



Design of National Thread for Casing, Tubing, and Oil and Gas Downhole Equipment

Mahdi NazariSarem

Department of Petroleum, Material, and Mining Engineering and Technical Faculty, Islamic Azad University Central Tehran Branch, Tehran, Iran

mahdinazarisaram@iauctb.ac.ir

DOI:10.22078/PR.2022.4822.3159

Received: June/26/2022

Accepted: August/15/2022

Introduction

Well integrity is one of the most critical issues today in the engineering and supply of oil and gas wells. This is especially important during the development of unconventional hydrocarbon reservoirs. Casing and Tubing are critical components of oil and gas wells. A vital element of the casing and tubing is the thread connection. Because casing and tubing are subjected to various loads during cementing, drilling, and production operations, including axial tension, compression, and internal and external pressure, connections are a crucial parameter in the drilling and exploration program due to the strength of the pipe body. Today, casing and tubing connections are divided into two categories: standard or API and premium. The structural, dimensional, and sealability required, especially in harsh working conditions, have led to the design of premium connections. These connections are designed to achieve higher quality than standard. The history of designing and manufacturing premium connections is pervasive. The design and manufacture of connections began around 1925 with the formation of the American Petroleum Institute. So far, various premium connections with different capabilities have been designed and manufactured, especially by Vallourec [1] and Tenaris [2]. With increasing drilling depth to reach reservoirs at greater depths, many oil and gas fields have high pressures, and most areas have corrosive and sour fluid, which makes it essential to use a gas-tight premium connection it shows. On the other hand, due to the urgent need of the oil and gas industry, the naturalization of premium connections by international

standards and according to the country's specific conditions, especially in the context of sanctions and many problems in this field, is necessary. In this regard, by designing a national thread, an important step can be achieved toward naturalization. In this research, designing and simulating the premium connection of the 4 1/2" tubing considered an essential parameter in the design of premium connections is presented.

Materials and methods

The premium connection has three main geometric features. These include thread profile, torque shoulder, and metal-to-metal seal [3]. The thread profile of premium connections plays a vital role in the integrity of the connection in terms of withstanding tensile and compressive forces. Mostly, the number of threads per inch of the casing is five, and the tubing is more than 6. The higher the number of threads per inch, the greater the contact pressure created on the sealing surfaces due to the wedge angle. For the designed thread, the number of threads per inch is 6. Using a two-step technique for thread stabbing flank is another detail of the thread profile design. This feature increases the connection makeup speed and also reduces the damage to the thread coating through less thread interference [4]. The height of the chamfered edge is essential due to the possibility of contact with the stabbing flank when applying an axially compressive force to the connection. Another critical parameter in the design of the thread profile is the clearance between the load and stab flank. This parameter, along with the length of the connection

nose, is critical in withstanding the compressive force of the connection.

The results of studies [5] show that if the ratio of nose length to the mentioned clearance is more than 140-160, the axial compressive strength of the connection is equal to 100% of the axial compressive strength of the pipe body (See Figure 1). The thread profile design is shown in Figure 2.

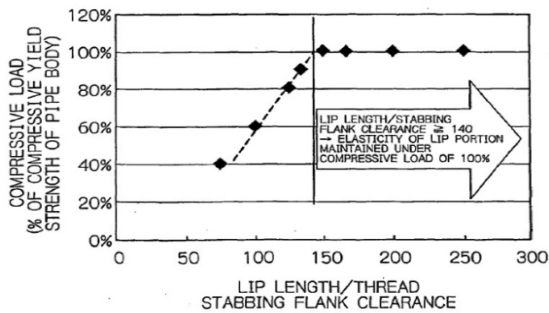


Fig. 1 Relationship between thread clearance and compressive strength of connection [6].

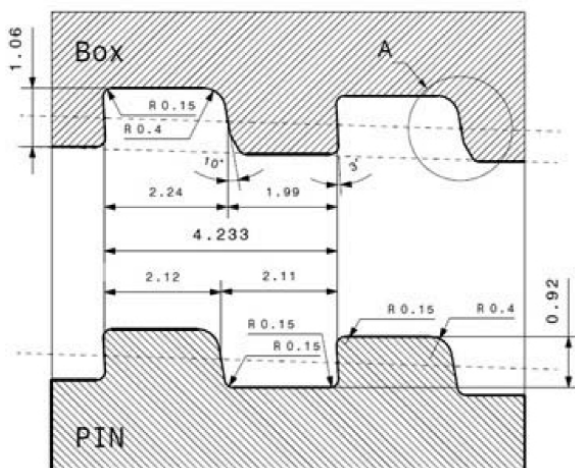


Fig. 2 Thread profile designed.

Seal surfaces and torque shoulder design are influenced by internal pressure, external pressure, and compression load. The procedure consists of two seals. The initial seal, which is responsible for the main seal, especially against external pressure, is close to the threads. The secondary seal is located at the edge of the pin nose. The sealing surface requires an area of significant contact with an axial length of about 1 to 1.5 mm to ensure sealing properties [5].

The connection torque shoulder design is mainly perpendicular or angled to the pipe axis. If designed with a negative angle to the pipe axis, it helps to increase sealability, especially against axial compression load. Another feature considered in the design is a groove at the end of the box threads and before the sealing surface. The method of the seal and torque shoulder is shown in Figure 3. This paper uses Catia V5R21 software to model and ABAQUS 2020 software to analyze the connection. ABAQUS determines the allowable contact interference and applies pressure penetration features.

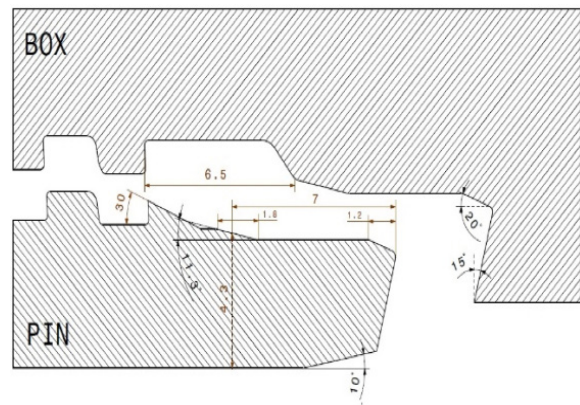


Fig. 3 Seal and torque shoulder designed.

The Finite Element model was created as axisymmetric with CAXR4 elements. Loading based on A-series of CAL VI according to ISO 13679 [6] was applied. This type of loading simulates the worst-case conditions of the connection. A-Series tests consisting of 14 points are identified as load points on the Von Mises loop. Leakage refers to the sealability to hold fluid without causing significant leakage. In casing and tubing connections, the leakage flow rate is usually less than 2 ml per hour [6]. The material considered is L80 with a yield strength of 553 MPa [7]. The inelastic behavior of the material was modeled according to the ASME standard. Considering the values of strain hardening. Acceptance Criteria for connection design include stress and leakage investigation. According to ASME [8], one of the practical criteria is stress assessment. The seal index is specified as the area below the contact pressure curve diagram. According to the following equation, the seal index should be greater than the critical value of W_{ac} if a sealing compound is used.

$$W_{ac} = 1.84310^{-3} \times \left(\frac{P_{gas}}{P_{atm}} \right)^{1.177} \quad (1)$$

Results and Discussion

The analysis results by applying only the make-up torque are shown in Figure 4. Only the threads close to the seal are subjected to high stress by using makeup torque. Some of the connection stress contours according to the 46 loading steps of the von Mises loop are shown in Figures 5 and 6. Load points 1 to 4 are in the first quarter of the Mises curve and include the application of tensile force and internal pressure. Load point 1 contains only the tensile force. Figure 7 shows the pressure penetration that occurred at the surface of the pin member at loading step 2c. It is observed that the fluid penetrates the secondary seal. We use the leakage criterion to investigate the leakage. By calculating the values of the seal index for each of the shoulder, primary and secondary seal surfaces and comparing it with the critical value, the leakage in the loading step can be determined.

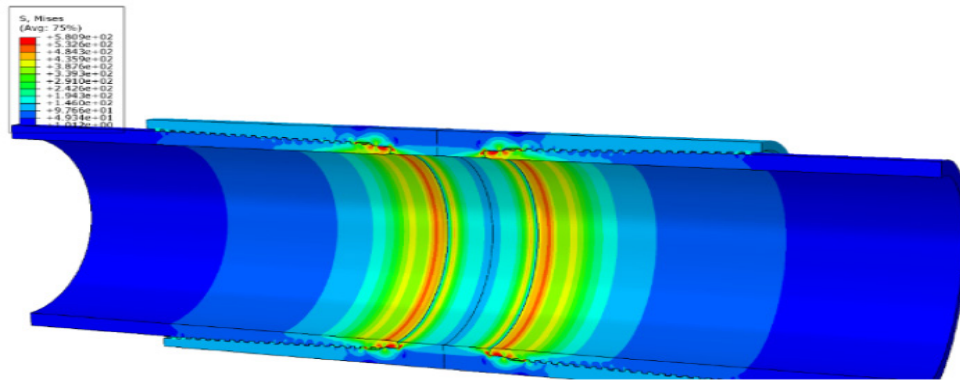


Fig. 4 Stress contour by applying make-up torque.

