام ساخته شدند.

۲-۲-۴- روش تهیه ی برش های مغزه و شستشوی آنها

ابتدا به وسیله ی دستگاه برش، از مغزه، ۵ برش با ضخامت ۳ میلی متر جدا گردید. سپس، برای شستشوی این برش ها، آنها به مدت ۳۰ دقیقه در داخل یک حمام التراسونیک قرار داده شدند. پس از شستشوی برش ها، آنها توسط یک آون خشک شدند.

۲-۲-۵- روش نفت دوست کردن برش های مغزه

از آنجاییکه برش های مغزه، پس از شستشو و خشک کردن، آب دوست شدند، بنابراین از جهت نفت دوست کردن برش های مذکور، آنها به مدت ۲۰ روز در داخل یک بشر حاوی نفت سفید که درب آن، توسط یک فویل آلومینیومی، کاملاً بسته بود و در داخل آونی با دمای تنظیم شده ی ۴۰ درجه ی سانتیگراد قرار داشت، قرار داده شدند. پس از آن، برش های نفت دوست شده

حاصل به مدت ۲ ساعت و با حداکثر سرعت همزده شد تا از لحاظ رنگ کاملاً یکنواخت گشت، سپس مخلوط همگن در داخل یک اتوکلاو^{۲۵} و اتوکلاو نیز به مدت ۵ ساعت در داخل یک آون^{۲۶} تنظیم شده در دمای ۱۳۰ درجه ی سانتیگراد قرار داده شد. در پایان، محصول نهایی (نانوکامپوزیت سه جزئی $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$) از طریق سانتریفیوژ از سوسپانسیون جدا شد و ۳ بار با اتانول مطلق و ۱ بار با آب دیونیزه شسته شد و سپس در دمای محیط خشک شد و پودر گردید (شکل ۳).



شکل ۳- پودر نانوکامپوزیت سه جزئی $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$

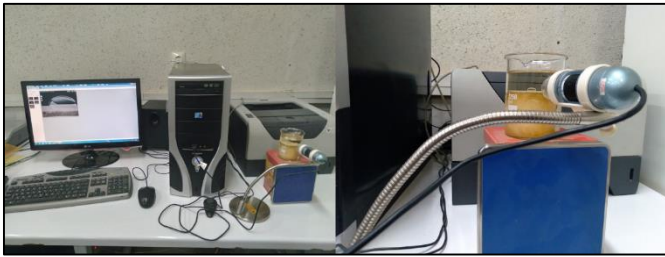
۲-۲-۲- روش های تعیین ویژگی های نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$

همانطور که در شکل ۴ مشاهده می شود، در این تحقیق، پس از سنتز نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ ، کلاً از ۶ روش مختلف برای تعیین ویژگی های نانوکامپوزیت مذکور، استفاده شد.

²⁷ Sonicator device

²⁵ Autoclave

²⁶ Oven

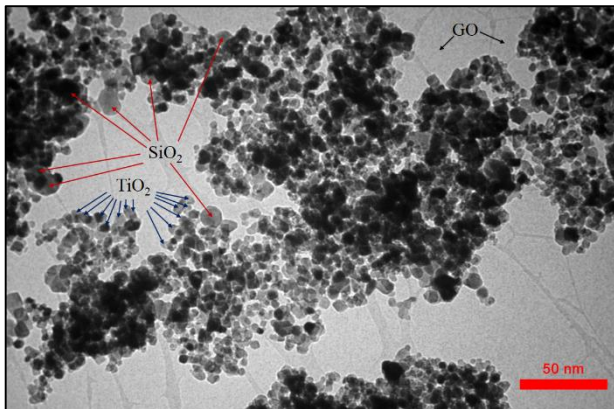


شکل ۶- شکل واقعی از اندازه گیری مقادیر زاویه ی تماس، با استفاده از روش قطره ی بی پایه

۳- نتایج و بحث

۳-۱- نتیجه ی روش میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM)^{۲۹}

تصویر TEM نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ در مقیاس ۵۰ نانومتر در شکل ۷ نشان داده شده است. بر اساس تصاویر TEM نانومواد سیلیکا، دی اکسید تیتانیوم آناتاز و اکسید گرافن موجود در مطالعات انجام شده توسط پرند و همکاران [۱۴]، گوئرو-کونتراس^{۳۰} و کابایرو-بریونس^{۳۱} [۱۵] و استنگل^{۳۲} و همکاران [۱۶]، وجود نانومواد ذکر شده در شکل ۷ کاملاً مشخص می باشد.



شکل ۷- تصویر TEM در مقیاس ۵۰ نانومتر از نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$

۳-۲- نتیجه ی روش میکروسکوپ الکترونی روبشی (FESEM)^{۳۳}

همانطور که در شکل های ۸ الف و ب که به ترتیب به تصاویر FESEM در مقیاس های ۱۰ میکرومتر و ۲ میکرومتر نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ TiO2 تعلق دارند، مشاهده می شود، نانومواد سیلیکا و دی اکسید تیتانیوم

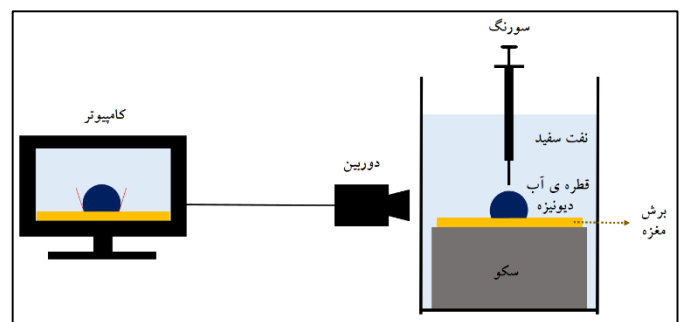
را از بشر حاوی نفت سفید خارج کرده، خشک نموده و با انتخاب یکی از آنها، زاویه ی تماس حالت مرجع (حالت نفت دوست) اندازه گیری شد.

۲-۲-۶- روش ایجاد تغییر در ترشوندگی برش های مغزه، با استفاده از غلظت های مختلف نانوسیالات $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$

برای این کار، ۴ برش باقیمانده، به صورت جداگانه، به مدت ۵ روز، در بشرهای حاوی غلظت های مختلف: ۱۰۰، ۵۰۰، ۱۵۰۰ و ۲۵۰۰ پی پی ام نانوسیالات $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ و در دمای محیط قرار داده شدند. پس از گذشت این مدت زمان، برش های مذکور از بشرها خارج شده و بعد از خشک شدن، زاویه ی تماس آنها اندازه گیری شد.

۲-۲-۷- روش اندازه گیری مقادیر زاویه ی تماس

برای این منظور، از روش قطره ی بی پایه^{۲۸} استفاده شد. در این روش، همانطور که در شکل های ۵ و ۶ که به ترتیب، شکل های شماتیکی و واقعی هستند، مشاهده می شود، پس از قرار دادن یک سکو در داخل یک بشر، برشی از مغزه ی کربناته بر روی سکو قرار داده می شود و بشر از نفت سفید پر می گردد. سپس، توسط یک سوزن، یک قطره ی آب دیونیزه بر روی برش مغزه ی کربناته قرار داده می شود. بعد از آن، توسط یک دوربین از قطره ی آب روی برش، عکس برداری می شود و عکس مذکور به کامپیوتر منتقل می گردد. سپس، از طریق نرم افزار Digimizer، زاویه ی تماس دو طرف قطره محاسبه شده و در نهایت، مقدار میانگین آن به دست آمده و گزارش می شود.



