

# بررسی تجربی حذف ترکیبات گوگردی از سیستم میعانات گازی گوگردی سنتزی چهارتایی با استفاده از روش گوگردزدایی اکسایشی در حضور امواج فراصوت

آمنه تقی زاده<sup>۱</sup>، مریم آسمانی<sup>۱\*</sup>، فریدون اسماعیل زاده<sup>۲</sup>، ابوالحسن عامری<sup>۱</sup>

<sup>۱</sup>گروه مهندسی شیمی، دانشکده فنی مهندسی ۲، دانشگاه آزاد اسلامی، شیراز، ایران

<sup>۲</sup>گروه مهندسی شیمی، دانشکده مهندسی شیمی، نفت و گاز، دانشگاه شیراز، ایران

**چکیده:** از مخازن گازی علاوه بر گاز طبیعی محصول نفتی دیگری به نام میعانات گازی تولید می شود. وجود هر یک از آلاینده ها مانند ترکیبات گوگردی موجود در آن باعث ایجاد مشکلاتی در صنایع پایین دستی و یا آسیب به محیط زیست می شود. در این پژوهش گوگردزدایی یک سیستم میعانات گازی چهارتایی سنتزی شامل نرمال هپتان با ترکیبات مختلف گوگردی، ترت بوتیل مرکاپتان (آلیفاتیک از نوع تیول)، دی پروپیل سولفید (آلیفاتیک از نوع سولفید) و بنزو تیوفن (آروماتیک از نوع تیوفن) در محدوده ۳۰۰-۳۰۰۰ ppm با استفاده از فرآیند موجدهی فراصوت (UAOD) انجام شد. برای این منظور، متغیرهای عملیاتی مختلف از جمله هیدروژن پراکسید (۷۰-۱۰۰ v/v) به عنوان اکسید کننده، فرمیک اسید (۷۰-۵ v/v) به عنوان بهبود دهنده، فسفوتنگستیک اسید (۳۰-۱ w/w) به عنوان کاتالیزگر، ایزوبوتانول (۳۰-۱ v/v) به عنوان انتقال دهنده فازی و موجدهی فراصوت (۵-۴۰ دقیقه) بر اساس بازده گوگردزدایی مورد بررسی قرار گرفت. طراحی آزمایشات با روش سطح پاسخ (RSM) مدل طرح مرکب مرکزی (CCD) طراحی شده است. استخراج ترکیبات گوگردی اکسید شد با حلال ان-ان دی متیل فراماید انجام شد. سولفور باقی مانده با استاندارد ASTM D7039 آنالیز شد. بیشترین بازده حذف گوگرد در نقطه بهینه با مقادیر مرکاپتان (۱۱۰۵/۹۹ ppm)، سولفید (۲۲۵۲/۵۰ ppm)، تیوفن (۲۹۶۵/۴۸ ppm)، هیدروژن پراکسید (۲۳/۵۷ % v/v)، فرمیک اسید (۴۹/۲۷ % v/v)، فسفوتنگستیک اسید (۲۱/۱۵ % w/w)، ایزوبوتانول (۲۴/۵۶ % v/v) و زمان موجدهی فراصوت (۲۱/۱۷ min)، ۹۹/۹۲ % بدست آمد. علاوه بر این، یک مدل تجربی برای پیش بینی کارایی گوگردزدایی با خطای کمتر از ۰/۱ درصد پیشنهاد شد.

**واژگان کلیدی:** موجدهی فراصوت، میعانات گازی، طراحی آزمایش.

[masemani@gmail.com](mailto:masemani@gmail.com)

صنعتی و مصارف دیگر هستند و بر این اساس حذف ترکیبات گوگردی از میعانات گازی امری اجتناب ناپذیر است، لذا، ابداع و استفاده از روشی نوین برای گوگردزدایی مستقیم از میعانات گازی ضرورت دارد. با توجه به اهمیت سولفورزدایی و بهبود روش های موجود صنعتی، مطالعات در این زمینه همچنان ادامه دارد و

## ۱- مقدمه

معمولا از چاه های گازی علاوه بر گاز، میعانات گازی نیز استحصال می شود که در اغلب موارد گاز و میعانات گازی تولید شده دارای ترکیبات گوگردی چند برابر حد مجاز برای فعالیت های

روش‌های مختلفی نیز برای حذف سولفور بیان شده است که عبارتند از: هیدرودسولفوریزاسیون<sup>۱</sup>، هیدرودسولفوریزاسیون عمیق<sup>۲</sup>، سولفورزدایی زیستی<sup>۳</sup>، سولفورزدایی اکسایشی<sup>۴</sup> و سولفورزدایی اکسایشی در حضور امواج فراصوت<sup>۵</sup>. سولفورزدایی که امروزه در صنعت انجام می‌شود، هیدرودسولفوریزاسیون است که این فرآیند نیازمند دمای بالا (بیشتر از ۴۰۰ درجه سانتیگراد)، فشار هیدروژن بالا (بیشتر از ۱۰۰۰ اتمسفر)، استفاده از کاتالیزگرهای فلزی، راکتورهای بزرگ، با زمان واکنش طولانی می‌باشد [۱]. هزینه‌های عملیاتی روش هیدرودسولفوریزاسیون زیاد است و قادر به حذف ترکیبات آروماتیک گوگردی نیز نمی‌باشد [۲]. روش هیدرودسولفوریزاسیون عمیق همانند روش هیدرودسولفوریزاسیون می‌باشد که با انجام اصلاحاتی مانند استفاده زیادتر از مقدار کاتالیزگر فعال، زمان بیشتر انجام فرآیند و کار در دما و فشار بالاتر بر روی این روش می‌تواند علاوه بر ترکیبات آلیفاتیک مقادیر محدودی از ترکیبات آروماتیک گوگردی را حذف کند، از معایب هیدرودسولفوریزاسیون عمیق انجام عملیات تحت دما و فشار بالا، نیازمند احداث واحد تولید هیدروژن به دلیل مصرف زیاد هیدروژن، کاهش بازده روش با افزایش ترکیبات قوی آروماتیک گوگردی، کاهش عمر کاتالیزگر، هزینه زیاد عملیات می‌باشد [۳]. سولفورزدایی زیستی در دما و فشار پایین و در حضور میکروارگانیسم‌هایی صورت می‌گیرد که توانایی تخریب ترکیبات گوگردی را دارند. گوگردزدایی در نفت خام به طور مستقیم با انتخاب گونه‌های میکروبی مناسب امکان پذیر می‌شود و به دو روش گوگردزدایی زیستی هوازی و گوگردزدایی زیستی بی‌هوازی قابل انجام است [۴]. عدم تجاری سازی فناوری، واکنش‌های ناپایدار، زیاد بودن مدت زمان عملیات از معایب آن می‌باشد [۵]. روش سولفورزدایی اکسایشی، شامل واکنش شیمیایی بین یک ماده اکسید کننده و گوگرد است که عدم نیاز به فشار و دمای بالا، توانایی اکسید کردن ترکیبات گوگردی از مزایای آن می‌باشد [۶]. همچنین کاهش کمی و کیفی سوخت توسط اکسید کننده‌ها، هدر رفتن ترکیبات با ارزش سوخت با انتخاب نامناسب حلال از معایب آن می‌باشد [۷].

