



## Numerical Modeling of the Ultrasonic Waves Effect on Demulsification of Oil-in-Water Emulsion System

I. Panahi<sup>1</sup>, P. Parvasi<sup>2</sup>, J. Javanmardi<sup>3\*</sup>

1- M. Sc. in Chemical Engineering, Shiraz University of Tecnology

2- Associate Professor of Chemical, Shiraz University of Tecnology

3- Professor of Chemical Engineering, Shiraz University of Tecnology

Email: javanmardi@sutech.ac.ir

### Abstract

Dispersed phase droplets recovery from an emulsion is widely used in various processes such as treating host liquids and collecting dispersed droplets. This article investigates the effect of ultrasonic waves on the demulsification of the oil-in-water system. Then a mathematical model was proposed to predict the number and size of dispersed phase droplets. The population balance integral equation terms were simplified using the Fixed Pivot method and the resulting ODE set was solved by applying MATLAB Software. Using the ultrasonic collision frequency effect, the oil droplets volumetric distribution profile in 1 and 3 minutes was studied. In addition, the average droplet diameter  $D_{4,3}$  and the total volume of dispersed phase at 1 min. and 3 min. were reported and the model prediction was compared with experimental data. The average droplet diameter showed that under the ultrasonic waves effect, the average diameter of the drops increased by more than 50% in 3 minutes. Also, the total volume of dispersed phase results indicates that the total volume of oil droplets (due to the lack of phase separation) remains constant for 3 minutes. This result proves the correctness of the newly developed mathematical model.

Received: 14 June 2023

Accepted: 18 November 2023

Page Number: 10-21

### Keywords:

Emulsion,  
 Ultrasonic Waves,  
 Aggregation,  
 Population Balance,  
 Ultrasonic Collision  
 Frequency

### Please Cite this Article Using:

Panahi, I., Parvasi, P., & Javanmardi, J. (2025). Numerical Modeling of the Ultrasonic Waves Effect on Demulsification of Oil-in-Water Emulsion System. *Iranian Chemical Engineering Journal*, 23(136), 10-21, [In Persian].



## مدل سازی عددی اثر امواج فراصوت بر امولسیون زدایی قطره های روغن در آب

ایلناز پناهی<sup>۱</sup>، پیام پرواسی<sup>۲</sup>، جعفر جوانمردی<sup>۳\*</sup>

۱- کارشناس ارشد مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی شیراز

۲- دانشیار مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی شیراز

۳- استاد مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی شیراز

پیام نگار: javanmardi@sutech.ac.ir

### چکیده

در مقاله حاضر، اثر امواج فراصوت به منظور امولسیون زدایی سامانه روغن در آب و همچنین تجمع قطره های فاز پراکنده (روغن) بررسی و یک مدل موازنه جمعیت برای پیش بینی تعداد و اندازه قطره های فاز پراکنده ارائه شده است. در ابتدا معادله ضریب برخورد تحت تأثیر امواج فراصوت به صورت تابعی از فرکانس موج، چگالی انرژی میدان صوتی و قطر قطره ها برای اولین بار پیشنهاد شد. معادله ضریب برخورد به مدل موازنه جمعیت اضافه شد و در این مدل، معادله ریاضی انتگرالی دیفرانسیلی حاصل به کمک روش عددی Fixed Pivot ساده سازی و دستگاه معادلات ODE حاصل از آن با نرم افزار MATLAB حل شد. در ادامه، نمودار توزیع حجمی قطره های روغن در زمان های ۱ و ۳ دقیقه با و بدون استفاده از تأثیر معادله ضریب برخورد امواج فراصوت و همچنین میانگین قطر قطره ها و حجم کل قطره ها ترسیم و با داده های آزمایشگاهی موجود در مطالعات گذشته مقایسه شده است. نتایج نشان داد که با اعمال جدید در مدل ریاضی، تطابق بهتری میان نتایج آزمایشگاهی و نتایج مدل سازی به دست آمده است. همچنین از نمودار میانگین قطر قطره ها مشخص است که تحت تأثیر امواج فراصوت قطر متوسط قطره ها در زمان ۳ دقیقه بیش از ۵۰٪ رشد داشته است. در نهایت، نمودار حجم کل قطره ها نشان داد که حجم کل قطره های روغن (باتوجه به عدم جدایش فاز) در طول زمان ۳ دقیقه ثابت مانده که خود دلیلی بر صحت مدل ریاضی استفاده شده است.

### کلیدواژه ها:

سامانه روغن در آب،  
امولسیون،  
امواج فراصوت،  
موازنه جمعیت،  
ضریب برخورد امواج فراصوت

\* شیراز، دانشگاه صنعتی شیراز، دانشکده مهندسی شیمی، نفت و گاز  
استناد به مقاله:

پناهی، ایلناز، پرواسی، پیام، و جوانمردی، جعفر. (۱۴۰۳). مدل سازی عددی اثر امواج فراصوت بر امولسیون زدایی قطره های روغن در آب، نشریه مهندسی شیمی ایران، ۲۳(۱۳۶)، ۱-۲۱.

## ۱. مقدمه

امروزه یکی از اصلی‌ترین آلاینده‌های محیط‌های آبی، امولسیون پایدار نفت در آب است که از اختلاط نفت و آب تشکیل شده و حذف این لایه‌های امولسیونی به دشواری انجام می‌گیرد. این آلودگی‌ها عمدتاً ناشی از رهاسازی پساب نفتی بسیاری از صنایع همانند نفت، پتروشیمی و پالایشگاه است که با هدف حفظ محیط زیست و کاهش آلودگی‌های نفتی در محیط‌های آبی، اقدامات لازم برای جداسازی کامل این امولسیون‌ها با استفاده از روش‌های امولسیون‌زدایی انجام می‌شود [۱-۴].

باتوجه به این که جداسازی قطره‌های پراکنده یک مایع با محدوده اندازه میکرون - میلی‌متر از یک امولسیون، موضوعی مهم و اساسی در بسیاری از فرایندهای شیمیایی، پتروشیمی و حتی درزمینه خالص‌سازی مایع میزبان و یا بازیابی قطره‌های فاز پراکنده به‌شمار می‌آید؛ استفاده از امواج فراصوت در انعقادسازی و تجمع قطره‌های روغنی و سپس جداسازی آن‌ها از پساب‌های صنعتی و پساب‌های حاصل از این صنایع پیشرفت چشم‌گیری داشته‌است [۵-۸].

در این روش از اختلاف چگالی و هم‌چنین اختلاف سرعت صوت درون فازهای پراکنده و پیوسته که به‌طور طبیعی در بسیاری از پراکندگی‌ها وجود دارد، برای جداسازی فازها بهره گرفته می‌شود. درحقیقت تا زمانی که سرعت صوت در دو فاز متفاوت است، می‌توان از این روش برای جداسازی قطره‌های فاز پراکنده از فاز پیوسته استفاده کرد [۹].