شکل ۵- شکل شماتیکی از اندازه گیری مقادیر زاویه ی تماس، با استفاده از روش قطره ی بی پایه

³² Štengl

³³ Field Emission Scanning Electron Microscopy (FESEM)

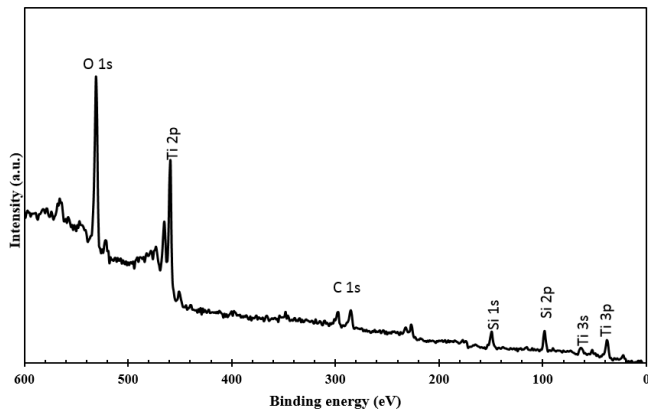
²⁸ Sessile drop method

²⁹ Transmission Electron Microscopy (TEM)

³⁰ Guerrero-Contreras

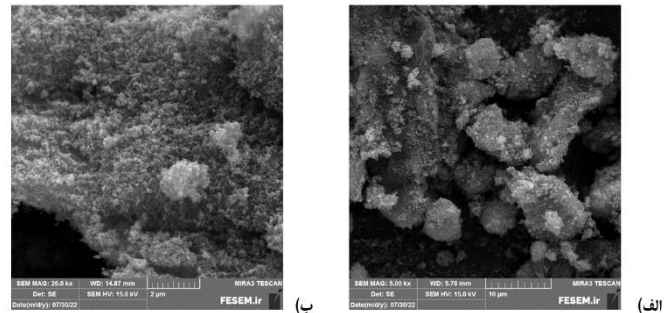
³¹ Caballero-Briones

در 98.53 eV نیز اثبات کننده ی وجود نانوذرات سیلیکا بوده و وجود پیوند Si-C در 100.67 eV اثبات کننده پیوند کوالانسی بین نانوذرات سیلیکا و نانوصفات اکسید گرافن عامل دار شده است. به علاوه، لازم به ذکر است که پیک Ti 2p به دو پیک در موقعیت های 459.04 eV و 464.69 eV تفکیک شده است که به ترتیب مربوط به ظرفیت دوگانه Ti^{2+} و $\text{Ti}^{2+} 2p_{3/2}$ است که وجود نانوذرات دی اکسید تیتانیوم به صورت TiO_2 را تایید می نماید.



شکل ۹- طیف گسترده ی XPS مربوط به نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$

آناناز، به صورت کاملاً منظم و یکنواخت، بر روی سطوح نانوصفات اکسید گرافن قرار گرفته و سطح آنها را کاملاً پوشانده اند.

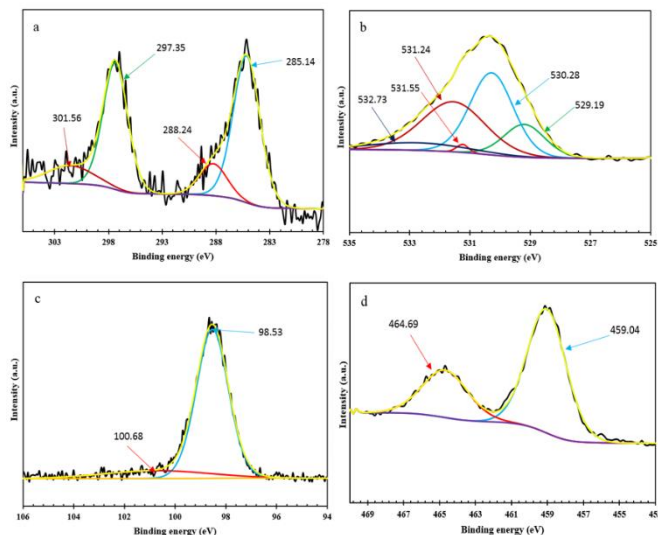


شکل ۸- تصاویر FESEM در مقیاس های: الف) $10 \mu\text{m}$ میکرومتر و ب) $2 \mu\text{m}$ میکرومتر نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$

۳-۳- نتایج روش طیف سنجی فوتوالکتریک اشعه ی ایکس (XPS)

در این تحقیق، به منظور تعیین عناصر و پیوندهای موجود در سطح نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ و نیز تعیین درصد اتمی آنها، از روش طیف سنجی فوتوالکتریک اشعه ایکس (XPS) استفاده شده است. طیف گسترده ی XPS مربوط به این نانوکامپوزیت، در شکل ۹ نشان داده شده است. مطابق شکل ۹، وجود پیک های $\text{O } 1s$ ، $\text{C } 1s$ ، $\text{Ti } 2p$ و $\text{Si } 2p$ ، موید حضور عناصر کربن، اکسیژن، سیلیکون و تیتانیوم در سطح نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ است. در ضمن، با استفاده از نرم افزار CasaXPS، درصد اتمی هر یک از عناصر کربن، اکسیژن، سیلیکون و تیتانیوم به ترتیب برابر با 5.33% ، 57.23% ، 6.88% درصد و 30.56% درصد تعیین گردید. همچنین، در شکل ۱۰، طیف های با رزولوشن بالا مربوط به پیک های $\text{C } 1s$ ، $\text{O } 1s$ ، $\text{Si } 2p$ و $\text{Ti } 2p$ برای نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ به صورت دیکانولوت شده نشان داده شده است. علاوه بر این، مقادیر درصد اتمی هر یک از پیوندهای موجود در سطح نانوکامپوزیت مذکور نیز در جدول ۱ آورده شده است.

مطابق جدول ۱ و شکل ۱۰، پیک $\text{C } 1s$ به چهار پیک در موقعیت های 285.14 ، 288.24 ، 297.35 و 301.56 eV تجزیه شده است که به ترتیب مربوط به پیوندهای C-C و C=C در حلقه های آروماتیکی موجود در ساختار اکسید گرافن و پیوند C-O در ساختار اکسید گرافن، پیوند C-Si ، پیوند بین نانوذرات سیلیکا و نانوصفات اکسید گرافن و پیوند C=O در ساختار اکسید گرافن است [۱۷، ۱۸]. همچنین، پیک $\text{O } 1s$ به پنج پیک در موقعیت های 529.19 ، 530.28 ، 531.55 ، 532.73 و 531.24 eV تجزیه شده است که به ترتیب مربوط به اکسیژن مربوط به آب جذب شده و پیوندهای Ti-O-Ti ، Si-O ، C=O و C-O موجود در ساختار، به ترتیب، اکسید تیتانیوم، اکسید گرافن، سیلیکا و اکسید گرافن است [۱۹]. در ضمن، وجود پیوند Si-O-Si



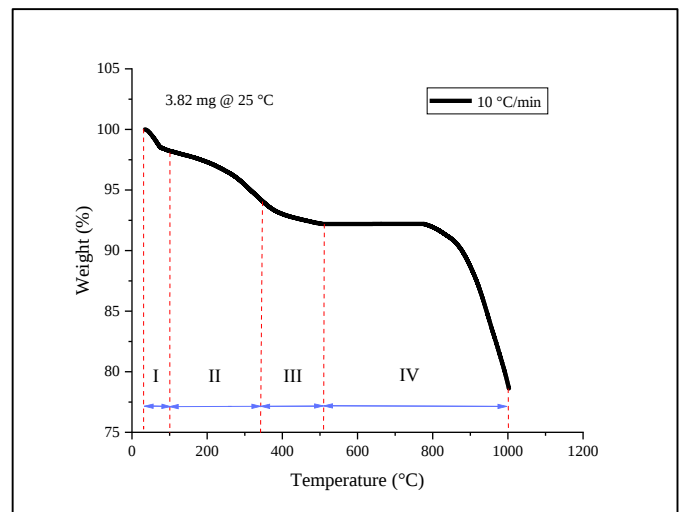
شکل ۱۰- طیف های XPS با رزولوشن بالا مربوط به پیک های (a) $\text{C } 1s$ ، (b) $\text{O } 1s$ ، (c) $\text{Si } 2p$ و (d) $\text{Ti } 2p$ ، به صورت دیکانولوت شده، برای نانوکامپوزیت $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$

جدول ۱- مقادیر درصد اتمی هر یک از پیوندهای موجود در سطح نانوکامپوزیت $GO-SiO_2-TiO_2$ ، استخراج شده از روش XPS

