

## جداسازی مخلوط متانول و MTBE با استفاده از جاذب گرافیت ورقه ورقه

بی‌تاسلطنانی<sup>۱</sup>، احمد محب<sup>۲\*</sup>، محسن مهدی پور قاضی<sup>۳</sup>

۱. کارشناس ارشد مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی اصفهان

۲. دانشیار مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی اصفهان (ahmad@cc.iut.ac.ir)\*

۳. دانشجوی دکترای مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی اصفهان

### چکیده

در این تحقیق جداسازی ترکیب قطبی- غیرقطبی متانول و MTBE در جداسازی متانول از MTBE در فرایند تولید MTBE توسط جاذب غیر قطبی گرافیت ورقه ورقه بررسی شده است. در آزمایش‌های جداسازی متانول از MTBE، چهار عامل اصلی شناسایی گردید که دو عامل مربوط به مرحله ساخت جاذب (شامل نسبت اسیدها و دمای بالا عملیات حرارتی) و دو عامل دیگر مربوط به مرحله جذب (شامل نسبت MTBE به متانول در محلول و نسبت جاذب به محلول) بود. برای کاهش تعداد آزمایش‌ها و بررسی سهم هر یک از این عوامل از روش طراحی آزمایش تاگوچی استفاده شد. با استفاده از کاربرد آرایه متعامد L<sub>16</sub> شرایط بهینه برای حذف MTBE از متانول پیش‌بینی گردید. بر اساس نتایج حاصله این جاذب قادر به جداسازی انتخابی MTBE از متانول است و در شرایط بهینه ۸۰ درصد از MTBE موجود در محلول، جداسازی می‌شود.

### مشخصات مقاله

تاریخچه مقاله :

دریافت ۱۰ خرداد ۱۳۸۸

دریافت پس از اصلاحات ۴ اسفند ۱۳۸۸

پذیرش نهایی ۱۵ اردیبهشت ۱۳۸۹

کلمات کلیدی :

جذب سطحی

گرافیت ورقه ورقه

جداسازی ترکیبات آلی

جاذب غیر قطبی

قابلیت جذب سطحی برای جذب در غلظت‌های پایین و ممان دوقطبی MTBE (یک ماده غیر قطبی) نسبت به متانول ( $\mu_{\text{MEOH}} = 1/83$  و  $\mu_{\text{MTBE}} = 1/36$ ) [۱۰]، به بررسی خالص سازی متانول و جذب MTBE توسط جاذب غیر قطبی گرافیت ورقه ورقه در غلظت‌های پایین MTBE در متانول پرداخته شده است.

## ۲- آزمایش‌ها

### ۲-۱- طراحی آزمایش‌ها

در این پژوهش برای کاهش تعداد آزمایش‌ها و بدست آوردن شرایط بهینه، آزمایش‌ها به روش تاگوچی طراحی شد. در این روش با استفاده از نرم‌افزار طراحی آزمایش 4-Qualitek و با توجه به تعداد متغیرها و تعداد سطوح مورد آزمایش برای هر متغیر، الگویی برای انجام آزمایش‌ها ارائه شد. این الگو تحت آرایه  $L_{16}$  تاگوچی بیان شد. در جدول (۱) متغیرهای اصلی مورد آزمایش و سطوح مربوط به هر متغیر ارائه شده است.

جدول (۱): سطوح متغیرهای اصلی

Level	1	2	3	4
MTBE[gr]/MEOH[gr] (A)	3:97	1:99	5:95	10:90
Nitric acid/ Sulforic acid(B)	1:5	1:4	2:3	1:1
Thermal treatment temperature[°C](C)	1200	1000	900	800
Adsorbent/Solution [gr/ml](D)	0.4:25	0.3:25	0.2:25	0.1:25

### ۲-۲- آزمایش‌های سنتز جاذب

برای سنتز جاذب گرافیت ورقه ورقه از گرافیت پولکی خام با مش ۳۰ استفاده شد. همچنین از سولفوریک اسید ۹۸٪ بعنوان ماده جاشونده و نیتریک اسید ۶۵٪ (هر دو ماده ساخت شرکت مرک) بعنوان ماده اکسید کننده استفاده شد. در طی آزمایشات جاذب‌های

