

# 三种三嗪类除硫剂的性能评价及产物分析

刘亮<sup>1</sup>, 郭靖<sup>2</sup>, 薛晓彬<sup>3</sup>, 魏巍<sup>4</sup>, 张荣辉<sup>5</sup>, 张点<sup>1</sup>, 柯从玉<sup>1</sup>, 张群正<sup>1\*</sup>

(1. 西安石油大学化学化工学院, 陕西 西安 710065; 2. 长庆油田分公司油气工艺研究院, 陕西 西安 710021; 3. 陕西延长石油延安能源化工有限责任公司, 陕西 延安 727500; 4. 西安长庆化工集团有限公司, 陕西 西安 710021; 5. 长庆油田分公司第八采油厂, 陕西 西安 710021)

**摘要:**为寻找一种高效清洁的液体除硫剂,对已合成的3种三嗪类除硫剂(THT、TMP和TP)分别进行了除硫性能评价和产物分析。通过控制变量法分别考察了温度、pH、H<sub>2</sub>S质量浓度、除硫剂浓度、反应时间对除硫效率的影响,及不同除硫剂的吸附容量和产物形态的对比。结果表明,除硫剂较适宜的反应温度为50~55℃(油相中应适当升温);碱性条件更有利于吸收H<sub>2</sub>S;宜用于较低H<sub>2</sub>S质量浓度的油气藏;除硫剂质量分数分别在40%、30%和50%时更经济环保;反应时间不宜超过5h;产物可逆性均较小且属实际无毒;其中THT的反应产物中有大量白色沉淀。3种三嗪类除硫剂均有优良的除硫性能,但使用的条件范围均有限制,其中以TMP的除硫性能最优良,且与H<sub>2</sub>S反应的产物更环保。

**关键词:**三嗪除硫剂;H<sub>2</sub>S;除硫效率;吸附容量;除硫剂浓度

**中图分类号:**TE38;O69

**文献标志码:**A

**文章编号:**0253-4320(2020)08-0113-05

**DOI:**10.16606/j.cnki.issn.0253-4320.2020.08.024

## Desulfurization performance and products evaluation of three triazine desulfurizers

LIU Liang<sup>1</sup>, GUO Jing<sup>2</sup>, XUE Xiao-bin<sup>3</sup>, WEI Wei<sup>4</sup>, ZHANG Rong-hui<sup>5</sup>,  
ZHANG Dian<sup>1</sup>, KE Cong-yu<sup>1</sup>, ZHANG Qun-zheng<sup>1\*</sup>

(1. College of Chemistry & Chemical Engineering, Xi'an Shiyou University, Xi'an 710065, China;  
2. Changqing Oil and Gas Technology Institute, PetroChina Changqing Oilfield Company, Xi'an 710021, China;  
3. Yan'an Energy and Chemical Co., Ltd., Shaanxi Yanchang Petroleum (Group) Co., Ltd., Xi'an 727500, China;  
4. Xi'an Changqing Chemical Group Co., Ltd., Xi'an 710021, China;  
5. Eighth oil production plant, PCOC Branch, Xi'an 710021, China)

**Abstract:**In order to find out a high-efficiency and clean liquid desulfurizers, the desulfurization performance evaluation and products analysis on three kinds of synthetic triazine desulfurizers (THT, TMP and TP) are carried out. The effects of temperature, pH, H<sub>2</sub>S mass concentration, desulfurizer concentration, and reaction time on the efficiency of desulfurization efficiency are investigated via the control variable method, and the adsorption capacity of different desulfurizers and product morphology are compared. It is shown that the suitable reaction temperature for desulfurizers is in the range 50-55℃ (the temperature shall be appropriately increased in an oil phase); alkaline conditions are more conducive to the absorption of H<sub>2</sub>S; the desulfurizers are suitable for oil and gas reservoirs with lower H<sub>2</sub>S content; It is more economic and environmentally friendly when the mass fraction of desulfurizer is at 40 wt%, 30 wt% and 50 wt%; the reaction time shall not exceed 5 hours; the reversibility of products is relatively small and is actually non-toxic; among the products, there are a large number of white precipitates in the reaction products over THT. Three kinds of triazine desulfurizers all have excellent desulfurization performance, but their applications are all limited in some conditions ranges. Among them, TMP has the best desulfurization performance, and the products that it reacts with H<sub>2</sub>S are more environmentally friendly.