سازوکار امواج فراصوت این‌گونه است که قطرات فاز پراکنده به گره و یا پادگره‌های فشار مهاجرت می‌کنند و پس از آن در اثر نیروهای صوتی ثانویه، تجمع قطره‌ها امکان می‌پذیرد. میزان نیروی صوتی اعمال شده، به تفاوت چگالی و هم‌چنین تفاوت سرعت موج در قطرات فاز پراکنده و سیال پیوسته بستگی دارد. بنابراین، این روش برای امولسیون‌زدایی و جداسازی فاز پراکنده از یک سیال پیوسته، تا زمانی که سرعت صوت در دو فاز متفاوت است، مفید واقع می‌شود [۱۰-۱۱].

یکی از اصولی‌ترین کارهای مدل‌سازی جداسازی امولسیون روغن در آب به‌دست پانگو و فکه انجام شده‌است. آن‌ها تجمع قطرات امولسیون را در چگالی شدت میدان‌های صوتی ۰/۳۸ و ۱۰۰ ژول بر مترمکعب و فرکانس ۲ مگاهرتز به روش آزمایشگاهی بررسی کردند.

در ادامه یک مدل تجمع جفت-قطره را به‌صورت تئوری ارائه دادند. نتایج نشان داد که متوسط اندازه قطره‌های روغن در طول ۵ دقیقه از ۱۰ میکرومتر به ۱۵ میکرومتر افزایش یافته‌است [۱۲].

غفوریان نصیری و همکاران مدلی جدید برای جداسازی امولسیون روغن از آب توسعه دادند. در این مطالعه توانایی مدل شبکه عصبی برای شبیه‌سازی اندازه قطره‌ها پایلوت آزمایشگاهی بررسی شد. براساس نتایج آزمایشگاهی، حداکثر اندازه قطرات در فاصله طول موج ۱۱/۴ ل به‌دست آمد [۱۳].

بصیری و همکاران اثر امواج فراصوت را در فرایند روغن‌گیری از دانه‌های انار مطالعه کردند. فرکانس مورد بررسی در تحقیقات آنان ۲۰ کیلوهرتز بود. در طراحی آزمایش مشخصه‌های اثر وجود موج فراصوت در کنار حلال، زمان استخراج و آماده‌سازی و فراورش دانه‌های انار را انتخاب کردند. زمان‌های آزمایش مورد مطالعه ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه بودند. در فرایند آماده‌سازی و فراورش اثرات آسیاب کردن، خیساندن و آگیری مد نظر قرار گرفت. درنهایت به این نتیجه رسیدند که فراورش دانه‌های انار با آب گرم و امواج فراصوت در کنار استخراج با حلال و امواج فراصوت می‌تواند بیشترین بازده استخراج را در زمان ۳۰ دقیقه داشته‌باشد [۱۴].

پرواسی و همکاران، یک مدل برای برخورد دو قطره نفت در محیط آبی تحت امواج مایکروویو و امواج فراصوت ارائه کردند. مدل ارائه شده آن‌ها مسیر نسبی دو قطره را در میدان امواج که ناشی از نیروهای سطحی و بین مولکولی است، تحت امواج مایکروویو و امواج فراصوت پیش‌بینی می‌کند. طبق نتیجه‌گیری آن‌ها، در چگالی شدت میدان صوتی ۱۰۰ ژول بر مترمکعب برخورد میان قطره‌ها تحت امواج ماکروویو تا ۲۰ برابر سریعتر از امواج فراصوت به‌دست آمد [۱۵].

نصیری و همکارانش به‌منظور بهبود امولسیون‌زدایی نفت در آب، از امواج مافوق صوت با شدت بالا استفاده کردند. آن‌ها اثرات زمان صوت‌دهی، موقعیت امولسیون در میدان مافوق صوت، شدت ورودی موج و غلظت فاز پراکنده را بر ناپایداری امولسیون بررسی کردند. براساس نتایج، مشخص شد که با درصد نفت ۱۰٪، میزان شدت صوت ۲۰٪ در زمان ۳۰ دقیقه و فاصله ۱۷ سانتیمتر از منبع تولید صوت بهترین راندمان جداسازی به‌دست می‌آید [۱۶].

سان و همکاران باتوجه به زمان‌بر بودن و مصرف بالای انرژی

به‌دست آمدند. ویژگی اعمال رابطه ضریب فراصوت این است که می‌توان تأثیر فرکانس و انرژی صوتی را در نتایج مدل‌سازی میزان جداسازی مشاهده کرد.

## ۲. مدل‌سازی

برای بررسی فرایند امولسیون‌زدایی و برای مطالعه اثر امواج فراصوت بر تجمع قطرات روغن در آب، یک مدل ریاضی براساس موازنه جمعیت برای پیش‌بینی تعداد و اندازه قطره‌های روغن معلق ارائه می‌شود تا رفتار سامانه امولسیونی را نسبت به زمان پیش‌بینی کند. برای یک سامانه ناپیوسته امولسیونی روغن در آب، موازنه جمعیت به موازنه جرم اضافه می‌شود تا توزیع اندازه قطره‌های فاز پراکنده و تغییرات آن را نسبت به زمان ارائه دهد.

$$Accumulation = Input - Output + Generation - Consumption + \theta \quad (1)$$

معادله موازنه جرم با توجه به ناپیوسته و همگن بودن سامانه و این‌که در سامانه مورد مطالعه واکنش شیمیایی انجام نمی‌گیرد، به شکل زیر خلاصه می‌شود:

$$\frac{dn}{dt} = \theta \quad (2)$$

در رابطه فوق عبارت  $\theta$  ترم منبع یا ترم مربوط به موازنه جمعیت را نشان می‌دهد. معادله موازنه جمعیت دربرگیرنده پدیده‌هایی مانند تجمع، شکست، رشد و هسته‌زایی است [۱۸]. در مطالعه حاضر تنها به بررسی تجمع یا به هم پیوستگی قطرات فاز پراکنده تحت تأثیر امواج فراصوت پرداخته شده است. معادله (۲) بیانگر ترم منبع است که نرخ تولد و مرگ قطرات را در اثر تجمع دوتایی (binary) نشان می‌دهد:

$$\theta_{agg} = 1/2 \int_{v_i}^{v_{i+1}} dv \int_0^v \varphi(v', v - v') n(v - v', t) n(v', t) dv' - \int_{v_i}^{v_{i+1}} n(v, t) dv \int_0^\infty \varphi(v, v') n(v, t) n(v', t) dv' \quad (3)$$

در معادله موازنه جمعیت فوق، مشخصه  $t$  یا زمان به‌عنوان مختصات خارجی و  $v$  یا حجم به‌عنوان مختصات داخلی است. روش حل

روش‌های متداول جداسازی امولسیون‌های آب در روغن، اثر امواج فراصوت را شامل دما، دمولسیفایر، زمان ته‌نشینی و زمان تابش فراصوت در پدیده جداسازی روغن‌های امولسیونی از پساب بررسی کردند. بیشترین بازده جداسازی امولسیون‌ها در دمای ۶۰ درجه سلسیوس، تابش فراصوت ۲۰ کیلوهرتز به مدت ۵ دقیقه و شدت صوت ۰/۶۶ وات بر سانتی‌مترمربع به دست آمد [۱۷].