پیک	پیوندها	موقعیت پیک (eV)	ناحیه ی پیک (CPS.eV)	درصد اتمی (%)
C 1s	C-C/C=C	285.14	6278.1	44.79
	C-O	288.24	1408	10.05
	C-Si	297.35	5003.6	35.70
	C=O	301.56	1327.0	9.47
O 1s	انواع O جذب شده	529.19	9055.2	15.19
	Ti-O-Ti	530.28	23693.2	39.73
	C=O	531.24	648.7	1.09
	Si-O	531.55	21245.1	35.63
	C-O	532.73	4986.9	8.36
Si 2p	Si-O-Si	98.53	1286.0	84.31
	Si-C	100.67	239.2	15.69
Ti 2p	$Ti^{2+} 2p_{3/2}$	459.04	38881.5	68.94
	$Ti^{2+} 2p_{1/2}$	464.69	17513.7	31.06

۳-۴- نتایج روش توزین حرارتی (TGA)

در این تحقیق، ۳٫۸۲ میلی گرم از نانوکامپوزیت $GO-SiO_2-TiO_2$ جهت بررسی میزان پایداری حرارتی، تحت روش TGA، در محدوده ی دمایی ۲۵ تا ۱۰۰۰ درجه ی سانتیگراد و با شرایط اتمسفر آرگون و نرخ گرمایش ۱۰ °C/min قرار گرفت. نمودار روش TGA مذکور، در شکل ۱۱ مشاهده می شود.



شکل ۱۱- نمودار روش TGA مربوط به ۳٫۸۲ میلی گرم از نانوکامپوزیت $GO-SiO_2-TiO_2$ ، در محدوده ی دمایی ۲۵ تا ۱۰۰۰ درجه ی سانتیگراد

مطابق شکل ۱۱، مرحله کاهش وزن، در مقدار اولیه ی نانوکامپوزیت $GO-SiO_2-TiO_2$ ، در محدوده ی دمایی ۲۵ تا ۱۰۰۰ درجه ی سانتیگراد اتفاق افتاده است. در مورد کاهش وزن نانوکامپوزیت مذکور، به ترتیب و به طور مختصر می توان گفت که مقدار کمی از آن، ناشی از تبخیر آب جذب سطح شده و مابقی آن، نیز ناشی از تجزیه ی حرارتی اکسید گرافن موجود در ساختار این نانوکامپوزیت است که در مقایسه با نانوذرات سیلیکا و اکسید تیتانیوم که

پایداری حرارتی بالایی دارند، پایداری حرارتی پایینی دارد [۲۴-۲۰]. اما، به طور دقیق تر می توان گفت که مرحله ی I کاهش وزن نانوکامپوزیت، در محدوده ی دمایی ۲۵ تا ۱۰۰ درجه ی سانتیگراد رخ داده است که ناشی از تبخیر آب جذب شده بر سطح نانوکامپوزیت می باشد [۲۵]. لازم به ذکر است که میزان کاهش وزن نانوکامپوزیت در این مرحله، ۱٫۷۷ درصد وزنی که معادل ۰٫۰۶۷ میلی گرم است، می باشد. در مرحله ی II و در محدوده ی دمایی ۱۰۰ تا ۳۴۷ درجه ی سانتیگراد، کاهش وزن دیگری در مقدار اولیه ی نانوکامپوزیت رخ داده است که ناشی از تجزیه ی گروه های عاملی اکسیژن دار ناپایدار موجود بر روی سطوح نانوصفحات اکسید گرافن موجود در نانوکامپوزیت می باشد [۲۴-۲۶]. باید خاطر نشان کرد که میزان کاهش وزن نانوکامپوزیت در این مرحله، ۴٫۱۵ درصد وزنی که معادل ۰٫۱۵۸ میلی گرم است، می باشد. در مرحله ی III و در محدوده ی دمایی ۳۴۷ تا ۵۰۸ درجه ی سانتیگراد، ۱٫۸۹ درصد وزنی از مقدار اولیه ی نانوکامپوزیت که معادل ۰٫۰۷۲ میلی گرم است، کاهش یافت که ناشی از تجزیه ی گروه های عاملی اکسیژن دار نسبتا پایدار می باشد [۲۴-۲۶].

در مرحله ی IV (پایانی) و در محدوده ی دمایی ۵۰۸ تا ۱۰۰۰ درجه ی سانتیگراد، میزان کاهش وزن نانوکامپوزیت، ۱۳٫۵۷ درصد وزنی که معادل ۰٫۵۱۸ میلی گرم است، می باشد که ناشی از پیرولیز^{۳۶} اسکلت کربنی^{۳۷} موجود در ساختار نانوصفحات اکسید گرافن موجود در نانوکامپوزیت است [۲۶، ۲۷]. درضمن، باید خاطر نشان کرد که میزان ۷۸٫۶۲ درصد وزنی از نانوکامپوزیت نیز، پس از تحمل دمای ۱۰۰۰ درجه ی سانتیگراد باقی مانده است. مطابق پژوهش احمد و همکاران [۲۸]، مقدار باقی مانده از اکسید گرافن در دمای ۱۰۰۰ درجه ی سانتیگراد، کمتر از ۲۰ درصد وزنی بوده است که این نشان می دهد که حضور نانوذرات سیلیکا و دی اکسید تیتانیوم آناناز، در این تحقیق، پایداری حرارتی اکسید گرافن را تا نزدیک به ۴ برابر افزایش داده است. همچنین پژوهش سیماری^{۳۸} و همکاران [۲۹] بیانگر آن بود که مقدار باقی مانده از اکسید گرافن عامل دار شده توسط دی اکسید تیتانیوم، در دمای ۱۰۰۰ درجه ی سانتیگراد، حدود ۶۰ درصد وزنی بوده است که این مورد نیز نشان می دهد، حضور سیلیکا در کنار نانوذرات دی اکسید تیتانیوم، در تحقیق حاضر، پایداری حرارتی اکسید گرافن را در نانوکامپوزیت $GO-SiO_2-TiO_2$ ، نسبت به نانوکامپوزیت $GO-TiO_2$ ، افزایش داده است.

³⁷ Carbon skeleton

³⁸ Simari

³⁵ Thermogravimetric Analysis (TGA)

³⁶ Pyrolysis

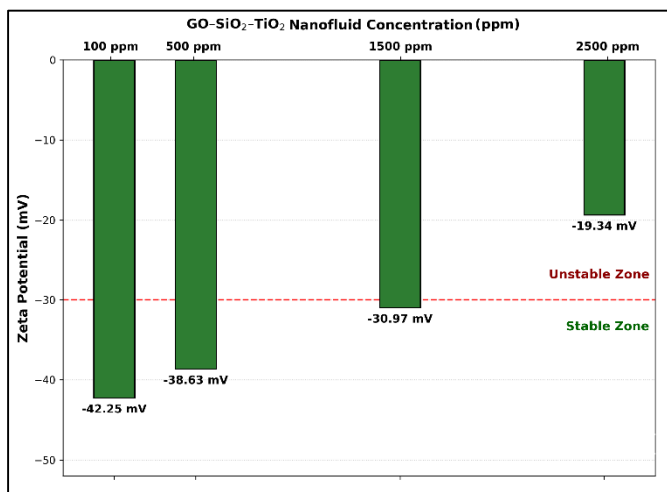
۳-۵ نتایج روش های پتانسیل زتا (Zeta Potential) و پراکندگی نور پویا (DLS)^{۴۰}

هدف از انجام روش پتانسیل زتا، در واقع ارزیابی میزان پایداری غلظت های مختلف نانوسیالات $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ می باشد. برای این منظور، ابتدا نانوسیالات $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ در ۴ غلظت مختلف: ۱۰۰، ۵۰۰، ۱۵۰۰ و ۲۵۰۰ پی پی ام ساخته شدند، سپس، همانطور که در شکل ۱۲ مشاهده می شود، مقادیر پتانسیل زتای متناظر با غلظت های مذکور، به ترتیب $-۴۲,۲۵$ ، $-۳۸,۶۳$ ، $-۳۰,۹۷$ و $-۱۹,۳۴$ میلی ولت اندازه گیری شدند. همانطور که می دانیم، از آنجاییکه مقادیر پتانسیل زتای قرار گرفته در بازه ی کمتر از -۳۰ میلی ولت پایدار محسوب می شوند و هرچه مقادیر پتانسیل زتا کمتر از مقدار مذکور باشند، میزان این پایداری بیشتر است [۳۰]، بنابراین همانطور که در شکل ۱۲ مشاهده می شود، غلظت های ۱۰۰، ۵۰۰ و ۱۵۰۰ پی پی ام نانوسیال، با داشتن مقادیر پتانسیل زتای به ترتیب $-۴۲,۲۵$ ، $-۳۸,۶۳$ و $-۳۰,۹۷$ میلی ولت، پایدار می باشند که در این میان غلظت ۱۰۰ پی پی ام نانوسیال، با دارا بودن کمترین مقدار پتانسیل زتا ($-۴۲,۲۵$ میلی ولت) از سایر غلظت ها پایدارتر می باشد.