**Key words:** triazine desulfurizers; hydrogen sulfide; desulfurization efficiency; adsorption capacity; concentration of desulfurizer

石油和天然气采出过程中常伴随着H<sub>2</sub>S和CO<sub>2</sub>等酸性气体的泄出,不仅腐蚀运输管道和加工设备<sup>[1]</sup>,而且导致后续处理装置中的催化剂中毒<sup>[2]</sup>,其溢出也会危及工作人员的生命安全。因此,在生产过程中,将H<sub>2</sub>S控制在安全浓度以下至关重要<sup>[3]</sup>。三嗪类除硫剂作为一种新兴高效的除硫剂<sup>[4-5]</sup>,具有除硫效率高、用量少、毒性较低及可直接注入等优势,近几年广泛应用于石油和天然气开采<sup>[6]</sup>。Quaker化

学公司最早在美国专利US4978512<sup>[7]</sup>上用烷醇胺和醛合成水溶性三嗪脱硫剂,并指出带有羟基的均三嗪相对于常规的醇胺类脱硫剂<sup>[8]</sup>,具有同H<sub>2</sub>S反应速度快<sup>[9]</sup>、选择性好等优势,同时具有低毒、可生物降解等特点。2011年,Taylor等<sup>[10]</sup>发现羟乙基作取代基的三嗪的脱硫效果胜过甲基取代的三嗪。2013年,渤海某油田生产平台对三嗪类脱硫剂OTS-213与原有药剂OST-1122进行对比发现<sup>[11]</sup>,三嗪类脱

收稿日期:2019-11-07;修回日期:2020-06-16

基金项目:国家自然科学基金项目(51874241);陕西省重点研究发展计划项目(2018ZDXM-GY-159);研究生创新项目(YCS18211011)

作者简介:刘亮(1995-),男,硕士研究生,研究方向为油气田应用化学,1075537441@qq.com;张群正(1964-),男,工学博士,教授,研究方向为油气田化学品合成及应用,通讯联系人,qzhang@xsyu.edu.cn。

硫剂 OTS-213 不仅脱硫效果更好,其稳定性明显高于原有脱硫剂 OST-1122,反应产物也有一定缓蚀作用,并且脱硫剂质量仅为 OST-1122 质量的 60%。目前常用的三嗪类除硫剂 1,3,5-三(2-羟乙基)-六氢均三嗪对  $H_2S$  的脱除效率最高可达 100%<sup>[12]</sup>。

目前针对三嗪类除硫剂的除硫效率、影响因素及产物评价的系统性研究较少,导致其在应用过程存在 pH 对三嗪吸收  $H_2S$  效率有显著影响<sup>[13-14]</sup>、三嗪与  $H_2S$  反应的副产物难溶<sup>[15]</sup> 及针对不同井深和不同  $H_2S$  的用量优化<sup>[16]</sup> 等问题。笔者以 3 种不同类型的三嗪除硫剂 1,3,5-三(2-羟乙基)-六氢均三嗪、1,3,5-三(3-甲氧基)-六氢均三嗪和 1,3,5-三丙基-六氢均三嗪为代表,通过动态除硫实验系统对其除硫性能及影响因素进行分析评价。

## 1 实验部分

### 1.1 主要实验试剂

实验室自行合成的 1,3,5-三(2-羟乙基)-六氢均三嗪(THT)、1,3,5-三(3-甲氧基)-六氢均三嗪(TMP)和 1,3,5-三丙基-六氢均三嗪(TP),纯度均为 76%;硫化亚铁、盐酸、乙酸锌、硫代硫酸钠、单质碘、氢氧化钠、氯化汞和氯化钠,均为分析纯;明亮发光杆菌  $T_3$  小种冻干粉。

