

Research Article



DOI: 10.22034/ijche.2022.331428.1186



DOR: 20.1001.1.17355400.1402.22.127.4.5



This journal is an open access journal licensed under an Attribution-NonCommercial-NoDerivatives 4.0 International license(CC BY-NC-ND 4.0).

## Simulation of Spearmint Essential Oil Standardization with Fractional Distillation for Food and Pharmaceutical Industries

A. Nikkhah<sup>1</sup>, S. Barekat<sup>2</sup>, H. Amirsadri Naini<sup>3</sup>, M. Fakhroleslam<sup>4</sup>  
M. T. Ebadi<sup>5\*</sup>, S. Asadi<sup>6</sup>

1- B.Sc. in Chemical Engineering, Isfahan University of Technology

2- Ph.D. Student of Agricultural Engineering, Isfahan University of Technology

3- M.Sc. Student of Chemical Engineering, Tarbiat Modares University

4- Assistant Professor of Chemical Engineering, Tarbiat Modares University

5- Associate Professor of Agricultural Engineering, Tarbiat Modares University

6- Associate Professor of Mechanical Engineering, Payame Noor University

Email: mt.ebadi@modares.ac.ir

### Abstract

Despite of Iran's position as one of the leading countries in the production of spearmint (*Mentha spicata* L.), the extraction of spearmint essential oil (SEO) and its use in food and pharmaceutical industries are faced with challenges such as non-uniformity of product and low amount of two valuable compounds of carvone and limonene. Therefore, this study was conducted with the aim of obtaining SEO with more than 75% carvone, as well as designing and simulating the extraction process with high economic efficiency. After determining the components of the raw SEO and modelling the standardized SEO, the characteristics of the batch fractional distillation tower and the equipment required for the operation were modelled, and dynamic operations were simulated. The operational design of the process was performed based on the processed simulator (Aspen PLUS V.10), and its performance was analyzed. During the simulation, from 40 Kg of input feed with about 50% carvone, 18.2 Kg of standardized SEO with more than 75% carvone can be obtained. According to the results, the optimum condenser temperature and return flow to achieve maximum purity in the shortest time for the low weight compounds were 25-30°C and 3.1 ratios. The increasing temperature of the column tower caused increasing the amount of carvone in the pot and the amount of limonene in the receiver. However, the excessive temperature had an adverse effect on the output product; it reduced the amount of limonene in the receiver and increased undesirable components. Finally, the results obtained in this research can be a guide for researchers and industries to produce SEO with the desired characteristics and be helpful in designing pilot and industrial systems for essential oil extraction and standardization of other medicinal and aromatic plants.

Received: 25 February 2022

Accepted: 23 May 2022

Page Number: 55-64

### Keywords:

Spearmint Essential Oil;  
Carvone;  
Limonene,  
Standardization,  
Batch Fractional  
Distillation

### Please Cite this Article Using:

Nikkhah, A., Barekat, S., Amirsadri Naini, H., Fakhroleslam, M., Ebadi, M. T., Asadi, S., " Simulation of Spearmint Essential Oil Standardization with Fractional Distillation for Food and Pharmaceutical Industries", Iranian Chemical Engineering Journal, Vol. 22, No. 127, pp. 55-64, In Persian, (2023).



## شبیه‌سازی فرایند استانداردسازی اسانس نعناع دشتی با تقطیر جزء به جزء برای صنایع غذایی و دارویی

علی نیکخواه<sup>۱</sup>، سرور برکت<sup>۲</sup>، هانیه امیرصدری نایینی<sup>۳</sup>، محمد فخرالاسلام<sup>۴</sup>، محمد تقی عبادی<sup>۵\*</sup>، سعید اسدی<sup>۶</sup>

۱- کارشناس مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی اصفهان

۲- دانشجوی دکتری کشاورزی، دانشگاه صنعتی اصفهان

۳- دانشجوی کارشناسی ارشد مهندسی شیمی، دانشگاه تربیت مدرس

۴- استادیار مهندسی شیمی، دانشگاه تربیت مدرس

۵- دانشیار کشاورزی، دانشگاه تربیت مدرس

۶- دانشیار مهندسی مکانیک، دانشگاه پیام نور

پیام نگار: [mt.ebadi@modares.ac.ir](mailto:mt.ebadi@modares.ac.ir)

### چکیده

با وجود قرارگیری ایران در شمار یکی از کشورهای مطرح جهان در تولید نعناع دشتی، استخراج اسانس و استفاده از آن در صنایع مختلف غذایی و دارویی با چالش‌هایی نظیر نایک‌نواختی محصول و مقادیر کمتر از حد نیاز دو ترکیب ارزشمند کارون و لیمونن روبه‌روست. این پژوهش با هدف شبیه‌سازی و تحلیل فرایند استانداردسازی اسانس نعناع برای دستیابی به اسانسی حاوی بیش از ۷۵ درصد کارون انجام گرفت. بعد از شناسایی اجزای اسانس خام و مدل‌سازی اجزای تشکیل‌دهنده اسانس نعناع استاندارد، برج تقطیر جزء به جزء ناپیوسته و تجهیزات مورد نیاز برای عملیات آن مدل‌سازی و عملیات پیوسته این سامانه شبیه‌سازی شد. طراحی عملیاتی فرایند بر مبنای شبیه‌سازی ایجاد شده انجام گرفت و عمل‌کرد آن تحلیل شد. در شبیه‌سازی انجام شده، از ۴۰ کیلوگرم اسانس خام نعناع با حدود ۵۰ درصد کارون، ۱۸/۲ کیلوگرم اسانس استاندارد با میزان کارون بیش از ۷۵ درصد در طی ۱۸/۵ ساعت به دست آمد. بر اساس نتایج نسبت میزان جریان برگشتی برای دستیابی به بیشترین خلوص در کمترین زمان جداسازی ترکیبات سبک، برابر با ۳ بود. نتایج این پژوهش می‌تواند راهنمای پژوهشگران و صنایع برای تولید اسانس نعناع با شاخصه‌های مورد نظر صنعت باشد و برای طراحی سامانه‌های پایلوت و صنعتی اسانس‌گیری و استانداردسازی اسانس سایر گیاهان دارویی و معطر، مفید واقع شود.