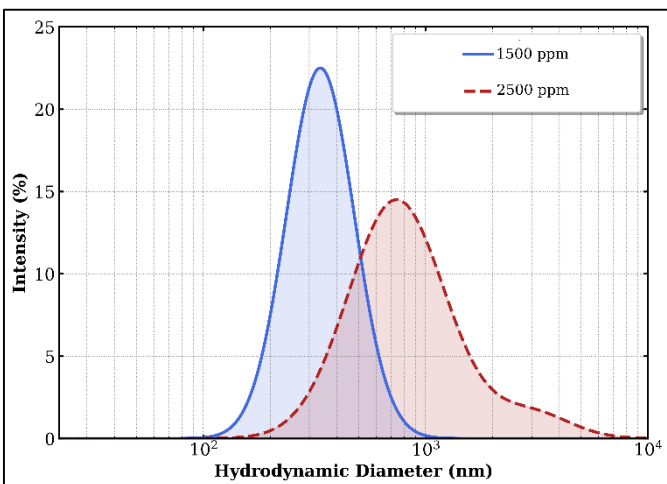
لازم به ذکر است، بر اساس آنچه که گفته شد، از آنجاییکه غلظت های ۱۰۰، ۵۰۰ و ۱۵۰۰ پی پی ام نانوسیالات، دارای مقادیر پتانسیل زتای کمتر از -۳۰ میلی ولت (مقادیر پایدار) هستند، بنابراین دافعه ی الکترواستاتیکی قوی ای بین نانوکامپوزیت ها در این غلظت های نانوسیالات برقرار می باشد که این امر سبب پایداری کلئیدی بالای نانوسیالات مذکور می شود. همچنین همانطور که در شکل ۱۲ مشاهده می شود، غلظت ۲۵۰۰ پی پی ام نانوسیال، با مقدار پتانسیل زتای $-۱۹,۳۴$ میلی ولت که در بازه ی ۰ تا -۳۰ میلی ولت (بازه ی ناپایدار) قرار گرفته است، تنها غلظت ناپایدار نانوسیال می باشد. شایان ذکر است که در غلظت ۲۵۰۰ پی پی ام نانوسیال، به دلیل قرار گرفتن مقدار پتانسیل زتای این غلظت در بازه ی ناپایدار، دافعه ی الکترواستاتیکی ضعیفی بین نانوکامپوزیت ها در نانوسیال برقرار می باشد که این امر سبب چسبیدن و تجمع نانوکامپوزیت ها شده که در پی آن، نانوکامپوزیت ها ته نشست کرده و نانوسیال ناپایدار می شود.

در ادامه، به منظور اینکه این قضیه به طور دقیق تایید و اثبات شود، روش پراکندگی نور پویا (DLS)، نه تنها بر روی غلظت ۲۵۰۰ پی پی ام نانوسیال، بلکه بر روی غلظت ماقبل آن (۱۵۰۰ پی پی ام نانوسیال) نیز اجرا شد (شکل ۱۳). همانطور که در شکل ۱۳ مشاهده می شود، نمودار غلظت ۱۵۰۰ پی پی ام نانوسیال، ارتفاع بیشتر و پهنای کمتری دارد که این امر نشان دهنده ی توزیع یکنواخت تر و با اندازه ی کوچک تر نانوکامپوزیت ها است که پایداری نانوسیال را در غلظت مذکور تایید می کند. اما، در نمودار غلظت ۲۵۰۰ پی پی ام نانوسیال، از آنجاییکه ارتفاع نمودار کمتر، پهنای آن بیشتر و نیز شیفیت پیدا کرده به سمت راست است، این امر بیانگر توزیع غیریکنواخت تر و با اندازه ی

بزرگ تر نانوکامپوزیت هاست که در نتیجه ی چسبیدن و تجمع نانوکامپوزیت ها رخ داده و ناپایداری نانوسیال را در غلظت مذکور اثبات می کند.



شکل ۱۲- نمودار پتانسیل زتای غلظت های مختلف نانوسیالات $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$



شکل ۱۳- نمودار پراکندگی نور پویا (DLS) نانوسیال $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ در غلظت های ۱۵۰۰ و ۲۵۰۰ پی پی ام

۳-۶ نتایج آزمایشات اندازه گیری مقادیر زاویه ی تماس

در حقیقت این پژوهش بر اساس بررسی آزمایشگاهی دو فرضیه که در جدول ۲ به آنها اشاره شده است، شکل گرفت که برای بررسی آزمایشگاهی این فرضیات نیز نیاز به انجام آزمایشات اندازه گیری مقادیر زاویه ی تماس در دو حالت: مرجع و غلظت های مختلف نانوسیال $\text{GO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ بود. بر همین اساس، پس از انجام این آزمایشات با سه تکرار در هر مورد، همانطور که در غلظت ۰ پی پی ام جدول ۳ و شکل ۱۴ که از همین جدول به دست آمده است، مشاهده می شود، زاویه ی تماس حالت مرجع (نفت دوست) و یا همان زاویه ی تماسی که قطره ی آب دیونیزه، در محیط نفت سفید، با برشی

⁴⁰ Dynamic Light Scattering (DLS)

³⁹ Zeta Potential

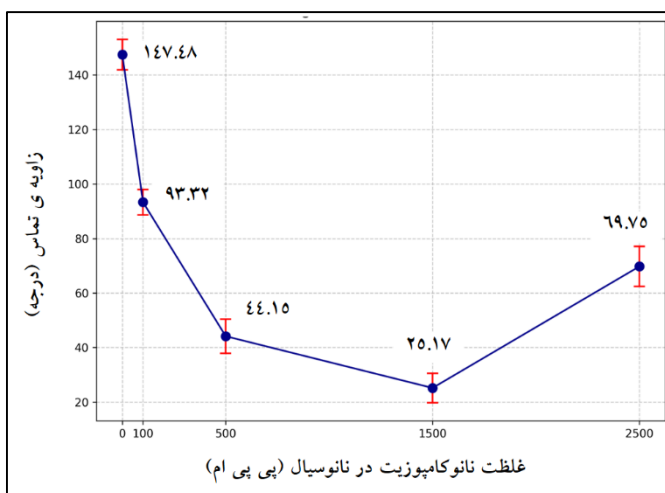
جدول ۳- مقادیر زاویه ی تماس غلظت های مختلف نانوسیال
GO-SiO₂-TiO₂ (مقادیر سه تکرار و مقادیر میانگین همراه با انحراف
معیار)

غلظت های مختلف نانوسی ال GO- SiO ₂ - TiO ₂ (پی پی ام)	تکرار ۱ زاویه ی تماس (درجه)	تکرار ۲ زاویه ی تماس (درجه)	تکرار ۳ زاویه ی تماس (درجه)	میانگین زاویه ی تماس (درجه) ± انحراف معیار
۰	۱۴۱٫۷	۱۴۷٫۸	۱۵۲٫۸	۱۴۷٫۴۸ ± ۵٫۵ ۷
۱۰۰	۸۸٫۶۹	۹۳٫۳۴	۹۷٫۹۲	۹۳٫۳۲ ± ۴٫۶۲
۵۰۰	۳۷٫۹۱	۴۴٫۰۹	۵۰٫۴۴	۴۴٫۱۵ ± ۶٫۲۷
۱۵۰۰	۱۹٫۸۷	۲۴٫۹۶	۳۰٫۶۸	۲۵٫۱۷ ± ۵٫۴۱
۲۵۰۰	۶۲٫۴۵	۶۹٫۶۳	۷۷٫۱۶	۶۹٫۷۵ ± ۷٫۳۶

