

## مطالعه غنی سازی اسانس نعناع به وسیله شبیه سازی تقطیر چند جزئی پیوسته و مقایسه آن با نتایج آزمایشگاهی

سعید اسدی<sup>۱</sup>

۱- استادیار، گروه صنایع شیمیایی، پژوهشکده علوم و صنایع غذایی خراسان، پست الکترونیک: asadi@krifst.ir

تاریخ پذیرش: تیر ۱۳۸۸

تاریخ اصلاح نهایی: تیر ۱۳۸۸

تاریخ دریافت: آذر ۱۳۸۷

### چکیده

در این پژوهش غنی سازی ماده مؤثره اسانس نعناع به وسیله شبیه سازی رایانه ای عملیات تقطیر چند جزئی پیوسته، مورد مطالعه قرار گرفته است. در شبیه سازی از روش نقطه حباب و الگوریتم Wang-Henke استفاده شده است. در این روش روابط MESH (روابط موازنه جرم و تعادل فازی برای هر جزء، مجموع اجزاء مولی و موازنه انرژی برای هر مرحله تعادلی) حل شده و برای حل معادلات از روش ماتریس سه قطری (روش توماس) استفاده شده است. همزمان با بدست آوردن نتایج شبیه سازی، نسبت به آزمایش با ستون تقطیر اقدام شده و نتایج آزمایشها نیز بدست آمده است. در آزمایشها، از ستون تقطیر پیوسته با تعداد سینی های یک عدد تا پنج عدد استفاده شده و تأثیر تعداد سینی ها در غنی سازی ماده مؤثره اسانس نعناع مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفته است. در انتها، نتایج شبیه سازی رایانه ای با نتایج آزمایشگاهی مقایسه شده است. نتایج حاصل از شبیه سازی به همراه نتایج حاصل از آزمایشها نشان می دهد که توسط ستون تقطیر دارای پنج عدد سینی، مقدار ماده مؤثره اسانس نعناع از ۳۱٪ به بیش از ۶۰٪ می رسد. همچنین نتایج نشان می دهد که اضافه کردن یک سینی به ستون تقطیر با تعداد سینی های کم، تأثیر بیشتری در جداسازی ماده مؤثره نسبت به اضافه کردن یک سینی به ستون تقطیر با سینی های زیادتر دارد. نتایج حاصل نشان می دهد که افزایش نسبت برگشت خارجی به ستون تقطیر از ۲ به ۳ باعث افزایش جداسازی ماده مؤثره می شود. این افزایش نسبت برگشت، برای ستون تقطیر با ۵ سینی، باعث افزایش ۴٪ وزنی ماده مؤثره در محصول خروجی می شود.

واژه های کلیدی: اسانس نعناع، جداسازی، غنی سازی، تقطیر پیوسته، شبیه سازی، روش نقطه حباب.

### مقدمه

دارویی، غذایی، آرایشی و بهداشتی دارند (Ashurst, 1999; Harborne & Baxter, 2001). برای مثال کارون (Carvone)، ماده مؤثره اسانس نعنا (Spearmint) و منتول، ماده مؤثره اسانس نعنا فلفلی (Peppermint) هستند که دارای استفاده گسترده ای در صنایع مختلف می باشند (Aflatuni, et al., 2005; Bienvenu et al., 1999; Lawrence, 2008). در بسیاری از موارد،

اسانس روغنی گیاهان به وسیله استخراج با آب، بخار آب و یا حلال از اندامهای مختلف گیاهی بدست می آید (Ashurst, 1999; Harborne & Baxter, 2001). اسانس روغنی دارای عناصر و اجزاء تشکیل دهنده گوناگونی است که مهمترین آنها را منوترپین ها و سسکویی ترپین ها تشکیل می دهند. اسانسها، مصارف وسیعی در صنایع

method) را با آمیختن بعضی از ایده‌های روش نقطه حباب با روش معمولی تتا، بدست آورده و توسعه دادند. پس از آنها روش نقطه حباب توسط Sridhar و Lucia (۱۹۹۰b) توسعه داده شد. آنها از اصول مشابه که در روش SR (Sum rates) توسط Sridhar و Lucia (۱۹۹۰a) بکار برده شده بود، استفاده کردند. در ادامه، Loperena (۲۰۰۳) از ماتریس دو قطری برای حل معادلات استفاده نمود. وی با الگوریتم ساده و کارآمدی که از روش حذف گوسین (Gaussian elimination) method) بدست آورد، ماتریس دو قطری را حل نمود.

بررسی تحقیقات انجام شده نشان می‌دهد که شبیه‌سازی رایانه‌ای غنی‌سازی اسانس نعناع به‌وسیله روش نقطه حباب و با استفاده از الگوریتم Wang-Henke به همراه مقایسه آن با نتایج آزمایشگاهی تاکنون صورت نگرفته است. بنابراین در این مطالعه، ابتدا غنی‌سازی اسانس نعناع به‌وسیله ستون تقطیر ساخته و نصب شده در پایلوت صنایع شیمیایی پژوهشکده علوم و صنایع غذایی خراسان، انجام شده و نتایج آن بدست آمده است. در طول انجام آزمایشها، با استفاده از گد رایانه‌ای نوشته شده در این پژوهشکده که در آن از روش نقطه حباب و الگوریتم Wang-Henke استفاده شده است، عمل تقطیر چند جزئی، شبیه‌سازی شده است. در انتها نتایج حاصل از شبیه‌سازی با داده‌های آزمایشگاهی مقایسه شده و بر روی نتایج بدست آمده بحث شده است.