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۱۲/۰۶  
تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۳/۰۲  
شماره صفحات: ۵۵ تا ۶۴

### کلیدواژه‌ها:

اسانس نعناع، کارون، لیمونن، استانداردسازی، تقطیر جزء به جزء ناپیوسته

\* تهران، دانشگاه تربیت مدرس، دانشکده‌های مهندسی شیمی و کشاورزی

### استناد به مقاله:

نیکخواه، ع.، برکت، س.، امیرصدری نایینی، ه.، فخرالاسلام، م.، عبادی، م.، ت.، اسدی، س.، "شبیه‌سازی فرایند استانداردسازی اسانس نعناع دشتی با تقطیر جزء به جزء برای صنایع غذایی و دارویی"، نشریه مهندسی شیمی ایران، سال بیست و دوم، شماره ۱۲۷، صص. ۶۴-۵۵، (۱۴۰۲).

جنس نعناع از تیره نعناعیان<sup>۱</sup> و از جمله گیاهان دارویی و معطر مهم اقتصادی در دنیا و به ویژه در ایران است. در جنس نعناع، حدوداً ۴۲ گونه مختلف وجود دارد که بر اساس ویژگی‌های گیاه‌شناسی، محل کشت و ترکیبات اصلی تشکیل دهنده دسته‌بندی می‌شوند. نعناع دشتی<sup>۲</sup>، نعناع فلفلی<sup>۳</sup> و نعناع وحشی (نعناع ژاپنی)<sup>۴</sup> متداول‌ترین و در دسترس‌ترین انواع تجاری نعناع هستند [۱ و ۲].

نعناع دشتی یا نعناع سبز که به اختصار نعناع نیز نامیده می‌شود، یکی از مهم‌ترین گونه‌های جنس نعناع است و اسانس آن به‌طور گسترده در صنایع غذایی (چای، قهوه، نوشیدنی‌ها، شکلات‌ها، فرآورده‌های نانوبایی و لبنی)، بهداشت دهان و دندان (دهان‌شویه‌ها و خمیردندان‌ها) و داروهای مختلف استفاده می‌شود. ترکیبات شیمیایی اسانس نعناع و میزان آن‌ها در بسیاری از تحقیقات، بررسی شده است [۳]. به‌طور کلی ارزش‌گذاری اسانس نعناع دشتی در جهان بر اساس دو ترکیب کارون<sup>۵</sup> و لیمونن<sup>۶</sup> است [۴].

مهم‌ترین ترکیب در اسانس نعناع دشتی، کارون است که بر اساس استاندارد ایزو ۳۳۰۳ (بخش اول - سال ۲۰۰۵)، مقدار این ترکیب باید حد اقل ۶۰ درصد باشد و در بازارهای جهانی، عمدتاً اسانس دارای ۷۵ درصد کارون خرید و فروش می‌شود. متأسفانه به دلیل درصد پایین کارون در اسانس نعناع دشتی مناطق مختلف کشور، صنایع غذایی به‌خصوص لبنیات در حال واردات این محصول هستند و رغبتی به استفاده از محصول داخلی ندارند؛ لذا استانداردسازی و تولید اسانس غنی از ترکیب کارون سبب توسعه تولید و فراوری نعناع در داخل کشور خواهد شد. علاوه بر این، با استانداردسازی می‌توان مشکل نداشتن یکنواختی اسانس‌های طبیعی را که یکی از چالش‌های اصلی در صنعت اسانس است، برطرف کرد؛ زیرا اسانس‌های طبیعی تولیدشده از یک گونه، برخلاف نوع مصنوعی، بسته به شرایط محیطی و زراعی، کیفیت متفاوتی دارند [۵]. چنان‌که ذکر شد، عوامل مختلف میزان ترکیبات تشکیل دهنده اسانس را به شدت تحت تأثیر قرار می‌دهند. در تحقیق مروری محبویی (۲۰۱۸)، بیان شد که میزان کارون و لیمونن در اسانس نعناع

بستگی به محل کشت آن دارد. در اسانس گیاهان کشت‌شده در هند، کارون (۶۶-۴۹/۷۶٪) و لیمونن (۳-۹/۲۲٪) در برزیل، کارون (۰/۱-۶۰٪)، در ایران، کارون (۸/۷۸٪) و لیمونن (۵/۱۱٪)، در جنوب شرقی آمریکا، کارون (۳-۶٪) و در تونس کارون (۸/۴۰٪) و لیمونن (۸/۲۰٪) وجود داشت. هم‌چنین فصل برداشت بر ترکیب شیمیایی مؤثر است و میزان کارون و لیمونن در فصل تابستان به ترتیب ۵/۵۹ و ۴/۱۰ درصد و در فصل زمستان ۲/۶۳ و ۱/۹ درصد است [۶]. کریس آرگریس<sup>۷</sup> و همکاران (۲۰۱۷)، گزارش کردند که عناصر معدنی با تأثیر بر فعالیت آنزیم‌ها، در بیوسنتز ترپنوئیدها نقش دارند. کاربرد ۳۲۵ میلی گرم/لیتر پتاسیم می‌تواند باعث افزایش قابل توجه در میزان کارون شود [۷]. مختاریخان<sup>۸</sup> و همکاران (۲۰۲۰) اثر روش خشک کردن طبیعی (در سایه و تابش آفتاب) و روش‌های غیرطبیعی (آون، تحت خلأ، مادون قرمز و خشک کردن انجمادی) را بر کیفیت اسانس نعناع بررسی کردند. در این مطالعه روش خشک کردن تأثیر معنی‌داری بر کارون نشان داد [۸].