سولفورزدایی اکسایشی در حضور موج‌دهی فراصوت (UAOD) روشی جدیدی است که باعث شده است واکنش اکسیداسیون سریع‌تر، ایمن‌تر و اقتصادی‌تر انجام شود. فرآیند UAOD تحت شرایط عملیاتی متعادلی مانند دمای محیط و فشار اتمسفری انجام می‌شود و منجر به حذف انتخاب‌پذیر ترکیبات گوگردی از هیدروکربن‌های سوخت می‌شود [۸]. توانایی حذف ترکیبات گوگردی و همچنین ترکیبات آروماتیک گوگردی در شرایط فشار و دمای پایین، تبدیل سولفور به سولفون، زمان واکنش اندک، بدون مخاطرات شیمیایی و محصولات جانبی مخاطره‌آمیز و توانایی بازیابی کاتالیزگر از مزایای این روش می‌باشد. بنابراین به هیدروژن و کاتالیزگر گران قیمت، به همراه راکتور بزرگ نیاز نیست. کلیات انجام روش UAOD بدین گونه است که ابتدا مخلوط اکسید کننده که از ترکیب چند ماده شامل اسید و اکسید کننده تهیه شده است را به مایع هیدروکربنی اضافه کرده و تحت دمای خاصی با میزان انرژی مشخص در مدت زمان معین موج‌دهی فراصوت انجام می‌شود. پس از سردسازی و جداسازی خودبه‌خودی فازی آلی و آبی، حلال به مخلوط اضافه می‌گردد و ترکیبات گوگردی اکسید شده توسط حلال جدا شده و وارد فاز آبی می‌شود [۹]. در این روش دو پارامتر اساسی مؤثر بر بازدهی گوگردزدایی وجود دارد که عبارتند از: انتخاب ترکیب اکسید کننده مناسب و انتخاب حلال مناسب می‌باشد. روش UAOD برای حذف ترکیبات گوگردی به عنوان روشی مناسب و کارآمد مطرح گردیده است [۱۰]. تقی‌زاده و همکارانش سه نمونه میعانات گازی سنتزی با ترکیبات گوگردی به ترتیب ترت بوتیل مرکاپتان (نماینده آلیفاتیک از نوع تیول)، دی پروپیل سولفید (نماینده آلیفاتیک از نوع سولفید) و بنزو تیوفن (نماینده آروماتیک‌ها) تهیه کردند و با استفاده از روش گوگردزدایی اکسایشی به کمک موج‌دهی فراصوت (UAOD) موفق به حذف ۹۹/۹۳٪ حذف مرکاپتان، ۹۹/۶۳٪ حذف سولفید و ۹۹/۸۶٪ حذف تیوفن شدند. همچنین پارامترهای مختلفی جهت کاهش ترکیبات گوگردی در فرآیند UAOD مورد بررسی قرار دادند. نتایج نشان داد که پراکسید هیدروژن، فرمیک اسید، فسفو تنگستیک اسید و ایزوبوتانول به ترتیب موثرترین اکسیدکننده، بهبود دهنده، کاتالیزور و عامل‌های انتقال فاز هستند [۱۱]. پژوهش حاضر در ادامه این کار تعریف شده که هدف حذف ترکیبات گوگردی مختلف از یک

<sup>1</sup> Hydrodesulfurization (HDS)

<sup>2</sup> Deep hydrodesulfurization (Deep HDS)

<sup>3</sup> Biodesulfurization

<sup>4</sup> Oxidative desulfurization (ODS)

<sup>5</sup> Ultrasound Assisted Oxidative Desulfurization (UAOD)

مخلوط چهارجزی میعانات گازی سنتزی با استفاده از فرآیند UAOD می باشد. تا کنون کاری جهت حذف گوگرد از میعانات گازی با ترکیبات گوگردی مختلف بصورت چهار جزیی با استفاده از روش UAOD صورت نگرفته است.

## ۲- بخش تجربی

### ۲-۱- مواد شیمیایی مورد استفاده

در آزمایش‌ها مواد شیمیایی مورد استفاده شامل هیدروژن پراکسید (با خلوص ۳۰٪ حجمی) فرمیک اسید (با خلوص ۹۹٪ حجمی)، فسفوتنگستیک اسید (خالص)، ایزوبوتانول (با خلوص ۹۹٪ حجمی)، ترت بوتیل مرکپتان (با خلوص ۹۸٪ حجمی)، نرمال هپتان (با خلوص ۹۹٪ حجمی)، دی پروپیل سولفید (با خلوص ۹۸٪ حجمی)، بنزو تیوفن (با خلوص ۹۸٪ حجمی) و ان-ان-دی متیل فرمامید (با خلوص ۹۹/۸٪ حجمی) می‌باشند که همه مواد شیمیایی از شرکت مرک آلمان می‌باشند.

### ۲-۲- دستگاه‌های مورد استفاده

دستگاه‌های مورد استفاده در این پژوهش شامل: حمام موددهی فراصوت مدل VCLEAN 1-L6 ساخت کشور ایران با تولید فرکانس ۴۰ کیلوهرتز و توان ۱۵۰ وات با تنظیم دما به کمک سیکل چرخشی آب به حجم ۶ لیتر، هیتر همزن مغناطیسی مدل MSH basic ساخت کشور آلمان با توان همزن مغناطیسی و گرمایش به صورت دما ثابت با شار حرارتی ثابت در گستره کاری شار حرارتی تا ۴۰۰ وات و محدوده سرعت همزدن تا ۲۰۰۰ دور بر دقیقه، ترازوی دقیق آزمایشگاهی مدل سارتوریوس ساخت کشور آلمان با دقت ۰/۱ میلی‌گرم، دستگاه آنالیز سولفور کل Sindie 7039 G3 مدل Xos ساخت کشور آمریکا با فرکانس ۶۳-۴۷ هرتز، قدرت ۲۰۰ تا ۲۴۰ جریان متناوب ولتاژ و جریان ۶ آمپر، نمونه گیر با دقت ۰/۱ ppm و سایر وسایل شیشه‌ای از جنس پریکس می‌باشند [۱۱].

### ۲-۳- طراحی آزمایش

جدول ۱ نوع و مقادیر متغیرها جهت انجام آزمایش‌ها را نشان

می‌دهد. با توجه به اهمیت پارامترها، فاکتورهایی که در جدول ۱ نشان داده شده‌اند متغیرهای مستقل می‌باشند. مقادیر مرکپتان (X<sub>1</sub>)، سولفید (X<sub>2</sub>)، تیوفن (X<sub>3</sub>)، اکسید کننده (هیدروژن پراکسید (X<sub>4</sub>))، بهبود دهنده (فرمیک اسید (X<sub>5</sub>))، کاتالیزگر فسفوتنگستیک اسید (X<sub>6</sub>)، عامل انتقال دهنده فازی ایزو بوتانول (X<sub>7</sub>) و زمان موددهی فراصوت (X<sub>8</sub>) به عنوان فاکتورهای متغیر در نظر گرفته شده‌اند. در این پژوهش از نرم افزار Design Expert نسخه ۱۳ استفاده شد. طراحی آزمایشات با انتخاب مدل سطح پاسخ<sup>۱</sup> روش طرح مرکب مرکزی<sup>۲</sup> و نوع ۱/۲ کسر (نقاط مکعبی نصف می‌شوند) با آلفای ۲ انجام شد. شامل ۸ متغیر و ۵ سطح با کدهای (-۲)، (-۱)، (۰)، (+۱) و (+۲) می‌باشد. تعداد آزمایشات در این مرحله ۱۵۴ آزمایش شد که شامل ۱۴۴ نقطه مکعبی (نقطه عاملی)، ۱۶ نقطه محوری و ۱۰ نقطه مرکزی می‌باشد.