#### شبیه‌سازی رایانه‌ای

اسانس روغنی گیاهان دامنه جوش محدودی دارند و نقطه آغاز جوشش با نقطه پایانی جوشش، فاصله زیادی ندارد. برای مثال، نقطه جوش اسانس نعناع در دامنه

ضروریست که درصد یک ترکیب خاص در اسانس افزایش یابد تا قابل استفاده در صنعت مورد نظر باشد (Kokkini et al., 1995؛ Aflatuni et al., 2005). غنی‌سازی ماده مؤثره و همچنین کاهش مواد اضافی اسانس که در بعضی موارد مضر بوده و یا کیفیت محصول را کاهش می‌دهد، توسط روشهای گوناگونی انجام می‌شود. یکی از مهمترین و پرکاربردترین روشها، استفاده از برج و یا ستون تقطیر می‌باشد (Ashurst, 1999؛ Lawrence, 2008؛ Harborne & Baxter 2001). به دلیل اینکه اسانس روغنی از ترکیبهای گوناگونی تشکیل شده است که در مواردی به بیش از ۴۰ نوع ترکیب می‌رسد و باید از روش تقطیر چند جزئی برای جداسازی و یا غنی‌سازی ترکیبهای اسانس استفاده کرد. تحقیقات زیادی بر روی شبیه‌سازی تقطیر چند جزئی صورت گرفته است (Loperena, 2003؛ Lizhong et al. 2004). یکی از بهترین روشهایی که برای جداسازی موادی با دامنه نزدیک نقطه جوش بکار برده می‌شود، روش BP (Bubble point) یا نقطه حباب است (Henley & Seader, 1981)؛ Loperena, 2003). با توجه به محدود بودن دامنه جوش اسانس نعناع و نزدیک بودن نقطه آغاز جوشش به نقطه پایانی آن، روش نقطه حباب یکی از روشهای مناسب برای شبیه‌سازی تقطیر چند جزئی این اسانس می‌باشد. روش نقطه حباب ابتدا توسط Amundson و Pontinen (۱۹۵۸) بکار برده شد. آنها از ماتریس معکوس برای حل معادلات استفاده کردند. اصلاح قابل توجه معادلات نقطه حباب توسط Wang و Henke (۱۹۶۶) انجام شد. آنها از الگوریتم توماس، برای حل ماتریس سه قطری بدست آمده از موازنه جرم استفاده کردند. Holland و همکاران (۱۹۷۵) روش اصلاح شده تتا (Modified theta)

## ۱- معادلات حاکم

معادلات اصلی مورد استفاده در این روش، معادلات MESH بوده که طبق فرمول ۱، به صورت زیر نوشته می‌شوند (Henley & Seader, 1981):

۱- معادلات M یا موازنه جرم برای هر جزء؛ اگر تعداد اجزاء برابر C باشد، برای هر مرحله تعادلی، C معادله داریم. معادلات M به شکل زیر است:

$$M_{i,j} = L_{j-1}x_{i,j-1} + V_{j+1}y_{i,j+1} + F_i z_{i,j} (L_j + U_j)x_{ij} - (V_j + W_j)y_{i,j} = 0 \quad \text{فرمول ۱}$$

که K نشان‌دهنده نسبت تعادلی بخار مایع است.

۳- معادلات S یا جمع جزء مولی‌ها که برای هر مرحله، یکی از دو معادله زیر استفاده می‌شود:

$$(S_y)_j = \sum_{j=1}^C y_{i,j} - 1.0 = 0 \quad \text{فرمول ۳}$$

$$(S_x)_j = \sum_{j=1}^C x_{i,j} - 1.0 = 0 \quad \text{فرمول ۴}$$

۴- معادله H یا موازنه انرژی که برای هر مرحله تعادلی یک معادله به شکل زیر نوشته می‌شود:

$$H_j = L_{j-1}H_{L_{j-1}} + V_{j+1}H_{V_{j+1}} + F_i H_{F_j} - (L_j + U_j)H_{L_j} - (V_j + W_j)H_{V_j} - Q_j = 0 \quad \text{فرمول ۵}$$

نوشته می‌شود:

$$L_j = V_{j+1} \sum_{m=1}^j (F_m - U_m - W_m) - V_j \quad \text{فرمول ۶}$$

## ۲- حل معادلات حاکم

به وسیله الگوریتم Wang-Henke معادلات حاکم حل شده است (Henley & Seader, 1981)؛ Holland et al.

۱۶۰°C تا ۲۴۰°C می‌باشد. بهترین روش محاسباتی که می‌تواند برای تقطیر موادی با دامنه نزدیک نقطه جوش بکار برده شود، روش BP است (Henley & Seader, 1981؛ Loperena, 2003). در این روش، دسته‌ای جدید از دمای سینی‌ها در طول هر بار تکرار معادلات نقطه حباب، محاسبه شده و بدست می‌آید (Henley & Seader, 1981).

که  $i, j, d, V, y, F, U, W$  و  $V$  به ترتیب نشان‌دهنده جزء  $i$  ام، مرحله تعادلی، نرخ جریان مایع، جزء مولی در فاز مایع، نرخ جریان بخار، جزء مولی در فاز بخار، نرخ جریان خوراک، جزء مولی، نرخ جریان جانبی مایع، نرخ جریان بخار و نرخ جریان جانبی بخار می‌باشند.

۲- معادلات E یا روابط تعادلی فازها برای هر جزء که شامل C معادله برای هر مرحله بوده، به شکل زیر است:

$$E_{i,j} = y_{i,j} - K_{i,j}x_{ij} = 0 \quad \text{فرمول ۲}$$

که Q نشان‌دهنده نرخ انتقال حرارت است. در معادله انرژی از تغییرات انرژی پتانسیل و حرکتی صرف نظر شده است.