با توجه به ارزش بالا و اثرپذیری ترکیبات اسانس به‌ویژه کارون و لیمونن از عوامل مختلف، لزوم استانداردسازی اسانس مشخص می‌شود [۱]. علاوه بر این، استاندارد کردن منجر به تولید اسانس با ویژگی‌های تکرارپذیر از گونه‌های مختلف کشت‌شده در زمان و شرایط مختلف می‌شود [۹]. از روش‌های مختلفی برای جداسازی و یا تغلیظ ترکیبات هدف، برای استانداردسازی استفاده می‌شود. ستون‌های سوانگاری (کروماتوگرافی) و رزین‌های تبادل یونی از روش‌های موجود هستند؛ ولی روش‌های تقطیر جزء به جزء<sup>۹</sup> و رکتیفیکاسیون<sup>۱۰</sup> (تقطیر مجدد اسانس در شرایط خلأ) متداول‌ترین و آسان‌ترین روش کاربردی در مقیاس صنعتی است. از این روش‌ها از زمان بسیار دور برای جداسازی و استانداردسازی اسانس حاصل از گیاهان مختلف استفاده می‌شده است [۵، ۱۰، ۱۱].

صالحا<sup>۱۱</sup> و همکاران (۲۰۱۷) با استفاده از تقطیر در فشار کاهش‌یافته، اجزای موجود در اسانس مرزنجوش را جداسازی کردند. در این بررسی با استفاده از تقطیر، بخش حاوی ترپن‌های

7. Chrysargyris  
8. Mokhtarikhah  
9. Fractional Distillation  
10. Rectification  
11. Salha

1. Lamiaceae  
2. Mentha Spicata L.  
3. Mentha Piperita L.  
4. Mentha Arvensis L.  
5. Carvone  
6. Limonene

اکسیژن‌دار شامل ۱۶ ترکیب از اجزای دیگر به‌طور انتخابی جداسازی شد [۱۲]. ژانگ<sup>۱</sup> و همکاران (۲۰۱۱) روش تقطیر ساده و رکتیفیکاسیون را برای استخراج اسانس چند گیاه دارویی بومی چین مقایسه کردند. نتایج آنان نشان داد که در روش رکتیفیکاسیون، غنی‌سازی اسانس‌ها و میزان بازدهی استخراج در شرایط مشابه نسبت به تقطیر ساده بیشتر است [۱۳].

فرح<sup>۲</sup> و همکاران (۲۰۰۶) اثر تقطیر جزء به جزء را بر بهبود کیفیت اسانس درختچه مورد بررسی کردند. رکتیفیکاسیون اسانس باعث ایجاد سه جزء اصلی شامل جزء غنی از آلفا-پینن (۴۲-۵۵) و ۱ و ۸- سینئول، جزء غنی از ۱ و ۸- سینئول (۸۳-۹۶) و جزء غنی از میرتینیل استات (۶۲-۶۵) شد. با افزایش زمان تقطیر، میزان ترکیبات اصلی به‌طور چشم‌گیری افزایش یافت [۱۴]. بنی‌یوسفی<sup>۳</sup> و همکاران (۲۰۰۵) نیز اثر زمان استخراج را در استفاده از تقطیر آبی بر ترکیبات اصلی اسانس نعناع بررسی کردند. نتایج آنان نشان داد که در مدت زمان کوتاه، کارون (۵۲٪) و ۱ و ۸- سینئول بیشترین ترکیبات تشکیل‌دهنده اسانس هستند؛ در حالی که اگر زمان فرایند طولانی‌تر شود، ترانس-کاروئول و ژرماکرن-دی مقدار بیشتری پیدا خواهند کرد [۱۰]. در مطالعه دیگری، غنی‌سازی اسانس نعناع با کارون به‌وسیله شبه‌سازی تقطیر چندجزئی پیوسته با تعداد سینی ۱ تا ۵ عدد، انجام گرفت و سپس نتایج شبه‌سازی با نتایج آزمایشگاهی مقایسه شد. نتایج این بررسی نشان داد که با افزایش تعداد سینی‌ها، مقدار کارون از ۳۱٪ به بیش از ۶۰٪ می‌رسد. این افزایش با اضافه‌شدن سینی‌ها به ستون تقطیر با تعداد سینی‌های کمتر، موثرتر بود و در حالی که تعداد سینی‌ها بسیار زیاد بود؛ اضافه‌کردن سینی تأثیر چشم‌گیری بر میزان جداسازی نداشت [۱۵]. در هر روش استخراج، باید روند کار را قبل از عملیات به‌گونه‌ای متناسب با محصول یا مواد مورد استفاده در فرایند استخراج، طراحی کرد. شبه‌سازی با استفاده از مدل‌های ریاضیات و نرم‌افزارهای تجاری امکان پیش‌بینی نحوه انجام فرایند استخراج قبل از انجام آن را فراهم می‌کند [۱۷، ۱۶]. امروزه نرم‌افزارهای مختلف برای شبه‌سازی فرایندهای شیمیایی توسعه داده شده‌اند که از آن جمله می‌توان به اسپن‌پلاس، اسپن‌هایسیس، پرو ۴۲ اشاره کرد. برای

طراحی و شبه‌سازی فرایند با استفاده از نرم‌افزارهای موجود، خصوصیات شیمیایی خوراک، زمان استخراج، ارتفاع و قطر برج، تعداد و فاصله سینی‌ها، اندازه و موقعیت نسبی نازل‌ها و تجهیزات اتصال‌دهنده، موقعیت چگالنده و دیگ بخار باید مد نظر قرار گیرد [۱۶].

منابع علمی در دسترس نشان می‌دهد که با وجود اهمیت و ارزش اقتصادی اسانس نعناع، تاکنون تحقیقات چندان زیادی در زمینه استانداردسازی آن و همچنین طراحی و شبه‌سازی فرایند تقطیر جزء به جزء برای غنی‌سازی اسانس نعناع انجام نشده و بسیاری از شرکت‌های صاحب فناوری به‌ندرت این اطلاعات را منتشر می‌کنند. در این پژوهش، پس از تعیین اجزای اسانس اولیه، شبه‌سازی پویای فرایند استانداردسازی اسانس با استفاده از برج تقطیر جزء به جزء ناپیوسته برای دستیابی به اسانس دارای بیش از ۷۵ درصد کارون و ۱۰ درصد لیمونن انجام گرفت. بعد از شناسایی و مدل‌سازی اجزای تشکیل‌دهنده اسانس نعناع مورد نظر، برج تقطیر جزء به جزء ناپیوسته و تجهیزات مورد نیاز برای عملیات آن در محیط نرم‌افزار تجاری اسپن‌پلاس مدل‌سازی و عملیات پویای آن شبه‌سازی شد.