### ۲-۴- روش انجام اکسیداسیون ترکیبات گوگردی

با توجه به انواع ترکیبات گوگردی موجود در مایعات گازی که به دو دسته آلیفاتیک‌ها همانند تیول‌ها (مرکپتان‌ها)، سولفید و دی‌سولفیدها و آروماتیک‌ها همانند تیوفن، بنزو تیوفن و دی‌بنزو تیوفن تقسیم می‌شوند، در این پژوهش از هر گروه، یک نماینده ترکیب گوگردار انتخاب و سپس حذف مخلوط آن‌ها مورد بررسی قرار گرفت و بر این اساس یک نمونه سنتزی چهار جزیی ساخته شده است. نمونه سنتزی میعانات گازی چهار جزیی، شامل نرمال هپتان+ محدوده ۰ الی ۳۰۰۰ ppm ترت بوتیل مرکپتان+ محدوده ۰ الی ۳۰۰۰ ppm دی پروپیل سولفید+ محدوده ۰ الی ۳۰۰۰ ppm بنزو تیوفن می‌باشد.

با توجه به طراحی آزمایش ارائه شده در جدول ۱ ابتدا نمونه سنتزی شامل نرمال هپتان و مقادیر متغیری از ترت بوتیل مرکپتان، دی پروپیل سولفید و بنزو تیوفن ساخته شده و به ظرف سونو راکتور منتقل شده است و به آن مقادیر متغیری از مخلوط اکسید کننده شامل هیدروژن پراکسید، فرمیک اسید، فسفوتنگستیک اسید و ایزوبوتانول مطابق با طراحی آزمایش اضافه شد (جدول ۲ مقادیر ترکیبات ۱۵۴ آزمایش انجام شده را

<sup>1</sup> Response Surface Methodolog (RSM)

<sup>2</sup> Central Composite Design (CCD)

جدول ۱. طراحی آزمایش به روش سطح پاسخ، طرح مرکب مرکزی با هشت متغیر در پنج سطح به منظور بررسی حذف مخلوط گوگردی از نمونه میعانات گازی

سطح و مقادیر آن ها					بازده تغییرات	متغیرها
-۲	-۱	۰	+۱	+۲		
۰	۷۵۰	۱۵۰۰	۲۲۵۰	۳۰۰۰	۰-۳۰۰۰ ppm	مقدار گوگرد (از نوع ترت بوتیل مرکاپتان(X <sub>1</sub> ))
۰	۷۵۰	۱۵۵۰	۲۲۵۰	۳۰۰۰	۰-۳۰۰۰ ppm	مقدار گوگرد (از نوع دی پروپیل سولفید(X <sub>2</sub> ))
۰	۷۵۰	۱۵۵۰	۲۲۵۰	۳۰۰۰	۰-۳۰۰۰ ppm	مقدار گوگرد (از نوع بنزو تیوفن(X <sub>3</sub> ))
۱۰	۲۵	۴۰	۵۵	۷۰	۱۰-۷۰٪v/v	مقدار اکسید کننده (هیدروژن پراکسید(X <sub>4</sub> ))
۵	۲۱/۲۵	۳۷/۵	۵۳/۷۵	۷۰	۵-۷۰٪v/v	مقدار بهبود دهنده (فرمیک اسید(X <sub>5</sub> ))
۱	۸/۲۵	۱۵/۵	۲۲/۷۵	۳۰	۱-۳۰٪w/w	مقدار کاتالیزگر (فسفونگستیک اسید(X <sub>6</sub> ))
۱	۸/۲۵	۱۵/۵	۲۲/۷۵	۳۰	۱-۳۰٪v/v	مقدار انتقال دهنده فازی (ایزو بوتانول(X <sub>7</sub> ))
۵	۱۳/۷۵	۲۲/۵	۳۱/۲۵	۴۰	۵-۴۰ min	مدت زمان(X <sub>8</sub> )

جدول ۲. نتایج حاصل از طراحی آزمایش برای حذف مخلوط گوگردی با روش اکسیداسیون فراصوت از نمونه میعانات گازی، به کمک روش پاسخ سطح طرح مرکب مرکزی

شماره	X1(ppm)	X2(ppm)	X3(ppm)	X4(%v/v)	X5(%v/v)	X6(%w/w)	X7(%v/v)	X8(دقیقه)	SER(GC4)%
۱	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۶/۹۳
۲	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۸۸
۳	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۸۶
۴	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۹۳
۵	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۸۱
۶	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۹۸
۷	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۸۹
۸	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۰۹
۹	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۱۶
۱۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۶/۵۶
۱۱	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۶/۳۳
۱۲	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۷۵
۱۳	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۶/۴۹
۱۴	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۸۱
۱۵	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۶۹
۱۶	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۲۹
۱۷	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۰۳
۱۸	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۳۸
۱۹	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۱۱
۲۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۲۱
۲۱	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۲۲
۲۲	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۳۷
۲۳	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۱۲
۲۴	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۸/۱۰
۲۵	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۶/۷۹
۲۶	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۸۲
۲۷	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۵۱

## ادامه جدول ۲

۲۸	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۷۱
۲۹	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۵۹
۳۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۸۶
۳۱	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۴۷
۳۲	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۰۳
۳۳	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۹۸
۳۴	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۶۲
۳۵	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۱۱
۳۶	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۳۱
۳۷	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۶/۹۳
۳۸	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۴۸
۳۹	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۷۵
۴۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۸/۰۴
۴۱	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۰۲
۴۲	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۴۹
۴۳	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۲۳
۴۴	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۴۵
۴۵	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۳۹
۴۶	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۴۹
۴۷	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۳۶
۴۸	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۹۹
۴۹	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۹۴
۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۳۱
۵۱	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۱۲
۵۲	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۸/۲۶
۵۳	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۲۶
۵۴	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۸/۲۲
۵۵	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۸/۱۴
۵۶	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۹۷
۵۷	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۷/۸۱
۵۸	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۳۱
۵۹	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۶/۹۷
۶۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۳۹
۶۱	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۱۸
۶۲	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۵۳
۶۳	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۳۱	۹۸/۱۹
۶۴	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۸/۲۵	۱۳	۹۷/۷۱
۶۵	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۱۳
۶۶	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۳۷
۶۷	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۷/۹۸
۶۸	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۲۱
۶۹	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۱۹
۷۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۳۰
۷۱	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۰۶

## ادامه جدول ۲

۷۲	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۷۳
۷۳	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۷/۲۴
۷۴	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۷/۷۳
۷۵	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۷/۵۱
۷۶	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۸۱
۷۷	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۶۶
۷۸	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۷/۹۳
۷۹	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۷/۷۵
۸۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۱۲
۸۱	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۵۱
۸۲	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۵۷
۸۳	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۲۵
۸۴	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۹۲
۸۵	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۴۹
۸۶	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۹۸
۸۷	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۸۵
۸۸	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۴۸
۸۹	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۷/۹۷
۹۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۷/۸۹
۹۱	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۷/۶۹
۹۲	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۷۰
۹۳	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۷/۷۶
۹۴	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۹۵
۹۵	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۶۱
۹۶	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۸/۲۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۲۹
۹۷	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۴۴
۹۸	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۰۱
۹۹	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۷۴
۱۰۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۹/۶۹
۱۰۱	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۸۹
۱۰۲	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۹/۷۱
۱۰۳	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۹/۶۲
۱۰۴	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۶۷
۱۰۵	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۷/۹۶
۱۰۶	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۳۷
۱۰۷	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۷/۹۳
۱۰۸	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۳۶
۱۰۹	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۲۶
۱۱۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۴۹
۱۱۱	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۳۱
۱۱۲	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۲۱/۲۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۹۹
۱۱۳	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۱۹
۱۱۴	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۹۲
۱۱۵	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۶۹