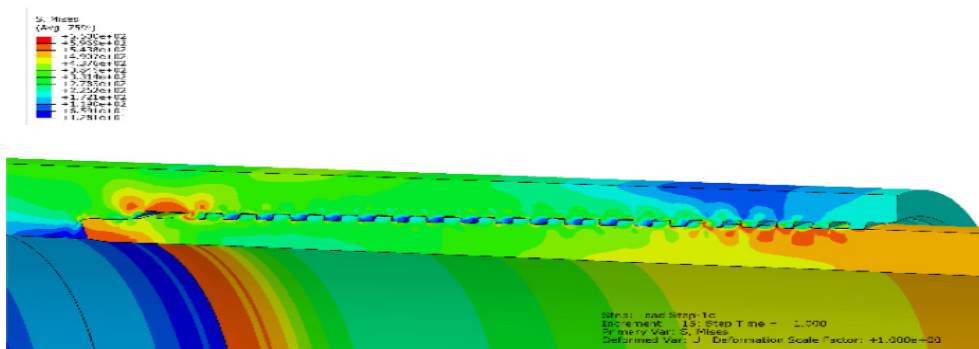


Fig. 5 Stress contour by applying combine loading in load step 1c.

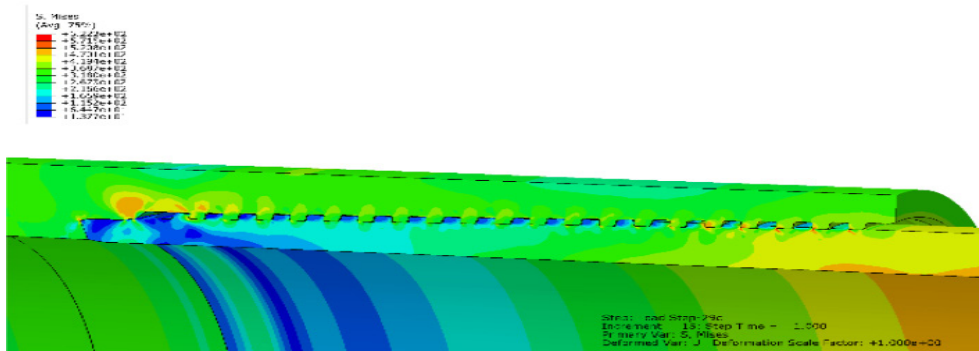


Fig. 6 Stress contour by applying combined loading in load step 29c.

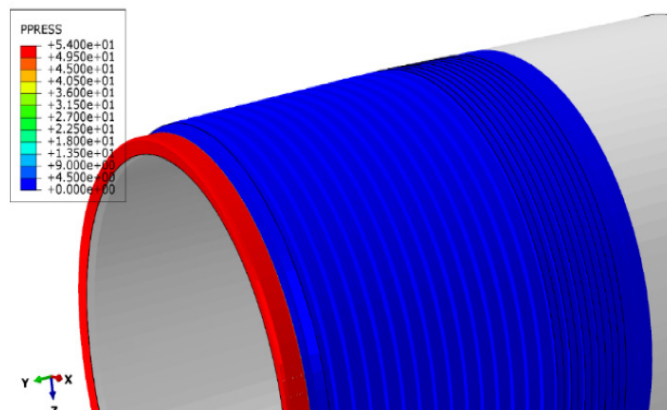


Fig. 7 Pressure penetration in load step 2c.

Figure 8 shows the calculated seal index. The connection torque shoulder seal index value is higher than the

primary and secondary seal surfaces.

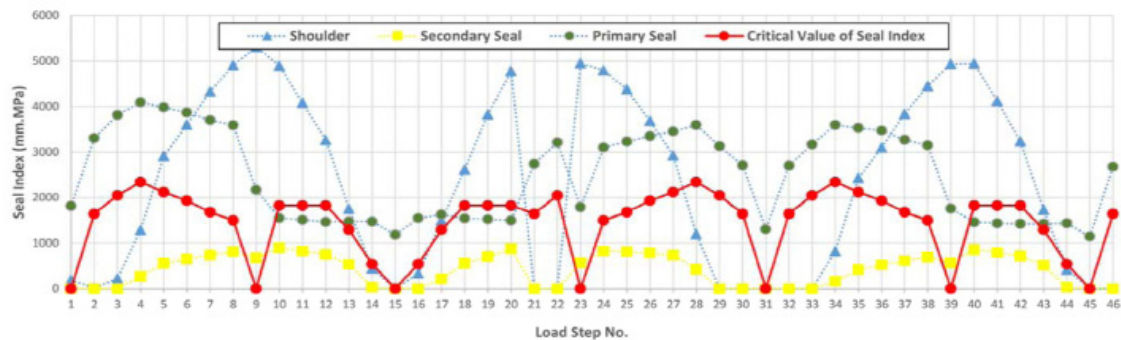


Fig. 8 Seal index for torque shoulder, primary and secondary seal surfaces.

Conclusions

In this research, the premium connection has been designed and also analyzed by employing FEA. Accordingly, the main results of this research are as follows:

1. The thread design process requires several parameters to be considered. The three main parameters are the thread profile design, the connection shoulder design, and the seal design.
2. Evaluation of connection design based on a standard procedure includes investigation of the stress and leakage status of the connection.
3. Loading based on the most challenging working conditions, i.e., CAL IV test in ISO 13679 standard, including series A test, which includes the axial load of tension and compression with internal and external pressure, was applied to the designed connection. Loading steps and points were determined according to the von Mises stress loop.
4. It was found that design by finite element analysis can be a reliable and inexpensive tool and an alternative to physical experiments.

References

1. Vallourec Group Bulletin, VAM Book, 2011.
2. Tenaris Hydril Co. Bulletin (2008) Premium connections catalogue.
3. Galle T, De Waele W, Baets P De, Wittenberghe J Van (2011) Influence of design features on the structural integrity of threaded pipe connections, *Journal of Sustainable Construction and Design*, 2, 2: 237-245.
4. Nakamura K, Shi W, Hamamoto Wakayama-shi T, Sugino M, shi N, Yamaguchi S, Shi A (2009) threaded joint for steel pipes.
5. Tsuru E, Nishi S, Ogasawara M (1988) Threaded joint for oil-well pipe.
6. ISO 13679 Recommended practice on procedures for testing casing and tubing connections, 2002.
7. API Spec 5CT (2015) Specification for Casing and Tubing.
8. ASME Sec VIII Div 2 (2007) Rules for construction of pressure vessels.

استفاده از لجن نفتی و قیر طبیعی در بهبود کیفیت قیر

محمد نوروزی^{۱*}، شکوفه قهری صارمی^۲ و نیلوفر فتوره‌چی^۳

۱- مرکز پژوهش نفت کرمانشاه، پردیس توسعه صنایع پایین‌دستی، پژوهشگاه صنعت نفت، تهران، ایران

۲- گروه شیمی، دانشکده علوم پایه، دانشگاه پیام نور، تهران، ایران

۳- پژوهشکده توسعه فرآورش و انتقال گاز، پردیس توسعه صنایع پایین‌دستی، پژوهشگاه صنعت نفت، تهران، ایران

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۱۱/۰۹ تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۸/۰۳

چکیده

لجن‌های نفتی عموماً از ته مانده‌های نفتی، پساب‌ها و ضایعات مراحل مختلف جداسازی در صنعت نفت به‌وجود می‌آیند و با توجه به منشأ تولید و شرایط ذخیره‌سازی آن دارای ترکیبات متنوع و پیچیده‌ای هستند. این لجن‌ها علاوه بر کاهش ظرفیت و ایجاد خوردگی در مخازن ذخیره، خطرات زیست محیطی ناشی از آلودگی آب و خاک را نیز به‌دنبال خواهد داشت. در این پروژه با استفاده از روش‌های فیزیکی، ترکیبات هیدروکربنی موجود در لجن از سایر ترکیبات شامل آب و مواد معدنی جامد جدا می‌شود. سپس با افزودن درصد‌های مختلف از لجن جداسازی شده و قیر طبیعی به قیر ۶۰/۷۰، قیرهایی با کیفیت متفاوتی فرموله شدند. خواص فیزیکی و شیمیایی قیر حاصل مورد ارزیابی آزمایشگاهی قرار گرفت و نتایج نشان‌دهنده افزایش کیفیت دلخواه قیر تولیدی است. در این بررسی از روش سطح پاسخ (RSM) جهت بهینه‌سازی فرمولاسیون تولید قیر استفاده شد.