## ۲. مواد و روش‌ها

### ۲-۱ بررسی ترکیبات اسانس خام

برای بررسی ترکیبات اسانس خام (استاندارد نشده) نعناع دشتی به‌منظور تعیین کیفیت ماده اولیه ورودی به فرایند استانداردسازی، یک نمونه اسانس حاصل از گیاهان کشت‌شده در مزرعه تحقیقاتی گروه علوم باغبانی دانشگاه تربیت مدرس با دستگاه کروماتوگرافی گازی مجهز به دتکتور یونیزاسیون شعله<sup>۵</sup> و کروماتوگرافی متصل به طیف‌سنج جرمی<sup>۶</sup> تجزیه شد.

دستگاه کروماتوگراف گازی مدل 7890B ساخت شرکت Agilent و مجهز به آشکارساز FID بود. طول ستون HP-5، ۳۰ متر و قطر داخلی ستون ۰/۳۲ میلی‌متر و ضخامت لایه فاز ساکن ۰/۲۵ میکرومتر بود و برنامه‌ریزی حرارتی از ۶۰ تا ۲۸۰ درجه سلسیوس با سرعت افزایش ۵ درجه سلسیوس در دقیقه انجام گرفت. دمای قسمت تزریق برابر ۲۵۰ درجه سلسیوس و دمای آشکارساز برابر ۲۸۰ درجه سلسیوس تنظیم شد. گاز حامل هلیوم با سرعت جریان

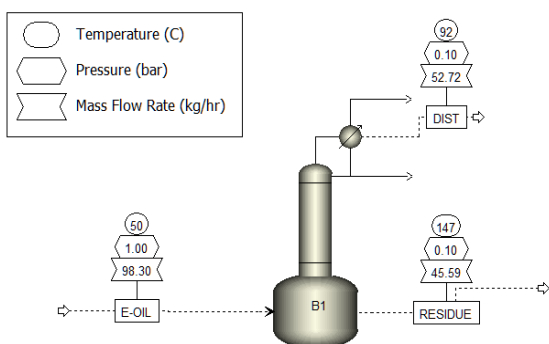
1. Zhang  
 2. Farah  
 3. Benyoussef  
 4. Aspen PLUS, Aspen HYSYS, PRO II

5. GC-FID  
 6. GC-MS

در منابع علمی و نرم‌افزار تخمین زده شدند. رفتار ترمودینامیکی مواد در کل فرایند با استفاده از مدل پنگ-رابینسون<sup>۳</sup> تخمین زده شد. نمایی از مدل ایجادشده در محیط نرم‌افزار به‌همراه نمای نزدیک از برج در شکل (۱) آورده شده است.



(a)



(b)

شکل ۱. (a) نمای نزدیک از برج (b) طرحواره فرایند در نرم‌افزار شبیه‌ساز.

Figure 1. (a) The Side View of Tower in Lab (b) Schematic Diagram of the Batch Distillation Column in Aspen PLUS.

۱/۱ میلی‌لیتر بر دقیقه به‌عنوان فاز متحرک به کار رفت. دستگاه کروماتوگراف گازی Termoquest-Finnigan متصل شده به دستگاه طیف‌سنج جرمی TRACE MS و ستون HP-5 با طول ۳۰ متر و قطر داخلی ۰/۲۵ میلی‌متر و ضخامت فاز ساکن ۰/۲۵ میکرومتر بود. انرژی یونیزاسیون معادل ۷۰ الکترون‌ولت بود. برنامه‌ریزی حرارتی و نوع و سرعت گاز حامل و دمای محفظه تزریق، مانند دستگاه GC تنظیم شد. شناسایی ترکیبات اسانس با مقایسه طیف‌جرمی هر پیک با ترکیبات استاندارد در کتابخانه دستگاه (کتابخانه اصلی، آدامز، وایلی<sup>۱</sup>) و همچنین محاسبه شاخص بازداری و مطابقت هر ترکیب با منابع از راه تزریق هیدروکربن‌های نرمال (C<sub>8</sub>-C<sub>24</sub>) تحت شرایط یکسان به دست آمد.

## ۲-۲ مدل‌سازی و شبیه‌سازی برج تقطیر ناپیوسته

برای استانداردسازی اسانس مد نظر باید از برج تقطیر دیفرانسیلی کمک گرفت. دستگاه تقطیر جزء به جزء مورد نظر در این مطالعه که در ابعاد پایلوت در دانشگاه تربیت مدرس موجود است، ساخت شرکت دیتریچ<sup>۲</sup> فرانسه (مدل AE-50) است. این دستگاه از دو قسمت کلی تشکیل شده و شامل مخزنی با ظرفیت ۵۰ لیتر اسانس و یک برج تقطیر پُر شده است. روش کار این برج تقطیر چنین است که پس از ورود اسانس به مخزن، حرارت‌دهی به آن آغاز می‌شود و به مرحله‌ای می‌رسد که مخلوط اسانس شروع به جوشیدن می‌کند و به ترتیب اجزای سبک با توجه به نقطه جوش از آن خارج می‌شوند. بخارهای حاصل از اسانس وارد برج تقطیری می‌شود که جنس آن از شیشه و داخل آن از پکینگ‌های استوانه‌ای شکل پُر شده است. در این برج، خروجی تعبیه شده که بخارها از آن‌ها خارج می‌شوند و به وسیله لوله‌های آب سرد موجود در کنار لوله‌های خروجی، سرد و به مایع تبدیل می‌شوند. هم‌چنین باقی‌مانده مایعات که شامل ترکیبات سنگین موجود در اسانس است، در مخزن جمع‌آوری می‌شود.