که در نانوسیال قرار نگرفته، ساخته بود، ۱۴۷٫۴۸ درجه اندازه گیری شد. همچنین، همانطور که در سایر غلظت های جدول ۳ و شکل ۱۴ مشاهده می شود، زاویه های تماسی که قطرات آب دیونیزه، در محیط های نفت سفید، با برش هایی که قبلا در غلظت های: ۱۰۰، ۵۰۰، ۱۵۰۰ و ۲۵۰۰ پی پی ام نانوسیال GO-SiO₂-TiO₂ قرار داده شده، ساخته بودند، به ترتیب: ۹۳٫۳۲، ۴۴٫۱۵، ۲۵٫۱۷ و ۶۹٫۷۵ درجه اندازه گیری شدند. از مقایسه ی مقادیر زاویه ی تماس در دو حالت: مرجع و غلظت های مختلف نانوسیال GO-SiO₂-TiO₂، می توان نتیجه گرفت که در پی استفاده از غلظت های مختلف نانوسیال، مقادیر زاویه ی تماس از حالت مرجع کاهش می یابند که این امر تایید کننده ی فرضیه ی شماره ۱ می باشد. درضمن، بر اساس مقادیر زاویه ی تماس مذکور می توان نتیجه گرفت، از آنجاییکه در غلظت ۱۵۰۰ پی پی ام نانوسیال GO-SiO₂-TiO₂، زاویه ی تماس از مقدار مرجع ۱۴۷٫۴۸ درجه، به کمترین مقدار (۲۵٫۱۷ درجه) می رسد، بنابراین این غلظت، غلظت بهینه ی نانوسیال برای ایجاد کمترین مقدار زاویه ی تماس می باشد. باید خاطر نشان کرد، به علت اینکه در غلظت بهینه ی نانوسیال، میزان کاهش مقدار زاویه ی تماس از مقدار مرجع آن، قابل توجه و چشمگیر می باشد، بنابراین فرضیه ی ۲ نیز تایید می گردد.

جدول ۲- فرضیه های موجود در این پژوهش

شماره	فرضیه
۱	استفاده از غلظت های مختلف نانوسیالات GO-SiO ₂ -TiO ₂ ، سبب کاهش مقادیر زاویه ی تماس از مقدار مرجع آن می شود.
۲	میزان کاهش مقدار زاویه ی تماس از مقدار مرجع آن، هنگام استفاده از غلظت بهینه ی نانوسیال GO-SiO ₂ -TiO ₂ ، قابل توجه و چشمگیر می باشد.



شکل ۱۴- نمودار تغییرات زاویه ی تماس، بر اساس غلظت های مختلف نانوسیال

شایان ذکر است که در این پژوهش، در ارتباط با روند تغییرات به وجود آمده در مقادیر زاویه ی تماس، در پی افزایش غلظت نانوسیال GO-SiO₂-TiO₂، از بررسی نتایج ذکر شده می توان دریافت که دو روند کاملاً متفاوت وجود دارد که عبارتند از:

الف- افزایش غلظت نانوسیال تا غلظت بهینه که سبب کاهش زاویه ی تماس می شود: علت این امر آن است که در پی افزایش غلظت نانوسیال از ۱۰۰ پی پی ام تا ۱۵۰۰ پی پی ام (غلظت بهینه) که در این بازه نانوسیال پایدار می

جدول ۴- پژوهش های مشابه انجام شده درباره ی تاثیر استفاده از نانوسیالات مختلف، بر روی کاهش زاویه ی تماس در مخازن کربناته

مرجع	تاثیر نانوکامپوزیت			سیال پایه			زاویه ی تماس (درجه)	توضیحات
	نوع	غلظت	جنس برش سنگ مخزن استفاده شده در آزمایش اندازه گیری زاویه ی تماس	آب	از (حالت مرجع)	به (حالت نهایی)		
زورگر و همکاران [۲۵]	TiO ₂ -Quartz	۱۰۰۰	کربناته	آب مقطر	۱۰۳	۴۸	۵۳,۳۹۸	زاویه ی تماس حالت مرجع با استفاده از قطره ی آب مقطر و در دمای ۳۰ درجه ی سانتیگراد اندازه گیری شد. زاویه ی تماس حالت نهایی نیز با استفاده از نانوسیال ساخته شده بر پایه ی آب مقطر و در دمای ۷۰ درجه ی سانتیگراد اندازه گیری شد.
خاکسار و همکاران [۳۶]	ZnO- SiO ₂ -Bentonite	۲۰۰۰	کربناته	آب مقطر	۱۳۳,۹	۱۱۳	۱۵,۶۰۸	زاویه ی تماس حالت مرجع با استفاده از قطره ی آب مقطر و در دمای ۳۰ درجه ی سانتیگراد اندازه گیری شد. زاویه ی تماس حالت نهایی نیز با استفاده از نانوسیال ساخته شده بر پایه ی آب مقطر و در همان دمای ۲۰ درجه ی سانتیگراد اندازه گیری شد.
احمدی و همکاران [۲۷]	γ-Al ₂ O ₃ -ZnO-Urea	۱۲۰	کربناته	آب مقطر	۱۳۰,۱۲	۴۶,۰۱	۶۴,۶۴	زاویه ی تماس حالت مرجع با استفاده از قطره ی آب مقطر و در دمای محیط اندازه گیری شد. زاویه ی تماس حالت نهایی نیز با استفاده از نانوسیال ساخته شده بر پایه ی آب مقطر و مجدداً در دمای محیط اندازه گیری شد.
میرزائودی و همکاران [۳۵]	SiO ₂ -GQDs	۱۰۰۰	کربناته	آب مقطر	۱۲۴	۶۱	۵۴,۴۷۷	زاویه ی تماس حالت مرجع با استفاده از قطره ی آب مقطر و در دمای ۷۰ درجه ی سانتیگراد اندازه گیری شد. زاویه ی تماس حالت نهایی نیز با استفاده از نانوسیال ساخته شده بر پایه ی آب مقطر و در همان دمای ۷۰ درجه ی سانتیگراد اندازه گیری شد.
کاظم زاده و همکاران [۳۹]	TiO ₂ -SiO ₂	۵۰۰	کربناته	آب دریا	۱۰۳	۳۷	۶۴,۰۷۷	زاویه ی تماس حالت مرجع با استفاده از قطره ی آب دریا با میزان شوری ۲,۶۱۱۶ درصد و در دمای محیط اندازه گیری شد. زاویه ی تماس حالت نهایی نیز با استفاده از نانوسیال ساخته شده بر پایه ی آب دریا و با همان میزان شوری و مجدداً در دمای محیط اندازه گیری شد.
ارشادی و همکاران [۱۰-]	MWCNT-SiO ₂	۲۰۰۰	کربناته	آب مقطر	۹۸,۱۹	۳۹,۵۲۷	۵۹,۷۴۴	زاویه ی تماس حالت مرجع با استفاده از قطره ی آب مقطر و در دمای محیط اندازه گیری شد. زاویه ی تماس حالت نهایی نیز با استفاده از نانوسیال ساخته شده بر پایه ی آب مقطر و مجدداً در دمای محیط اندازه گیری شد.
نظر آهاری و همکاران [۱۱]	CeO ₂ -SiO ₂	۵۰۰	کربناته	آب مقطر	۱۲۹	۵۳	۶۱,۸۷	زاویه ی تماس حالت مرجع با استفاده از قطره ی آب مقطر و در دمای محیط اندازه گیری شد. زاویه ی تماس حالت نهایی نیز با استفاده از نانوسیال ساخته شده بر پایه ی آب مقطر و مجدداً در دمای محیط اندازه گیری شد.
حسن و همکاران [۴۱]	ZnO-Fe ₂ O ₃ -SiO ₂	۵۰۰	کربناته	آب شور	۱۴۱	۷۲	۴۸,۹۳۶	زاویه ی تماس حالت مرجع با استفاده از قطره ی آب شور با میزان شوری ۳ درصد و در دمای محیط اندازه گیری شد. زاویه ی تماس حالت نهایی نیز با استفاده از نانوسیال ساخته شده بر پایه ی آب شور و با همان میزان شوری و در دمای ۷۰ درجه ی سانتیگراد اندازه گیری شد.