مخلوط‌های آلی معمولاً در صنایع شیمیایی به‌وسیله فرآیندهایی از قبیل تقطیر، استخراج و غیره از یکدیگر جدا می‌شوند که هر کدام مشکلات خاص خود را به همراه دارند. برای نمونه در عملیات تقطیر مصرف بالای انرژی از معایب اصلی این عملیات محسوب می‌شود [۱]. جذب سطحی از روش‌های متداول جداسازی است که در مواردی که عملیات تقطیر ناتوان است کاربردهای بسیاری دارد. اصولاً در مواردی که ماده جاذب بکار رفته با یکی از اجزای جاشونده اندرکنش داشته باشد، قابلیت‌های این روش بهتر مشاهده می‌شود. یکی از انواع جاذب‌های غیرقطبی، گرافیت ورقه ورقه است که در تحقیقات قبلی توانایی خود را برای جذب مواد غیرقطبی مثل ترکیبات نفتی و متیل ترشری بوتیل اتر (MTBE) از آب به اثبات رسانده است [۲،۳،۴].

مخلوط متانول و MTBE یکی از مخلوط‌های آلی-آلی است که به دلیل تشکیل آزئوتروپ، جداسازی اجزای آن بطور کامل مشکل می‌باشد. این مخلوط در بخش جداسازی فرآیند تولید MTBE وجود داشته و جداسازی آن با کاربرد روش‌های مناسب غیر از تقطیر موضوع تحقیق بسیاری از محققین بوده است. به عنوان مثال، می‌توان به تحقیقاتی که در این زمینه با استفاده از روش غشایی تراوش تبخیری صورت گرفته اشاره داشت. یوشیدا<sup>۱</sup> توانست متانول را با خلوص ۸۸٪ جداسازی کند [۵]. همچنین افراد دیگری توانستند به درجات خلوص مختلفی دست یابند که می‌توان به چند مورد زیر اشاره کرد: شی<sup>۲</sup> و وولی<sup>۳</sup> با خلوص متانول ۹۰٪ [۶]، دورماز<sup>۴</sup> با خلوص ۹۰٪ [۷]، ری<sup>۵</sup> با خلوص ۸۹٪ [۸] و ژیانگ و همکاران<sup>۶</sup> با خلوص ۹۰٪ [۹]. خلوص بدست آمده برای متانول در کلیه این تحقیقات بین ۸۵-۹۰٪ گزارش شده بود. در این تحقیق با توجه به

<sup>1</sup> Yoshida

<sup>2</sup> Shi

<sup>3</sup> Wu, Liu

<sup>4</sup> Durmaz

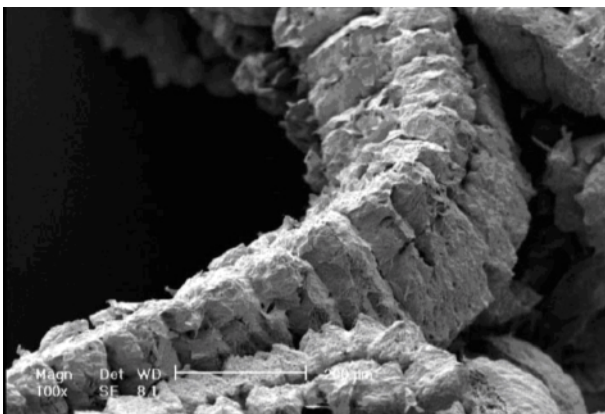
<sup>5</sup> S.Ray

<sup>6</sup> Jiang

مطلوب تری انجام می‌گیرد. در این مرحله، بسته به شماره آزمایش و سطوح متغیرها، نوع جاذب مناسب سنتز شده قبلی انتخاب گشته و به مقدار مشخص شده در آزمایش مربوطه به محلول اضافه شد. با اضافه کردن جاذب به محلول و اطمینان از بسته بودن درب ظرف حامل جاذب و محلول، زمان تماس مناسب به جاذب و محلول داده شد. در این پژوهش با توجه به مشاهدات در آزمایش‌های مختلف و برای اطمینان از استفاده شدن کل ظرفیت جذب جاذب توسط MTBE، زمان ماند نسبتاً طولانی ۲ ساعت در نظر گرفته شد.