کلمات کلیدی: لجن نفتی، قیر طبیعی، قیر ۶۰/۷۰، روش سطح پاسخ، ارزیابی رابطه

مقدمه

لجن به چهار دسته آلیفاتیک‌ها، آروماتیک‌ها، ترکیبات حاوی نیتروژن- سولفور- اکسیژن (با نام عمومی مالتن‌ها) و آسفالتین‌ها تقسیم می‌شوند. آلیفاتیک‌ها و آروماتیک‌ها شامل آلکان‌ها، سیکلو آلکان‌ها، بنزن، تولوئن، زایلن، نفتالن، فنولوئیدها و هیدروکربن‌های چند حلقه‌ای آروماتیک هستند [۱-۳]. آسفالتین‌ها ترکیبات سنگینی هستند که درصد بالای لجن‌ها را به‌خود اختصاص می‌دهند و به‌همراه رزین‌ها در لجن باعث پایداری امولسیون لجن نفتی می‌شوند [۴-۶].

ذرات جامد موجود در نفت خام استخراج شده به‌همراه واکس، آب و امولسیون‌های نفتی، مواد چسبناک لجنی را در کف مخازن پدید می‌آورند که ضمن کاهش ظرفیت مخازن، ایجاد خوردگی در نقاط مختلف مخزن، مشکلات محیط‌زیستی ناشی از ذخیره و دفع غیراصولی آنها را نیز به‌همراه دارد. ترکیب هیدروکربن‌های نفتی موجود در

*مسئول مکاتبات
آدرس الکترونیکی

norouzim@ripi.ir

شناسه دیجیتال: (DOI:10.22078/PR.2022.4728.3123)

روش کار

مواد مصرفی

حلال‌های مورد استفاده در این تحقیق از نمونه‌های خالص شرکت‌های مرک و فلوکا، لجن ته مخازن نفتی از پالایشگاه کرمانشاه، قیر طبیعی از یکی از معادن استان کرمانشاه هستند. قیر خالص استفاده شده در این پژوهش قیر با درجه نفوذ ۶۰/۷۰ از پالایش نفت پاسارگاد است. آماده‌سازی و تعیین مشخصات لجن نفتی، تعیین مشخصات قیر طبیعی و قیر پالایشگاهی مورد استفاده در این پژوهش از لجن نفتی که مخلوطی از لجن‌های ته مخازن ذخیره نفت خام و فرآورده‌های سنگین شرکت پالایش نفت کرمانشاه است، استفاده شد. این لجن دارای آب، هیدروکربن‌های سنگین، نمک و مواد معدنی خواهد بود. ابتدا جهت تعیین درصد تقریبی آب و رسوبات موجود در نمونه لجن مطابق روش استاندارد با استفاده از دستگاه سانتریفوژ نمونه لجن تفکیک شد [۲۹]. دو لوله سانتریفوژ تا حجم ۵۰ mL از نمونه ای همگن پر شد. با استفاده از پیپت، ۵۰ mL تولوئن اضافه شد. درب لوله‌ها را بسته و به شدت تکان داده و در حمام آب گرم در دمای ۶۰ °C به مدت ۱۰ min غوطه‌ور شدند. لوله‌ها به مدت ۱۰ min در دستگاه سانتریفوژ با چرخش ۴۰۰۰ دور در دقیقه (rpm) گذاشته شد. بلافاصله بعد از توقف دوران سانتریفوژ، حجم مجموع آب و رسوب در دو لوله به دقت اندازه‌گیری شد. مجموع حجم رسوب و آب در دو لوله مقدار درصد این دو ترکیب در نمونه لجن را نشان می‌دهد. در این پژوهش فرآوری لجن در دو مرحله انجام می‌شود. در مرحله اول، آب موجود در لجن با استفاده از روش تقطیر مطابق روش استاندارد جداسازی و اندازه‌گیری می‌گردد [۳۰]. برای اندازه‌گیری آب در لجن از یک دستگاه دین استارک استفاده می‌شود.

روش‌های متعددی برای بازیابی لجن نفتی توسعه یافته‌اند. استفاده از سانتریفوژ [۷]، مواد فعال سطحی^۱ [۸ و ۹] بازیابی به‌روش یخ‌زدن و ذوب [۱۰ و ۱۱]، پیرولیز لجن نفتی [۱۲ و ۱۳]، استفاده از روش ماکروویو [۱۴ و ۱۵]، روش‌های الکتروسینتیک^۲ [۱۶ و ۱۷] و بازیابی با استفاده از امواج فراصوت^۳ [۱۸ و ۱۹] از جمله رایج‌ترین و پرکاربردترین روش‌های بازیابی لجن‌های نفتی در مقیاس مختلف هستند. استخراج با حلال نیز یکی از دیگر روش‌هایی هستند که به دلیل راندمان بالا و هزینه‌های پایین، اخیراً مورد توجه فراوان قرار گرفته است [۲۰]. از آنجائی که قیر خالص رفتار عملکردی بهینه‌ای نداشته و به‌تنهایی هیچ‌گاه از خواص فیزیکی مکانیکی کاملاً رضایت بخشی برخوردار نبوده است، از این‌رو محققان در تلاش هستند خواص قیر را اصلاح نمایند. پلیمرها به‌خصوص از نوع گرمانرمی مهم‌ترین اصلاح‌کننده قیر هستند که باعث چسبندگی عالی، خاصیت کشتسانی بسیار خوب و مقاومت بهتر در برابر روان‌شدن و تغییر شکل می‌شوند [۲۱-۲۶]. قیر طبیعی که در مناطق غربی کشور به‌وفور یافت می‌شود، یک هیدروکربن طبیعی با مقدار آسفالتین بالا، میزان بالای حل‌شوندگی در حلال‌های آلی و میزان بالای نیتروژن است. نتایج تحقیقات نشان می‌دهد که استفاده از قیر طبیعی موجب افزایش نقطه نرمی و کاهش درجه نفوذ قیر می‌شود. از دیگر مزایا و ویژگی‌های قیر اصلاح شده با قیر طبیعی می‌توان به افزایش مقاومت مارشال و مقاومت در برابر شیارشدگی مخلوط‌های آسفالتی، افزایش طول عمر سرویس‌دهی و کاهش هزینه‌های تعمیر و نگهداری اشاره کرد [۲۸]. در این پژوهش تأثیر هم‌زمان افزایش قیر طبیعی و لجن نفتی بر عملکرد و کیفیت مدنظر قیر برای استفاده در صنایع متفاوت بررسی گردید. نتایج حاکی از آن است که با تغییر مقادیر ترکیب درصد قیر طبیعی و لجن به قیر ۶۰/۷۰ می‌توان قیرهای متنوع با مقادیر مدنظر برای شاخص‌های کیفیت فرموله نمود.

1. Surfactants
2. Electrokinetic
3. Ultrasonic

قیر پالایشگاهی ۶۰/۷۰ که از شرکت پاسارگاد تهیه گردید که با استفاده از روش‌های استاندارد تعیین مشخصات گردید [۳۳].

طراحی آزمایش اصلاح خواص قیر

هدف از این پژوهش بهبود کیفیت مد نظر قیر با استفاده از افزودن لجن نفتی و قیر طبیعی به قیر خالص ۶۰/۷۰ است. عواملی که در عملکرد این اختلاط موثر هستند شامل دما و زمان مخلوط کردن، سرعت همزن مکانیکی و از همه مهم‌تر درصد افزودنی‌های لجن و قیر طبیعی است. در صورت ثابت و بهینه بودن پارامترهای دما، زمان و سرعت اختلاط، عامل مهم و تأثیرگذار بر روی بهبود خواص قیر مقادیر متفاوت درصد اختلاط افزودنی‌های لجن و قیر طبیعی است. لذا برای بررسی این درصد اختلاط از داده‌های آماری و طراحی آزمایش استفاده می‌کنیم. برای طراحی آزمایش‌ها و تحلیل آنها از نرم‌افزار مینی تب و روش سطح پاسخ^۲ استفاده شد [۳۴ و ۳۵]. روش سطح پاسخ مورد استفاده در این آزمایش با استفاده از روش مرکب مرکزی است. در این روش که از جمله پرکاربردترین روش‌ها است برای هر متغیر یا عامل یک حد بالا و یک حد پایین تعریف می‌شود. همچنین در حین طراحی یک عدد به‌عنوان α به نرم‌افزار می‌دهیم که این عدد همواره بزرگتر از صفر است. یکی از متغیرها درصد افزودن لجن نفتی با دامنه ۵ تا ۴۰٪ وزنی از قیر ۶۰/۷۰ و متغیر دوم درصد افزودن پودر قیر طبیعی با دامنه ۵ تا ۲۰٪ وزنی است. با استفاده از روش سطح پاسخ، ۱۳ آزمایش پیشنهاد گردید. براساس پیشنهاد مجمع جهانی راه، پودر قیر طبیعی مورد استفاده برای اصلاح قیر باید به‌طور کامل از الک شماره ۵۰ عبور کند. برای مخلوط کردن نیز باید دمای مخلوط 140°C باشد و به‌مدت ۱۵۰ min با سرعت هم‌زدن ۱۵۰ rpm مخلوط شود.