امانی و همکاران اثربخشی امولسیون‌زدایی حرارتی (حمام آب)، مکانیکی (سانتریفیوژ)، شیمیایی (امولسیون‌شکن) و فراصوتی را برای مخلوط‌های مختلف روغن در آب بررسی و کدورت را قبل و بعد از اعمال فراصوت اندازه‌گیری کردند. آن‌ها دریافتند که زمان مناسب برای اعمال فراصوت ۱۵ دقیقه است و اعمال فراصوت باعث کاهش کدورت نمونه از ۶۰ درصد به ۲۰ درصد می‌شود [۱۸].

خواجه حسام‌الدینی و همکاران با طراحی یک سامانه، استفاده از امواج فراصوت را به منظور کاهش مصرف دیمولسیفایرها در تصفیه اولیه نفت خام بررسی کردند. آن‌ها اثر تغییرات زمان تابش، شدت میدان صوتی و درصد اولیه آب را بررسی کردند و سپس یک مدل موازنه جمعیت ارائه دادند. نتایج نشان داد که استفاده از امواج فراصوت با فرکانس ۲۰ کیلوهرتز و مدت زمان تابش موج ۵۶ دقیقه می‌تواند تا ۵۰٪ مصرف ماده تعلیق‌شکن شیمیایی را کاهش دهد [۱۹].

آزی و همکاران اثر استفاده از سامانه غشایی و امواج فراصوت را در فرایند جداسازی امولسیون روغن در آب بررسی کردند. نتایج تحقیق نشان داد که استفاده از امواج فراصوت می‌تواند راندمان جداسازی از غشا را از ۴۹٪ تا ۹۰٪ افزایش دهد [۲۰].

پرواسی و همکاران تأثیر امواج فراصوت را در جداسازی پساب نفتی (امولسیون نفت در آب) با نرم‌افزار مینی‌تب بررسی کردند. نتایج نشان داد که امواج فراصوت توانسته میزان راندمان جداسازی را نسبت به فرایند ثقلی ۱/۷۲ برابر افزایش دهد [۲۱].

در مطالعه حاضر، برای بررسی اثر امواج فراصوت بر امولسیون‌زدایی سامانه امولسیونی روغن در آب یک مدل ریاضی براساس موازنه جمعیت برای پیش‌بینی تعداد و اندازه قطره‌های روغن معلق ارائه شده تا رفتار سامانه امولسیونی را نسبت به زمان پیش‌بینی کند. در ادامه یک رابطه برای ضریب برخورد تحت تأثیر امواج فراصوت ارائه شد و با داده‌های آزمایشگاهی مشخصه‌های بهینه ضریب برخورد

$$\varphi_{ds(i,j)} = \frac{\pi}{4} (d_i + d_j)^2 |\omega_i - \omega_j| \quad (7)$$

$$\omega_i = k_1 \frac{(\rho_c - \rho_d) d_i^2 g}{18 \mu_c}$$

$$\varphi_{br(i,j)} = \frac{2KT}{\mu_c} \left( \frac{1}{d_i} + \frac{1}{d_j} \right) (d_i + d_j) \quad (8)$$

$k_1$  و  $k_2$  مشخصه‌های تنظیم‌پذیر هستند.  $d$  قطر،  $T$  دما و  $K$  ثابت بولتزمن است.  $\rho_c$  و  $\rho_d$  به ترتیب چگالی فاز پیوسته و فاز پراکنده و  $\mu$  گرانروی را نشان می‌دهد. لازم به ذکر است که اندیس‌های  $i$ ،  $j$  و  $k$  کلاس‌های مختلف حجمی را نشان می‌دهند.

برای ضریب برخورد تحت امواج فراصوت ( $\varphi_{ultrasonic}$ ) رابطه (۹) در نظر گرفته شده است.

$$\varphi_{ultrasonic} = (\alpha_0 F^{-\alpha_1} E_{ac}^{\alpha_2}) (d_i + d_j)^2 \quad (9)$$

در رابطه فوق  $F$  فرکانس صوتی،  $E_{ac}$  چگالی انرژی میدان صوتی،  $d$  قطر کلاس‌های مختلف حجمی و  $\alpha_0$  و  $\alpha_1$  و  $\alpha_2$  مشخصه‌های تنظیم‌پذیر است. مشخصه‌های تنظیم‌پذیر به کمک محاسبات بهینه‌سازی مشخص خواهند شد.

دلیل انتخاب این فرم از معادله این است که در مطالعات گذشته ذکر شده که میزان فرکانس، چگالی انرژی میدان صوتی امواج فراصوت و اندازه قطره‌ها نسبت مستقیم در افزایش ضریب برخورد قطره‌های فاز پراکنده دارند [۱۰-۱۲].

### ۳. روش حل عددی مدل ریاضی

فلوچارت‌های حل مدل ریاضی و بهینه‌سازی مشخصه‌های تنظیم‌پذیر در شکل‌های (۱) و (۲) آورده شده‌اند.

برطبق معادله برای هر کلاس در نظر گرفته از قطره‌ها یک معادله دیفرانسیل شامل ترم‌های تولد و مرگ در اثر فرایند تجمع به دست می‌آید. باتوجه به داده‌های آزمایشگاهی توزیع اندازه قطر قطره‌ها بین ۴ میکرومتر تا ۴۰ میکرومتر است که در این بازه ۱۰۰ کلاس اندازه قطر قطره در نظر گرفته شده است. از روش ذودنقه (ode23t) نرم‌افزار MATLAB برای حل مجموعه معادلات دیفرانسیل معمولی (ODEs) استفاده شد.