شکل (۱): گرافیت پولکی خام



شکل (۲): جاذب سنتز شده با نسبت اسید ۴:۱ و دمای ۱۰۰۰°C مرحله بعدی مرحله فیلتراسیون و جدا سازی جاذب از محلول می باشد. برای این مرحله از قیف بوختر، ارلن خلاء و پمپ خلاء استفاده شد. بدین صورت که جاذب آغشته به محلول داخل قیف بوختر ریخته و تحت خلاء

متفاوتی سنتز و مورد استفاده قرار گرفت که در هر کدام نسبت اسیدها و همچنین دمای عملیات حرارتی متفاوت بود. برای مثال روش سنتز جاذب با نسبت سولفوریک اسید به نیتریک اسید ۴:۱ و با دمای عملیات حرارتی ۱۰۰۰°C به شرح زیر می‌باشد:

۱۰ گرم از گرافیت پولکی به مخلوط ۸۰ گرم سولفوریک اسید ۹۸٪ و ۲۰ گرم نیتریک اسید ۶۵٪ در یک بشر اضافه شد و درب بشر به منظور بسته بودن محیط واکنش کاملاً پوشانیده شد. پس از گذشت ۲۴ ساعت که با توجه به تحقیقات قبلی زمان کافی برای کامل شدن واکنش می‌باشد [۳]، محتویات بشر تا رسیدن به pH حدود ۳-۲/۵ با آب مقطر شستشو داده شد. ترکیب بدست آمده که اصطلاحاً ترکیب بین لایه‌ای نامیده می‌شود تحت خلاء آگیری شده و برای کامل شدن فرایند خشک کردن به مدت ۱ ساعت داخل آون با دمای ۱۰۰°C قرار گرفت. سپس ترکیب بدست آمده از این مرحله که ترکیب باقی مانده نامیده می‌شود در مرحله آخر در دمای ۱۰۰۰°C تحت شوک حرارتی تبدیل به گرافیت ورقه ورقه شد.

برای تصویر برداری الکترونیکی از جاذب تهیه شده از دستگاه SEM با مدل Philips XL30 استفاده شد. در شکل‌های (۱ و ۲) تصاویر SEM از گرافیت پولکی و همچنین گرافیت ورقه ورقه سنتز شده ارائه شده است. همان‌طور که در شکل قابل ملاحظه است ذرات جاذب سنتز شده کرمی شکل<sup>۷</sup> می‌باشند. قطر تقریبی این ذرات با توجه به مقیاس تصویر SEM برابر با ۲۰۰ μm می‌باشد. دانسیته و سطح ویژه ذرات به ترتیب معادل ۴/۵ kg/m<sup>3</sup> و ۱۲۰۰ m<sup>2</sup>/g تعیین شد.

## ۲-۳- آزمایش‌های جذب

ابتدا محلول MTBE در متانول با غلظت مورد نیاز ساخته شد. سپس ۲۵ mL از محلول مورد نظر درون یک بشر سربسته ریخته شد. هر چه ظرف مورد آزمایش بزرگتر انتخاب گردد، تماس جاذب و محلول به صورت

<sup>7</sup> Worm like

کوچک‌تر باشد، میزان جذب بیشتری صورت گرفته است. نرم افزار تاگوچی برای تحلیل نتایج از ابزاری به نام S/N (نسبت عوامل سیگنال به عوامل نویز) استفاده می‌کند. در واقع شرایط بهینه در بیشینه مقدار S/N اتفاق می‌افتد. برای هر آزمایش با دو بار تکرار، نرم‌افزار قادر به محاسبه مقادیر S/N از روابط ۲ و ۳ می‌باشد:

$$S/N = 10 \times \log(\text{MSD}) \quad (2)$$

$$\text{MSD} = \frac{\sum_{i=1}^n y_i^2}{n} \quad (3)$$

#### ۴- نتایج

نرم افزار Qualitek-4 با استفاده از اطلاعات مربوط به درصد حذف MTBE در هر یک از آزمایش‌های پیشنهادی آرایه تاگوچی، مقادیر S/N را محاسبه کرده که مقادیر آن به همراه درصد حذف MTBE برای هر آزمایش در جدول (۲) آورده شده است. مقایسه مقادیر گزارش شده برای  $y_1$  و  $y_2$  در این جدول دلالت بر تکرارپذیری آزمایشات دارد. لازم به ذکر است در نمودارهای S/N بر حسب متغیرهای آزمایش، هر نقطه از نمودار، میانگین مقدار S/N چهار آزمایشی است که دارای مقادیر یکسان آن متغیر هستند.