### 1.2 动态除硫实验

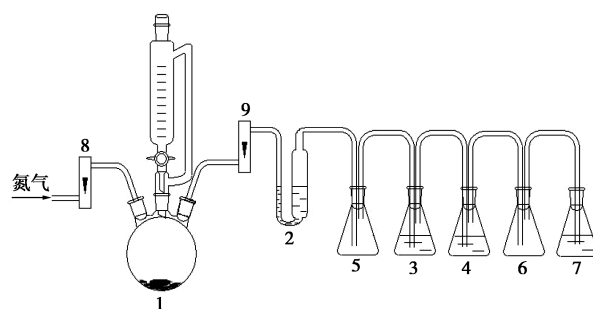
搭建动态除硫实验反应装置,反应瓶中硫化亚铁与恒压滴液漏斗中的盐酸溶液(为测定除硫剂的最大吸附量,动态除硫实验中产生的  $H_2S$  是过量的)反应产生  $H_2S$ ,三嗪除硫剂吸收多数  $H_2S$ ,梯度吸收瓶中的乙酸锌溶液依次吸收剩余的  $H_2S$  气体,同时做空白实验。分别改变三嗪除硫剂的溶剂类型、反应温度、反应体系 pH、 $H_2S$  的浓度、除硫剂的质量浓度和反应时间,并重复上述实验。最终通过计算硫化锌悬浊液中硫的含量,推算出除硫剂的除硫效率及其动态吸附量。其中,除硫效率的计算式为:

$$\text{除硫效率}(\%) = (n_1 - n_2) / n_1 \times 100$$

式中: $n_1$  为空白实验中乙酸锌溶液吸收  $H_2S$  的物质的量, mol;  $n_2$  为注入除硫剂后乙酸锌溶液吸收  $H_2S$  的物质的量, mol。

吸附容量以每升除硫剂(有效成分)在常温常压下(温度 25℃,大气压  $1.01 \times 10^5$  Pa)所能吸收  $H_2S$  质量的最大值, g/L。

除硫剂动态除硫装置如图 1 所示。



1— $H_2S$  发生装置;2—除硫剂吸收  $H_2S$  装置;3,4—乙酸锌溶液;  
5,6—安全瓶(防止溶液倒吸);7—氢氧化钠溶液(尾气吸收);  
8,9—气体转子流量计(用来控制氮气流速和  $H_2S$  的浓度)

图 1 除硫剂动态除硫装置

## 2 结果与讨论

### 2.1 不同类型三嗪除硫剂的除硫性能测定

三嗪除硫剂的分子结构决定了其除硫效率及产物性质,为了对比除硫剂分子结构对除硫效率和反应产物性质的影响,在除硫剂质量分数为 20%、体积为 20 mL、反应温度为 25℃、气体流速为 600 mL/min 及  $H_2S$  质量浓度为 1 000 mg/m<sup>3</sup> 条件下(其他实验条件不变),测得 THT、TMP 和 TP 的动态除硫效率及吸附容量如表 1 和表 2 所示。

表 1 除硫剂 THT、TMP 和 TP 的动态除硫效率

三嗪除硫剂种类	通入 $H_2S$ 的总质量/g	乙酸锌吸收 $H_2S$ 的质量/g	除硫剂吸收 $H_2S$ 的质量/g	除硫效率/%
THT	0.1797	0.0128	0.1669	92.9
TMP	0.1827	0.0046	0.1781	97.5
TP	0.1808	0.0211	0.1596	88.3

表 2 除硫剂 THT、TMP 和 TP 的吸附容量

三嗪除硫剂种类	通入 $H_2S$ 的总质量/g	乙酸锌吸收 $H_2S$ 的质量/g	除硫剂吸收 $H_2S$ 的质量/g	吸附容量/(g·L <sup>-1</sup> )
THT	0.8845	0.4776	0.4069	101.7
TMP	0.9050	0.2833	0.6217	155.4
TP	0.8976	0.5125	0.3851	96.3

由表 1 可知,3 种三嗪除硫剂中 THT 和 TMP 的除硫效率均大于 90%,高于油气田常用强氧化性除硫剂、含醛除硫剂和无机类除硫剂 20%~50% 左右<sup>[17-18]</sup>,其中 TMP 最高可达到 97.5%,而 TP 的除硫效率相对较低,只有 88.3%。由表 2 可看出,THT、TMP 和 TP 这 3 种除硫剂均表现出较高的吸附容量<sup>[19]</sup>,其中 TMP 的吸附容量高达 155.4 g/L。

2.2 不同类型三嗪除硫剂与  $H_2S$  反应的产物评价  
在实际工业生产过程中,除硫剂与  $H_2S$  发生反

应可能会出现水解、沉淀和生物毒性等问题,在下游生产中形成污垢,造成下游管道堵塞和腐蚀等,污染水环境。因此,对除硫剂与  $H_2S$  反应产物的酸性、生物毒性、产物可逆性及水溶性进行了分析,结果如表 3 所示。