شبیه‌سازی فرایند تقطیر در نرم‌افزار اسپن‌پلاس ورژن ۱۰ انجام شد. برای تخمین خواص اجزای تشکیل‌دهنده اسانس از بسته خواص اسپن استفاده شد. خواص اجزائی که به‌صورت پیش‌فرض در بسته خواص نرم‌افزار موجود نبودند، به کمک داده‌های آزمایشگاهی موجود

3. Peng-Robinson

1. Adams, Wiley  
 2. De Dietrich

موازنه جرم و انرژی نوشته می‌شود که  $Q_C$  انرژی مورد نیاز برج کنداسور،  $H_{j+1}$  بیانگر آنتالپی بخار خروجی از بالای برج،  $h_j$  آنتالپی فاز مایع برگشتی از چگالنده و  $h_D$  نیز آنتالپی محصول تقطیر است. رابطه (۴) تا (۶) نیز بیانگر موازنه جرم و انرژی در مرحله J است.

### ۳. نتایج و بحث

پس از این که تا حد امکان شبیه‌سازی مورد نظر در نرم‌افزار بهینه‌سازی شد، شرایط عملیاتی به صورت زیر لحاظ شد. در شبیه‌سازی انجام گرفته، خوراک وارد برج تقطیر شده، ابتدا عملیات به مدت ۳۰ دقیقه در حالت رفلکس کامل انجام می‌شود تا برج تقطیر به حالت پایا برسد، سپس به مدت ۱۸ ساعت با نسبت رفلکس جرمی ۳ عملیات انجام می‌شود تا ترکیبات فرار خوراک نظیر لیمونن و آلفا-پینن به طور کامل جدا و وارد ظرف جمع‌آوری خروجی شوند. شرایط عملیاتی برج تقطیر در مراحل عملیاتی مختلف در جدول (۱) آورده شده است. فشار عملیاتی برج نیز بر روی یک دهم بار تنظیم شده است تا نقطه جوش ترکیبات کاهش پیدا کند و دمای ظرف تقطیر و ستون به بالاتر از حد مجاز طراحی شده نرسد. جداسازی بر اساس اختلاف نقطه جوش اجزا از یکدیگر انجام می‌گیرد. ترکیبات فرآرتر که دارای نقطه جوش کمتری هستند، سریع‌تر از اجزای سنگین از اسانس جدا می‌شوند و به صورت فاز بخار درمی‌آیند و وارد بخش پُر شده برج تقطیر می‌شوند. ستون پُر شده برای ایجاد سطح تماس بیشتر به منظور افزایش نرخ انتقال جرم بین فاز مایع برگشتی از چگالنده و فاز گاز استفاده می‌شود.

موازنه جرم در تقطیر ناپیوسته بر اساس معادلات ذکر شده، انجام پذیرفت و مدل ریاضیاتی حاکم بر برج تقطیر ناپیوسته مورد مطالعه در روابط (۱) تا (۵) آورده شده است. این روابط بر اساس موازنه‌های جرم و انرژی برای برج تقطیر ایجاد شده‌اند. روابط موازنه جرم و انرژی در محل کنداسور (کلی) و سینی شماره J ستون برج به صورت زیر است:

$$V_{j+1} = L_j + D \quad (1)$$

$$V_{j+1} * y_{j+1} = L_j x_j + D * x_D \quad (2)$$

$$Q_C + V_{j+1} * H_{j+1} = L_j * h_j + D * h_D \quad (3)$$

$$V_{j+1} + L_{j-1} = V_j + L_j \quad (4)$$

$$V_{j+1} * y_{j+1} + L_{j-1} * x_{j-1} = V_j * y_j + L_j * x_j \quad (5)$$

$$V_{j+1} * H_{j+1} + L_{j-1} * h_{j-1} = V_j * H_j + L_j * h_j \quad (6)$$

که D مقدار محصول تقطیر شده، y کسر مولی ماده مورد نظر در فاز بخار و x کسر مولی ماده مورد نظر در حالت اشباع را در محصول نشان می‌دهد.

رابطه (۱) تا (۶) بیانگر موازنه جرم و انرژی در مرحله آخر (قسمت چگالنده برج) و سینی شماره J برج است که  $V_{j+1}$  بیانگر بخار خروجی از مرحله شماره J+1 است که وارد چگالنده می‌شود و  $L_j + D$  به ترتیب محصول و مایع برگشتی به برج است. به همین ترتیب

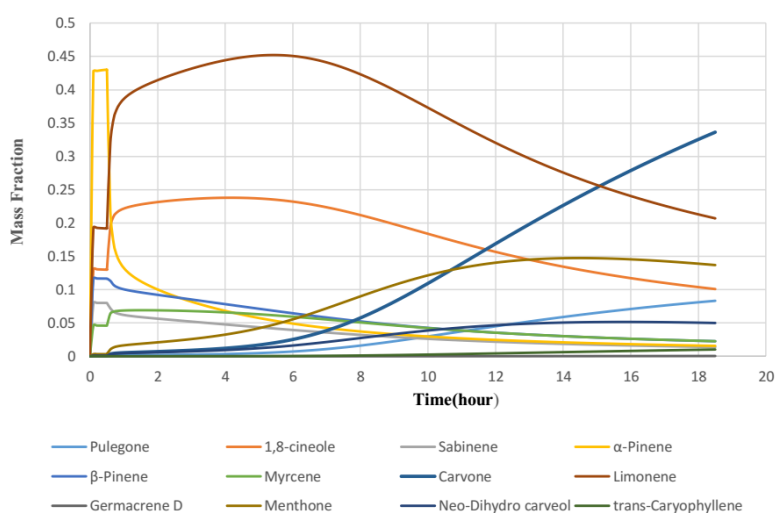
جدول ۱. شرایط عملیاتی برج در مراحل مختلف.