عددی پیشنهادی کومار و رام کریشنا، روش Fixed Pivot، برای گسسته‌سازی معادله موازنه جمعیت فوق به کار گرفته شده است [۲۲]. در این روش برای تقسیم‌بندی کل محدوده حجم به کلاس‌های مختلف از یک تصاعد هندسی به شکل  $x_{i+1} = S \cdot x_i$  استفاده می‌شود. در حالی که  $S$  ضریب تصاعد هندسی و یک عدد ثابت است. بازه حجم بین  $x_{i-1/2}$  و  $x_{i+1/2}$  کلاس  $i$  نام‌گذاری می‌شود. جمعیت قطره‌ها در کلاس  $i$ ، با نماینده کلاس یعنی  $x_i$  نشان داده می‌شود. پس از گسسته‌سازی به روش Fixed Pivot معادله موازنه جمعیت به شکل زیر تغییر می‌کند [۲۲]:

$$\theta_{agg} = \sum_{\substack{j \geq k \\ x_i \leq x_j \leq x_{i+1}}} (1 - \frac{1}{2} \delta_{j,k}) \eta \varphi_{j,k} N_j N_k - \sum_{j=1}^I \varphi_{i,j} N_j N_i \quad (4)$$

در معادله (۴) عبارت‌های اول و دوم در سمت راست تساوی، به ترتیب عبارت تولد و مرگ در اثر فرایند تجمع است. هم‌چنین  $\eta$  توزیع در طول کلاس‌ها را بیان می‌کند [۲۳]:

$$\eta_i(x) = \begin{cases} \frac{x_{i+1}-x}{x_{i+1}-x_i}, & x_i \leq x \leq x_{i+1} \\ \frac{x-x_{i-1}}{x_i-x_{i-1}}, & x_{i-1} \leq x \leq x_i \end{cases} \quad (5)$$

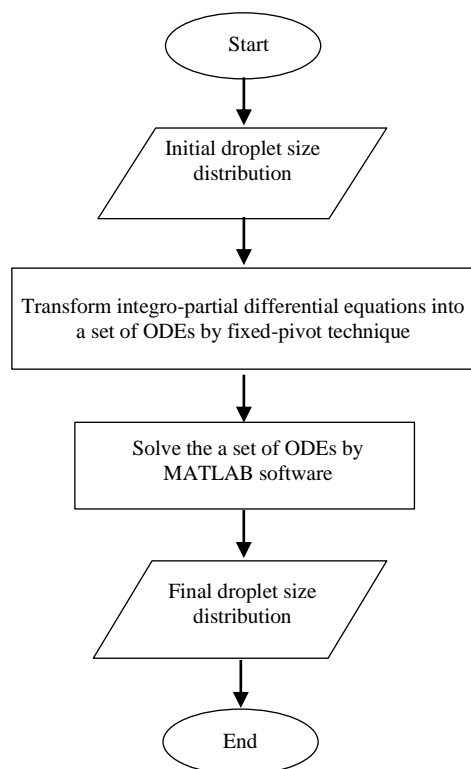
هم‌چنین در معادله (۳)، مشخصه  $\varphi$  ضریب برخورد قطره‌ها برای شکل‌گیری قطره جدید و از بین رفتن قطره‌های کوچک است. برای تعیین مقدار  $\varphi$  باید چگونگی حرکت قطره‌های فاز پراکنده در فاز پیوسته بررسی شود.

برخورد بین قطره‌های فاز پراکنده طی سه فرایند بالانشینی دیفرانسیلی، حرکت براونی و میدان امواج فراصوت امکان می‌پذیرد. در مطالعات گذشته برای دو فرایند تهنشینی دیفرانسیلی و حرکت براونی توابعی تعریف شده است.

هم‌چنین  $\omega$  سرعت بالانشینی قطره‌های فاز روغنی را بیان می‌کند که در اثر اختلاف چگالی دو فاز ممکن می‌شود. معادله کلی در نظر گرفته شده برای ضریب برخورد ( $\varphi_{(i,j)}$ ) با رابطه (۶) بیان می‌شود.

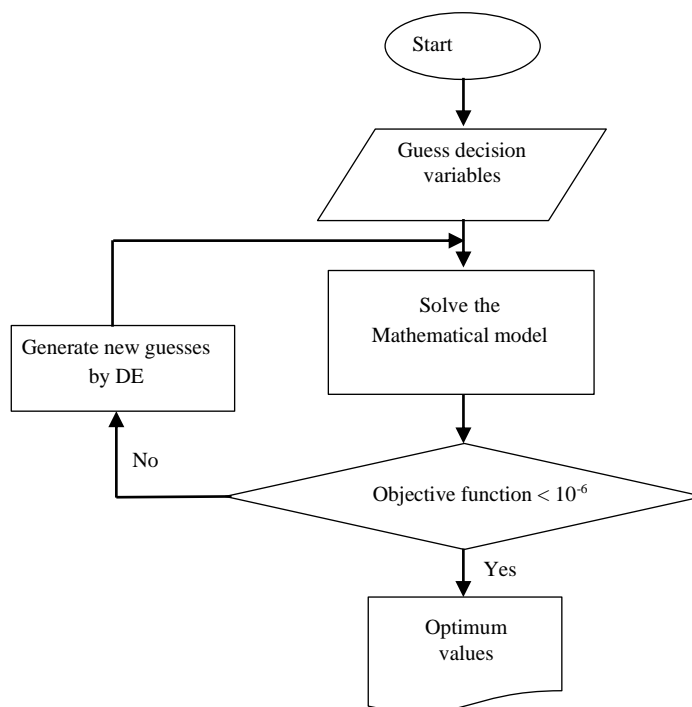
$$\varphi_{(i,j)} = k_2 (\varphi_{br} + \varphi_{ds} + \varphi_{ultrasonic}) \quad (6)$$

در معادله ۶، مشخصه‌های  $\varphi_{br}$  و  $\varphi_{ds}$  با روابطی که در ادامه آمده حساب می‌شوند [۲۴].



شکل ۱. فلوچارت حل مدل ریاضی چسبیدن قطره‌های روغن.

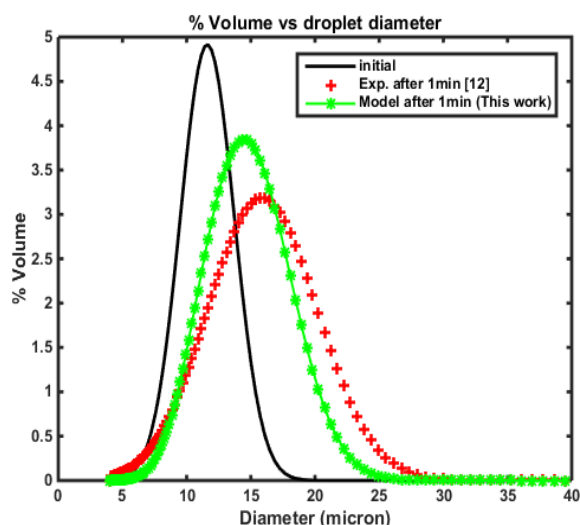
Figure 1. Flowchart of solving procedure of the of oil droplets coalescence.