از معادله موازنه کل مواد نیز به جای معادلات ۳ و ۴ می‌توان استفاده کرد. این معادله از معادلات ۱، ۳ و ۴ به همراه معادله  $\sum Z_{i,j} = 1.0$  بدست آمده و به شکل زیر

به  $K_{ij}$  های اولیه نیاز می‌باشد (Henley & Seader, 1981). برای اولین تکرار به دلیل در دسترس نبودن  $x_i$  و  $y_j$  ها از  $K$  محلولهای ایده‌آل استفاده می‌شود که از فرمول زیر بدست می‌آید:

$$K_{ideal} = \frac{\Phi_{iL}^o}{\Phi_{iV}^o} \quad \text{فرمول ۷}$$

که در آن  $\Phi_{iL}^o$  و  $\Phi_{iV}^o$  ضریب فوگاسیته جزء خالص در فاز مایع و گاز است. برای یافتن فوگاسیته جزء خالص در فاز مایع و گاز، از معادلات SRK استفاده شده است (Henley & Seader, 1981؛ Nasri & Binous, 2007؛ Valderrama & Silva, 2003). معادلات SRK برای هیدروکربورها دارای اعتبار و کارایی لازم بوده و فرض شده است برای اجزاء اسانس نعناع که از انواع ترکیبهای آلی هستند نیز معتبر باشند. برای تکرارهای بعدی لازم است از ثابت تعادلی دقیق‌تر استفاده شود. بنابراین از ثابت تعادل Chao-Seader استفاده شده که به شکل زیر است (Henley & Seader, 1981):

$$K_i = \frac{\gamma_{iL} \Phi_{iL}^o}{\hat{\Phi}_{iV}^o} \quad \text{فرمول ۸}$$

که  $\gamma_{iL}$  و  $\hat{\Phi}_{iV}^o$  به ترتیب نشان‌دهنده ضریب اکتیویته جزء  $i$  در فاز مایع و ضریب فوگاسیته جزء  $i$  در فاز گاز می‌باشند. ضریب فوگاسیته جزء خالص  $i$  در فاز مایع و ضریب فوگاسیته جزء  $i$  در فاز گاز، از معادلات SRK بدست آمده است. ضریب اکتیویته جزء  $i$  در فاز مایع ( $\gamma_{iL}$ ) نشان‌دهنده غیر ایده‌آل بودن محلول مایع بوده و با توجه به اندازه متفاوت مولکولها از ضریب اکتیویته با تصحیح Flory-Huggins استفاده شده است که به شکل زیر است (Henley & Seader, 1981):

(Sridhar & Lucia, 1990a؛ 1975). برای حل معادلات نیاز به داده‌های اولیه می‌باشد. داده‌های اولیه لازم عبارت است از: تعداد مراحل تعادلی؛ محل سینی خوراک؛ ترکیب درصد اجزاء خوراک؛ فشار در هر مرحله؛ میزان انتقال حرارت به ریویولر؛ جریان خروجی از کندانسور و مقدار جریان برگشتی. به دلیل نیاز به مقایسه نتایج حاصل از شبیه‌سازی با نتایج آزمایشگاهی، داده‌های اولیه مورد نیاز شبیه‌سازی، دقیقاً معادل شرایط آزمایش، مشخصات ستون تقطیر و مشخصات خوراک ورودی به آن، در نظر گرفته شده است. برای اجرای کُد رایانه‌ای نیاز به داده‌های دیگری نیز مانند مقدار جریان بخار و دمای هر مرحله تعادلی می‌باشد که از مقادیر حدس زده شده استفاده می‌شود. این مقادیر در طول اجرای برنامه با توجه به حل معادلات حاکم و به‌وسیله الگوریتم Wang-Henke تصحیح می‌شود (Henley & Seader, 1981؛ Holland et al., 1975).

در محاسبات تعداد اجزاء اسانس نعناع پنج جزء در نظر گرفته شده است، زیرا اسانس نعناع از پنج ماده اصلی به نامهای کارون، دی‌هیدروکارون، سینئول، لیمونن و آلفا-پینن تشکیل شده است که بیش از ۹۳ تا ۹۸ درصد وزنی اسانس را تشکیل می‌دهند. ترکیبهای غیر اصلی اسانس نعناع بین ۲ تا ۷ درصد آن را تشکیل داده که تعداد آنها به بیش از ۱۵ ماده مختلف می‌رسد. خواص فیزیکی و ترمودینامیکی این پنج جزء اصلی در منابع آمده است (Poling, Daubert, et al., 1996؛ Chemstations, 2000؛ Valderrama & Silva, 2003؛ et al., 2001).

## ۱-۲- روش محاسبه ثابت تعادل

معادلات M به‌وسیله تکنیک ماتریس سه قطری حل می‌شوند. در این تکنیک از روش توماس استفاده شده که

فرمول ۹

$$\gamma_{iL} = \exp \left[ \frac{v_{iL} (\delta_i - \sum_{i=1}^C \Phi_i \delta_i)^2}{RT} + \ln \left( \frac{v_{iL}}{v_L} \right) + 1 - \frac{v_{iL}}{v_L} \right]$$

که  $v_{iL}$ ،  $\delta_i$ ،  $\Phi_i$ ،  $v_L$ ،  $R$  و  $T$  به ترتیب نشان دهنده حجم مولی جزء  $i$  در فاز مایع، پارامتر حلالیت (هیلد براند) در ۲۵ درجه سانتی‌گراد برای جزء  $i$ ، جزء حجمی  $i$ ، حجم مولی مایع، ثابت جهانی گازها و دما می‌باشند.

## ۲-۲- هم‌گرایی شبیه‌سازی رایانه‌ای

در روش BP، محدوده هم‌گرایی به شکل رابطه زیر توسط Wang and Henke پیشنهاد شده است (Loperena, 2003; Henley & Seader, 1981). در شبیه‌سازی، از این رابطه برای تعیین هم‌گرایی استفاده شده است.

$$\tau = \sum_{j=1}^N [T_j^{(k)} - T_j^{(k-1)}]^2 \leq 0.01N \quad \text{فرمول ۱۰}$$

که  $\tau$  و  $N$  به ترتیب نشان‌دهنده مجموع مربع اختلاف و تعداد مراحل تعادلی می‌باشند.

کد رایانه‌ای به زبان پاسکال نوشته شده و محاسبات با رایانه پنتیوم ۴ انجام شده است. برای نمونه، زمان تقریبی CPU برای غنی‌سازی ماده مؤثره اسانس نعناع از مقدار ۳۱٪ ماده مؤثره در خوراک تا ۷۴٪ در محصول نهایی، به وسیله ستون تقطیری با ۵ مرحله تعادلی، در حدود ۸ دقیقه می‌باشد.