Table 1. Operating Condition in Batch Distillation Column at Different Stages.

| Stage                | Operating Condition | Quantity |
|----------------------|---------------------|----------|
| Total reflux         | Reflux ratio        | Infinite |
|                      | Jacket heating duty | 0.5 kW   |
|                      | Pressure            | 0.1 bar  |
|                      | Time                | 0.5 hour |
| Light key separation | Reflux ratio        | 3.0      |
|                      | Jacket heating duty | 0.5 KW   |
|                      | Condenser Duty      | 0.53 kW  |
|                      | Pressure            | 0.1 bar  |
|                      | Time                | 18 hours |

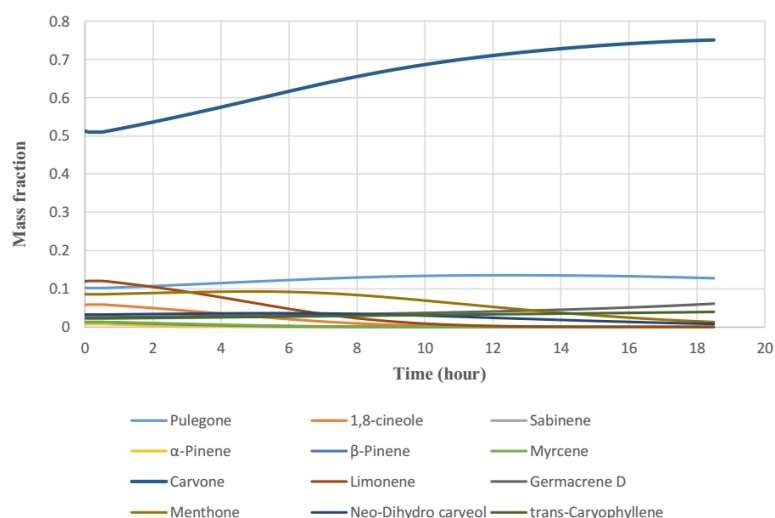
همچنان ادامه می‌یابد. بعد از گذشت تقریباً پنج ساعت، مقدار اجزای سبک در مخزن تقطیر و ظرف جمع‌آوری خروجی کاهش می‌یابد. دلیل این امر آن است که با گذر زمان، ترکیبات سنگین نیز با ترکیبات سبک وارد ظرف جمع‌آوری خروجی می‌شود که موجب کاهش درصد آن‌ها می‌شود. از آنجا که بخش ناچیزی از ترکیبات سبک‌تر از کارون که به‌طور کامل پس از پنج ساعت جدا نشده بودند با گذر زمان از مخزن تقطیر جدا شده و وارد ظرف جمع‌آوری خروجی می‌شوند، پس درصد ترکیبات سنگین نظیر کارون در مخزن تقطیر افزایش می‌یابد.

نمودار تغییرات ترکیب درصد جرمی اجزای مختلف برحسب زمان در ظرف جمع‌آوری خروجی و مخزن تقطیر در شکل (۲) و (۳) آورده شده است. چنان‌که در این نمودارها نمایان است، به تدریج و با افزایش دما و رسیدن به نقطه جوش ترکیبات سبک، ترکیباتی نظیر لیمونن بیشتر جدا می‌شوند و با گذر زمان، مقدار لیمونن در ظرف جمع‌آوری خروجی افزایش می‌یابد تا پس از تقریباً پنج ساعت به بیشترین درصد (نزدیک ۴۵ درصد جرمی) می‌رسد. هم‌زمان در دیگ تقطیر، ترکیب درصد کارون تقریباً برابر با ۵۹ درصد است. با توجه به این‌که به مقدار ترکیب مورد نظر نرسیده‌ایم، عملیات تقطیر



شکل ۲. شبیه‌سازی تغییرات ترکیب درصد اجزا در ظرف جمع‌آوری خروجی.

Figure 2. Simulation of Mass Composition Profile in the Receiver vs Time.

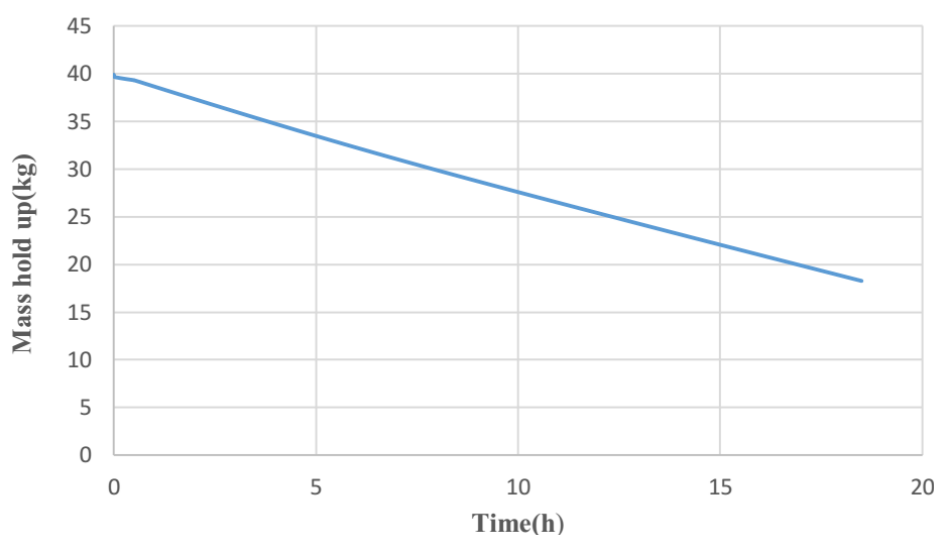


شکل ۳. شبیه‌سازی تغییرات ترکیب درصد جرمی اجزا در مخزن برج تقطیر.

Figure 3. Simulation of Mass Composition profile in Pot vs Time.