表 3 除硫剂 THT、TMP 和 TP 与  $H_2S$  反应的产物分析

三嗪除硫剂种类	THT	TMP	TP
反应产物外观	灰白色悬浊液	澄清透亮	浅黑色溶液
产物 pH	8.6	10.8	9.7
$EC_{50}^{\text{①}}/(mg \cdot L^{-1})$	15897	14309	16552
可逆性/%	2.6	0.37	2.9

注:① $EC_{50}$ 为半数有效质量浓度。

从表 3 中可以看出,3 种三嗪除硫剂反应后 pH 均较高,可能导致下游生产线结垢<sup>[20]</sup>,故进入下游之前应设法降低水体的碱性。对除硫剂与  $H_2S$  的产物进行生物毒性分析(GB/T 15441—1995),并依据毒性分析及石油炼制工业污染物排放标准(GB 31570—2015),发现反应产物的  $EC_{50}$  均大于 10 000 mg/L,属于实际无毒。由除硫剂与  $H_2S$  反应产物的可逆性可以判断出,THT 和 TP 的反应产物均有一定的可逆性,导致下游水体二价硫离子质量分数过高,有  $H_2S$  气体逸出。

从实验现象来看,随着反应的进行,THT 由最初的澄清透亮溶液逐渐变为灰白色悬浊液,反应结束后伴随大量白色块状沉淀;TP 由浅黄色变为浅黑色,但溶液始终保持澄清;TMP 则始终保持未反应前澄清透亮的溶液外观。结果表明,三嗪除硫剂的分子结构不仅影响其除硫效率和吸附容量,而且直接影响到产物的可溶性及其应用范围。

Taylor 等<sup>[21]</sup>通过 X 衍射、核磁共振红外光谱及元素分析对产物沉淀进行分析发现,THT 与  $H_2S$  反应形成的白色沉淀是一种多硫聚合物<sup>[15]</sup>,其结构如图 2 所示。形成的原因是 THT 与  $H_2S$  反应释放的乙醇胺在溶液中吸收  $H_2S$ ,形成二硫化物阴离子,进攻产物的羟基,从而发生亲核取代。随着溶液中  $H_2S$  的不断通入,导致化合物的分子质量的增加,最后形成难溶多硫聚合物<sup>[22-23]</sup>。可见,改变均三嗪结构(端基结构)是抑制沉淀生成的关键。

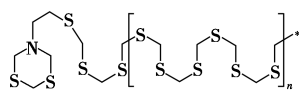
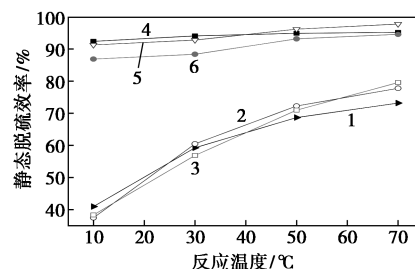


图 2 无定形二噻嗪(非单一分子种类)

### 2.3 反应温度及溶剂类型对除硫剂动态除硫效率的影响

在 3 种三嗪除硫剂质量分数为 20%、体积为

20 mL、反应时间为 5 h、气体流速均为 600 mL/min 及  $H_2S$  质量浓度为 1 000 mg/m<sup>3</sup> 条件下,考察 3 种除硫剂在水相和甲醇(油相)中的动态除硫效率<sup>[24]</sup>,结果如图 3 所示。



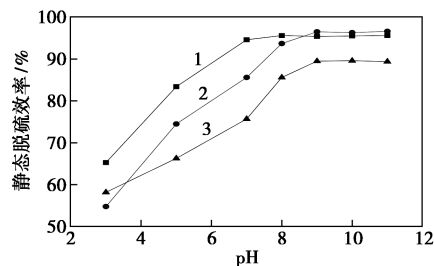
1—THT-油相;2—TMP-油相;3—TP-油相;4—THT-水相;  
5—TMP-水相;6—TP-水相

图 3 反应温度及溶剂类型对动态除硫效率的影响

由图 3 可以看出,3 种三嗪除硫剂在水相中的除硫效率明显高于油相,这是由于在水相中  $H_2S$  更容易电离,因此很容易被除硫剂吸收。从温度的影响来看,3 种除硫剂在水相中的除硫效率随温度变化不大,其除硫效率基本都能够保持在 90% 以上;而在油相中,3 种除硫剂的除硫效率随温度的升高显著升高,当温度从 10℃ 升高到 70℃ 时,除硫剂的除硫效率增加幅度接近 100%。说明这 3 种除硫剂更适合于在水相介质中使用,如果是在油相中,则最好在较高温度下使用。