۴- نتیجه گیری

طی این پژوهش، پس از اینکه سنتز نانوکامپوزیت GO-SiO₂-TiO₂ انجام شد، با استفاده از ۶ روش: TEM، FESEM، XPS، TGA، Zeta Potential و DLS، اطلاعاتی از نانوکامپوزیت ذکر شده و نیز میزان پایداری حرارتی آن به دست آمد. بر اساس مجموع نتایج حاصل از روش های TEM، FESEM و XPS، علاوه بر اینکه حضور ۴ عنصر: کربن با درصد اتمی ۵,۳۳، اکسیژن با درصد اتمی ۵۷,۲۳، سیلیکون با درصد اتمی ۶,۸۸ درصد و تیتانیوم با درصد اتمی ۳۰,۵۶ درصد و به طور کلی تر، حضور ۳ نانوماده ی: سیلیکا، دی اکسید تیتانیوم آناتاز و اکسید گرافن در نانوکامپوزیت تایید شد، قرارگیری کاملاً منظم و یکنواخت نانومواد سیلیکا و دی اکسید تیتانیوم آناتاز بر روی نانوصفحات اکسید گرافن در نانوکامپوزیت نیز مشخص شد. همچنین، با توجه به نتایج حاصل از روش TGA که در آن

باشد (شکل ۱۲)، به طور پیوسته مقدار بیشتری از نانوکامپوزیت ها در اثر نیروهای واندروالسی^{۴۱} و الکترواستاتیکی^{۴۲} جذب سطح برش کربناته شده و به تدریج، باعث تشکیل یک لایه ی منظم و همگن از نانوکامپوزیت ها بر سطح برش می شوند که در نتیجه ی آن، فشار انفصال ساختاری^{۴۳} به طور پیوسته بیشتر شده و در مقایسه ی با نیروی چسبندگی^{۴۴} نفت سفید بر سطح برش، به طور پیوسته برتری می یابد [۳۱، ۳۲]. این امر سبب افزایش پیوسته ی جدایش نفت سفید از سطح برش و در نتیجه، کاهش پیوسته ی زاویه ی تماس و افزایش بیشتر و پیوسته ی آب دوستی برش کربناته می شود، لازم به ذکر است که تمامی این موارد ذکر شده، در غلظت ۱۵۰۰ پی پی ام (غلظت بهینه) نانوسیال، به بیشترین مقدار خود می رسند.

ب- افزایش غلظت نانوسیال، بیشتر از غلظت بهینه که سبب افزایش زاویه ی تماس می شود: علت این امر آن است که در غلظت بیشتر از غلظت بهینه، یعنی به عبارت بهتر، در غلظت ۲۵۰۰ پی پی ام، نانوسیال ناپایدار می شود (شکل های ۱۲ و ۱۳) و نانوکامپوزیت ها به جای تشکیل آرایش منظم، به صورت نامنظم و چسبیده به هم (تجمعی)^{۴۵} درآمده (شکل ۱۳) و سطح برش را می پوشانند. این ناهمگنی سطحی، موجب اختلال در یکنواختی فشار انفصال ساختاری شده و به کاهش آن منجر می شود [۳۳]. در نتیجه، فشار انفصال ساختاری دیگر قادر به غلبه ی بر نیروی چسبندگی نفت سفید بر سطح برش نیست و در نهایت، زاویه ی تماس افزایش می یابد و ترشوندگی برش به سمت نفت دوستی باز می گردد [۳۴].

درضمن، باید خاطر نشان کرد که از مقایسه ی نتیجه ی حاصل از استفاده از غلظت بهینه (۱۵۰۰ پی پی ام) نانوسیال GO-SiO₂-TiO₂، جهت کاهش زاویه ی تماس در این پژوهش که سبب کاهش زاویه ی تماس از ۱۴۷,۴۸ درجه به ۲۵,۱۷ درجه شد، با نتایج حاصل از پژوهش های مشابه که در جدول ۴ آورده شده اند، می توان نتیجه گرفت که استفاده از غلظت ۱۵۰۰ پی پی ام نانوسیال GO-SiO₂-TiO₂، تاثیر بسیار بیشتر و قویتری بر روی کاهش زاویه ی تماس در مقایسه با نانوسیالات مختلف استفاده شده در تحقیقات مذکور، می گذارد و سبب ایجاد آب دوستی بسیار بیشتری در سنگ مخزن های کربناته می شود. البته باید به این نکته توجه داشت که برخلاف برخی از پژوهش های موجود در جدول ۴، آزمایش های انجام شده در این پژوهش، در شرایط آزمایشگاهی کنترل شده (دمای محیط و استفاده از آب دیونیزه (میزان شوری ۰ درصد)) انجام شده اند. با توجه به اینکه هدف از این مطالعه بررسی اولیه ی رفتار نانوسیالات در شرایط پایدار بود، این شرایط با محیط های پیچیده ی مخزنی (که دارای دماهای بالا و شوری هستند) تفاوت دارد. بنابراین، نتایج فعلی به عنوان یک پایه ی مطالعاتی در نظر گرفته می شود.

⁴⁴ Adhesive force

⁴⁵ Aggregated

⁴¹ Van der Waals

⁴² Electrostatic

⁴³ Structural disjoining pressure

<https://doi.org/10.1016/j.fuel.2021.121516>.

[3] Chilingar GV, Yen TF. Some notes on wettability and relative permeabilities of carbonate reservoir rocks, II. Energy Sources. 1983;7(1):67-75.

<https://doi.org/10.1080/00908318308908076>.

[4] Sari A, Chen Y, Xie Q, Saeedi A. Low salinity water flooding in high acidic oil reservoirs: Impact of pH on wettability of carbonate reservoirs. Journal of Molecular Liquids. 2019;281:444-450.

<https://doi.org/10.1016/j.molliq.2019.02.081>.

[5] Tan Y, Li Q, Xu L, Ghaffar A, Zhou X, Li P. A critical review of carbon dioxide enhanced oil recovery in carbonate reservoirs. Fuel. 2022;328:125256.

<https://doi.org/10.1016/j.fuel.2022.125256>.

[6] Sagbana PI, Sarkodie K, Nkrumah WA. A critical review of carbonate reservoir wettability modification during low salinity waterflooding. Petroleum. 2023;9(3):317-330.

<https://doi.org/10.1016/j.petlm.2022.01.006>.

[7] Khan I, Saeed K, Khan I. Nanoparticles: Properties, applications and toxicities. Arabian Journal of Chemistry. 2019;12(7):908-931.

<https://doi.org/10.1016/j.arabjc.2017.05.011>.

[8] Azarshin S, Moghadasi J, Aboosadi ZA. Surface functionalization of silica nanoparticles to improve the performance of water flooding in oil wet reservoirs. Energy Exploration & Exploitation. 2017;35(6):685-697.

<https://doi.org/10.1177/0144598717716281>.

[9] Ali JA, Kolo K, Manshad AK, Mohammadi AH. Recent advances in application of nanotechnology in chemical enhanced oil recovery: Effects of nanoparticles on wettability alteration, interfacial tension reduction, and flooding. Egyptian Journal of Petroleum. 2018;27(4):1371-1383.

<https://doi.org/10.1016/j.ejpe.2018.09.006>.

[10] Cárdenas JC, Pérez AS, Saez RT, León EA. Effect of graphene oxide aqueous dispersions on rock wettability. Fuentes: El Reventón Energético. 2024;22(1):21-34.

<https://doi.org/10.18273/revfue.v22n1-2024002>.

<https://doi.org/10.1016/j.jcis.2016.03.060>.

[11] Nowrouzi I, Manshad AK, Mohammadi AH.

Effects of TiO₂, MgO and γ-Al₂O₃ nano-particles on wettability alteration and oil production under carbonated nano-fluid imbibition in carbonate oil reservoirs. Fuel. 2020;259:116110.