## مواد و روشها

### واحد تقطیر

برای انجام آزمایشها از واحد تقطیر پیوسته که در پژوهشکده علوم و صنایع غذایی خراسان طراحی، ساخته، نصب و راه‌اندازی شده، استفاده شده است. واحد تقطیر دارای قسمت‌هایی مانند ستون تقطیر سینی‌دار، کندانسور، ریویلر، دکانتور، مخازن ماده اولیه و محصولات تولیدی، پمپ جریان برگشتی از کندانسور به بالای ستون و تجهیزات نشان‌دهنده فشار و دما می‌باشد. کل تجهیزات از فولاد ضد زنگ ۳۱۶ ساخته شده است. حرارت ریویلر توسط المنتهای حرارتی تأمین می‌شود. دمای ریویلر، مقدار خوراک ورودی به سیستم و مقدار مایع برگشتی از کندانسور به بالای ستون تقطیر، قابل کنترل است. ارتفاع ستون تقطیر ۲۰۷ cm و قطر آن ۲۰ cm بوده و دارای ۵ سینی مشبک می‌باشد. فلانج سینی‌ها به گونه‌ای طراحی شده است که هر کدام از سینی‌ها قابل برداشته شدن بوده و به این ترتیب تعداد سینی‌های داخل ستون قابل کاهش است. ستون کاملاً عایق‌کاری شده و عملیات تقطیر به صورت آدیاباتیک (بی‌دررو) می‌باشد. شکل ۲ نشان‌دهنده کل واحد تقطیر می‌باشد که بر روی یک ساختار فلزی قابل حمل، نصب شده است. جزئیات شکل در زیر آن ذکر شده است. شکل ۳ نمای جانبی و قسمت بالای واحد تقطیر را نشان می‌دهد که شامل مخزن خوراک و ستون تقطیر می‌باشد. شکل ۴ نشان‌دهنده نمایی از جلو و قسمت پایین واحد تقطیر می‌باشد. در این شکل ریویلر و جعبه الکتریکی کنترل بار حرارتی ریویلر نشان داده شده است.

### آنالیز مواد اولیه و محصولات

آنالیز مواد اولیه و محصولات نهایی توسط واحد آنالیز دستگاهی آزمایشگاه شیمی پژوهشکده علوم و صنایع غذایی خراسان انجام شده است. برای آنالیز خوراک ورودی و محصولات نهایی از دستگاه کروماتوگرافی گازی (GC) (مدل pu4500 ساخت Pye-unicam Philips) استفاده شده است. ستون دستگاه از نوع ستون شیشه‌ای Packed SE-30 (1.52m × 4mm) و گاز حامل، نیتروژن با دبی ۳۰ ml/min بوده است. برنامه دمایی از ۵۵°C (۶ دقیقه در ۵۵°C ثابت نگه داشته شده) تا ۲۱۰°C با آهنگ ۴ °C/min تنظیم شده است.

برای اندازه‌گیری مقدار ماده مؤثره اسانس نعناع (کارون)، ابتدا استانداردهای آن ساخته شده و بعد مقدار آن در خوراک و محصولات نهایی، با توجه به طیفهای بدست آمده از دستگاه، تعیین شده است. از این روش برای تعیین میزان (درصد) پنج ترکیب اصلی موجود در اسانس نعناع، استفاده شده است.

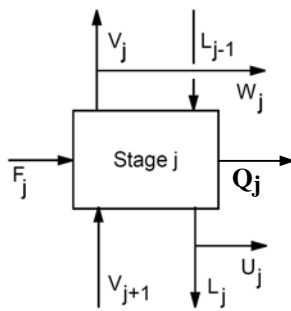
### نتایج

آزمایشها توسط ستون تقطیر پیوسته‌ای انجام شد که مشخصات آن در قسمت قبل ذکر شده است. خوراک ورودی به ستون، اسانس نعناع خریداری شده از شرکت کشت و صنعت نادر بود. این اسانس حاوی ۳۱٪ کارون است که با دبی ۲۵ lit/hr به وسط ستون تقطیر وارد شد. بار حرارتی ریویولر ۳/۲ کیلو وات تنظیم شد. کندانسور در حالت کامل بود و تمامی بخار ورودی به کندانسور به حالت مایع درآمد و پس از جمع‌آوری در مخزن زیر کندانسور، قسمتی از آن توسط پمپ استیل به داخل ستون

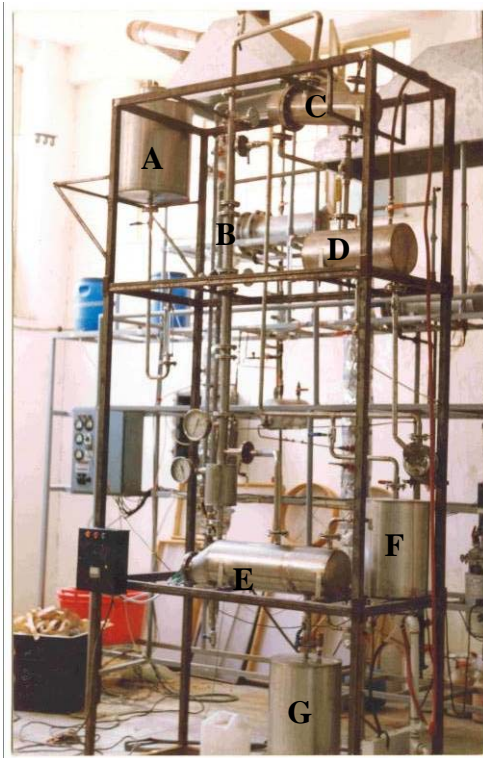
برگشت داده شد. نسبت برگشت خارجی در دو حالت ۲ و ۳ تنظیم شد و کلیه آزمایشها در این دو حالت انجام شد. بدین ترتیب نسبت برگشت ۲ نشان‌دهنده این است که از محصول بدست آمده از کندانسور، دو قسمت آن به داخل ستون برگشت داده شده و یک قسمت به مخزن محصول نهایی فرستاده می‌شود. به عبارت دیگر، بخار خروجی از بالای ستون، در کندانسور به صورت مایع درآمد که ۶۷٪ این مایع به داخل ستون برگشت داده شده و بقیه به مخزن محصول نهایی فرستاده می‌شود. این تعریف در مورد نسبت برگشت ۳ نیز مشابه می‌باشد. این نسبتها براساس نسبت برگشت معمول در برجهای و یا ستونهای تقطیر پالایشگاهی در نظر گرفته شده است (Henley & Seader, 1981).