#### ۴-۱- تاثیر نسبت نیتریک اسید به سولفوریک اسید

همان طور که در شکل (۳) مشاهده می‌شود، تغییرات S/N با افزایش نسبت نیتریک اسید به سولفوریک اسید بکار رفته در سنتز جاذب روند کاهشی دارد. نسبت اسیدها در میزان سطح به وجود آمده در جاذب پس از ورقه ورقه شدن بسیار تاثیر گذار است. بنابراین هر چه میزان سولفوریک اسید بیشتر باشد (بیشتر بودن ماده جا شونده بین لایه‌ها) میزان باز شدن لایه‌ها از همدیگر و افزایش حجم بیشتر است.

از محلول جدا شد. برای جلوگیری از تبخیر احتمالی محلول تحت خلاء، ارن خلاء داخل حمام آب و یخ قرار داده شد. پس از تکمیل فیلتراسیون و جداسازی محلول از جاذب، محلول صاف شده حاصل برای انجام آزمایش کروماتوگرافی گازی (GC) و تعیین میزان جذب به کار رفت. با استفاده از مقادیر S/N بدست آمده از نتایج، منحنی‌های تغییرات S/N بر حسب تغییر در مقادیر عوامل چهارگانه قابل کنترل توسط نرم‌افزار رسم شد. اصولاً تعبیر فیزیکی نتایج آزمایشات طراحی شده با استفاده از نرم افزار تاگوچی نسبتاً مشکل می‌باشد زیرا هیچ دو آزمایشی را نمی‌توان یافت که در طی آن ۳ عامل تاثیر گذار ثابت مانده و تنها یک عامل تغییر کرده باشد. در صورت وقوع چنین امری می‌توان نسبت به تاثیر آن عامل قضاوت کرد.

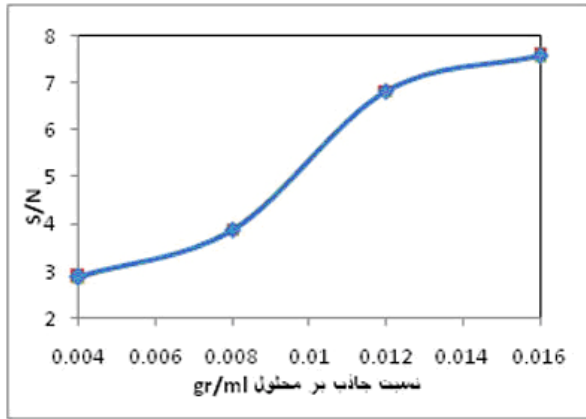
#### ۳- آنالیز

برای تعیین نسبت قبل و بعد از جذب MTBE/MEOH از دستگاه کروماتوگرافی گازی مدل Gas-Chromatograph-Philips PU4410 استفاده شد. برای آنالیز نتایج به وسیله نرم‌افزار تاگوچی نیاز به یک تابع پاسخ است. در واقع نوع تابع پاسخ به نرم افزار می‌گردد که هدف از بهینه سازی چیست. همچنین اعداد بدست آمده برای تابع پاسخ، همان اعداد ورودی به نرم افزار به عنوان نتایج حاصل از آزمایش‌های طراحی شده توسط نرم افزار است. تابع پاسخ انتخاب شده برای این کار نسبت MTBE/MEOH در محلول، پس از جذب نسبت به محلول اولیه (قبل از جذب) می‌باشد که به صورت معادله ۱ تعریف می‌شود:

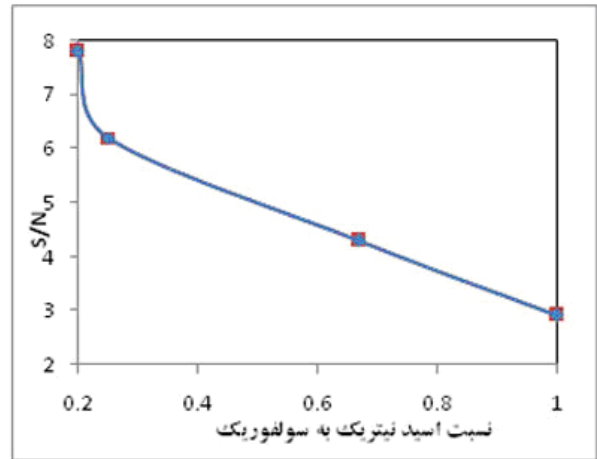
$$y = \frac{(C_{\text{MTBE}}/C_{\text{MEOH}})_f}{(C_{\text{MTBE}}/C_{\text{MEOH}})_i} \quad (1)$$