۱۰۰ mL از لجن همگن شده را در یک بالن ریخته و ۵۰ mL تولوئن به آن اضافه می‌کنیم و هم می‌زنیم تا به‌طور کامل مخلوط شوند. سپس دستگاه بالن را در جای مناسب خود قرار داده و حرارت می‌دهیم تا مخلوط به جوش بیاید. در این مدت چون مخلوط تولوئن و آب با هم آزنوتروپی با نقطه جوش پایین‌تر تشکیل می‌دهد، ابتدا آنها تبخیر می‌شوند و خارج می‌شوند. به‌دلیل اختلاف دانسیته، آب در ته لوله قرار می‌گیرد. این آزمایش را تا زمانی ادامه می‌دهیم تا مطمئن شویم که کل آب از لجن خارج شده است. در پایان، مقدار آب درون لوله اندازه‌گیری می‌شود. درصد آب در این مرحله از مقدار درصد آب و رسوب به‌دست آمده در مرحله قبل کاسته شده و درصد رسوب در لجن به‌دست می‌آید. در مرحله سوم، هیدروکربن موجود در مخلوط رسوب و هیدروکربن در مرحله دو توسط روش استخراج با حلال تولوئن و متیل اتیل کتون برای استفاده در فرمولاسیون قیر اصلاح شده جداسازی می‌شود [۳۱]. به ۲۰۰ mL مخلوط رسوب و هیدروکربن، ۵۰ mL مخلوط حلال تولوئن و متیل اتیل کتون به نسبت ۱:۱ اضافه شده و کاملاً مخلوط می‌شوند. سپس به‌مدت ۳۰ min در دمای 60°C هم‌زده می‌شود. با استفاده از کیف جداکننده فاز آلی از رسوبات جدا می‌شود و بعد از تقطیر و جداسازی تولوئن و متیل اتیل کتون، در اصلاح قیر مورد استفاده قرار می‌گیرد. شاخص اصلی در آنالیز کیفی لجن، مشخص نمودن محتوای هیدروکربنی آن است. بدین منظور در این تحقیق از تست سارا^۱ استفاده شده است که بیانگر محتوای هیدروکربنی لجن نفتی است. در این آزمایش هیدروکربن‌های اشباع شده، آروماتیک، رزینی و همچنین آسفالتین در نمونه لجن استخراج شده، اندازه‌گیری می‌شوند. در تحقیق حاضر از نمونه پودر قیر طبیعی یکی از معادن استان کرمانشاه با مش ۲۰۰ استفاده گردید و قبل از استفاده مشخصات آن توسط روش‌های استاندارد تعیین گردید [۳۲]. همچنین،

1. SARA

2. Response Surface Methodology (RSM)

روش‌های استاندارد مواد هیدروکربنی و نفتی از آب و رسوبات همراه جداسازی شد. مقدار آب و رسوبات همراه و همچنین ترکیب درصد هیدروکربن‌های آن پس از جداسازی توسط روش‌های استاندارد اندازه‌گیری گردید و نتایج در **جدول ۲** ارائه شده است (لازم به ذکر است که آزمایش‌های ردیف ۳ تا ۹ در این جدول پس از جداسازی آب و رسوبات از لجن بر روی نمونه هیدروکربنی باقی‌مانده انجام شده است). پس از جداسازی کامل آب و رسوبات موجود در لجن نفتی اولیه، آنچه باقی‌ماند ترکیبی از هیدروکربن‌های سنگین است که درصد قابل توجهی از کل لجن نفتی را به‌خود اختصاص داده است (۸۳/۰۲٪). نتایج آزمایش سارا نشان می‌دهد که درصد بالایی از این هیدروکربن‌ها با نام عمومی مالتن شامل ترکیبات اشباع، آروماتیک و رزینی است (در کل ۹۱/۶۹٪). تنوع معادن قیر طبیعی در ایران از نظر مکان، زمان تشکیل و شرایط گوناگون استخراج و ذخیره‌سازی، سبب ایجاد گستره وسیعی از قیر طبیعی از نظر خواص فیزیکی و شیمیایی می‌شوند.

سپس دمای مخلوط تا 180°C افزایش داده می‌شود و همزدن به مدت ۳۰ min با سرعت ۴۵۰۰ rpm ادامه می‌یابد تا مخلوطی همگن از قیر طبیعی، لجن نفتی و قیر تهیه شود [۳۶]. پارامتر دما، زمان و سرعت همزدن در این آزمایش‌ها ثابت در نظر گرفته شد. طراحی آزمایش به روش سطح پاسخ در ۵ سطح، با توجه به مقادیر متغیرهای نشان داده شده در **جدول ۱**، انجام شد.

جدول ۱ متغیرهای تاثیرگذار بر کیفیت قیر

متغیر	نام متغیر	درصد افزایش	
		حد پایین	حد بالا
A	درصد لجن نفتی	۵	۴۰
B	درصد قیر طبیعی	۵	۲۰

نتیجه‌ها و بحث

تعیین مشخصات کمی و کیفی لجن نفتی، قیر طبیعی و قیر ۶۰/۷۰ و قیر اصلاح شده نمونه لجن نفتی ته مخازن نگهداری حاوی ترکیبات هیدروکربنی، آب و رسوبات است که با استفاده از

جدول ۲ مشخصات لجن نفتی

ردیف	پارامتر	روش آزمایش	مقادیر
۱	مقدار رسوب در لجن نفتی (%wt)	ASTM D4007	۸/۶۸
۲	مقدار آب در لجن نفتی (%wt)	ASTM D4006	۷/۳۰
۱-۲	مقدار نمک در آب (%wt)	ASTM D3230	۳/۲۰
۳	مقدار هیدروکربن کل در لجن نفتی (%wt)	ASTM D473	۸۳/۰۲
۱-۳	مقدار هیدروکربن اشباع در کل هیدروکربن‌ها (%wt)		۳۷/۵۰
۲-۳	مقدار هیدروکربن آروماتیک در کل هیدروکربن‌ها (%wt)	IP 143, SARA	۲۳/۱۰
۳-۳	مقدار هیدروکربن‌های رزین در کل هیدروکربن‌ها (%wt)		۳۱/۰۹
۴-۳	مقدار هیدروکربن آسفالتین در کل هیدروکربن‌ها (%wt)		۸/۳۱
۴	وزن مخصوص در 25°C	ASTM D70	۰/۹۹
۵	مقدار گوگرد کل هیدروکربن (%wt)	ASTM D2622	۰/۸۷
۶	اندیس ویسکوزیته (VI)	ASTM D445	۴۰
۷	عدد اسیدی (mgKOH/g)	ASTM D664	۰/۲۳
۸	نقطه ریزش بخش هیدروکربنی لجن ($^{\circ}\text{C}$)	ASTM D97	-۱۲/۵
۹	نقطه اشتعال باز هیدروکربن ($^{\circ}\text{C}$)	ASTM D92	۲۶۷

پس از انجام هر یک از آزمایش‌ها، نمونه قیرهای اصلاح شده برای آزمون کیفیت قیر مورد ارزیابی تجربی قرار گرفت و نتایج در **جدول ۵** نشان داده شده است.

ارزیابی رابطه^۱

از بین مشخصات کیفیت قیر اصلاح شده، سه پارامتر مهم شامل درجه نفوذ، نقطه نرمی و کشش‌پذیری به‌منظور بررسی اعتبار رابطه پیشنهادی توسط روش سطح پاسخ انتخاب و مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت. تابع توزیع نرمال شاخصی است که می‌تواند به‌منظور بررسی صحت رابطه پیشنهادی مورد استفاده قرار گیرد. هرچه توزیع داده‌ها به خط نرمال نزدیک‌تر باشند بدین معنا است که رابطه از صحت بیشتری برخوردار است.