## ادامه جدول ۲

۱۱۶	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۸۷
۱۱۷	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۸۱
۱۱۸	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۹۱
۱۱۹	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۸۳
۱۲۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۹/۷۳
۱۲۱	۷۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۸/۵۲
۱۲۲	۲۲۵۰	۷۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۶۲
۱۲۳	۷۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۱۳
۱۲۴	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۷۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۹/۵۶
۱۲۵	۷۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۸/۲۶
۱۲۶	۲۲۵۰	۷۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۹/۶۰
۱۲۷	۷۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۱۳	۹۹/۴۳
۱۲۸	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۲۲۵۰	۵۵	۵۳/۷۵	۲۲/۷۵	۲۲/۷۵	۳۱	۹۹/۵۶
۱۲۹	.	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۶۹
۱۳۰	۳۰۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۴۱
۱۳۱	۱۵۰۰	.	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۷۳
۱۳۲	۱۵۰۰	۳۰۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۸/۸۹
۱۳۳	۱۵۰۰	۱۵۰۰	.	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۶۹
۱۳۴	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۳۰۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۲۱
۱۳۵	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۸/۲۱
۱۳۶	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۷۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۷/۵۸
۱۳۷	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۷/۹۸
۱۳۸	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۷۰	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۷۱
۱۳۹	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱	۱۵/۵	۲۲	۹۸/۱۱
۱۴۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۳۰	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۴۸
۱۴۱	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱	۲۲	۹۷/۹۶
۱۴۲	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۳۰	۲۲	۹۹/۴۳
۱۴۳	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۵	۹۸/۱۲
۱۴۴	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۴۰	۹۹/۳۳
۱۴۵	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۳۱
۱۴۶	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۳۱
۱۴۷	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۳۱
۱۴۸	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۳۱
۱۴۹	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۳۱
۱۵۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۳۱
۱۵۱	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۳۱
۱۵۲	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۳۱
۱۵۳	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۳۱
۱۵۴	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۱۵۰۰	۴۰	۳۷/۵	۱۵/۵	۱۵/۵	۲۲	۹۹/۳۱

نشان می‌دهد). سپس ظرف سونو راکتور به مدت ۵-۴۰ دقیقه در معرض موج‌دهی فراصوت قرار داده شد(حمام فراصوت را در

نشان می‌دهد). سپس ظرف سونو راکتور به مدت ۵-۴۰ دقیقه در معرض موج‌دهی فراصوت قرار داده شد(حمام فراصوت را در

حذف سولفور پس از انجام آزمایشات و مقادیر هر نمونه را در جدول ۲ آورده شده است. در جدول ۳ مقدار ضریب همبستگی ( $R^2$ ) برابر با ۰/۸۹۲۴ برای رگرسیون مدل ارائه شده است. ضریب همبستگی تنظیم شده برابر با ۰/۸۴۹ و ضریب همبستگی پیش‌بینی شده ۰/۷۳۴۷ می‌باشد که اختلاف کم ضریب رگرسیون تنظیم شده با ضریب رگرسیون پیش‌بینی است. با توجه به جدول آنالیز واریانس (ANOVA) که در جدول ۳ قابل مشاهده است، متغیرهایی که P-value آنها کمتر از ۰/۰۵۰۰ باشد، تأثیرات این ترم‌ها بر متغیر پاسخ بیشتر می‌شود و غیر قابل چشم‌پوشی هستند. بنابراین متغیرهای  $X_1, X_2, X_3, X_4, X_5, X_6, X_7, X_8, X_6^2, X_7^2, X_8^2$  دارای تأثیرات بیشتری نسبت به دیگر متغیرها می‌باشند که ضرایب این متغیرها در جدول ۳ ارائه شده است. برای نمونه‌ی سنتزی مایعات گازی، معادله درجه دوم به صورت معادله ۲ برحسب کد ارائه می‌شود. با توجه به شکل ۲ مشاهده شد که با افزایش مقدار گوگرد، در نمونه‌های نرمال هپتان بازده حذف گوگرد بیشتر می‌شود.

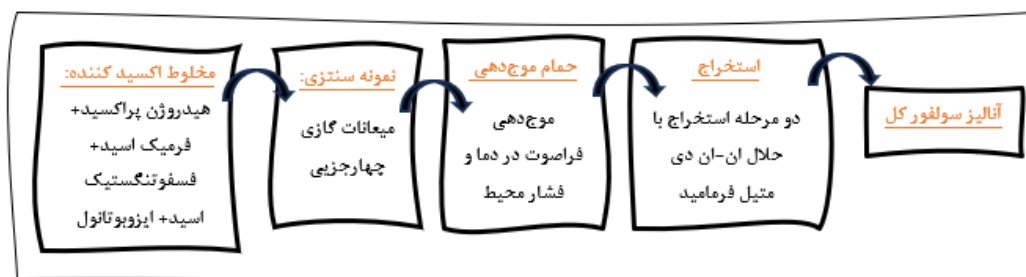
دمای  $35 \pm 2$  درجه سانتی گراد و توان ۱۵۰ وات و فرکانس ۴۰ کیلوهرتز ثابت نگه داشته شد). استخراج فاز آلی طی دو مرحله با استفاده از حلال ان-ان دی متیل فرمامید (در مجموع مقدار حلال مصرفی به نسبت ۱:۱ با نمونه فاز آلی) انجام شد و در نهایت بر روی نمونه فاز آلی آنالیز سولفور کل با استاندارد ASTM D7039 انجام شد و درصد بازده حذف گوگرد (%SRE) با استفاده از معادله ۱ محاسبه گردید.

$$\%SER = (C_i - C_f) / (C_i) \times 100 \quad (1)$$

در معادله ۱، %SRE درصد بازده حذف گوگرد،  $C_i$  مقدار سولفور اولیه (ppm) و  $C_f$  مقدار سولفور نهایی (ppm) می‌باشد. نمای کلی مرحله به مرحله انجام آزمایشات از نمونه سنتزی میعان‌گازی چهار جزئی در شکل ۱ نشان داده شده است.

### ۳- نتایج و بحث

در این مطالعه، جهت بهینه کردن پارامترهای سولفورزدایی به روش اکسیداسیون فراصوت، ارتباط بین پاسخ‌ها و متغیرها بصورت معادله درجه دوم، بیان می‌شود. نتایج



شکل ۱. نمای کلی مراحل انجام آزمایشات

جدول ۳. نتایج حاصل از آنالیز جدول واریانس (ANOVA)

Source	Sum of Square	Df	آنالیز واریانس			ضریب معادله درجه دوم بر حسب کد
			Mean Square	F-Value	P-Value	
Model	۹۹/۸۱	۴۴	۲/۱۵	۲۰/۵۵	< ۰/۰۰۰۱	+۹۹/۳۹
$X_1$	۶/۵۶	۱	۶/۵۶	۶۲/۵۹	< ۰/۰۰۰۱	+۰/۲۱۹۷
$X_2$	۱/۴۶	۱	۱/۴۶	۱۳/۹۴	۰/۰۰۰۳	+۰/۱۰۳۷
$X_3$	۳/۵۷	۱	۳/۵۷	۳۴/۰۵	< ۰/۰۰۰۱	+۰/۱۶۲۱
$X_4$	۸/۹۷	۱	۸/۹۷	۶۵/۴۹	< ۰/۰۰۰۱	-۰/۲۵۶۸
$X_5$	۳/۳۹	۱	۳/۳۹	۳۲/۳۵	< ۰/۰۰۰۱	+۰/۱۵۷۹
$X_6$	۸/۷۳	۱	۸/۷۳	۸۳/۲۵	< ۰/۰۰۰۱	+۰/۲۵۳۴