در این معادله زیر نویس‌های  $i$  و  $f$  به ترتیب برای مقادیر اولیه و نهایی به کار رفته است. با توجه به تعریف تابع پاسخ، واضح است که تابع پاسخ از نوع کوچک‌تر مطلوب‌تر است. در واقع هر چه مقدار  $y$

افزایش میزان جاذب به محلول مقدار S/N افزایش می‌یابد. با افزایش مقدار جاذب میزان سطح جاذب افزایش و لذا جذب بیشتری انجام گرفته و در نتیجه مقدار S/N نیز افزایش می‌یابد.



شکل (۴): تغییرات S/N با نسبت جاذب بر محلول



شکل (۳): تغییرات S/N با نسبت نیتریک اسید به سولفوریک اسید

#### ۲-۴- تاثیر نسبت جاذب به محلول

در شکل (۴) تغییرات S/N با نسبت جاذب به محلول

نشان داده شده است. همان طور که مشاهده می‌شود با

جدول (۲): مقادیر تابع پاسخ و S/N به همراه شرایط داده شده برای هر آزمایش طبق آرایه  $L_{16}$

Test number	MTBE/ MEOH in feed	Nitric acid/ Sulfuric acid	Thermal treatment temperature [°C]	Adsorbent/ Solution [gr/ml]	$y_1$ [first repetition]	$y_2$ [second repetition]	$\bar{y}$	MTBE removal percent	S/N
1	3:97	1:5	1200	0.016	0.20	0.21	0.205	80	13.555
2	3:97	1:4	1000	0.012	0.36	0.32	0.34	66.4	9.355
3	3:97	2:3	900	0.008	0.50	0.46	0.48	52	6.637
4	3:97	1:1	800	0.004	0.74	0.80	0.77	22.6	2.263
5	1:99	1:5	1000	0.008	0.58	0.57	0.575	42.5	4.806
6	1:99	1:4	1200	0.004	0.55	0.58	0.565	43.5	4.955
7	1:99	2:3	800	0.016	0.67	0.68	0.675	32.5	3.413
8	1:99	1:1	900	0.012	0.77	0.80	0.785	21.5	2.101
9	5:95	1:5	900	0.004	0.67	0.66	0.665	33.5	3.543
10	5:95	1:4	800	0.008	0.86	0.90	0.88	12	1.108
11	5:95	2:3	1200	0.012	0.48	0.45	0.465	53.5	6.645
12	5:95	1:1	1000	0.016	0.65	0.61	0.63	37	4.008
13	10:90	1:5	800	0.012	0.34	0.35	0.345	65.5	9.242
14	10:90	1:4	900	0.016	0.35	0.33	0.34	66	9.366
15	10:90	2:3	1000	0.004	0.91	0.93	0.92	8	0.723
16	10:90	1:1	1200	0.008	0.65	0.72	0.685	31.5	3.274

#### ۴-۴- تاثیر دمای عملیات حرارتی

در شکل (۶) چگونگی تغییرات S/N با دمای عملیات حرارتی سنتز جاذب مشاهده می‌شود. با افزایش دمای عملیات حرارتی، S/N روند صعودی دارد.