مشخصات این ترکیب که به‌خصوص جهت استفاده از این ترکیب به‌عنوان یک افزودنی به قیر جهت اصلاح خواص مورد توجه است، بالغ بر ده‌ها مورد است. در این میان خواصی همچون مقدار حلالیت در حلال‌هایی همانند تری کلرو اتیلن، دی سولفید کربن و تتراکلرید کربن، غیر محلول بودن در حلال هپتان، مقدار خاکستر و مواد فرار در تعیین کیفیت و قیمت این ترکیب بسیار تأثیرگذار است. برخی از مشخصات مهم نمونه قیر طبیعی یکی از معادن بزرگ و معروف واقع در شهرستان گیلان غرب کرمانشاه در **جدول ۳** ارائه شده است. مشخصات قیر ۶۰/۷۰ تهیه شده از شرکت پاسارگاد در **جدول ۴** نشان داده شده است. ۱۳ آزمایش پیشنهاد شده براساس طراحی به‌روش پاسخ سطح انجام شد.

جدول ۳ مشخصات قیر طبیعی

ردیف	پارامتر	روش آزمون	مقدار
۱	خاکستر (%wt)	ASTM D3174	۱۲/۳۰
۲	رطوبت (%wt)	ASTM D3173	۰/۱۴
۳	مواد فرار (%wt)	ASTM D3175	۴۵/۳
۴	کربن ثابت (%wt)	ASTM D3172	۲۵/۰۲
۵	حلالیت در تری کلرواتیلن (%wt)	ASTM D2042	۷۸/۵۶
۶	وزن مخصوص در ۲۵ °C	ASTM D71	۱/۰۲
۷	نامحلول در هپتان (%wt)	ASTM D3279	۸۷/۵۶

جدول ۴ مشخصات قیر ۶۰/۷۰

ردیف	پارامتر	روش آزمون	مقدار
۱	دانسیته در دمای ۲۵ °C (g/cm ³)	ASTM D70	۱/۰۶
۲	درجه نفوذ در دمای ۲۵ °C (۰/۱mm)	ASTM D5	۶۶
۳	نقطه نرمی (°C)	ASTM D36	۴۵
۴	کشش‌پذیری در دمای ۲۵ °C (cm)	ASTM D113	۱۰۰
۵	نقطه اشتعال (°C)	ASTM D92	۲۵۵
۶	حلالیت در تری کلرو اتیلن (%wt)	ASTM D2042	۹۹/۸
۷	افت حرارتی، (%wt)	ASTM D6	۰/۱۴

جدول ۵ نتایج طراحی سطح پاسخ برای بررسی تاثیر افزایش لجن نفتی و قیر طبیعی بر کیفیت قیر

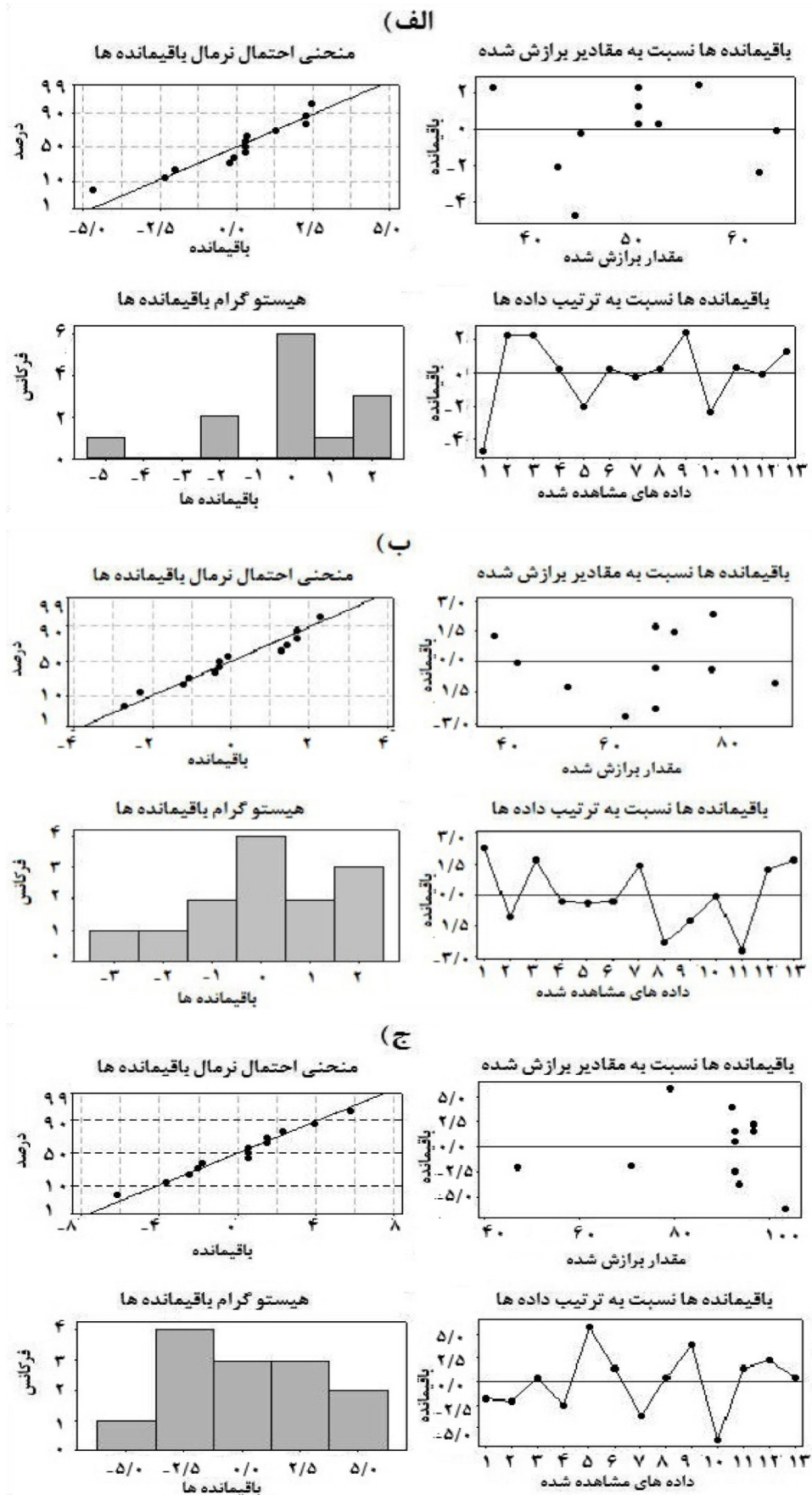
آنالیز کیفیت قیر ترکیبی								درصد قیر طبیعی	درصد لجن نفتی	شماره آزمایش
خاکستر (%wt)	حلالیت در TCE (%wt)	نقطه اشتعال (°C)	افت وزنی (%wt)	وزن مخصوص (°C ۲۵)	کشش پذیری (cm@ ۲۵ °C)	نقطه نرمی (°C)	درجه نفوذ (mm@ ۲۵ °C)			
ASTM D3174	ASTM D2042	ASTM D92	ASTM D3175	ASTM D70	ASTM D113	ASTM D36	ASTM D5			
۱/۴۹	۹۸/۳۰	۲۶۸	۰/۱۲	۱/۰۶	۶۹	۸۱	۴۰	۱۲/۵	۵/۰	۱
۲/۳۷	۹۷/۳۲	۲۶۹	۰/۱۱	۱/۱۱	۴۵	۸۹	۳۹	۲۰/۰	۵/۰	۲
۱/۴۸	۹۸/۲۲	۲۶۳	۰/۱۳	۱/۰۵	۹۳	۷۰	۵۳	۱۲/۵	۲۲/۵	۳
۱/۵۰	۹۸/۲۳	۲۶۲	۰/۱۳	۱/۰۵	۹۰	۶۸	۵۱	۱۲/۵	۲۲/۵	۴
۲/۴۴	۹۷/۲۴	۲۶۴	۰/۱۳	۱/۰۹	۸۵	۷۸	۴۱	۲۰/۰	۲۲/۵	۵
۱/۵۱	۹۸/۲۲	۲۶۳	۰/۱۳	۱/۰۵	۹۴	۶۸	۵۱	۱۲/۵	۲۲/۵	۶
۲/۴۰	۹۷/۱۴	۲۵۹	۰/۱۴	۱/۰۷	۹۰	۷۳	۴۵	۲۰/۰	۴۰/۰	۷
۱/۴۸	۹۸/۲۵	۲۶۳	۰/۱۳	۱/۰۴	۹۳	۶۶	۵۱	۱۲/۵	۲۲/۵	۸
۰/۶۰	۹۹/۲	۲۶۵	۰/۱۴	۱/۰۳	۹۶	۵۱	۵۹	۵/۰	۵/۰	۹
۰/۶۱	۹۹/۱۳	۲۶۳	۰/۱۴	۱/۰۲	۹۷	۴۳	۶۰	۵/۰	۲۲/۵	۱۰
۱/۵۱	۹۸/۱۴	۲۵۷	۰/۱۵	۱/۰۴	۹۸	۶۰	۵۳	۱۲/۵	۴۰/۰	۱۱
۰/۶۳	۹۹/۰۲	۲۵۵	۰/۱۶	۱/۰۲	۹۹	۴۰	۶۴	۵/۰	۴۰/۰	۱۲
۱/۴۸	۹۸/۲۳	۲۶۱	۰/۱۴	۱/۰۵	۹۳	۷۰	۵۲	۱۲/۵	۲۲/۵	۱۳

نمودار هیستوگرام باقی مانده‌ها نقطه بیشینه مطلق وجود داشت باشد بدین معناست که رابطه از دقت لازم جهت بررسی آزمایشات برخوردار بوده و نتایج آن قابل استناد است.