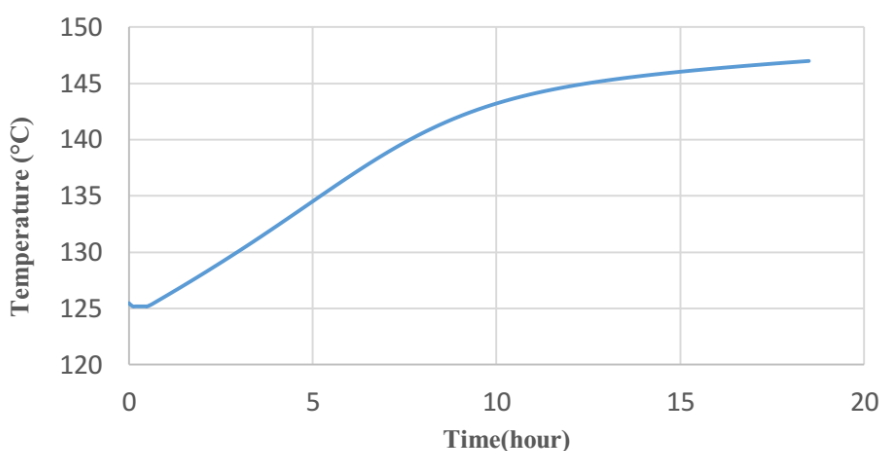
می‌رسد. بنابراین می‌توان نتیجه گرفت که شرایط مشخص شده در جدول (۱) نظیر مقدار بار حرارتی چگالنده و زمان و نسبت رفلاکس برگشتی کاملاً با شرایط عملیاتی دستگاه متناسب است. جدول (۲) ترکیب درصد اجزا را در خوراک ورودی و دو ظرف نشان می‌دهد. از آنجا که کارون ترکیب سنگینی است و فراریت کمتری دارد، در مخزن تقطیر باقی مانده است؛ در حالی که اجزای سبک نظیر لیمونن، آلفا-پینن، میرسن و سابینن که فراریت بیشتری دارند، کامل تبخیر و در ظرف خروجی جمع‌آوری شده‌اند.

شکل (۴) مقدار جرم باقی مانده را در مخزن تقطیر نشان می‌دهد. با گذر زمان مقدار جرم باقی مانده کاهش می‌یابد؛ زیرا بیشتر ترکیبات سبک و بخشی از ترکیبات سنگین بر اثر حرارت دادن و عملیات تقطیر، جدا و وارد ظرف جمع‌آوری خروجی می‌شود. در شکل (۵) نیز به بررسی تغییرات دما در ستون برج پرداخته شده است. با بالا رفتن و نزدیک شدن به نقطه جوش اجزاء، دمای برج بالا می‌رود. دمای عملیاتی برج بر اساس مشخصات اعلام شده شرکت سازنده دستگاه، ۱۵۰ درجه سلسیوس است. طبق شکل (۵) و نمودار تغییرات دما، در انتهای عملیات، دما به ۱۴۷ درجه سلسیوس



شکل ۴. شبیه‌سازی تغییرات جرم باقی مانده در مخزن تقطیر برحسب زمان.

Figure 4. Simulation of Mass Change in Pot vs Time.



شکل ۵. شبیه‌سازی تغییرات دمای ظرف تقطیر با گذر زمان.

Figure 5. Simulation of Change in Pot's Temperature vs Time.



جدول ۲. مشخصات خوراک ورودی و محصولات خروجی (بر حسب درصد جرمی).

Table 2. Component Fraction for Feed and Products (%).

| Row | Compounds                   | Feed  | Receiver | Pot   |
|-----|-----------------------------|-------|----------|-------|
| 1   | $\alpha$ -Pinene            | 0.9   | 1.5      | 0     |
| 2   | Sabinene                    | 0.8   | 1.3      | 0     |
| 3   | $\beta$ -Pinene             | 1.30  | 2.2      | 0     |
| 4   | Myrcene                     | 1.80  | 2.20     | 0     |
| 5   | Limonene                    | 11.90 | 20.80    | 0     |
| 6   | 1,8-cineole                 | 5.80  | 10       | 0     |
| 7   | Menthone                    | 8.40  | 13.70    | 1.30  |
| 8   | Neo-Dihydro carveol         | 3.20  | 4.90     | 0.80  |
| 9   | Pulegone                    | 10.50 | 8.30     | 12.75 |
| 10  | Carvone                     | 49.40 | 33.60    | 75.10 |
| 11  | <i>trans</i> -Caryophyllene | 2.50  | 1.00     | 3.95  |
| 12  | Germacrene D                | 2.20  | •        | 6     |
|     | Total                       | 98.7  | 99.50    | 99.90 |

تشکیل می‌دهد. این در حالی است که ایران زیستگاه بسیاری از گیاهان دارویی و معطر و صادرکننده عمده گیاهان فراوری نشده از جمله نعناع به سایر کشورهاست. یکی از علل اصلی واردات بسیار زیاد اسانس و طعم‌دهنده نعناع، تولیدنشده اسانس استانداردسازی شده با میزان کارون و لیمون مد نظر صنعت است. از این رو، در این پژوهش شبیه‌سازی پویای فرایند استانداردسازی اسانس با استفاده از برج تقطیر جزء به جزء ناپیوسته برای دستیابی به اسانس دارای بیش از ۷۵ درصد کارون و ۱۰ درصد لیمون انجام گرفت. در نهایت با شبیه‌سازی انجام شده، مقدار کارون در مخزن تقطیر و میزان لیمون در ظرف جمع‌آوری محصول در مدت زمان ۱۸/۵ ساعت به ترتیب به ۷۵ و ۲۰ درصد رسانده شد. به این ترتیب میزان کارون در طی استانداردسازی ۲۵ درصد افزایش یافت و از ۴۰ کیلوگرم اسانس خام، ۱۸/۲ کیلوگرم اسانس با خصوصیات مشابه اسانس و طعم‌دهنده وارداتی حاصل شد. این مطالعه از این بابت اهمیت ویژه دارد که با دستیابی به دانش فنی طراحی، ساخت و راهبری واحد استانداردسازی اسانس نعناع، می‌توان از ظرفیت‌های بالای کشت زراعی نعناع، استحصال اسانس و استانداردسازی آن در کشور استفاده کرد. هم‌چنین در صورت تأمین

جدول (۳) مقدار نهایی محصولات را به ما نشان می‌دهد. چنان‌که پیداست ۴۰ کیلوگرم خوراک با حدود ۵۰ درصد کارون به ۱۸/۲ کیلوگرم محصول ۷۵ درصد کارون رسیده است؛ به عبارت دیگر بازده تولید ۴۵/۵ درصد است.

جدول ۳. مقدار نهایی محصولات بر اساس نتایج شبیه‌سازی.