شکل (۶): تغییرات S/N با دمای عملیات حرارتی

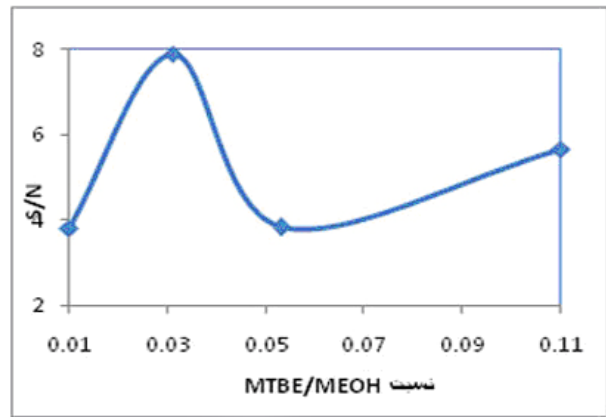
عملیات حرارتی به منظور خارج شدن ماده بین لایه‌ای از بین لایه‌های گرافیت و در نتیجه انبساط گرافیت و باز شدن لایه‌ها می‌باشد. بنابراین هر چه دما بالاتر باشد این انبساط بهتر صورت می‌گیرد. همان طور که در نمودار مشاهده می‌شود کاهش S/N از دمای ۹۰۰ °C به ۱۰۰۰ °C رخ می‌دهد که با توجه به مطالب ذکر شده در مورد نمودار ۳ این مورد نیز قابل توجیه است.

#### ۴-۵- شرایط بهینه و آنالیز واریانس

یکی از قابلیت‌های ارزشمند روش تاگوچی در توانایی آن برای پیش‌بینی شرایط انجام آزمایش‌ها جهت رسیدن به مقدار بهینه تابع پاسخ می‌باشد. این کار نیز توسط نرم افزار Qualitek-4 و بر اساس آنالیز نتایج بدست آمده از آزمایش‌ها طبق آرایه متعامد L<sub>16</sub> صورت می‌گیرد. مقادیر بدست آمده برای شرایط بهینه در جدول (۳) ارائه شده است.

#### ۴-۳- تاثیر نسبت MTBE/MEOH

در شکل (۵)، تغییرات S/N با نسبت MTBE به متانول در محلول بررسی شده است. همان طور که در شکل دیده می‌شود، تغییرات S/N با غلظت هیچ روند کاهشی یا افزایشی منظمی را از خود نشان نمی‌دهد.



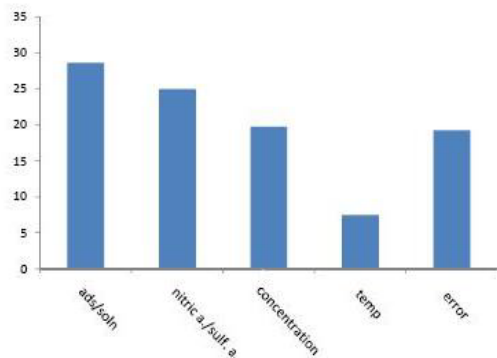
شکل (۵): تغییرات S/N با نسبت MTBE/MEOH

با افزایش نسبت MTBE/MEOH از ۰/۰۱ تا ۰/۰۳۱ مقدار S/N افزایش و سپس در فاصله ۰/۰۳۱ تا ۰/۰۵۳ کاهش و مجدداً با افزایش این نسبت از ۰/۰۵۳ تا ۰/۱۱ مقدار S/N افزایش می‌یابد. برای نسبت MTBE/MEOH برابر ۰/۰۳۱، S/N بیشترین مقدار را دارا می‌باشد.

با توجه به این مطلب که آزمایش‌ها توسط آرایه تاگوچی طراحی شده است، کلیه حالت‌های موجود برای عوامل کنترل کننده مورد آزمایش قرار نگرفته و تنها موارد طراحی شده توسط آرایه L<sub>16</sub> بررسی شده‌اند. در آزمایش صورت گرفته در نسبت ۰/۰۳۱، سطوح ۲ پارامتر یعنی نسبت نیتریک اسید به سولفوریک اسید و نسبت جاذب به محلول در مقادیر مطلوب تاثیرگذاری بر تابع هدف هستند. بنابراین مشاهده حداکثر مقدار S/N در نسبت MTBE/MEOH برابر با ۰/۰۳۱ طبیعی به نظر می‌رسد. در هیچ یک از آزمایش‌ها با مقادیر دیگر، نسبت فوق برای ۲ پارامتر اشاره شده قبلی به صورت همزمان در مقادیر مطلوب ظاهر نشده‌اند.