۷۸٫۶۲ درصد وزنی از مقدار اولیه ی نانوکامپوزیت، پس از تحمل دمای ۱۰۰۰ درجه ی سانتیگراد باقی ماند، یعنی ۳٫۰۵ میلی گرم از ۳٫۸۲ میلی گرم، میزان پایداری حرارتی نانوکامپوزیت GO-SiO₂-TiO₂ بالا ارزیابی شد که این امر بیانگر تحمل بسیار خوب و پایداری بسیار بالای این نانوکامپوزیت در شرایط دمای بالای مخازن نفتی می باشد. علاوه بر این، با توجه به نتایج روش های Zeta Potential و DLS، نانوسیال GO-SiO₂-TiO₂ در غلظت های مختلف: ۱۰۰، ۵۰۰ و ۱۵۰۰ پی پی ام پایدار و در غلظت ۲۵۰۰ پی پی ام، به دلیل چسبیدن (تجمع) نانوکامپوزیت ها، ناپایدار تشخیص داده شد.

بعد از آن و در ادامه ی این پژوهش، آزمایشات اندازه گیری مقادیر زاویه ی تماس، با استفاده از روش قطره ی بی پایه و در غلظت های مختلف: ۰ (حالت مرجع یا نفت دوست)، ۱۰۰، ۵۰۰، ۱۵۰۰ و ۲۵۰۰ پی پی ام نانوسیال GO-SiO₂-TiO₂، بر روی برش هایی از یک مغزه ی کربناته انجام شدند که مقادیر زاویه ی تماس، به ترتیب غلظت های ذکر شده، ۹۳٫۳۲، ۱۴۷٫۴۸، ۲۵٫۱۷، ۴۴٫۱۵ و ۶۹٫۷۵ درجه اندازه گیری شدند. حال، با توجه به اینکه غلظت ۱۵۰۰ پی پی ام نانوسیال GO-SiO₂-TiO₂، زاویه ی تماس را از مقدار مرجع (۱۴۷٫۴۸ درجه)، به کمترین مقدار (۲۵٫۱۷ درجه) رساند، بنابراین این غلظت، غلظت بهینه ی نانوسیال برای ایجاد کمترین مقدار زاویه ی تماس تعیین شد. درضمن، کاهش چشمگیر زاویه ی تماس در غلظت بهینه ی نانوسیال مذکور، آن هم بر روی یک برش کربناته نشان داد که این نانوکامپوزیت، گزینه ی بسیار مناسبی جهت استفاده به منظور ایجاد تغییر ترشوندگی شدید در مخازن کربناته و متعاقب آن، افزایش قابل توجه میزان آزادسازی نفت چسبیده به سطوح دانه های سنگ و نیز، افزایش چشمگیر ضریب باز یافت نفت در این نوع از مخازن می باشد. البته از آنجاییکه در این مطالعه آزمایش های اندازه گیری زاویه ی تماس در شرایط آزمایشگاهی کنترل شده (دمای محیط و استفاده از آب دیونیزه (میزان شوری ۰ درصد)) انجام شده اند، پیشنهاد می شود در تحقیقات آتی، پایداری و عملکرد این نانوسیالات تحت شرایط دشوار مخزنی، از جمله حضور نمک های مختلف (شوری) و در دماهای بالا مورد ارزیابی قرار گیرد تا کارایی آن ها در شرایط واقعی میادین نفتی تایید شود.

مراجع

[1] Klemme HD, Ulmishek GF. Effective petroleum source rocks of the world: stratigraphic distribution and controlling depositional factors. AAPG Bulletin. 1991;75(12):1809-1851.

<https://doi.org/10.1306/0C9B2A47-1710-11D7-8645000102C1865D>.

[2] Zallaghi M, Khaz'ali AR. Experimental and modeling study of enhanced oil recovery from carbonate reservoirs with smart water and surfactant injection. Fuel. 2021;304:121516.

- [18] Rahimi A, Farhadian A, Guo L, Akbarinezhad E, Sharifi R, Irvani D, Javidparvar AA, Deyab MA, Varfolomeev MA. Bio-based and self-catalyzed waterborne polyurethanes as efficient corrosion inhibitors for sour oilfield environment. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*. 2023;123:170-186.
<https://doi.org/10.1016/j.jiec.2023.03.033>.
- [19] Xue S, Shi M, Wang J, Li J, Peng G, Xu J, Gao Y, Duan X, Lu L. TiO₂-MXene/PEDOT:PSS Composite as a Novel Electrochemical Sensing Platform for Sensitive Detection of Baicalein. *Molecules*. 2023;28(7):3262.
<https://doi.org/10.3390/molecules28073262>.
- [20] Afzali A, Toiserkani H. Fabrication and evaluation of properties of modified epoxidized natural rubber hybrid films by the incorporation of amine - functionalized nanosilica. *Polymer-Plastics Technology and Materials*. 2022;61 (16):1729-1739.
<https://doi.org/10.1080/25740881.2022.2078729>.
- [21] Feng C, Zhu L, Cao K, Yu Z, Song Y. Difunctional silicon dioxide combined with graphene oxide nanocomposite to enhance the anticorrosion performance of epoxy coatings. *ACS Omega*. 2022;7(28):24134-24144.
<https://doi.org/10.1021/acsomega.2c00494>.
- [22] Monreal-Pérez P, Isasi JR, González-Benito J, Olmos D, González-Gaitano G. Cyclodextrin-grafted TiO₂ nanoparticles: Synthesis, complexation capacity, and dispersion in polymeric matrices. *Nanomaterials*. 2018;8(9):642.
<https://doi.org/10.3390/nano8090642>.
- [23] Madima N, Kefeni KK, Mishra SB, Mishra AK. TiO₂-modified g-C₃N₄ nanocomposite for photocatalytic degradation of organic dyes in aqueous solution. *Heliyon*. 2022;8(9):e10683.
<https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2022.e10683>.
- <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2019.116110>.
- [12] Moradi B, Pourafshary P, Jalali F, Mohammadi M, Emadi MA. Experimental study of water-based nanofluid alternating gas injection as a novel enhanced oil-recovery method in oil-wet carbonate reservoirs. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*. 2015;27:64-73.
<https://doi.org/10.1016/j.jngse.2015.07.009>.
- [13] Pourabdol Shahrekordi A, Zargar G, Sheikh Zakariaei S J, Khaksar Manshad A. Experimental Study of the Effect of GO-SiO₂-TiO₂-SDS Pickering Emulsion on Interfacial Tension. *Nanomeghyas*. 2025;12(2):168-187 (In Persian).
<https://doi.org/10.22034/ns.2025.722232>.
- [14] Parand P, Mohammadi M, Shayegani Akmal AA, Samadpour M, Dehghani M, Parvazian E. Sequential RTV/(TiO₂/SiO₂) nanocomposite deposition for suppressing the leakage current in silicone rubber insulators. *Applied Physics A*. 2020;126(5):333.
<https://doi.org/10.1007/s00339-020-03522-5>.
- [15] Guerrero-Contreras J, Caballero-Briones F. Graphene oxide powders with different oxidation degree, prepared by synthesis variations of the Hummers method. *Materials Chemistry and Physics*. 2015;153:209-220.
<https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2015.01.005>.
- [16] Štengl V, Bakardjieva S, Grygar TM, Bludská J, Kormunda M. TiO₂-graphene oxide nanocomposite as advanced photocatalytic materials. *Chemistry Central Journal*. 2013;7:41.
<https://doi.org/10.1186/1752-153X-7-41>.
- [17] Jiang H, Ji Y, Gan J, Wang L. Enhancement of Thermal and Mechanical Properties of Bismaleimide Using a Graphene Oxide Modified by Epoxy Silane. *Materials*. 2020;13(17):3836.
<https://doi.org/10.3390/ma13173836>.

[31] نقی زاده، عارفه. آذین، رضا. عصفوری، شهریار. فاتحی، روح اله. کاربرد نانوذرات در انواع سنگ مخازن نفتی و گازی. نشریه مهندسی شیمی ایران، ۱۷، ۹۷، ۳۲-۴۳، ۱۳۹۷.

[32] Wasan DT, Nikolov AD. Spreading of nanofluids on solids. *Nature*. 2003;423(6936):156-159.

<https://doi.org/10.1038/nature01591>.