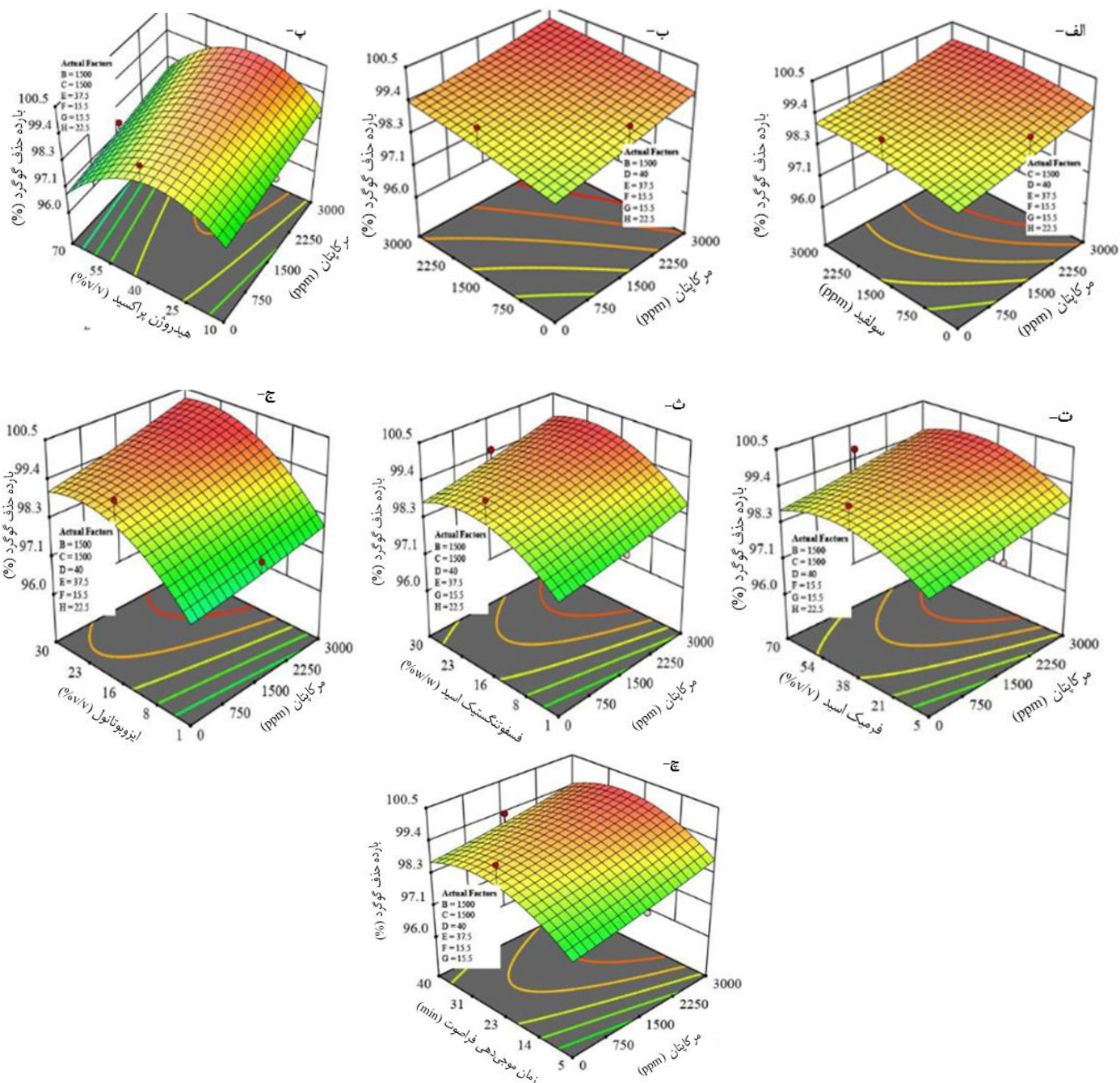


ادامه جدول ۳

X <sub>7</sub>	۳۲/۰۵	۱	۳۲/۰۵	۳۰۵/۵۷	< ۰/۰۰۰۱	+۰/۴۸۵۴
X <sub>8</sub>	۵/۳۰	۱	۵/۳۰	۵۰/۵۰	< ۰/۰۰۰۱	+۰/۱۹۷۴
X <sub>1</sub> X <sub>2</sub>	۰/۰۰۵۸	۱	۰/۰۰۵۸	۰/۰۵۵۱	۰/۸۱۴۹	-۰/۰۰۶۸
X <sub>1</sub> X <sub>3</sub>	۰/۰۳۶۵	۱	۰/۰۳۶۵	۰/۳۴۷۵	۰/۵۵۶۷	-۰/۰۱۶۹
X <sub>1</sub> X <sub>4</sub>	۰/۰۱۸۵	۱	۰/۰۱۸۵	۰/۱۷۶۷	۰/۶۷۵۱	+۰/۰۱۲۰
X <sub>1</sub> X <sub>5</sub>	۰/۰۰۰۲	۱	۰/۰۰۰۲	۰/۰۰۱۵	۰/۹۶۹۶	+۰/۰۰۱۱
X <sub>1</sub> X <sub>6</sub>	۰/۰۳۲۵	۱	۰/۰۳۲۵	۰/۳۱۰۰	۰/۵۷۸۸	+۰/۰۱۵۹
X <sub>1</sub> X <sub>7</sub>	۰/۱۴۵۸	۱	۰/۱۴۵۸	۱/۳۰	۰/۲۴۱۰	+۰/۰۳۳۷
X <sub>1</sub> X <sub>8</sub>	۰/۰۱۲۴	۱	۰/۰۱۲۴	۰/۱۱۸۳	۰/۷۳۱۶	-۰/۰۰۹۸
X <sub>2</sub> X <sub>3</sub>	۰/۰۴۲۸	۱	۰/۰۴۲۸	۰/۴۰۷۹	۰/۵۲۴۴	+۰/۰۱۸۳
X <sub>2</sub> X <sub>4</sub>	۰/۰۱۰۵	۱	۰/۰۱۰۵	۰/۱۰۰۲	۰/۷۷۲۲	-۰/۰۰۹۱
X <sub>2</sub> X <sub>5</sub>	۰/۰۲۳۱	۱	۰/۰۲۳۱	۰/۲۲۰۴	۰/۶۳۹۷	-۰/۰۱۳۴
X <sub>2</sub> X <sub>6</sub>	۰/۰۵۲۰	۱	۰/۰۵۲۰	۰/۴۹۵۸	۰/۴۸۲۸	+۰/۰۲۰۲
X <sub>2</sub> X <sub>7</sub>	۰/۰۷۵۱	۱	۰/۰۷۵۱	۰/۷۱۵۸	۰/۳۹۹۴	+۰/۰۲۴۲
X <sub>2</sub> X <sub>8</sub>	۰/۰۰۱۵	۱	۰/۰۰۱۵	۰/۰۱۴۴	۰/۹۰۴۶	-۰/۰۰۳۴
X <sub>3</sub> X <sub>4</sub>	۰/۰۰۲۰	۱	۰/۰۰۲۰	۰/۰۱۸۶	۰/۸۹۱۷	+۰/۰۰۳۹
X <sub>3</sub> X <sub>5</sub>	۰/۰۱۴۰	۱	۰/۰۱۴۰	۰/۱۳۳۸	۰/۷۱۵۳	-۰/۰۱۰۵
X <sub>3</sub> X <sub>6</sub>	۰/۰۲۴۲	۱	۰/۰۲۴۲	۰/۲۳۰۷	۰/۶۳۱۹	+۰/۰۱۳۷
X <sub>3</sub> X <sub>7</sub>	۰/۱۵۶۸	۱	۰/۱۵۶۸	۱/۵۰	۰/۲۲۴۱	+۰/۰۳۵۰
X <sub>3</sub> X <sub>8</sub>	۰/۰۰۶۳	۱	۰/۰۰۶۳	۰/۰۰۰۳	۰/۸۰۶۴	+۰/۰۰۷۰
X <sub>4</sub> X <sub>5</sub>	۰/۳۷۸۴	۱	۰/۳۷۸۴	۳/۶۱	۰/۰۰۰۱	+۰/۰۵۴۴
X <sub>4</sub> X <sub>6</sub>	۰/۰۷۳۲	۱	۰/۰۷۳۲	۰/۶۹۷۵	۰/۴۰۵۵	+۰/۰۲۳۹
X <sub>4</sub> X <sub>7</sub>	۰/۱۱۸۸	۱	۰/۱۱۸۸	۱/۱۳	۰/۲۸۹۵	-۰/۰۳۰۵
X <sub>4</sub> X <sub>8</sub>	۰/۰۰۰۳	۱	۰/۰۰۰۳	۰/۰۰۰۳	۰/۹۵۶۶	+۰/۰۰۱۶
X <sub>5</sub> X <sub>6</sub>	۰/۰۰۰۷	۱	۰/۰۰۰۷	۰/۰۰۰۶۷	۰/۹۳۴۹	-۰/۰۰۲۳
X <sub>5</sub> X <sub>7</sub>	۰/۰۱۲۴	۱	۰/۰۱۲۴	۰/۱۱۸۳	۰/۷۳۱۶	-۰/۰۰۹۸
X <sub>5</sub> X <sub>8</sub>	۰/۰۳۶۵	۱	۰/۰۳۶۵	۰/۳۴۷۵	۰/۵۵۶۸	-۰/۰۱۶۹
X <sub>6</sub> X <sub>7</sub>	۱/۸۰	۱	۱/۸۰	۱۷/۱۲	< ۰/۰۰۰۱	+۰/۱۱۸۴
X <sub>6</sub> X <sub>8</sub>	۰/۰۴۷۳	۱	۰/۰۴۷۳	۰/۴۵۰۸	۰/۵۰۳۴	-۰/۰۱۹۲
X <sub>7</sub> X <sub>8</sub>	۱/۰۶	۱	۱/۰۶	۱۰/۱۳	۰/۰۰۱۹	-۰/۰۹۱۱
X <sub>1</sub> <sup>2</sup>	۰/۰۰۵۷	۱	۰/۰۰۵۷	۰/۰۵۴۰	۰/۸۱۶۸	+۰/۰۱۲۷
X <sub>2</sub> <sup>2</sup>	۰/۰۷۷۹	۱	۰/۰۷۷۹	۰/۷۴۳۱	۰/۳۹۰۶	-۰/۰۴۷۳
X <sub>3</sub> <sup>2</sup>	۰/۰۰۵۲	۱	۰/۰۰۵۲	۰/۰۵۰۰	۰/۸۲۳۵	-۰/۰۱۲۳
X <sub>4</sub> <sup>2</sup>	۵/۶۱	۱	۵/۶۱	۵۳/۵۰	< ۰/۰۰۰۱	-۰/۴۰۱۰
X <sub>5</sub> <sup>2</sup>	۰/۹۳۲۹	۱	۰/۹۳۲۹	۸/۹۰	۰/۰۰۳۵	-۰/۱۶۳۵
X <sub>6</sub> <sup>2</sup>	۱/۰۸	۱	۱/۰۸	۱۰/۳۱	۰/۰۰۱۷	-۰/۱۷۶۰
X <sub>7</sub> <sup>2</sup>	۱/۴۱	۱	۱/۴۱	۱۳/۴۴	۰/۰۰۰۴	-۰/۲۰۱۰
X <sub>8</sub> <sup>2</sup>	۱/۳۱	۱	۱/۳۱	۱۲/۴۶	۰/۰۰۰۶	-۰/۱۹۳۵
Residual	۱۱/۴۳	۱۰۹	۰/۱۰۴۹			
Lack of Fit	۱۱/۴۳	۱۰۰	۰/۱۱۴۳			
Pure Error	۰/۰۰۰۰	۹	۰/۰۰			
Cor Total	۱۰۶/۲۵	۱۵۳				