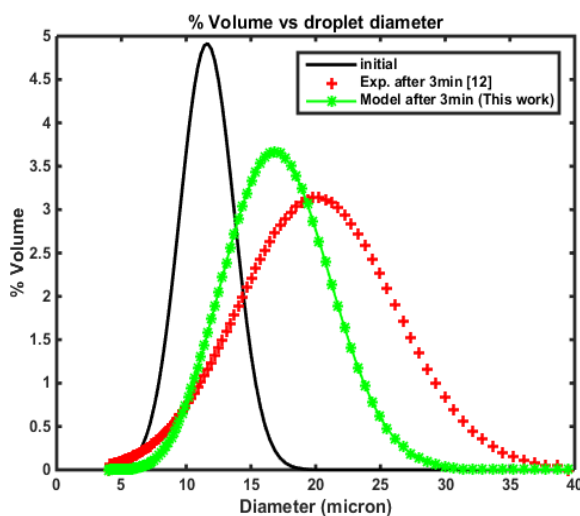
شکل ۲. فلوچارت بهینه‌سازی به روش DE

Figure 2. Flowchart of optimization by DE method.

به‌منظور صحت‌سنجی مدل، نتایج به‌هم‌پیوستن قطره‌های روغن پس از سپری‌شدن دو زمان ۱ دقیقه و ۳ دقیقه با نتایج آزمایشگاهی پانگو [۱۲] مقایسه و در شکل (۳) ارائه شده‌است. منحنی مشکی‌رنگ، توزیع اولیه قطره‌های روغن را نشان می‌دهد. در این منحنی بازه اندازه قطره‌ها از ۴ میکرومتر تا ۱۸ میکرومتر است. با توجه به فرم منحنی توزیع متوسط اندازه قطره‌ها در حدود ۱۱ میکرومتر است.



(a)



(b)

شکل ۳. به هم پیوستن قطره‌های روغن پس از سپری‌شدن (a) زمان ۱ دقیقه، (b) زمان ۳ دقیقه.

Figure 3. Oil droplet coalescence after (a) 1 min. (b) 3 min.

بهینه‌کردن مشخصه‌های تنظیم‌پذیر در این تحقیق، با استفاده از روش بهینه‌سازی سراسری Differential Evolution انجام گرفته‌است. این الگوریتم بهینه‌سازی که به اختصار DE نامیده می‌شود توانایی خوبی در بهینه‌سازی توابع غیرخطی مشتق‌ناپذیر دارد که به‌عنوان روشی قدرتمند و سریع برای مسائل بهینه‌سازی در فضاهای پیوسته معرفی شده‌است.

الگوریتم (DE) برای غلبه بر عیب اصلی الگوریتم ژنتیک، یعنی فقدان جستجوی محلی در این الگوریتم ارائه شده‌است. تفاوت اصلی بین الگوریتم‌های ژنتیکی و الگوریتم (DE) در عملکرد انتخاب selection operators است [۲۵].

#### ۴. بحث و نتایج

در این قسمت، ابتدا صحت مدل‌سازی با استفاده از معادله موازنه جمعیت برای یک سامانه امولسیون روغن در آب بررسی شده‌است. در ادامه، اثر فرکانس صوت و چگالی انرژی صوت بر روی نتایج بررسی شده‌است. برای ارزیابی مدل و بررسی صحت مدل‌سازی انجام‌شده، از داده‌های ورودی و نمودارهای توزیع اندازه قطره‌های ارائه‌شده پانگو استفاده شده‌است [۱۲].

مشخصات سامانه امولسیون مورد مطالعه و مشخصه‌های عددی مؤثر در حل مدل ریاضی انجام‌شده در جدول (۱) آمده‌است.

جدول ۱. مشخصه‌های تجربی سامانه امولسیون روغن در آب [۱۲].

Table 1. The experimental parameters of the oil emulsion in water system [12].

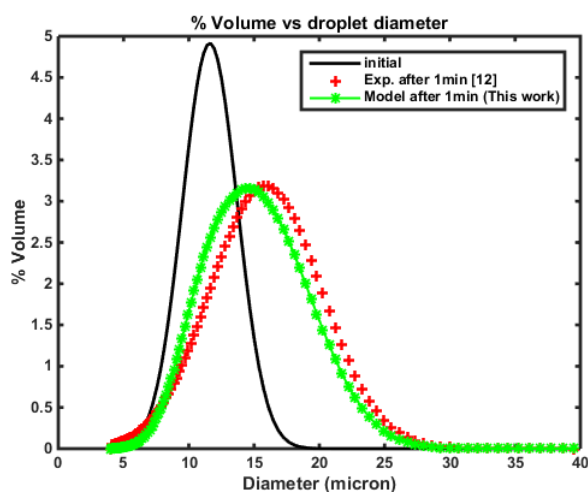
Properties	Value
oil density ( $10^6 \text{ gr/cm}^3$ )	0.9
oil viscosity (cP)	$88 \pm 4.6$
initial emulsion volume ( $\text{cm}^3$ )	40
initial oil volume ( $\text{cm}^3$ )	2
temperature (K)	296.15
ultrasonic frequency (MHz)	1.69
ultrasonic field energy density ( $\text{J/m}^3$ )	19.7
Boltzmann constant ( $\text{gr.cm}^2/\text{s}^2.\text{K}$ )	$1.38 \times 10^{-16}$
number of classes	$I=100$
geometric size interval	1.0715

جدول ۲. مقدارهای بهینه مشخصه‌های تنظیم‌پذیر ضریب برخورد مافوق صوت.

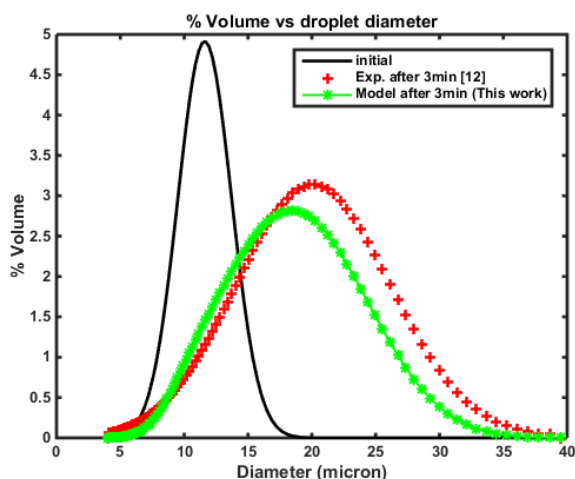
Table 2. Optimal values of the ultrasonic collision frequency constants.

coefficient parameter	$\alpha_0$	$\alpha_1 \times 10^4$	$\alpha_2 \times 10^4$
value	0.3521	1.0583	1.0013

نتایج حاصل از مدل سازی در زمان‌های ۱ و ۳ دقیقه، پس از اعمال ضریب برخورد فراصوت در شکل (۴) ارائه شده است.