جدول (۴): آنالیز واریانس بر حسب مقادیر S/N

Factor	Freedom degree	(SS)	Variance	(F)	(P)%
MTBE/MEOH	3	45.768	15.256	6.139	19.766
Nitric acid/sulfuric acid	3	55.899	18.633	7.499	24.993
Thermal heating temp[°C]	3	21.859	7.286	2.932	7.431
Adsorbent/solution[gr/ml]	3	62.851	20.95	8.431	28.58
Error	3	7.452	2.484	—	19.23



شکل (۷): سهم هر عامل در پاسخ

## ۵- نتیجه گیری

در بهترین حالت (شرایط بهینه) مقدار نسبت MTBE/MEOH از ۰/۰۳۱ به ۰/۰۶۲ کاهش یافته و می‌توان به موفقیت این روش در جداسازی این دو ماده اذعان داشت. برای درک راحت‌تر این موضوع می‌توان به تغییر در درصد وزنی MTBE در مخلوط اشاره داشت. برای آزمایش صورت گرفته در شرایط بهینه، درصد وزنی MTBE درخوراک معادل ۳٪ بود. با محاسبات ساده بر روی پاسخ سیستم در این شرایط می‌توان نشان داد که درصد جرمی این ماده در محلول بعد از جذب به ۰/۶۲٪ کاهش یافته است. این تغییر در غلظت نشان دهنده موفقیت این روش در جداسازی مورد نظر بوده و با ویژگی کلی عملیات جذب سطحی که در غلظت

جدول (۳): شرایط بهینه آزمایش بدست آمده توسط نرم افزار

Factor	Optimize Value
MTBE/MEOH	3:97
Nitric acid/ Sulfuric acid	1:5
Thermal heating temperature[°C]	1200
Adsorbent/Solution [gr/ml]	0.4:25

برای کسب اطمینان از صحت انجام آزمایشات لازم است با انجام آزمایشات تایید کننده مقدار S/N در شرایط بهینه به طور تجربی یافت شود و با مقدار پیش بینی شده مورد مقایسه قرار گیرد. از آنجاییکه شرایط بهینه مشابه با شرایط آزمایش شماره ۱ طرح ریزی شده توسط نرم افزار در جدول (۲) می‌باشد نیازی به انجام آزمایشات تایید کننده نمی‌باشد و عملاً میزان جداسازی بدست آمده در آزمایش شماره ۱ دارای بهترین مقدار جداسازی در شرایط انجام آزمایشات در این تحقیق می‌باشد.

بعد از اتمام مراحل روش تاگوچی، آنالیز واریانس (ANOVA) برای تجزیه و تحلیل بیشتر نتایج انجام شد. مقادیر محاسبه شده مجموع مربعات عوامل و خطا (SS)، واریانس عوامل و خطا، نسبت واریانس هر عامل به واریانس خطا (F) و درصد سهم هر عامل و خطا (P) در پاسخ بر حسب اعداد S/N در جدول (۴) ارائه شده است. با توجه به نتایج، واضح است که برای همه عوامل مقدار نسبت F از یک بزرگتر می‌باشد.

واریانس همه عوامل از واریانس خطا بزرگتر بوده که این امر شاخصه موثر بودن عوامل در پاسخ است. ستون آخر این جدول نمایانگر سهم هر عامل در پاسخ است که در شکل (۷) برای مقایسه ساده‌تر نشان داده شده است. همان طور که مشاهده می‌شود نسبت جذاب به محلول بیشترین سهم در پاسخ را دارا است. همچنین کوچکتر بودن سهم خطا در نتایج از مقدار ۰/۵۰٪ نشانگر این است که آزمایش‌ها در شرایط کنترل شده انجام گرفته و قابل اعتماد هستند.

شیمی، دانشگاه صنعتی اصفهان.

[5] W. Yoshida, Y. Cohen, (2003), "Ceramic supported polymer membranes for pervaporation of binary organic/organic mixtures", *Journal of Membrane Science*, 213, 145-157.

[6] B. Shi; Y. Wu, J. Liu, (2000), "Vapor permeation separation of MeOH/MTBE through polyimide/sulfonated poly(ether-sulfone) hollow-fiber membranes", *Desalination*, 161, 59-66.

[7] N. Durmaz, S. Tulbentci, (2004), "Pervaporation of MTBE/ methanol mixtures through PVA membranes", *Desalination*, 160, 263-270.

[8] S. Ray, S.K. Ray, (2006), "Synthesis of highly methanol selective membranes for separation of methyl tertiary butyl ether (MTBE)-methanol mixtures by pervaporation", *Journal of Membrane Science*, 278, 279-289.

[9] X. Ma, Ch. Hu, R. Guo, X. Fang, H. Wu, Zh. Jiang, (2008), "HZSM5-filled cellulose acetate membranes for pervaporation separation of methanol/MTBE mixtures", *Separation and Purification Technology*, 59, 34-42.