Fit statistics

R<sup>2</sup>= ۰/۸۹۲۴, Adj-R<sup>2</sup>= ۰/۸۴۸۹, Pred-R<sup>2</sup>= ۰/۷۳۴۷, Model Precision= ۱۹/۷۵۲۹



شکل ۲. تأثیر متقابل مقادیر مختلف ترکیب مرکباتی نسبت به بازده حذف گوگرد در نمونه سنتزی بر حسب (الف) ترکیب گوگردی سولفیدی، (ب) ترکیب گوگردی تیوفنی، (پ) هیدروژن پراکسید، (ت) فرمیک اسید، (ث) فسفوتنگستیک اسید، (ج) ایزو بوتانول، (چ) زمان موج‌دهی فراصوت.

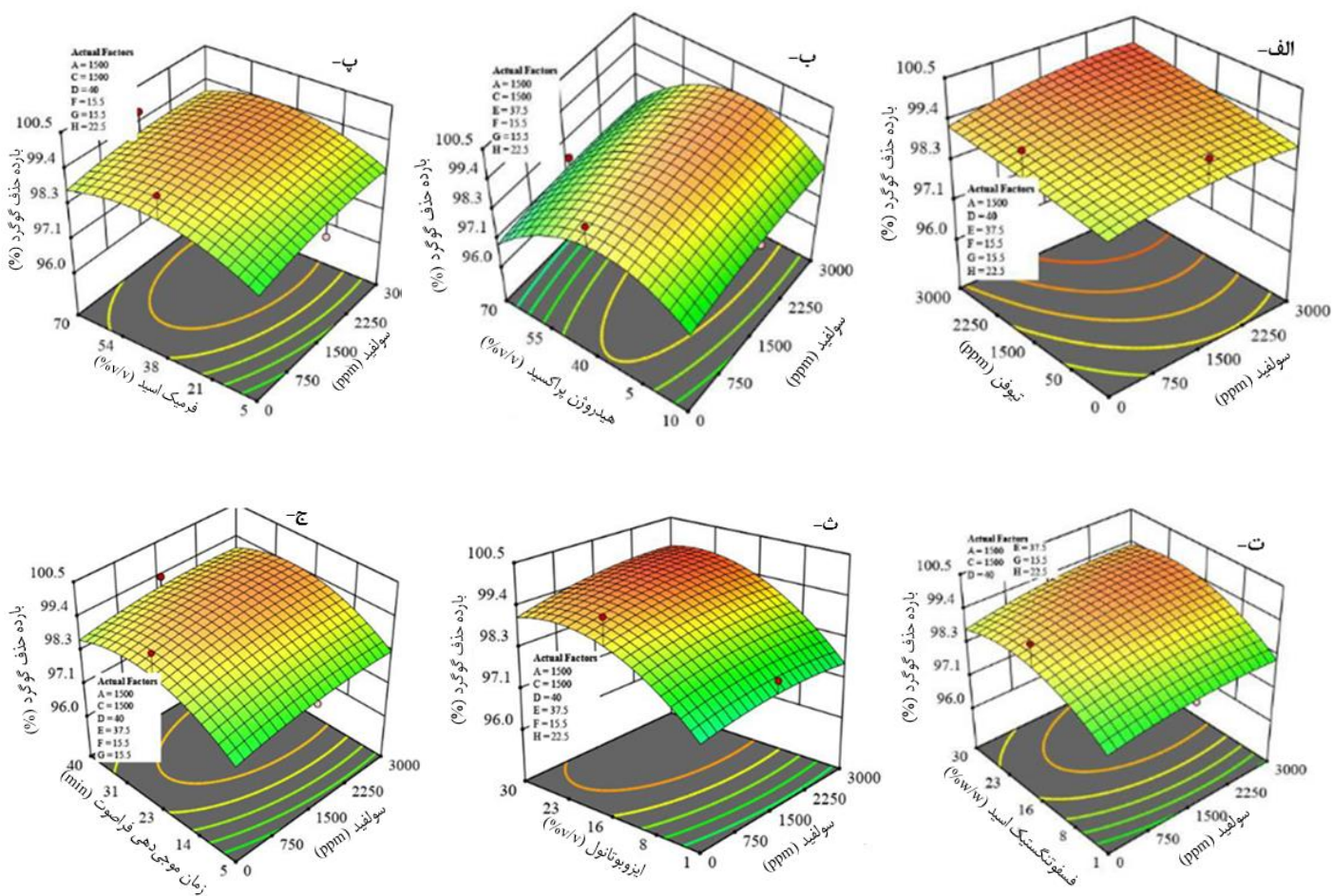
فراصوت است. ترکیبات گوگردی نمونه زیاد یا کم باشد، با افزودن مواد اکسید کننده، حذف گوگرد تا یک مقدار مشخص (حدوداً کمتر از ۵۰ ppm) می‌رسد که نشان از یک رابطه مستقیم بین مقدار گوگرد نمونه و بازده حذف گوگرد می‌باشد. در مخلوط گوگردی هرچه مقدار ترکیب گوگردی مرکباتی نسبت به ترکیبات تیوفنی و سولفیدی بیشتر باشد بازده حذف گوگرد از نمونه میعانات گازی سنتزی بیشتر هست و بالعکس. در شکل‌های