[33] Wang L, Li Z, Mao G, Zhang Y, Lai FP. Effect of nanoparticle adsorption on the pore structure of a coalbed methane reservoir: a laboratory experimental study. *ACS omega*. 2022;7(7):6261-6270.

<https://doi.org/10.1021/acsomega.1c06770>.

[34] Khalilnezhad A, Rezvani H, Ganji P, Kazemzadeh Y. A Complete experimental study of oil/water interfacial properties in the presence of TiO₂ nanoparticles and different ions. *Oil & Gas Science and Technology – Revue d'IFP Energies nouvelles*. 2019;74:39.

<https://doi.org/10.2516/ogst/2019007>.

[35] Zargar G, Arabpour T, Manshad AK, Ali JA, Sajadi SM, Keshavarz A, Mohammadi AH. Experimental investigation of the effect of green TiO₂/Quartz nanocomposite on interfacial tension reduction, wettability alteration, and oil recovery improvement. *Fuel*. 2020;263:116599.

<https://doi.org/10.1016/j.fuel.2019.116599>.

[36] Manshad AK, Ali JA, Haghighi OM, Sajadi SM, Keshavarz A. Oil recovery aspects of ZnO/SiO₂ nano-clay in carbonate reservoir. *Fuel*. 2022;307:121927.

<https://doi.org/10.1016/j.fuel.2021.121927>.

[37] Ahmadi Y, Mansouri M, Jafarbeigi E. Improving simultaneous water alternative associate gas tests in the presence of newly synthesized γ -Al₂O₃/ZnO/urea nano-composites: an experimental core flooding tests. *ACS omega*. 2022;8(1):1443-1452.

[24] Dong R, Wang L, Zhu J, Liu L, Qian Y. A novel SiO₂-GO/acrylic resin nanocomposite: Fabrication, characterization and properties. *Applied Physics A*. 2019;125(8):551.

<https://doi.org/10.1007/s00339-019-2847-7>.

[25] Zhu C, Yan Y, Wang F, Cui J, Zhao S, Gao A, Zhang G. Facile fabrication of long-chain alkyl functionalized ultrafine reduced graphene oxide nanocomposites for enhanced tribological performance. *RSC Advances*. 2019;9(13):7324-7333.

<https://doi.org/10.1039/C9RA00433E>.

[26] Vallejo W, Rueda A, Diaz-Urbe C, Grande C, Quintana P. Photocatalytic activity of graphene oxide-TiO₂ thin films sensitized by natural dyes extracted from *Bactris guineensis*. *Royal Society Open Science*. 2019;6(3):181824.

<https://doi.org/10.1098/rsos.181824>.

[27] Farivar F, Yap PL, Karunagaran RU, Losic D. Thermogravimetric analysis (TGA) of graphene materials: Effect of particle size of graphene, graphene oxide and graphite on thermal parameters. *C — Journal of Carbon Research*. 2021;7(2):41.

<https://doi.org/10.3390/c7020041>.

[28] Ahmad J, Majid K. Improved thermal stability metal oxide/GO-based hybrid materials for enhanced Anti-inflammatory and Antioxidant activity. *Polymer Bulletin*. 2021;78(7):3889-3911.

<https://doi.org/10.1007/s00289-020-03304-2>.

[29] Simari C, Lufrano E, Godbert N, Gournis D, Coppola L, Nicotera I. Titanium dioxide grafted on graphene oxide: Hybrid nanofiller for effective and low-cost proton exchange membranes. *Nanomaterials*. 2020;10(8):1572.

<https://doi.org/10.3390/nano10081572>.

[30] Leary JF. Characterizing Nanoparticles. In: *Fundamentals of Nanomedicine*. Cambridge University Press. 2022:122-142.

<https://doi.org/10.1017/9781139012898.008>.

<https://doi.org/10.1021/acsomega.2c06879>.

[38] Mirzavandi M, Ali JA, Manshad AK, Majeed B, Mahmood BS, Mohammadi AH, Iglaue S, Keshavarz A. Performance evaluation of silica-graphene quantum dots for enhanced oil recovery from carbonate reservoirs. *Energy & Fuels*. 2023;37(2):955-964.

<https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.2c03150>.

[39] Kazemzadeh Y, Sharifi M, Riazi M, Rezvani H, Tabaei M. Potential effects of metal oxide/SiO₂ nanocomposites in EOR processes at different pressures. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 2018;559:372-384.

<https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2018.09.068>.

[40] Ershadi M, Alaei M, Rashidi A, Ramazani A, Khosravani S. Carbonate and sandstone reservoirs wettability improvement without using surfactants for Chemical Enhanced Oil Recovery (C-EOR). *Fuel*. 2015;153:408-415.

<https://doi.org/10.1016/j.fuel.2015.02.060>.

[41] Nazarahari MJ, Manshad AK, Moradi S, Shafiei A, Ali JA, Sajadi SM, Keshavarz A. Synthesis, characterization, and assessment of a CeO₂@nanoclay nanocomposite for enhanced oil recovery. *Nanomaterials*. 2020;10(11):2280.

<https://doi.org/10.3390/nano10112280>.

[42] Hassan YM, Guan BH, Chuan LK, Halilu A, Adil M, Adam AA, Abdulkadir BA. Interfacial tension and wettability of hybridized ZnOFe₂O₃/SiO₂ based nanofluid under electromagnetic field inducement. *Journal of Petroleum Science and Engineering*. 2022;211:110184.



Experimental Investigation of Wettability Alteration in Carbonate Reservoirs Using GO-SiO₂-TiO₂ Nanofluids

A. Pourabdol Shahrekordi^{1*}, G. Zargar²

¹Department of Petroleum Engineering, Faculty of Petroleum and Chemical Engineering, Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

²Department of Petroleum Engineering, Ahvaz Faculty of Petroleum Engineering, Petroleum University of Technology, Ahvaz, Iran

Received: 2026-02-21

Revised: 2026-04-15

Accepted: 2026-06-17

Abstract: Wettability alteration from oil-wet to water-wet state in carbonate reservoirs, which are predominantly oil-wet, using nanofluids containing nanoparticles or nanocomposites is considered one of the most effective strategies for releasing oil adhered to rock grain surfaces and thereby enhancing oil recovery from these reservoirs. Accordingly, in this research, a new nanocomposite named graphene oxide-silica-titanium dioxide (GO-SiO₂-TiO₂) was synthesized and used to achieve two main goals: to induce significant wettability alteration and to determine its optimum concentration. Additionally, to obtain information about the mentioned nanocomposite and its thermal stability, six methods were used: Transmission Electron Microscopy (TEM), Field Emission Scanning Electron Microscopy (FESEM), X-ray Photoelectron Spectroscopy (XPS), Thermogravimetric Analysis (TGA), Zeta Potential, and Dynamic light scattering (DLS). According to the results of these methods, it was found that the silica and titanium dioxide nanomaterials had uniformly and regularly covered the surfaces of the graphene oxide nanosheets in the nanocomposite, and the nanocomposite also possessed high thermal stability. Then, using the sessile drop method and also slices from a carbonate core, the contact angle values at concentrations of 0 (reference or oil-wet state), 100, 500, 1500, and 2500 ppm of GO-SiO₂-TiO₂ nanofluid were measured to be 147.46°, 93.28°, 44.13°, 25.02°, and 69.71°, respectively. These results indicate that the new GO-SiO₂-TiO₂ nanocomposite exhibits a remarkable potential to induce significant wettability alteration and, consequently, to markedly improve the oil recovery factor in carbonate reservoirs, especially at the optimum concentration of 1500 ppm, which results in the maximum reduction in contact angle from 147.46° to 25.02°.

Keywords: Nanofluids, GO-SiO₂-TiO₂ nanocomposite, Wettability alteration, Sessile drop method, Carbonate reservoirs.

Corresponding Author. Email: arash.pourabdol@srbiau.ac.ir

How to Cite This Article:

Pourabdol Shahrekordi A, Zargar G. Experimental Investigation of Wettability Alteration in Carbonate Reservoirs Using GO-SiO₂-TiO₂ Nanofluids. Nanomeghyas. 2026;():e737802 (In Persian). doi: 10.22034/ns.2026.2084884.1421



This is an open access article under the CC-BY license (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>)