Table 3. Final Mass Hold up in Pot and Receivers Based on Simulation.

| Receiver/Pot   | Mass Hold up (Kg) |
|----------------|-------------------|
| Receiver 1     | 21.8              |
| Receiver 2     | 0                 |
| Residue in pot | 18.2              |

#### ۴. نتیجه‌گیری

اسانس نعناع یکی از فراورده‌های حائز اهمیت و دارای کاربرد گسترده در فرمول‌بندی مواد غذایی، دارویی، محصولات بهداشت دهان و دندان و دارای مصارف پزشکی و درمانی است. از لحاظ ارزش دلاری، اسانس نعناع ۲۰ درصد از کل بازار اسانس‌های گیاهی جهان و ۹۷ درصد از کل ارزش واردات اسانس‌های گیاهی کشور را

- [7] Chrysargyris, A., Xylia, P., Botsaris, G., Tzortzakis, N., "Antioxidant and antibacterial activities, mineral and essential oil composition of spearmint (*Mentha spicata* L.) affected by the potassium levels", *Industrial Crops and Products*, 103, pp. 202-212, (2017).
- [8] Mokhtarikhah, G., Ebadi, M. T., Ayyari, M., "Qualitative changes of spearmint essential oil as affected by drying methods", *Industrial Crops and Products*, 153, p. 112492, (2020).
- [9] Scheffer, J. J. C., "The isolation of essential oils-factors influencing the oil composition", *International Symposium on Medicinal and Aromatic Plants, Tiberias on the Sea of Galilee, Israel*, 344, pp. 2-8, (1993).
- [10] Benyoussef, E. H., Yahiaoui, N., Khelfaoui, A., Aid, F., "Water distillation kinetic study of spearmint essential oil and of its major components", *Flavour and Fragrance Journal*, 20, pp. 30-33, (2005).
- [11] Katiyar, R., "Modeling and simulation of *Mentha arvensis* L. essential oil extraction by water-steam distillation process", *International Research Journal of Engineering and Technology*, 4, pp. 2793-2798, (2017).
- [12] Salha, G. B., Díaz, R. H., Labidi, J., Abderrabba, M., "Deterpenation of *Origanum majorana* L. essential oil by reduced pressure steam distillation", *Industrial Crops and Products*, 109, pp. 116-122, (2017).
- [13] Zhang, L. G., Zhang, C., Ni, L. J., Yang, Y. J., Wang C. M., "Rectification extraction of Chinese herbs' volatile oils and comparison with conventional steam distillation", *Separation and Purification Technology*, 77, pp. 261-268, (2011).
- [14] Farah, A., Afifi, A., Fechtal, M., Chhen, A., Satrani, B., Talbi, M., Chaouch, A., "Fractional distillation effect on the chemical composition of moroccan myrtle (*Myrtus communis* L.) essential oils", *Flavour and Fragrance Journal*, 21, pp. 351-354, (2006).
- [15] Asadi, S., "Simulation of the multicomponent distillation of spearmint essential oil by a predictive soave-redlich-kwong equation of state and comparison with experiments", *Chemical Industry and Chemical Engineering Quarterly*, 20, pp. 417-423, (2014).
- [16] Cassel, E., Vargas, R. M. F., Martinez, N., Lorenzo, D., Dellacassa, E., "Steam distillation modeling for essential oil extraction process", *Industrial Crops and Products*, 29, pp. 171-176, (2009).
- [17] Mecklenburgh, J. C., "Process plant layout", Goodwin press, New York, p. 625, (1985).

تمام نیاز داخلی به اسانس و طعم‌دهنده نعناع، با ایجاد چنین واحدهایی صرفه‌جویی ارزی ۲۲۰ میلیون دلاری به‌همراه اشتغال‌زایی و کارآفرینی به ارمغان می‌آید. این پژوهش در آینده با بررسی امکان استفاده از محصولات جانبی فرایند استانداردسازی و شبیه‌سازی فرایند استانداردسازی اسانس سایر گیاهان معطر و دارویی ادامه خواهد یافت.

## ۵. قدردانی

این تحقیق در قالب هسته پژوهشی شماره ۵۲۱۲۹۱ با حمایت مادی و معنوی طرح احمدی روشن (دوره پنجم) بنیاد ملی نخبگان انجام پذیرفت؛ لذا نگارندگان مقاله بر خود لازم می‌دانند که نهایت تشکر و قدردانی خود را از بنیاد ملی نخبگان و هم‌چنین دانشگاه تربیت مدرس در فراهم کردن لایسنس نرم‌افزار اعلام نمایند. اعضای هسته پژوهشی نام‌برده عبارت‌اند از: علی نیکخواه، سرور برکت، هانیه امیرصدری نائینی، منا کاملان زرگر، فاطمه پارسایی‌فرد، مریم سلیمانی مقدم، الهام رضایت، سیما قاهری، مهدی اکبری، مهسا صمدی‌فر، آرش کاظم پور، کریم فرمان‌پور، حانیه احدی، محمدتقی عبادی، محمد فخرالاسلام.

## مراجع

- [1] Lawrence, B. M., "Mint: The genus *Mentha*", CRC press, London, p. 598, (2006).
- [2] Peter, V. C., "Handbook of herbs and spices", Vol. 3, Elsevier Science, New York, p. 568, (2006).
- [3] Ansari, K., Goodarznia, I., "Optimization of supercritical carbon dioxide extraction of essential oil from spearmint (*Mentha spicata* L.) leaves by using Taguchi methodology", *The Journal of Supercritical Fluids*, 67, pp. 123-130, (2012).
- [4] Caballero, B., Trugo, L. C., Finglas, P. M., "Encyclopedia of food sciences and nutrition", CRC press, London, p. 6601, (2003).
- [5] Sun, S., Lü, L., Yang, A., Shen, W., "Extractive Distillation: Advances in conceptual design, solvent selection, and separation strategies", *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 27: pp. 1247-1256, (2019).
- [6] Mahboubi, M., "Mentha spicata L. essential oil, phytochemistry and its effectiveness in flatulence", *Journal of Traditional and Complementary Medicine*, 11, pp. 75-81, (2018).