تجزیه و تحلیل واریانس برای شاخص‌های کیفیت قیر اصلاح شده

پس از وارد نمودن اطلاعات تجربی به دست آمده از آنالیز کیفی نمونه‌های قیر اصلاح شده، پاسخ‌های فرآیند مورد ارزیابی قرار گرفت و سپس با استفاده از تحلیل واریانس، اثر هر عامل در پاسخ‌های مختلف تعیین شد. همان‌طور که در جدول ۶ مشاهده می‌شود با توجه به سطح اطمینان که به صورت پیش فرض ۹۵٪ منظور شده است، متغیرهایی که مقادیر P آنها کمتر از ۰/۰۵ است دارای اهمیت بیشتری است. اثرات دو متغیر شامل درصد قیر طبیعی و لجن نفتی بر روی درجه نفوذ، نقطه نرمی و کشش پذیری مورد ارزیابی قرار گرفت.

در شکل ۱ منحنی توزیع نرمال داده‌ها و باقی مانده‌ها را برای درجه نفوذ شکل الف، نقطه نرمی شکل ب و کشش پذیری شکل ج برای ۱۳ نمونه قیر اصلاح شده ارائه شده است. نمودار باقی مانده‌ها بر حسب ترتیب آزمایش یکی از شاخص‌های اصلی بررسی اعتبار مدل در طراحی آزمایش به شمار می‌آید. اگر در نمودار باقی مانده‌ها بر حسب ترتیب آزمایش روند منطقی بین نقاط وجود نداشته باشد بدین معنا است که نقاط کاملاً تصادفی انتخاب شده و رابطه از اعتبار لازم برخوردار است. در شکل ۱ همچنین نمودار باقی مانده‌ها بر حسب ترتیب آزمایش را برای درجه نفوذ شکل الف، نقطه نرمی شکل ب و کشش پذیری شکل ج نشان می‌دهد. همان‌گونه که در این شکل‌ها پیداست هیچ ارتباط ریاضی بین نقاط وجود ندارد و نقاط کاملاً تصادفی انتخاب شده‌اند. نمودار هیستوگرام باقی مانده‌ها شاخص دیگری است که اعتبار رابطه پیشنهادی را مورد ارزیابی قرار می‌دهد. چنان که در



شکل ۱ نمودار باقی مانده ها برای درجه نفوذ الف، نقطه نرمی ب و کشش پذیری ج

نشان داده شده در **جدول ۶**، رابطه نقطه نرمی قیر اصلاح شده با دارا بودن بیشترین مقدار $F (۱۱۱/۸۴)$ ، بیشترین ضریب هم‌گرایی $(۹۸/۸)$ و کمترین مقادیر P ، با معناترین رابطه پیشنهادی است. در مرتبه بعدی رابطه کشش‌پذیری و در نهایت رابطه درجه نفوذ حائز اهمیت هستند. پس از تحلیل‌های آماری، رابطه‌های پیشنهادی به‌صورت یک رابطه برحسب ضرایب اثرگذاری متغیرها توسط نرم‌افزار ارائه شد که در روابط ۱ تا ۳ نشان داده شده است. در این روابط متغیرهای A ، B ، به‌ترتیب درصدهای وزنی لجن نفتی و قیر طبیعی هستند. همان‌طور که در این روابط مشخص است تاثیر درصد قیر طبیعی و لجن نفتی در سه مشخصه کیفیت شامل درجه نفوذ (Pen)، نقطه نرمی (Soft) و کشش‌پذیری (Duct) عملاً در جهت مخالف هم عمل می‌کنند.

$$Pen = 64.3248 + 0.5037A - 2.2053B \quad (۱)$$

$$Soft = 29.3904 - 0.6928A + 5.5415B - 0.1349B^2 + 0.0095AB \quad (۲)$$

$$Duct = 100.313 + 1.028A - 2.818B - 0.0029A^2 - 0.080AB \quad (۳)$$

با توجه به مقادیر P ، درصد قیر طبیعی و لجن نفتی بیشترین تاثیر را بر روی درجه نفوذ قیر اصلاح شده دارند و متغیرهای درجه دو و تداخلی در این میان تاثیر ناچیز دارند (مقادیر P جملات درجه دو و برهم‌کنش بزرگتر از $۰/۰۵$ هستند). اثر افزایش قیر طبیعی باعث کاهش درجه نفوذ و افزایش لجن نفتی باعث افزایش آن می‌شود که علامت منفی و مثبت مقادیر F این تاثیر را نشان می‌دهد. همین روند در مورد مقدار کشش‌پذیری قیر اصلاح شده مشاهده می‌شود. با این تفاوت که متغیر درجه دو مربوط به درصد لجن نفتی و همچنین اثر برهم‌کنش بر روی مقدار کشش‌پذیری دارای اهمیت هستند. دلیل اصلی این رفتار وابسته به ماهیت شیمیایی ترکیبات قیر طبیعی و لجن نفتی است. اثرات متغیرهای درصدهای قیر طبیعی و لجن نفتی در مورد مقدار نقطه نرمی برعکس تاثیر آن بر روی درجه نفوذ و کشش‌پذیری است. نکته مهم در این رابطه اینک میزان تاثیر درصد قیر طبیعی بر روی نقطه نرمی (با داشتن مقدار P کمتر از $۰/۰۰۱$) بیشتر از سایر متغیرها است. در بین رابطه‌های برازشی

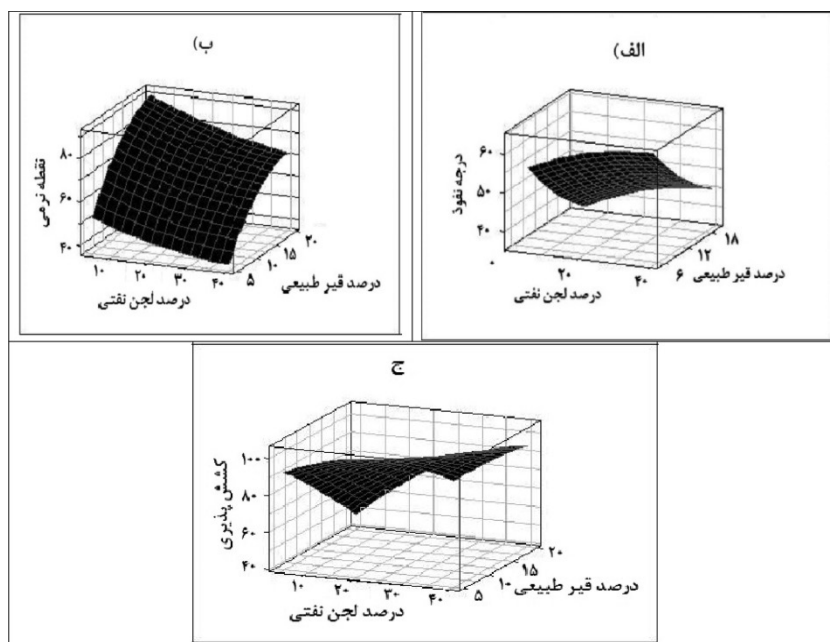
جدول ۶ نتایج تحلیل واریانس روش سطح پاسخ برای اندازه‌گیری مقدار درجه نفوذ، نقطه نرمی و کشش‌پذیری تحت تاثیر درصدهای قیر طبیعی و لجن نفتی