[10] S. Sridhar, B. Smitha, A. Shaik, (2005), "Pervaporation -based separation of methanol/MTBE mixtures – A Review", *Separation & Purification Reviews*, 34, 1-33.

های پایین کارآمدی خوبی دارند در تطابق می باشد. شرایط بهینه بدست آمده از نرم افزار برای ۴ فاکتور اصلی تاثیر گذار بر تابع پاسخ عبارتند از:

- نسبت MTBE/MEOH معادل ۹۷ : ۳

- نسبت جاذب به محلول برابر با ۲۵ : ۰/۴

- دمای عملیات حرارتی برابر با  $1200^{\circ}C$

- نسبت نیتریک اسید به سولفوریک اسید برابر ۱:۵

نتایج بدست آمده از آنالیز واریانس نشان داد که نسبت جاذب به محلول و نسبت نیتریک اسید به سولفوریک اسید بیشترین سهم را در پاسخ دارا بوده و به سهم تقریباً یکسان این دو فاکتور در پاسخ می توان اشاره کرد. همچنین دمای عملیات حرارتی نیز کمترین سهم در پاسخ را دارا می باشد. کلیه فاکتورها با سهم ۲۸/۵۸٪ برای نسبت جرمی جاذب به محلول تا ۷/۴۳٪ برای دمای عملیات حرارتی تاثیر معنی داری بر پاسخ داشته و هیچ کدام قابل اغماض نیستند.

## مراجع

[1] L. Zhang, H.L. Chen, Z.J. Zhou, Y. Lu, C.J. Gao, (2002), "Pervaporation of methanol/MTBE/C<sub>5</sub> ternary mixtures through the CA membrane", *Desalination*, 149, 73-80.

[۲] محمد بزرگزاد، (۱۳۸۶)، "مطالعه تجربی و کاربرد گرافیت ورقه ورقه برای جذب فیزیکی مواد رنگی به کار رونده در صنایع فرش از محلول های آبی"، پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشکده مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی اصفهان.

[۳] احمد بیات، (۱۳۸۳)، "جذب مواد نفتی از آب دریا با استفاده از مواد جاذب و سنتز یک نوع جاذب باظرفیت جذب بالا"، پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشکده مهندسی شیمی، دانشگاه صنعتی اصفهان.

[۴] مرضیه مرادی، (۱۳۸۶)، "ساخت انواع گرافیت ورقه ورقه و بررسی امکان حذف MTBE از آب توسط این نوع گرافیت"، پایان نامه کارشناسی، دانشکده مهندسی



## Separation of MTBE/MEOH Mixture Using E.G Adsorbent

Bitá Soltani<sup>1</sup>, Ahmad Moheb<sup>2</sup>, Mohsen Mehdipour Ghazi<sup>3</sup>

1. *MSC in Chemical Engineering, Isfahan University of Technology.*

2. *Associate Professor of Chemical Engineering, Isfahan University of Technology.*

3. *Ph.D. Student of Chemical Engineering, Isfahan University of Technology.*

---

### ARTICLE INFO

---

#### Article history :

Received 31 May 2009

Received in revised form 23 Feb. 2010

Accepted 5 May 2010

---

#### Keywords:

Adsorption

Exfoliated Graphite

Organic Components Removal

Non Polar Adsorbent

---

### ABSTRACT

In this work, feasibility of using a non polar adsorbent known as exfoliated graphite (EG) for the separation of polar/non-polar mixture of MTBE/MEOH has been studied. In the case of removal of methanol from MTBE, four main effecting parameters were recognized to study their effect on the adsorption capability of EG. Two parameters of high temperature of thermal treatment and nitric acid/sulfuric acid ratio were related to the synthesis process of adsorbent, whereas MTBE/MEOH ratio in the solution and adsorbent to the solution ratio were other factors related to adsorption stage. To decrease the number of required experiments and determining the contribution of each factor, the Taguchi method was used for design of the experiments. By application of L<sub>16</sub> orthogonal array, optimum condition for eliminating MTBE was predicted. According to the obtained results, EG was able to eliminate MTBE from MEOH effectively and at optimum condition, the removal percentage of MTBE was 80.

All rights reserved.

---