قسمتی از مایع خروجی از کندانسور که به ستون تقطیر بازگردانده نشده بود از طریق دکانتور به مخزن جمع‌آوری هدایت شد. این محصول که از بالای ستون تقطیر بدست آمد، حاوی مواد سبک بود. از طرفی دیگر، مایع خروجی از ریویولر که حاوی مواد سنگین بود به مخزن جمع‌آوری دیگری منتقل شد.

ستون تقطیر دارای ۵ سینی بود که یک سینی در وسط ستون نصب شد و دو سینی در بالای آن و دو سینی در زیر آن قرار داشت. خوراک به سینی نصب شده در وسط ستون وارد شد. در حالت آزمایش با یک سینی، دو سینی بالایی و دو سینی پایینی (در مجموع چهار سینی) از داخل ستون برداشته شد. در حالت آزمایش با ستون تقطیر دو سینی، سینی وسط و سینی بالایی آن نصب شد. در حالت آزمایش با سه سینی، سینی وسطی، سینی بالایی و سینی پایینی آن نصب شد. در آزمایشهای با چهار سینی،



شکل ۱- طرح کلی از یک مرحله تعادلی



شکل ۲- تصویر کامل از واحد تقطیر

A- مخزن خوراک، B- ستون تقطیر، C- کندانسور، D- دکانتور،  
E- ریبویلر، F- مخزن جمع‌آوری محصول از بالای برج  
G- مخزن جمع‌آوری محصول از پایین برج

سینی وسطی و دو سینی بالایی و یک سینی پایینی آن نصب شد. در آزمایشهای با پنج سینی، سینی وسطی با دو سینی بالایی به همراه دو سینی پایینی نصب شد (یا در مجموع هر پنج سینی ستون تقطیر نصب شد).

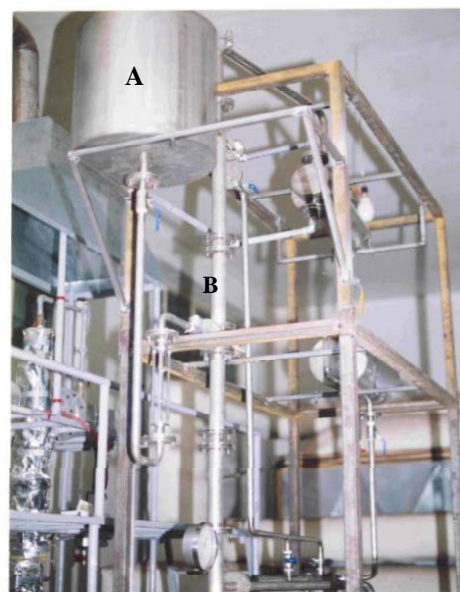
در آزمایشها، دبی خوراک، بار حرارتی ریبویلر و دمای آب ورودی به کندانسور ثابت بود. نتایج آنالیز مواد حاصل از ستون تقطیر نشان داد که اختلاف میزان مواد حاصله از تکرارهای مختلف کمتر از ۲٪ است، بنابراین با تکرار آزمایش تأثیر چندانی در نتایج رخ نداد.

نتیجه آزمایشها که نشان‌دهنده مقدار کارون در محصول خروجی از ریبویلر می‌باشد در جدول ۱ نشان داده شده است. همچنین براساس گد نوشته شده، شبیه‌سازی انجام شده و جوابهای بدست آمده از شبیه‌سازی نیز در جدول ۱ و در سطر زیرین نتایج آزمایشها آورده شده است. برای مقایسه و نتیجه‌گیری بهتر، نتایج حاصل که در جدول ۱ نشان داده شده است، در شکل ۶ رسم شده است.

یکی دیگر از مواد مهم در ترکیب اسانس نعناع، لیمون است. این ماده باعث تلخی در طعم اسانس شده و جزء ترکیبهای ناخواسته آن می‌باشد. لیمون جزء ترکیبهای سبک بوده و از بالای ستون تقطیر خارج شد. بنابراین مقدار آن در محصول خروجی از ریبویلر کاهش یافت. مقدار لیمون حاصل از آزمایشها و شبیه‌سازی برای محصول خروجی از ریبویلر، در تعداد سینی‌های یک تا پنج عدد، در جدول ۲ آورده شده است. برای مقایسه بهتر، نتایج حاصل که در جدول ۲ آورده شده است، در شکل ۷ رسم شده است.



شکل ۴- تصویر از روبرو و قسمت پایین واحد تقطیر  
E- ریویلر، F- جعبه الکتریکی کنترل بار حرارتی ریویلر