(a)



(b)

شکل ۴. به هم پیوستن قطره‌های روغن با احتساب ضریب برخورد فراصوت پس از سپری شدن (a) زمان ۱ دقیقه، (b) زمان ۳ دقیقه.

Figure 4. Oil droplet coalescence by considering the ultrasonic collision frequency effect: after (a) 1 min. (b) 3 min.

برای جداسازی قطره‌ها اندازه قطر قطره باید تا حدود ۲۰ میکرومتر افزایش یابد [۱۹]. همان‌طور که در نمودار اندازه قطره‌ها پس از سپری شدن ۳ دقیقه مشاهده می‌شود، متوسط اندازه قطره‌ها در حدود ۲۰ میکرومتر رسیده که نشان‌دهنده رشد کافی قطره‌ها برای جداسازی فاز روغن است.

نکته دیگر تفاوت نمودارهای مدل سازی با داده‌های تجربی است. دلیل آن در نظر نگرفتن اثر ضریب برخورد فراصوت است. در این قسمت از مدل سازی فقط تأثیر ضرایب برخورد بالانشینی دیفرانسیلی و حرکت براونی (مدل‌های فعلی) لحاظ شده است. درصد خطای نسبی میان داده‌های تجربی و داده‌های مدل سازی در زمان‌های ۱ و ۳ دقیقه با رابطه (۱۰) تعریف می‌شود:

$$Relative\ error = Average \left( \frac{|V\%_{cal} - V\%_{exp}|}{V\%_{exp}} \right) \times 100 \quad (10)$$

مقدار درصد خطای نسبی در زمان‌های ۱ و ۳ دقیقه عبارت است از ۰/۰۹۶۹ و ۰/۱۵۷۹. در ادامه برای بهبود بخشیدن به نتایج مدل سازی، ضریبی تحت عنوان ضریب برخورد فراصوت (Ultrasonic) برای بررسی برخورد میان قطره‌های فاز پراکنده تحت امواج فراصوت در نظر گرفته شده که شامل ضرایب تنظیم‌پذیر  $\alpha_0$  و  $\alpha_1$  و  $\alpha_2$  است.

همان‌گونه که در قسمت روش حل عددی مدل ریاضی ذکر شد مقدارهای بهینه ضرایب تنظیم‌پذیر  $\alpha_0$  و  $\alpha_1$  و  $\alpha_2$  به کمک الگوریتم تکامل تفاضلی (DE) با به حداقل رساندن اختلاف میان نتایج حاصل از مدل سازی و مقادیر آزمایشگاهی در زمان‌های ۱ و ۳ دقیقه به دست آمده‌اند. تابع هدف برای بهینه‌سازی با رابطه (۱۱) تعریف می‌شود:

$$O.F. = \frac{\sum_{i=1}^n |V\%_{cal} - V\%_{exp}|^2}{n} \quad (11)$$

مقدارهای بهینه تعیین شده برای ضرایب  $\alpha_0$  و  $\alpha_1$  و  $\alpha_2$  در جدول (۲) آمده است. لازم به ذکر است که در محاسبات بهینه‌سازی فقط از داده‌های زمان ۱ دقیقه برای به دست آوردن مقدارهای بهینه مشخصه‌های تنظیم‌پذیر استفاده شده است و داده‌های زمان ۳ دقیقه برای ارزیابی مجدد به کار رفته‌اند. ویژگی اعمال رابطه ضریب فراصوت این است که می‌توان تأثیر فرکانس و انرژی صوتی را در میزان جداسازی مشاهده کرد.

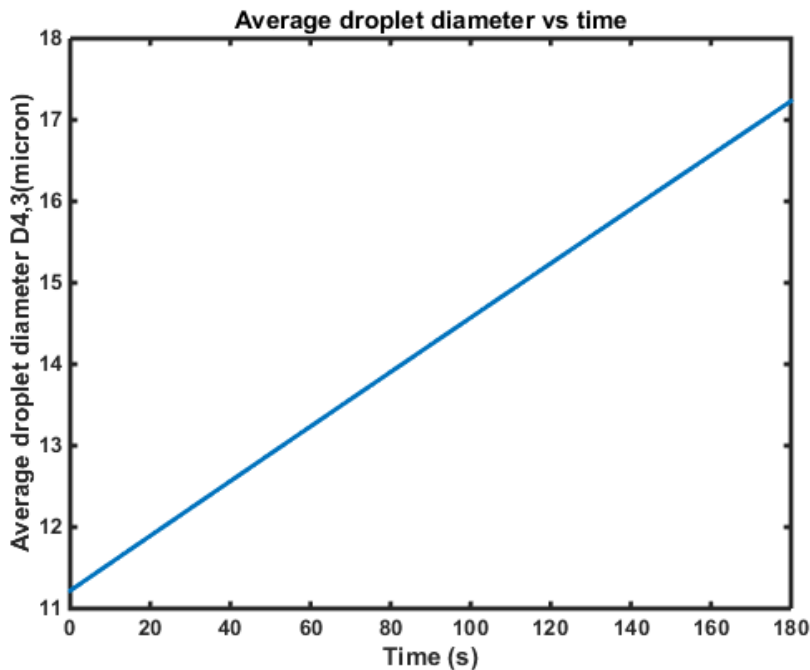
$$D_{4,3} = \frac{\sum_{i=1}^I \left( \frac{n_i}{\sum_{i=1}^I n_i} \times d_i^4 \right)}{\sum_{i=1}^I \left( \frac{n_i}{\sum_{i=1}^I n_i} \times d_i^3 \right)} \quad (12)$$

که در رابطه فوق  $d_i$  و  $n_i$  به ترتیب قطر و تعداد قطره‌های کلاس  $i$  را بیان می‌کنند. در ادامه میانگین قطر قطره‌های روغن امولسیون بعد از گذشت زمان ۳ دقیقه در شکل (۵) آورده شده است. همان‌گونه که پیدا است، میانگین قطر قطره‌های روغن امولسیونی در حدود ۵۰ درصد افزایش یافته که نشان‌دهنده تأثیر زیاد استفاده از امواج فراصوت است.