کشش‌پذیری		نقطه نرمی		درجه نفوذ		عامل‌ها
مقدار P	مقدار F	مقدار P	مقدار F	مقدار P	مقدار F	
۰/۰۰۰	۲۸/۶۹	۰/۰۰۰	۱۱۱/۸۴	۰/۰۰۱	۱۸/۹۰	رابطه
۰/۰۴۸	۴/۶۸	۰/۰۰۰	۵۱/۰۵	۰/۰۴۳	۵/۱۱	جملات خطی
۰/۰۴۸	۲/۳۵۲	۰/۰۱۴	-۳/۲۲۸	۰/۰۳۴	۱/۸۳۱	لجن نفتی (A)
۰/۰۴۶	-۲/۳۲۴	۰/۰۰۰	۹/۹۷۹	۰/۰۲۳	-۲/۸۸۹	قیر طبیعی (B)
۰/۰۱۶	۷/۹۲	۰/۰۰۲	۱۸/۴۳	۰/۳۷۷	۱/۱۲	جملات درجه دو
۰/۰۱۱	-۳/۴۵۴	۰/۰۹۵	۱/۹۲۷	۰/۲۴۶	-۱/۲۶۷	$A \times A$
۰/۶۲۳	-۰/۵۱۴	۰/۰۰۱	-۶/۰۵۷	۰/۲۶۰	۱/۲۲۴	$B \times B$
۰/۰۰۲	۲۴/۵۴	۰/۲۶۹	۱/۴۴	۰/۸۵۷	۰/۰۴	برهم‌کنش
۰/۰۰۲	۴/۹۵۴	۰/۰۰۱	-۱/۲۰۱	۰/۸۵۷	۰/۱۸۷	$A \times B$
۰/۰۱۰	۱۶/۹۰	۰/۲۲۲	۲/۲۸	۰/۰۰۸	۱۹/۴۳	عدم برازش
$S = ۴/۲۳۹, R^2 = ۹۵/۳$		$S = ۲/۰۸۱, R^2 = ۹۸/۸$		$S = ۲/۶۶۸, R^2 = ۹۳/۱$		

که با تغییر مقادیر قیر طبیعی و لجن نفتی به قیر ۶۰/۷۰ می‌توان به مقادیر بهینه و مد نظر برای درجه نفوذ، نقطه نرمی و کشش‌پذیری هر کدام به‌طور جداگانه و یا در مجموع دست یافت. براساس روابط حاکم بر منحنی‌های به‌دست آمده از رابطه روش سطح پاسخ اثر هم‌زمان متغیرها بر روی شاخص‌های کیفیت شامل درجه نفوذ، نقطه نرمی و کشش‌پذیری با تقریب قابل قبولی قابل طراحی و پیش‌بینی است. تاثیر افزایش قیر طبیعی و لجن نفتی مکمل یکدیگر هستند. مقادیر لازم از قیر طبیعی و لجن نفتی به‌منظور رسیدن به مقادیر مشخصی برای درجه نفوذ، نقطه نرمی و کشش‌پذیری به‌طور جداگانه و یا هم‌زمان به‌عنوان مثال در **جدول ۷** نشان داده شده است. این جدول قابلیت بالای رابطه برای دستیابی به قیری با مشخصات دلخواه را نشان می‌دهد که براساس آن مقادیر اختلاط افزودنی‌های قیر طبیعی و لجن نفتی را نشان می‌دهد. برای دستیابی به قیری با درجه نفوذ ۵۰، نقطه نرمی ۵۰ و کشش‌پذیری ۱۰۰ به‌طور هم‌زمان و به‌تنهایی، مقادیر مشخصی طبق رابطه پیشنهاد می‌گردد.

بهینه‌سازی و بررسی اثرات هم‌زمان متغیرها بر کیفیت قیر

در **شکل ۲** نمودارهای سه بعدی تغییرات درصد قیر طبیعی و لجن نفتی بر درجه نفوذ، نقطه نرمی و کشش‌پذیری نشان داده شده است. همان‌طور که در این شکل نشان داده شده است با افزایش قیر طبیعی به قیر ۶۰/۷۰، مقدار درجه نفوذ شکل الف و کشش‌پذیری شکل ج قیر تولیدی با شیب تند کاهش و افزایش لجن نفتی باعث افزایش درجه نفوذ و کشش‌پذیری می‌گردد. در مورد نقطه نرمی شکل ب روند کاملاً برعکس می‌شود. به‌طوری‌که افزایش قیر طبیعی و لجن نفتی به قیر ۶۰/۷۰ به‌ترتیب باعث افزایش و کاهش نقطه نرمی می‌شود. با توجه به اینکه ترکیبات موجود در قیر طبیعی بیشتر شامل ترکیبات آسفالتین و مواد معدنی است، افزایش آن به قیر ۶۰/۷۰ باعث استحکام یا به‌عبارتی سفت شدن قیر می‌شود. لجن نفتی برعکس بیشتر دارای ترکیبات رزینی بوده و ترکیبات آسفالتین آن کمتر است، در نتیجه افزایش آن باعث انعطاف‌پذیری بیشتر و یا به‌عبارتی شل شدن قیر می‌شود. بدیهی است



شکل ۲ نمودار سه بعدی تغییرات درصد قیر طبیعی و لجن نفتی بر الف) درجه نفوذ، ب) نقطه نرمی و ج) کشش‌پذیری

جدول ۷ پیش‌بینی درصد مورد نیاز از قیر طبیعی و لجن نفتی برای رسیدن به شاخص‌های کیفیت مدنظر با استفاده از رابطه

مقادیر شاخص‌های کیفیت مد نظر	پیش‌بینی درصد قیر طبیعی مورد نیاز	پیش‌بینی درصد لجن نفتی مورد نیاز	مقادیر تجربی شاخص‌های کیفیت
درجه نفوذ (۵۰)	۱۴/۷۹	۴۰/۰۲	۵۱
نقطه نرمی (۵۰)	۶/۰۳	۱۶/۷۱	۴۹
کشش پذیری (۱۰۰)	۷/۴۵	۲۲/۵۰	۹۸
درجه نفوذ (۵۰)، نقطه نرمی (۵۰)	۵/۰۷	۵/۶۵	درجه نفوذ (۵۰)، نقطه نرمی (۴۸)
درجه نفوذ (۵۰)، کشش پذیری (۱۰۰)	۱۴/۷۶	۳۸/۲۰	درجه نفوذ (۵۲)، کشش پذیری (۱۰۴)
نقطه نرمی (۵۰)، کشش پذیری (۱۰۰)	۶/۱۵	۱۷/۷۲	نقطه نرمی (۵۲)، کشش پذیری (۱۰۲)
درجه نفوذ (۵۰)، نقطه نرمی (۵۰)، کشش پذیری (۱۰۰)	۵/۰۸	۸/۵۰	درجه نفوذ (۵۸)، نقطه نرمی (۵۰)، کشش پذیری (۹۸)

نتیجه‌گیری

یکی از مشکلات موجود در تمامی صنایع نفتی، شامل پالایشگاه، پتروشیمی، مراکز استخراج، نگهداری، پخش و حمل، تشکیل لجن‌های نفتی است. بهترین راه حل برای رفع این معضل جلوگیری از تشکیل آن و در مرحله دوم روش‌های فراوری و بازگردانی آن به چرخه تولید است. این تحقیق به منظور ارزیابی اثر استفاده از این لجن به همراه قیر طبیعی به عنوان اصلاح‌کننده کیفیت قیر انجام گرفت. برای رسیدن به این هدف، چندین آزمایش با افزودن این دو ترکیب به قیر ۶۰/۷۰ با استفاده از روش آماری پاسخ سطح انجام شد. در مرحله بعد سه مشخصه کیفیت قیر اصلاح شده شامل درجه نفوذ، نقطه نرمی و کشش‌پذیری با روش‌های استاندارد آزمایش گردید. در نهایت با استفاده از روش‌های آماری، اثرات افزودن هم‌زمان درصد‌های مختلفی از قیر طبیعی و لجن نفتی به قیر ۶۰/۷۰ بررسی شد. نتایج حاکی از آن است که افزایش قیر طبیعی باعث کاهش درجه نفوذ و کشش‌پذیری و برعکس باعث افزایش نقطه نرمی قیر اصلاحی می‌گردد. تاثیر افزایش لجن نفتی به

قیر برعکس افزودن قیر طبیعی باعث کاهش نقطه نرمی و افزایش درجه نفوذ و کشش‌پذیری قیر می‌گردد. استفاده هم‌زمان از قیر طبیعی و لجن نفتی در بهبود کیفیت قیر علاوه‌بر دست‌یابی به مشخصات دلخواه مدنظر مصرف‌کننده به قیرهایی با تنوع شاخص‌های کیفی بیشتر، با بازیابی لجن‌های نفتی و استفاده مجدد از آنها در این فرآیند، مخاطرات زیست‌محیطی ناشی از آلودگی آب و خاک را به حداقل می‌رساند و همچنین با استفاده از قیر طبیعی باعث کاهش بیشتر هزینه تولید اینگونه قیرها می‌گردد.