شکل ۳- تصویر جانبی از واحد تقطیر  
A- مخزن خوراک، B- ستون تقطیر

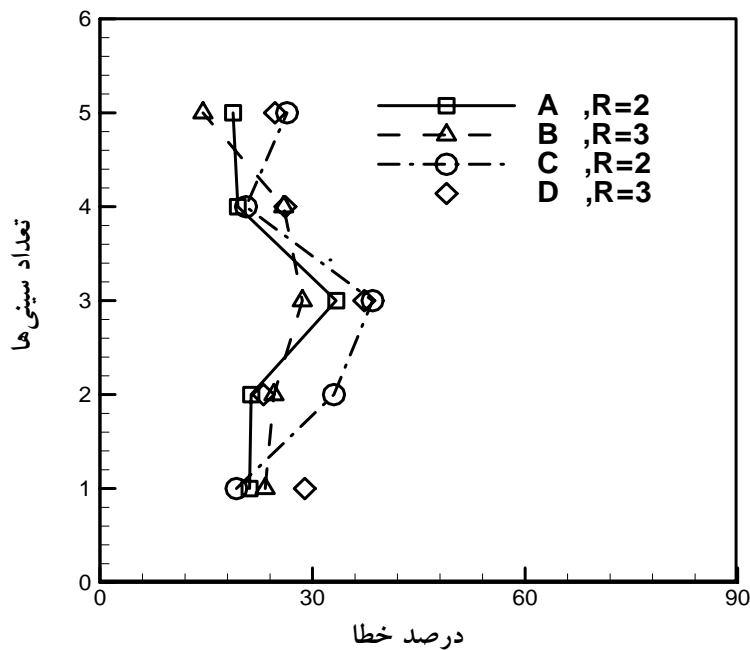
جدول ۱- نتایج حاصل از آزمایشها به همراه نتایج حاصل از شبیه سازی رایانه ای برای غنی سازی کارون در اسانس نعناع بر حسب درصد وزنی، توسط ستون تقطیر دارای یک تا پنج عدد سینی با دو نسبت برگشت ۲ و ۳

نسبت برگشت	نتایج بر حسب درصد وزنی	یک عدد سینی	دو عدد سینی	سه عدد سینی	چهار عدد سینی	پنج عدد سینی
۲	آزمایشها	۳۷/۲۴	۴۴/۴۵	۴۹/۵۰	۵۸/۴۲	۶۲/۰۴
	شبیه سازی	۴۵/۱۰	۵۳/۹۴	۶۶/۰۱	۶۹/۷۹	۷۳/۶۹
۳	آزمایشها	۳۸/۹۳	۴۸/۵۱	۵۲/۹۱	۵۹/۸۹	۶۷/۰۴
	شبیه سازی	۴۸/۰۱	۶۰/۴۲	۶۸/۰۲	۷۵/۴۲	۷۶/۷۸

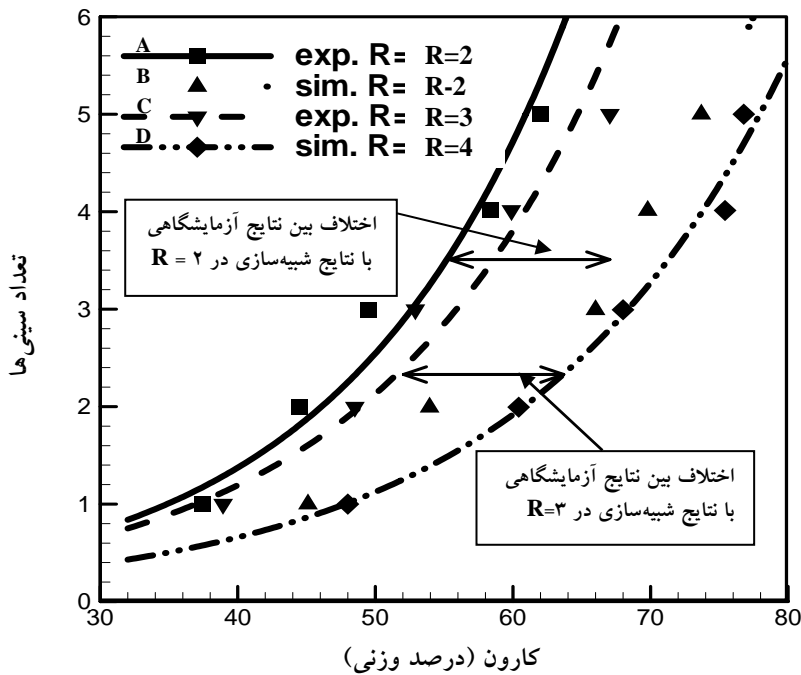
جدول ۲- نتایج حاصل از آزمایشها به همراه نتایج حاصل از شبیه سازی رایانه ای برای کاهش لیمونن در اسانس نعناع بر حسب درصد وزنی، توسط ستون تقطیر دارای یک تا پنج عدد سینی با دو نسبت برگشت ۲ و ۳

نسبت برگشت	نتایج بر حسب درصد وزنی	یک عدد سینی	دو عدد سینی	سه عدد سینی	چهار عدد سینی	پنج عدد سینی
۲	آزمایشها	۱۵/۳۱	۱۲/۷۵	۱۰/۶۸	۷/۸۶	۷/۳۱
	شبیه سازی	۱۲/۳۶	۸/۵۴	۶/۵۷	۶/۲۴	۵/۳۸
۳	آزمایشها	۱۴/۵۳	۱۰/۳۱	۹/۴۱	۶/۹۶	۶/۶۰
	شبیه سازی	۱۰/۳۳	۷/۹۳	۵/۹۰	۵/۱۴	۴/۹۷