$$\begin{aligned} \%SER = & 99.39 + 0.219X_1 + 0.103 X_2 + \\ & 0.1621 X_3 - 0.2568 X_4 + 0.1579 X_5 + 0.2534 \\ & X_6 + 0.4854 X_7 + 0.1974 X_8 + 0.1184 X_6 X_7 - \\ & 0.0911 X_7 X_8 - 0.4010 X_4^2 - 0.1635 X_5^2 - \\ & 0.1760 X_6^2 - 0.2010 X_7^2 - 0.1935 X_8^2 \end{aligned} \quad (2)$$

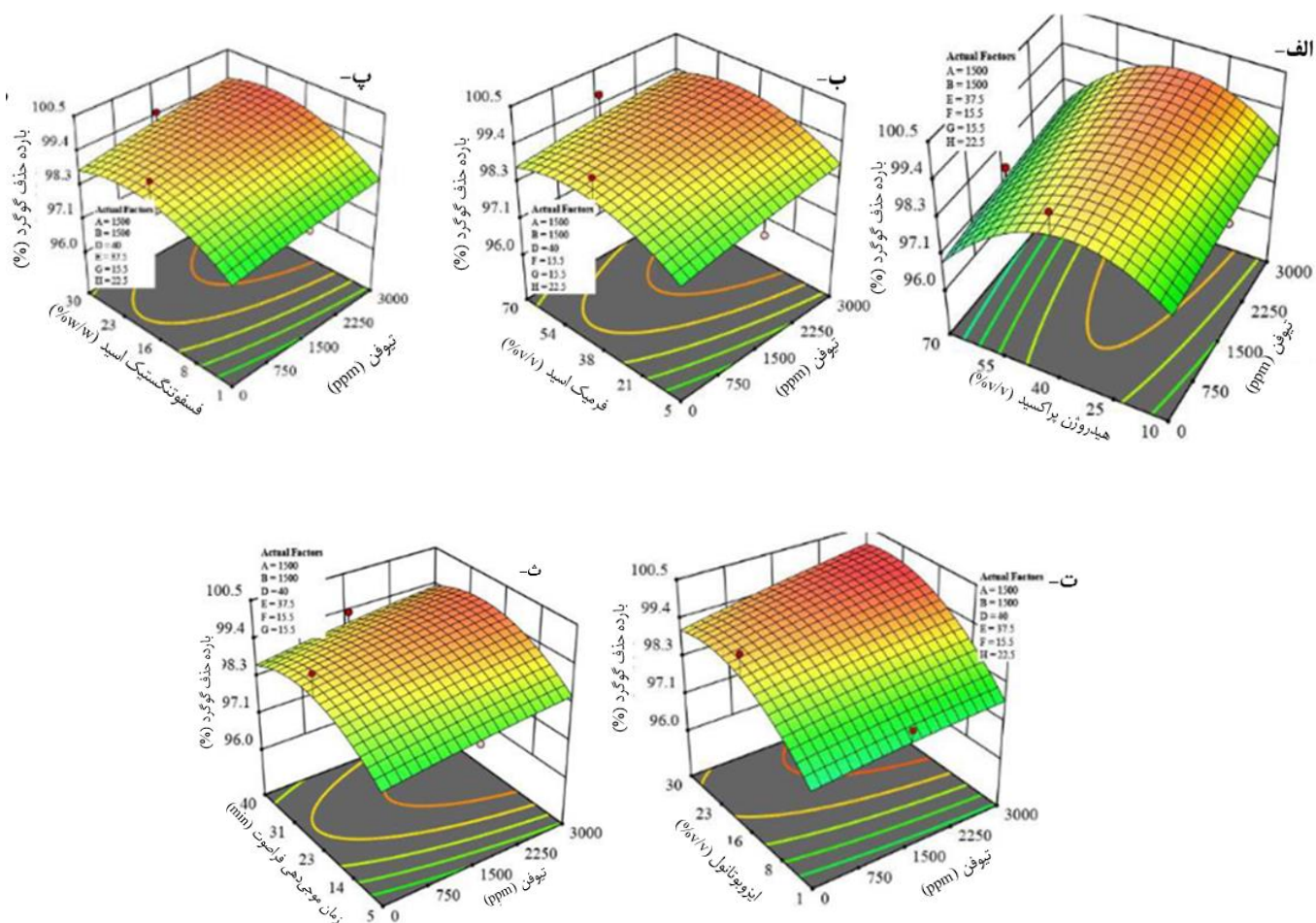
نتایج حاصل از انجام آزمایش‌ها نشان داد که هرچه مقدار ترکیبات گوگردی در نمونه میعانات گازی زیادتر باشد بازده حذف گوگرد بیشتر می‌شود که یکی از دلایل آن خاصیت امواج

مقادیر بالای گوگرد و مقادیر بالاتر از متوسط فرمیک اسید می‌باشد. در شکل‌های ۲، ۳ و ۴ با افزایش مقدار کاتالیزگر (فسفوتنگستیک اسید) بازده حذف گوگرد بیشتر می‌شود و ارتباط مستقیم بین مقدار گوگرد موجود در نمونه و مقدار کاتالیزگر وجود دارد چون هر چه مقدار تولید پلی‌اکسومتالات‌ها (محصول واکنش هیدروژن پراکسید و فسفوتنگستیک اسید) زیادتر باشد واکنش تبدیل ترکیبات گوگردی به سولفون‌ها زیادتر می‌شود در نتیجه بازده حذف افزایش می‌یابد. شکل‌های ۲، ۳ و ۴ نشان می‌دهد که مطلوب‌ترین جواب‌ها در مقادیر بالای گوگرد و انتقال دهنده فازی است. هدف استفاده از ایزوبوتانول به عنوان انتقال دهنده فازی کمک به انتقال مواد اکسید شده گوگردی از فاز آلی به فاز آبی جهت حذف بهتر گوگرد می‌باشد بنابراین افزایش ایزوبوتانول اثر مثبت بر بازده حذف گوگرد دارد. شکل‌های ۲، ۳، ۴ و ۵

۲، ۳ و ۴ مشاهده شده که در مقادیر ثابت سولفور با افزایش مقدار هیدروژن پراکسید بازده حذف گوگرد افزایش و سپس کاهش می‌یابد. بهترین جواب‌ها در مقادیر بالای گوگرد و کمتر از متوسط هیدروژن پراکسید است که دلایلی مانند افزایش فاز آبی و وابستگی مقدار هیدروژن پراکسید به مقادیر بهبود دهنده و کاتالیزگر می‌باشد و باید مقدار هیدروژن پراکسید تنظیم شده باشد که لزوم بهینه‌سازی را می‌رساند. شکل‌های ۲، ۳ و ۴ بیانگر تأثیر بهبود دهنده (فرمیک اسید) بر مقدار سولفور موجود در نمونه و مشاهده بازده حذف گوگرد است. در مقادیر ثابت مخلوط گوگردی با افزایش مقدار فرمیک اسید ابتدا بازده حذف گوگرد زیاد می‌شود و سپس کاهش اندکی می‌یابد که به دلیل افزایش اثر نامطلوب فاز آبی و وابستگی مقدار فرمیک اسید به مقدار هیدروژن پراکسید است که باید بهینه شود و قلیائیت نمونه در یک محدود مشخص نگه داشته شود. بهترین نتایج در



شکل ۳. تأثیر متقابل مقادیر مختلف ترکیب سولفیدی نسبت به بازده حذف گوگرد در نمونه سنتزی بر حسب (الف) ترکیب گوگردی تیوفنی، (ب) هیدروژن پراکسید، (پ) فرمیک اسید، (ت) فسفوتنگستیک اسید، (ث) ایزو بوتانول، (ج) زمان موج‌دهی فراصوت.