تشکر و قدردانی

از کلیه همکاران در پژوهشگاه صنعت نفت که در طول این پژوهش با ما همکاری نمودند و یاری‌رسان ما در اتمام این پژوهش بودند و همچنین از شرکت پالایش نفت کرمانشاه و سازمان صنعت، معدن و تجارت کرمانشاه که ما را در تهیه نمونه‌ها یاری نمودند، کمال تشکر و قدردانی را داریم.

مراجع

- [1]. Johnson O A, Affam A C (2019) Petroleum sludge treatment and disposal: A review, *Environmental Engineering Research*, 24, 2: 191-201, doi.org/10.4491/eer.2018.134.
- [2]. Choudhury S P. Saha B. Haq I. Kalamdhad A S. (2022) Use of petroleum refinery sludge for the production of biogas as an alternative energy source: a review, *Advanced Organic Waste Management*, 277-297, doi.org/10.1016/B978-0-323-85792-5.00021-6.
- [3]. Bhattacharyya J V, Shekdar A V (2003) Treatment and disposal of refinery sludges: Indian Scenario, *Waste Management and Research*, 21: 249-261, doi.org/10.1177/0734242X0302100.
- [4]. Hua G, Lia J, Zeng G (2013) Recent development in the treatment of oily sludge from petroleum industry: a review, *Journal of Hazardous Material*, 261: 470-490, doi.org/10.1016/j.jhazmat.2013.07.069.
- [5]. Reddy M V, Prathima Devi M, Chandrasekhar K, Kannaiah Goud R, Venkata Mohan S (2011) Aerobic remediation of petroleum sludge through soil supplementation: microbial community analysis, *Journal of Hazardous Materials*, 197: 80-87.
- [6]. Kriipsalu M, Marques M, Maaštik A (2008) Characterization of oily sludge from a wastewater treatment plant flocculation-flotation unit in a petroleum refinery and its treatment implications, *Journal of Material Cycles and Waste Management*, 10910: 79-86, doi.org/10.1007/s10163-007-0188-7.
- [7]. Cambiella A, Benito M (2006) Centrifugal separation efficiency in the treatment of water emulsified oils, *Chemical Engineering Research and Design*, 84: 69-76, doi.org/10.1016/j.jhazmat.2011.09.061.
- [8]. Mao X, Jiang R, Xiao W, Jiaguo Yuet J. (2015) Use of surfactants for the remediation of coataminated soils: review, *Journal of Hazardous Materials*, 285: 419-435, doi.org/10.1016/j.jhazmat.2014.12.009.
- [9]. Satpute S K, Banpurkar A G, Dhakephalkar P K, Banat IM, Chopade B A (2010) Methods for investigating biosurfactants and bioemulsifiers: a review, *Critical Reviews in Biotechnology*, 30: 127-144, doi.org/10.3109/07388550903427280.
- [10]. Zhang J, Jianbing Li J, Thring R W, Hu X, Song X (2012) Oil recovery from refinery oily sludge via ultrasound and freeze/thaw, *Journal of Hazardous Materials*, 203:195-203, doi.org/10.1016/j.jhazmat.2011.12.016.
- [11]. Hu G, J, Li H, Hou (2015) A combination of solvent extraction and freeze thaw for oil recovery from petroleum refinery wastewater treatment pond sludge, *Journal of Hazardous Materials*, 283: 832-840, doi.org/10.1016/j.jhazmat.2014.10.028.
- [12]. Barneto A G, Conesa J (2014) Thermogravimetric monitoring of oil refinery sludge, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 105: 8-13, doi.org/10.1016/j.jaap.2013.09.007.
- [13]. Liu G, Song H, Wu J (2015) Thermogravimetric study and kinetic analysis of dried industrial sludge pyrolysis, *Waste Management*, 41: 128-133, doi.org/10.1016/j.wasman.2015.03.042.
- [14]. Appleton T, Colder R I, Kingman I R, Lowndes I S, Read AG (2005) Microwave technology for energy efficient processing of waste, *Applied Energy*, 81: 85-113, doi.org/10.1016/j.apenergy.2004.07.002.
- [15]. Tan W, Yang X G, Tan X F (2007) Study on demulsification of crude oil emulsions by microwave chemical method, *Separation Science and Technology*, 42: 1367—1377, doi.org/10.1080/01496390701193736.
- [16]. Jamshidi Zanjani A, Khodadadi A (2017) A review on enhancement techniques of electrokinetic soil remediation, *Pollution*, 3, 1: 157-166, doi: 10.22059/POLL.2017.59583.
- [17]. Habibi S (2004) A new electro kinetic technology for revitalization of oily sludge, PhD Thesis, Concordia University.
- [18]. Li J, Song X, Hu G, Thering R W (2013) Ultrasonic desorption of petroleum hydrocarbons from crude oil contaminated soils, *Journal of Environmental Science and Health, Part A*, 48: 1378-1389, doi.org/10.1080/10934529.2013.781885.
- [19]. Kim Y M, Wang M C (2003) Effect of ultrasound on oil removal from soils, *Ultrasonics*, 41:539-542, doi.org/10.1016/S0041-624X(03)00168-9.
- [20]. 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, doi.org/10.1016/j.jhazmat.2013.07.069.
- [21]. Huang B, Li G, Shu X (2006) Investigation into three-layered HMA mixtures, *Composites Part B: Engineering*, 37, 7: 679-690, doi.org/10.1016/j.compositesb.2005.08.005.
- [22]. Ameri M, Mansourian A, Ashani S S, Yadollahi G (2011) Technical study on the Iranian Gilsonite as an additive for modification of asphalt binders used in pavement construction, *Construction and Building Materials*, 25:1379-1387, doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2010.09.005.
- [23]. Hadidy A, Yi Qiu T (2009) Mechanistic approach for polypropylene-modified flexible pavements, *Materials and Design*, 30: 1133-1140, doi.org/10.1016/j.matdes.2008.06.021.
- [24]. Ahmadinia E, Zargar M, Karim M. R, Abdelaziz M, Shafiqh P.(2011) Using waste plastic bottles as additive for stone mastic asphalt, *Materials and Design*, 32: 4844-4849, doi.org/10.1016/j.matdes.2011.06.016.

- [25]. Airey G D (2004) Fundamental binder and practical mixture evaluation of polymer modified bituminous materials, *International Journal of Pavement Engineering*, 5, 3: 137-151, doi.org/10.1080/10298430412331314146.
- [26]. Tang N, Huang W, Hu J, Xiao F (2008) Rheological characterisation of terminal blend rubberised asphalt binder containing polymeric additive and sulphur, *Road Materials and Pavement Design*, 19: 1288-1300, doi.org/10.1080/14680629.2017.1305436.
- [27]. James G, Speight J G (2015) *Asphalt Materials Science and Technology*, Butterworth-Heinemann.
- [28]. Pretorius F, Grobler J, Onreat J (2004) Development of a fit-for-propose product performance specification system for asphalt mixes, *Journal of Asphalt Paving Technology*, 1-9.
- [29]. Iranian National Standardization Organization (INSO). 15342, 1st. Edition (2018), Endorsement of ASTM D4007:2011(2016), ASTM D4007, Standard test method for water and sediment in crude oil by the centrifuge method (laboratory procedure), doi: 10.22078/PR.2022.4728.3123.
- [30]. ASTM D4006. (2016) Standard Test Method for Water in Crude Oil by Distillation.
- [31]. ASTM D 473. (2017) Standard test method for sediment in crude oils and fuel oils by the extraction method.
- [32]. Iranian National Standardization Organization (INSO), 14714, Nov. (2012) 1st. Edition, Natural Bitumen's (Mineral) - Specification and Test method, doi: 10.22078/PR.2022.4728.3123.
- [33]. Iranian National Standardization Organization (INSO). (2013)12505, 1st. Edition, Bitumen and bituminous materials- Asphalts pavement construction characteristics, 1-3.
- [34]. Anderson M J, Whitcomb P J (2016) *RSM simplified: optimizing processes using response surface methods for design of experiments*, 2nd edition, Productivity Press, 1-17, doi.org/10.1201/9781315382326.
- [35]. Dean A D, Voss D D, Draguljić D (2017) Response surface methodology, in *Design and analysis of experiments*, Springer, 565-614, doi: 10.1007/978-3-319-52250-0_16.
- [36]. Use of Modified Bituminous Binders, Special Bituminous and Bitumens with Additives in Road Pavements, World Road Association (PLARC) (2007), Permanent International Association of Road Congress, 1-107s