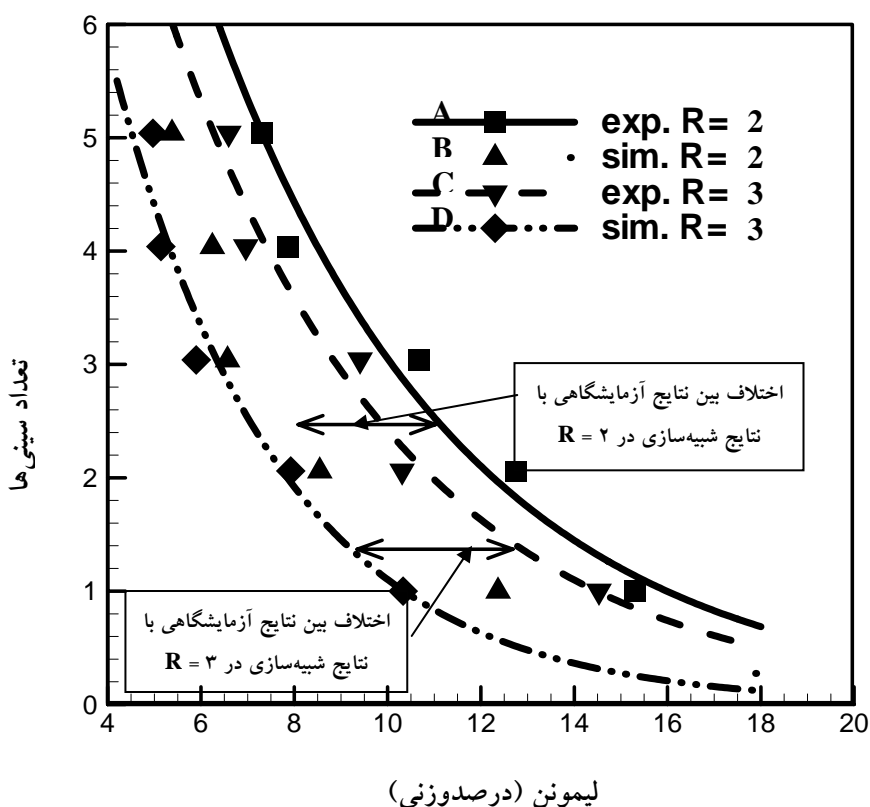




شکل ۵- مقدار درصد خطا بین نتایج حاصل از شبیه‌سازی کامپیوتری با نتایج حاصل از آزمایشها  
 A- غنی‌سازی کارون در اسانس نعناع، در نسبت برگشت ۲، B- غنی‌سازی کارون در اسانس نعناع، در نسبت برگشت ۳،  
 C- کاهش لیمونن در اسانس نعناع، در نسبت برگشت ۲، D- کاهش لیمونن در اسانس نعناع، در نسبت برگشت ۳



شکل ۶- آهنگ افزایش درصد وزنی کارون نسبت به افزایش تعداد سبب‌های برج تقطیر  
 A- نتایج آزمایشها (exp.) در نسبت برگشت ۲، B- نتایج شبیه‌سازی (sim.) در نسبت برگشت ۲،  
 C- نتایج آزمایشها (exp.) در نسبت برگشت ۳، D- نتایج شبیه‌سازی (sim.) در نسبت برگشت ۳



شکل ۷- آهنگ کاهش درصد وزنی لیمون نسبت به افزایش تعداد سینی‌های برج تقطیر  
 A- نتایج آزمایشها (exp.) در نسبت برگشت ۲، B- نتایج شبیه‌سازی (sim.) در نسبت برگشت ۲،  
 C- نتایج آزمایشها (exp.) در نسبت برگشت ۳، D- نتایج شبیه‌سازی (sim.) در نسبت برگشت ۳

## بحث

می‌کند که نشان می‌دهد در تعداد سینی‌های بسیار زیاد با اضافه کردن یک سینی تغییر چندانی در جداسازی رخ نخواهد داد. مقدار بدست آمده از آزمایش برای یک سینی مشخص با مقدار بدست آمده توسط شبیه‌سازی، در شرایط یکسان برابر نبوده و با افزایش تعداد سینی‌ها، این اختلاف بیشتر می‌شود. خطای بین نتایج شبیه‌سازی با نتایج آزمایشگاهی در شکل ۵ نشان داده شده است. یکی از دلایل مهم وجود خطا، استفاده از معادلات حالت SRK می‌باشد. اصلاح این معادلات باعث کاهش مقدار خطا در شبیه‌سازی عددی می‌شود.

نتایج حاصل از آزمایشها و شبیه‌سازی عددی نشان می‌دهد که با افزایش تعداد سینی‌ها، مقدار جداسازی کارون افزایش می‌یابد. نتایج نشان می‌دهد که در تعداد سینی‌های کمتر، مقدار شیب منحنی‌های شکل ۶ کم بوده و با افزایش سینی‌ها شیب منحنی‌ها زیاد می‌شود. به عبارتی در تعداد سینی‌های بیشتر، با افزایش هر یک سینی، مقدار جداسازی کمتری نسبت به افزایش یک سینی در تعداد سینی‌های کمتر صورت می‌گیرد. همچنین از شیب و روند منحنی‌ها مشخص می‌شود که در تعداد سینی‌های بسیار زیاد، مقدار جداسازی به سمت یک عدد ثابت میل

می‌یابد. در هر دو نسبت برگشت، شیب و روند منحنی‌ها مشابه می‌باشند.

### سپاسگزاری

بدین وسیله از آقای مهندس فرهاد ترکمان اسدی برای همکاری در نصب و راه‌اندازی واحد تقطیر پیوسته؛ از آقای دکتر دانشور حسینی به دلیل آنالیز اسانس خام اولیه و محصولات بدست آمده از واحد تقطیر و از دیگر همکاران به دلیل کمک و همکاری در نوشتن و تصحیح کُد رایانه‌ای شبیه‌سازی تقطیر چند جزئی، تشکر و قدردانی می‌نمایم.

### منابع مورد استفاده

- Aflatuni, A., Uusitalo, J. and Hohtola, A., 2005. Variation in the amount of yield and in the extract composition between conventionally produced and micropropagated peppermint and spearmint. *Journal of Essential Oil Research*, 15: 67-70.
- Amundson, N.R. and Pontinen, A.J., 1958. Multicomponent Distillation Calculations on a Large Digital Computer. *Industrial and Engineering Chemistry*, 50: 730-736.
- Ashurst, P.R., 1999. *Food Flavorings*. Aspen Publishers Inc., 460p.
- Bienvenu, F.E., Peterson, L. and Edwards, J., 1999. Native and Scotch Spearmint Oil Production. Rural Industries Research and Development Corporation, RIRDC publication, 24p.
- Chemstations, 2000. *ChemCAD, User Guide*. Chemstations Inc. Houston, TX-USA, 189p.
- Daubert, T.E., Danner, R.D., Sibul, H.M. and Stebbins, C.C., 1996. *Physical and Thermodynamic Properties of Pure Chemical Data Compilations*. Taylor and Francis, Washington DC-USA. 2030p.
- Harborne, J.B. and Baxter, H., 2001. *Chemical dictionary of economic plants*. John Wiley and Sons Ltd., 217p.
- Henley, J. and Seader, J.D., 1981. *Equilibrium-stage Separation Operations in Chemical Engineering*. John Wiley & Sons Inc., 742p.
- Holland, C.D., Pendon, G.P. and Gallun, S.E., 1975. *Solve More Distillation Problems Part III: Application to Absorbers*. *Hydrocarbon Processing*, 54: 101-111.