در این تحقیق سامانه امولسیونی همگن در نظر گرفته شده و فرض شده که در زمان بررسی فرایند جدایش فاز روغن وجود ندارد و باید حجم کل قطره‌های روغن در طول فرایند ثابت بماند. لذا برای بررسی صحت مدل از منظری دیگر، حجم کل قطره‌ها در طول زمان ۳ دقیقه نیز حساب شده و در شکل (۶) آورده شده است. چنان‌که مشخص است، حجم کل قطره‌ها در طول زمان ۳ دقیقه باقی مانده است.

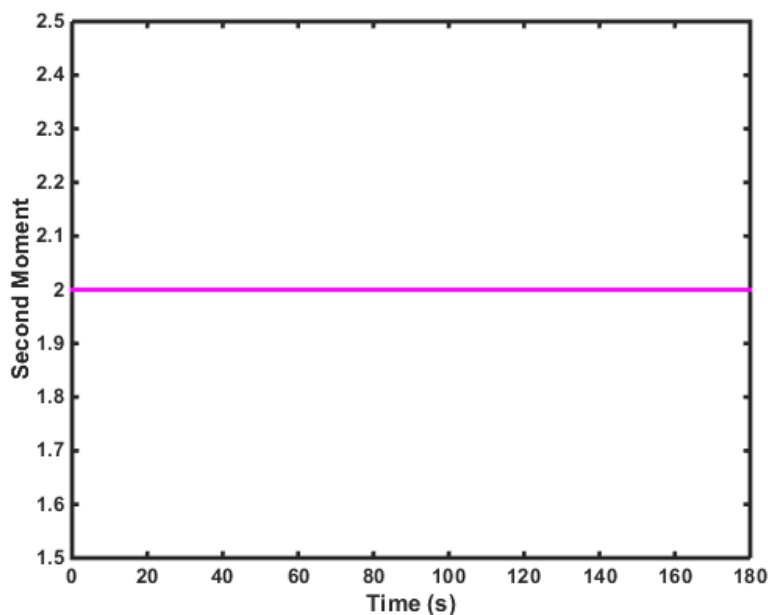
همان‌طور که در نمودارهای شکل (۴) مشاهده می‌شود، پیش‌بینی مدل‌سازی انجام‌شده بعد از تأثیر ضریب برخورد فراصوت  $\phi_{ultrasonic}$  از تطابق بسیار بهتری با نتایج آزمایشگاهی گزارش‌شده برخوردار شده است. حتی در زمان ۳ دقیقه که از داده‌های آن در بهینه‌سازی استفاده نشده است، تطابق خوبی میان داده‌های تجربی و نمودار حاصل از مدل‌سازی مشاهده می‌شود. در این حالت مقدار درصد خطای نسبی در زمان‌های ۱ و ۳ دقیقه به میزان ۰/۰۶۱۶ و ۰/۰۷۵۱ به دست آمدند که نسبت به درصد خطای نسبی قبل از بهینه‌سازی کاهش قابل توجهی یافته است.

هم‌چنین براساس شکل (۴) مشاهده می‌شود که تجمع قطره‌های کوچک روغن با گذشت زمان و در اثر ایجاد برخورد بین این قطره‌ها، که ناشی از سازوکارهای ته‌نشینی دیفرانسیلی، حرکت براونی و هم‌چنین در اثر تابش امواج مافوق صوت است، قطره‌های بزرگ‌تر روغن را تشکیل می‌دهد. برای درک بهتر این موضوع، میانگین قطر قطره‌های روغن از معادله (۱۲) حساب شده است.



شکل ۵. تغییر میانگین قطر قطره‌های روغن امولسیونی پس از سپری شدن زمان ۳ دقیقه.

Figure 5. Oil emulsion mean diameter change after 3 minutes.



شکل ۶. مجموع حجم قطره‌های روغن امولسیونی پس از سپری شدن زمان ۳ دقیقه.

Figure 6. The total volume of oil emulsions after 3 minutes.

به دست آمده است. همچنین از نمودار میانگین قطر قطره‌ها مشخص است که تحت تأثیر امواج فراصوت قطر متوسط قطره‌ها در زمان ۳ دقیقه بیش از ۵۰٪ رشد داشته است. در نهایت، نمودار حجم کل قطره‌ها نشان داد حجم کل قطره‌های روغن (باتوجه به عدم جدایش فاز) در طول زمان ۳ دقیقه ثابت مانده که خود دلیلی بر صحت مدل ریاضی استفاده شده است.

#### ۶. فهرست نشانه‌های اختصاری

$d_i$	قطر قطره‌های کلاس $i$ (cm)
$E_{ac}$	چگالی انرژی صوتی ( $\text{gr}/\text{cm} \cdot \text{s}^2$ )
$F$	فرکانس موج صوتی ( $\text{gr} \cdot \text{cm}^2/\text{s}^2$ )
$K$	ثابت بولتزمن ( $\text{gr}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}^2 \cdot \text{K}$ )
$N$	تعداد قطره‌ها
$S$	قدر نسبت تعاضد هندسی
$\eta$	تابع توزیع
$\theta$	ترم منبع ( $\text{cm}^3/\text{s}$ )
$\varphi_{br}$	ضریب برخورد حرکت براونی ( $\text{cm}^3/\text{s}$ )
$\varphi_{ds}$	ضریب برخورد تنشینی دیفرانسیلی ( $\text{cm}^3/\text{s}$ )
$\varphi_{ultrasonic}$	ضریب برخورد امواج فراصوت ( $\text{cm}^3/\text{s}$ )

#### ۵. نتیجه‌گیری

در تحقیق حاضر، فرایند تجمع قطرات فاز پراکنده و امولسیون‌زدایی صوتی سامانه روغن در آب بررسی شد و با استفاده از داده‌های آزمایشگاهی موجود، یک مدل ریاضی مبتنی بر موازنه جمعیت برای پیش‌بینی توزیع اندازه قطرات فاز پراکنده ارائه شد. همچنین مدلی جدید برای ضریب برخورد فراصوت به صورت تابعی از فرکانس صوت و چگالی انرژی صوت ارائه شد. معادلات انتگرالی - دیفرانسیلی موجود در موازنه جمعیت با کمک روش گسسته‌سازی Fixed Pivot ساده‌سازی شدند. باتوجه به داده‌های آزمایشگاهی توزیع اندازه قطر قطره‌ها (بین ۴ میکرومتر تا ۴۰ میکرومتر)، ۱۰۰ کلاس اندازه قطر قطره در این بازه در نظر گرفته شد و به کمک نرم‌افزار MATLAB دستگاه معادلات دیفرانسیل معمولی توزیع اندازه قطره‌ها حل شد. در ادامه، نمودار توزیع حجمی قطره‌های روغن در زمان‌های ۱ و ۳ دقیقه با و بدون استفاده از تأثیر معادله ضریب برخورد امواج فراصوت و همچنین میانگین قطر قطره‌ها و حجم کل قطره‌ها ترسیم و با داده‌های آزمایشگاهی موجود مقایسه و نتایج به صورت نمودارهای درصد حجمی قطره‌های روغن به عنوان تابعی از قطر قطره، گزارش شدند. نتایج نشان داد که با اعمال جدید در مدل ریاضی، تطابق بهتری میان نتایج آزمایشگاهی و نتایج مدل‌سازی