### 2.4 pH 对除硫剂动态除硫效率的影响

3 种三嗪除硫剂均为弱碱性或碱性物质<sup>[25]</sup>,在除硫剂在水相中质量分数为 20%、体积为 20 mL、反应温度 50℃、反应时间为 5 h、气体流速均为 600 mL/min、 $H_2S$  质量浓度为 1 000 mg/m<sup>3</sup> 的条件下,考察反应体系 pH 对动态除硫效率的影响,结果如图 4 所示。



1—THT;2—TMP;3—TP

图 4 pH 对动态除硫效率的影响

由图 4 可知,pH 对 3 种三嗪除硫效率的影响显著,在 pH 为 3~7 时,3 种除硫剂的除硫效率都随

pH 的升高而增大,其中,pH 对 TMP 的除硫效率影响最为显著;当 pH 由 3 升至 9 时,除硫效率增加约 40%。在 pH 较低时,大部分三嗪水解,因此除硫效率相对较低。当 pH 调至碱性时,3 种三嗪除硫剂的除硫效率均明显升高。pH 分别大于 7 和 8 时,THT 和 TP 的除硫效率不再明显增加。

## 2.5 H<sub>2</sub>S 质量浓度对除硫剂动态除硫效率的影响

在除硫剂质量分数为 20%、实验温度为 50℃、除硫剂体积为 20 mL、反应时间为 5 h、气体流速均为 600 mL/min 时,通过改变 H<sub>2</sub>S 的质量浓度来考察其对动态除硫效率的影响<sup>[26-27]</sup>,结果如表 4 所示。

表 4 不同 H<sub>2</sub>S 质量浓度下的动态除硫效率

H <sub>2</sub> S 质量浓度/ (mg·m <sup>-3</sup> )	不同除硫剂动态除硫效率/%		
	THT	TMP	TP
5	100	100	100
20	100	99.9	99.8
100	99.8	99.9	99.5
250	98.7	98.6	97.2
500	95.6	98.3	92.5
1000	92.9	97.5	88.3
5000	87.1	89.1	86.6
10000	75.8	78.5	81.2

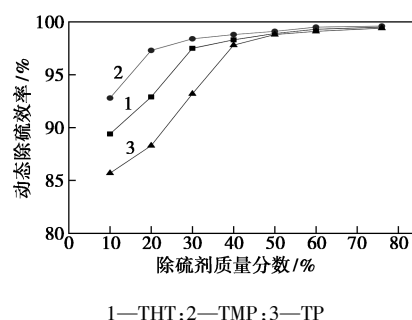
从表 4 可知,在气体流速一定时,当 H<sub>2</sub>S 质量浓度 ≤ 100 mg/m<sup>3</sup> 时,3 种除硫剂的除硫效率都接近 100%,当 H<sub>2</sub>S 质量浓度达到 5 000 mg/m<sup>3</sup> 时,除硫效率都降低至 90%;当 H<sub>2</sub>S 质量浓度达到 10 000 mg/m<sup>3</sup> 时,除硫效率均低于 85%。这是由于当 H<sub>2</sub>S 质量浓度较高时,单位气体中的 H<sub>2</sub>S 分子密度较大,当其经过除硫剂时,会有部分 H<sub>2</sub>S 还来不及与除硫剂发生反应便被气流带出。说明三嗪除硫剂比较适合于较低质量浓度 H<sub>2</sub>S 的脱除。

从 3 种三嗪除硫剂的除硫效率相对大小及随 H<sub>2</sub>S 浓度变化来看,H<sub>2</sub>S 质量浓度大于 10 000 mg/m<sup>3</sup> 时,3 种除硫剂的除硫效率大小为:TP>TMP>THT,即 H<sub>2</sub>S 质量浓度对 TP 的除硫效率影响较小,对 THT 的除硫效率影响较大。

## 2.6 不同质量分数的除硫剂对动态除硫效率的影响

在除硫剂溶液体积为 20 mL、反应温度为 50℃、反应时间为 1.5 h、气体流速均为 600 mL/min、H<sub>2</sub>S 质量浓度为 1 000 mg/m<sup>3</sup> 时,除硫剂质量分数对 H<sub>2</sub>S 的动态除硫效率的影响如图 5 所示。