نتایج حاصل از نتایج آزمایشگاهی و شبیه‌سازی عددی مشخص می‌کند که به‌وسیله ستون تقطیر دارای ۵ عدد سینی، درصد ماده مؤثره اسانس نعناع از ۳۱٪ به بیش از ۶۰٪ می‌رسد. در شکل ۶ مشاهده می‌شود که با افزایش نسبت برگشت در تعداد سینی یکسان، مقدار جداسازی هم در مورد نتایج آزمایشگاهی و هم شبیه‌سازی افزایش می‌یابد. شیب و روند صعودی منحنی‌ها در این دو نسبت مشابه می‌باشند. نتایج نشان می‌دهد که با افزایش نسبت برگشت ستون تقطیر از ۲ به ۳، افزایش مقدار جداسازی ماده مؤثره برای ستون تقطیر با ۵ عدد سینی، در حدود ۴٪ وزنی است.

همچنین نتایج بدست آمده از آزمایشها و شبیه‌سازی نشان می‌دهد که با افزایش تعداد سینی‌ها، مقدار درصد لیمونن در محصول خروجی از ریویلر کاهش می‌یابد. مشاهده می‌شود که در تعداد سینی‌های کم، مقدار شیب منحنی‌های شکل ۷ کم بوده و با افزایش سینی‌ها شیب منحنی‌ها زیاد می‌شود. به عبارتی، با افزایش هر یک سینی در تعداد سینی‌های بیشتر، مقدار جداسازی کمتری نسبت به افزایش یک سینی در تعداد سینی‌های کمتر صورت می‌گیرد. مشاهده می‌شود که شیب و گرایش منحنی‌ها به گونه‌ایست که در تعداد سینی‌های بسیار زیاد، مقدار جداسازی به سمت یک عدد ثابت میل می‌کند. بنابراین در تعداد سینی‌های بسیار زیاد با اضافه کردن یک سینی تغییر چندانی در جداسازی رخ نخواهد داد. خطای بین نتایج شبیه‌سازی با نتایج آزمایشگاهی در شکل ۵ نشان داده شده است. از نتایج آزمایشگاهی و نتایج شبیه‌سازی مشاهده می‌شود که با افزایش نسبت برگشت در تعداد سینی یکسان، مقدار درصد لیمونن در محصول خروجی از ریویلر کاهش

- Poling, B.E., Prausnitz, J.M. and O'Connell, J.P., 2001. *The Properties of Gases and Liquids*. McGraw-Hill., 701p.
- Sridhar, L.N. and Lucia, A., 1990a. Analysis and Algorithms of Multicomponent Separation Processes. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 29: 793-803.
- Sridhar, L.N. and Lucia, A., 1990b. Tearing Algorithms for Separation Process Simulation. *Computer and Chemical Engineering*, 14: 901-905.
- Valderrama, J.O. and Silva, A., 2003. Modified Soave-Redlich-Kwong Equations of State Applied to Mixtures Containing Supercritical Carbon Dioxide. *Korean Journal of Chemical Engineering*, 20(4): 709-715.
- Wang, J.C. and Henke, G.E., 1966. Tridiagonal Matrix for Distillation. *Hydrocarbon Processing*, 45: 155-163.
- Kokkini, S., Karousou, R. and Lanaras, T., 1995. Essential oils of spearmint (carvone-rich) plants from the Island of Crete (Greece). *Biochemical Systematic and Ecology*, 23: 287-297.
- Lawrence, B.M., 2008. *Peppermint oil*. Allured Publishing Corporation, 216p.
- Lizhong, C., Yongyou, H., Hongye, S. and Jian, C., 2004. A comparative study for solution methods of a multicomponent distillation model. *IEEE International Conference*, Volume 5, Issue, 10-13, 5: 4249-4253.
- Loperena, R.M., 2003. Simulation of Multicomponent Multistage Vapor-Liquid Separations. An Improved Algorithm Using the Wang-Henke Tridiagonal Matrix Method. *Industrial & engineering chemistry research*, 42: 175-182.
- Nasri, z. and Binous, H., 2007. Applications of the Soave-redlich-Kwong equation of state using Mathematica. *Journal of Chemical Engineering Of Japan*, Vol. 40, No. 6, 534-538.

## Study enrichment of spearmint essential oil by simulation of a continuous multicomponent distillation and comparison to experiments

S. Asadi<sup>1</sup>

1- Department of Chemical Engineering, Khorasan Research Institute for Food Science and Technology, Mashhad, Iran,  
E-mail: asadiinfo@yhoo.com

Received: November 2008

Revised: June 2009

Accepted: June 2009

### Abstract

In this paper, the enriching of the main component of spearmint oil is studied by simulation of a continuous multicomponent distillation. The simulation is based on a bubble point method and Wang-Henke algorithm. The MESH equations are solved using three diagonal matrixes (Thomas method) in each iteration. The results of the experiment are obtained along with the simulation. These experiments were carried out in a continuous distillation column with one to five sieve trays. The effect of tray numbers on the main component enriching is analyzed. The results of the simulation are compared to those of the experiments. The results show that the main component of spearmint essential oil enriched from 31% to 60% by a distillation column with five trays. The results showed the effect of adding one tray with low tray numbers column on the main component enriching was more than adding one tray with several tray numbers column. The results show that the main component separation increased by the increasing of the external reflux ratio from two to three. Increasing the external reflux ratio causes four percent improvement of the main component extraction in the column with five trays.

**Key words:** Spearmint essential oil, separation, enriching, continues distillation, simulation, bubble point method.