## مراجع

- [1] Hu, G., Li, J., Zeng, G. (2013). Recent development in the treatment of oily sludge from petroleum industry: A review. *Journal of Hazardous Materials*, 261, 470-490.
- [2] Santos, R. G., Loh, W.; Bannwart, A. C., Trevisan, O. V. (2014). An overview of heavy oil properties and its recovery and transportation methods. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 31(3), 571-590.
- [3] Ronchi, R. P., Luana, N., Nonato Melo, B., Pereira, L. S. F., Vicente, M. A., Flores, E. M. M., de Fátima Pereira Santos, M. (2020). Removal of oil from synthetic heavy crude oil-in-water emulsions by the association of glass raschig rings and ultrasound. *Journal of Dispersion Science and Technology*, 43(1), 22-32.
- [4] He, G., Chen, G. (2002). Lubricating oil sludge and its demulsification. *Drying Technology*, 20(4-5), 1009-1018.
- [5] Gogate, P. R. (2008). Treatment of wastewater streams containing phenolic compounds using hybrid techniques based on cavitation: a review of the current status and the way forward. *Ultrasonics Sonochemistry*, 15(1), 1-5.
- [6] Ahmad, T., Rafatullah, M., Ghazali, A., Sulaiman Hashim, O., R., Ahmad, A. (2010). Removal of pesticides from water and wastewater by different adsorbents: a review. *Journal of Environmental Science and Health, Part C*, 28(4), 231-271.
- [7] Pang, Y. L., Abdullah, A. Z., Bhatia, S. (2011). Review on sonochemical methods in the presence of catalysts and chemical additives for or treatment of organic pollutants in wastewater. *Desalination*, 277(1-3), 1-4.
- [8] Gharekhani, M., Ghorbani, M., Rasoulnejad, N., Jebraily, Sh. (2012). "New methods of extracting effective compounds from medicinal plants: by ultrasound, microwave and compressed solvent" *Iranian Chemical Engineering Journal*, 10(59), 24-36, [In Persian].
- [9] Mohsin, M., Meribout, M. (2015). Oil-water demulsification using ultrasonic technology. *Ultrasonics Sonochemistry*, 22, 573-579.
- [10] Pangu, G. D., Feke, D. L. (2007). Droplet transport and coalescence kinetics in emulsions subjected to acoustic fields. *Ultrasonics*, 46, 289-302.
- [11] Abbasi, F., Shivaei, S. (2009). "Polymerization by ultrasound waves" *Iranian Chemical Engineering Journal*, 8(42), 29-37, [In Persian].
- [12] Pangu, G. D., Feke, D. L. (2009). Kinetics of ultrasonically induced coalescence within oil/water emulsions: Modeling and experimental studies. *Chemical engineering science*, 64(7), 1445-1454.
- [13] Ghafourian Nasiri, H., Hamed Mosavian, M. T., Kadkhodae, R., Sargolzae, J. (2013). Modeling of oil-water emulsion separation in ultrasound standing wavefield by neural network. *Journal of Dispersion Science and Technology*, 34, 490-495.
- [14] Basiri, S. H., Shahidi, F., Kadkhodae, R., Farhosh, R. (2011). An investigation on the effect of ultrasound waves and pretreatment methods on the extraction of oil from pomegranate seeds. *Nashrieh Shimi va Mohandesi Shimi Iran (NSMSI)*, 31(3), 45-57, [In Persian].
- [15] Parvasi, P., Khajehesamedini, A., Jahanmiri, A., Rahimpour, M. R. (2013). A comparative study on droplet coalescence in heavy crude oil emulsions subjected to microwave and ultrasonic fields. *Separation Science and Technology*, 48, 1591-1601.
- [16] Ghafourian Nasiri, H., Hamed Mosavian, M. T., Kadkhodae, R. (2013). Demulsification of gas oil/water emulsion via high-intensity ultrasonic standing wave. *Journal of Dispersion Science and Technology*, 34, 483-489.
- [17] Sun, L., Han, P., Yang, L., Lu, X. (2014). The dehydration and demulsification of waste oil by ultrasound. *Energy Sources, Part A: Recovery, Utilization, and Environmental Effects*, 36(17), 1843-1849.
- [18] Amani, M., Idris, M., Abdul Ghani, M., Dela Rosa, N., Carvero, A., Yrac, R. (2017). An experimental study on the application of ultrasonic technology for demulsifying crude oil and water emulsions. *Journal of Petroleum & Environmental Biotechnology*, 8(3), 1-12.
- [19] Khajehesamedini, A., Sadatshojaie, A., Parvasi, P., Rahimpour, M. R., Naserimojarad, M. M. (2018). Experimental and theoretical study of crude oil pretreatment using low-frequency ultrasonic waves. *Ultrasonics Sonochemistry*, 48, 383-395.
- [20] Agi, A., Junin, R., Alqatta, A. Y. M., Gbadamosi, A., Yahya, A., Abbas, A. (2019). Ultrasonic assisted ultrafiltration process for emulsification of oil field produced water treatment. *Ultrasonics Sonochemistry*, 51, 214-222.
- [21] Parvasi, P., Kamali, F., Talaghat, M. R. (2022). An experimental study on low-content crude oil in water emulsion using low-frequency ultrasonic waves. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 39, 197-205.
- [22] Kumar J. (2007). Numerical approximations of population balance equations in particulate systems, PhD thesis, Otto-von-Guericke University, Magdeburg, Saxony-Anhalt, Germany.

- [23] Camilo Ruiz Vasquez, C., Lebaz, N., Ramière, I., Lalleman, S., Mangin, D., Bertrand, M. (2022). Fixed point convergence and acceleration for steady state population balance modelling of precipitation processes: Application to neodymium oxalate. *Chemical Engineering Research and Design*, 177, 767-777.
- [24] Cunha, R. E. P., Fortuny, M., Dariva, C., Santos, A. F. (2008). Mathematical modeling of the destabilization of crude oil emulsions using population balance equation. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 47, 7094-7103.
- [25] Bilal, Pant, M., Zaheer, H., Garcia-Hernandez, L., Abraham, A. (2020). Differential Evolution: A review of more than two decades of research. *Engineering Applications of Artificial Intelligence*, 90, 103479.