شکل ۴. تأثیر متقابل مقادیر مختلف ترکیب تیوفنی نسبت به بازده حذف گوگرد در نمونه سنتزی بر حسب (الف) هیدروژن پراکسید، (ب) فرمیک اسید، (پ) فسفوتنگستیک اسید، (ت) ایزو بوتانول، (ث) زمان.

گوگردی موجود در میعانات گازی بوده است، نمونه میعانات گازی چهار جری طراحی شد که در آن از نرمال هپتان به عنوان نماینده میعانات گازی و ترت بوتیل مرکاپتان به عنوان نماینده مرکاپتان‌ها، دی پروپیل سولفید نماینده سولفیدها و بنزو تیوفن نماینده ترکیبات آروماتیکی استفاده شده است. نتایج نشان داد که بیشترین بازده حذف گوگرد در نقطه بهینه با مقادیر مرکاپتان (۱۱۰۵/۹۹ ppm)، سولفید (۲۲۵۲/۵۰ ppm)، تیوفن (۲۹۶۵/۴۸ ppm)، هیدروژن پراکسید (۲۳/۵۷ % v/v)، فرمیک اسید (۴۹/۲۷ % v/v)، فسفوتنگستیک اسید (۲۱/۱۵ % w/w)، ایزوبوتانول (۲۴/۵۶ % v/v) و زمان موج‌دهی فراصوت (min) ۲۱/۱۷ با استفاده از ظرف سونوراکتور شیشه‌ای و دو مرحله استخراج با حلال آن دی متیل فرمامید، درصد بازده حذف ترکیبات گوگردی ۹۹/۹۲٪ شد. انتخاب روش UAOD همراه با مخلوط اکسید کننده مناسب، درصد بازده حذف گوگرد از

۳ و ۴ نشان از تأثیر زمان بر مقدار گوگرد است. در مقادیر پایین گوگرد با افزایش زمان، بازده حذف گوگرد افزایش می‌یابد و در مقادیر بالای گوگرد با افزایش زمان موج‌دهی فراصوت بازده حذف گوگرد اندکی کاهش می‌یابد که لزوم بهینه سازی را می‌رساند. هر چه مقدار سولفور موجود در نمونه‌ها زیادتر باشد سرعت واکنش‌های اکسیداسیون زیادتر می‌شود و نیاز به زمان موج‌دهی فراصوتی کمتری است. در نتیجه تمام متغیرهای، اکسید کننده، بهبود دهنده، کاتالیزگر، انتقال دهنده فازی و زمان موج‌دهی فراصوت به مقدار ترکیبات گوگردی موجود در نمونه‌ها وابسته هستند.

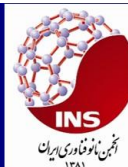
#### ۴- نتیجه گیری

جهت تحقق اهداف این پژوهش که حذف همه نوع ترکیبات

۹۶/۳۳٪ به ۹۹/۹۲٪ رسید.

## مراجع

1. H. Topsøe, B.S. Clausen, F.E. Massoth. (1996).
2. X. Ma, K. Sakanishi, I. Mochida, (Ind. Eng. Chem. Res,1996). Volume 35, pp. 2487-2816.
3. L. Vradman, M. Landau, M. Herskowitz, (1999).
4. S. Mehran, B. Amarjeet, M. Argyrios. (2007).
5. T. Chen, Y. Shen, W. Lee, C. Lin, M. Wan. (Cleaner Production, 2013), Vol. 39, pp. 129-136.
6. M.W. Wan, T.F. Yen. (2007).
7. M.F. Ali, A. Al-Malki, B. El-Ali, G. Martinie, M.N. Siddiqui. (Fuel, 2006), 85, (10-11), pp. 1354-1363.
8. H. Mei, B.W. Mei, T.F. Yen. (2003).
9. T. C. Chen, Y. H. Shen, W. J. Lee, C.C. Lin, M. W. (cleaner production, 2013), pp. 129-136.
10. S. Liu, Z. Liu, H. Zhu, Z. Wang, J. Guo, X. Zhang, H.Yu, X.Yue, P. Ning, B. Li.(2023).
11. A. Taghizadeh, M. Asemani, F. Esmailzadeh, A. Ameri. (2023).



# Experimental investigation of sulfur compounds removal from synthetic quaternary gas condensate system using ultrasound assisted oxidative desulfurization (UAOD) method

Ameneh Taghizadeh<sup>1</sup>, Maryam Asemani<sup>1,\*</sup>, Fereidoon Esmaeilzadeh<sup>2</sup>, Abolhasan Ameri<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Chemical Engineering, Shiraz Branch, Islamic Azad University, Shiraz, Iran

<sup>2</sup>Department of Chemical Engineering; School of Chemical, Petroleum and Gas Engineering, Shiraz University, Shiraz, Iran

**Abstract:** In addition to natural gas, gas condensates are also produced from gas reservoirs. The presence of any of the pollutants, such as sulfur compounds, can cause problems in downstream industries or damage the environment. In this research, the desulfurization of a synthetic quaternary gas-condensate system containing of normal heptane with different combinations of tert-butyl mercaptan (aliphatic thiol), dipropyl sulfide (aliphatic sulfide), and benzo thiophene (aromatic thiophene) in the range of 0-3000 ppm were treated using UAOD process. For this purpose, different operating variables including H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (10- 70% v/v), CH<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (5- 70% v/v), H<sub>3</sub>P(W<sub>3</sub>O<sub>10</sub>)<sub>4</sub> (1- 30% w/w), C<sub>4</sub>H<sub>10</sub>O (1- 30 % v/v) and sonication (5- 40 min) were examined upon the desulfurization efficiency. The design of the experiments was performed by the response surface method of the central composite design model. And then N, N-dimethylformamide solvent was used to extract oxidized sulfurous compounds from n-heptane. Residual sulfur was analyzed by ASTM D7039 standard method. Maximum desulfurization efficiency, 99.92%, for C<sub>4</sub>H<sub>10</sub>S= 1105.99 ppm, C<sub>6</sub>H<sub>14</sub>S= 2252.50 ppm, C<sub>8</sub>H<sub>6</sub>S= 2965.48 ppm in 20 mL n-heptane was obtained at H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>= 23.57% v/v, CH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>= 49.27% v/v, H<sub>3</sub>P(W<sub>3</sub>O<sub>10</sub>)<sub>4</sub>= 21.15% w/w, C<sub>4</sub>H<sub>10</sub>O= 24.56% v/v and sonication time= 21.17 min. Additionally, an empirical model was proposed to predict desulfurization efficiency with an error of less than 0.1%.

**Keywords:** Ultrasound, Gas condensate, Experimental design.