由图 5 可以看出,当 3 种三嗪除硫剂质量分数较低时(低于 50%),其除硫效率随除硫剂质量分数的升高明显增加,三者的除硫效率大小分别为



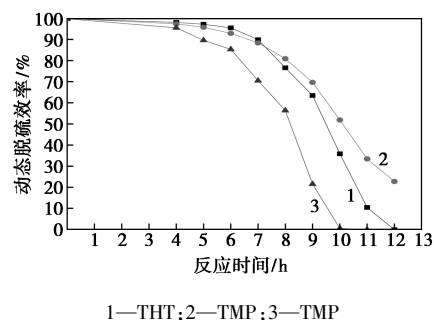
1—THT;2—TMP;3—TP

图 5 除硫剂不同质量分数下的动态除硫效率

TMP>THT>TP。当其质量分数都达到 50% 以上时其除硫效率不再明显增加,且这 3 种除硫剂的除硫效率最高均可达到 98%~99%。结合实际工业生产,考虑到能耗及成本问题,建议 TMP、THT 和 TP 的质量分数分别在 30%、40% 和 50% 时最适宜。

## 2.7 反应时间对除硫剂动态除硫效率的影响

在除硫剂质量分数为 20%、体积为 20 mL、反应温度为 50℃、气体流速均为 600 mL/min、H<sub>2</sub>S 质量浓度为 1 000 mg/m<sup>3</sup> 时,观察反应时间对除硫剂的动态除硫效率,结果如图 6 所示(注:这里的除硫效率以每 0.5 h 内除硫剂吸收 H<sub>2</sub>S 的量计算)。



1—THT;2—TMP;3—TP

图 6 反应时间对除硫剂动态除硫效率的影响

由图 6 可知,除硫剂与 H<sub>2</sub>S 的反应时间在 4 h 以内时,除硫效率均保持在 90% 以上。随着反应的进行,除硫效率不断下降,当反应时间分别超过 8、9 h 和 7 h 时,THT、TMP 和 TP 的除硫效率低至 70%,且随着反应时间的延长,除硫效率下降趋势不断增大。其中,当反应时间分别达到 10 h 和 12 h 时,TP 和 THT 的除硫效率几乎为零,说明他们对 H<sub>2</sub>S 达到了吸附饱和。故在实际使用过程中为了保证除硫效率接近 100%,加入的三嗪除硫剂的量要相对于硫化氢的量过量 1.2%~1.5%。

反应时间在 7 h 之前,THT 的除硫效率略微高于 TMP,这是由于其副产物乙醇胺也有吸收 H<sub>2</sub>S 的能力;当反应时间达到 4 h 时,THT 溶液开始浑浊,9 h 时出现大量白色块状沉淀(无定形多硫聚合

物),抑制除硫反应的进行。TMP的除硫效率下降较为平缓,且其吸附容量较高(见表1),因此增加TMP在H<sub>2</sub>S脱除装置的停留时间或增设静态混合器均可提高H<sub>2</sub>S气体的吸收率<sup>[25]</sup>。相较于前2种三嗪除硫剂,TP的除硫性能略差一些。

### 3 结论

(1)THT、TMP和TP都具有较高的除硫效率和吸附容量,其除硫效率分别达到了92.9%、97.5%和88.3%,吸附容量分别为101.7、155.4 g/L和96.3 g/L,TMP的除硫效率和吸附容量优于THT,而THT优于TP。

(2)三嗪的分子结构影响产物性质,其中分子结构末端为羟基的THT在与过量的硫化氢反应时会生成白色沉淀,从而影响除硫性能,通过改性均三嗪分子的末端结构可以避免这种白色不溶性产物的生成。三嗪与H<sub>2</sub>S的产物均呈现碱性,为避免生产过程中的结垢问题,应在生产下游将pH调节至中性;产物的EC<sub>50</sub>均大于10 000 mg/L,属实际无毒;反应产物均有一定可逆性,且TP的产物可逆性最大,TMP的产物可逆性最小。

(3)3种三嗪除硫剂的适宜反应温度为50~55℃(油相中应适当提升温度);碱性越强,越利于除硫剂对H<sub>2</sub>S的吸收,为减少下游处理结垢问题的成本,控制pH范围为8~10较适宜;三嗪类除硫剂适合于质量浓度小于1 000 mg/m<sup>3</sup> H<sub>2</sub>S的脱除,即适合于在较低H<sub>2</sub>S质量浓度的油气藏使用;实际应用过程中,考虑经济成本问题,THT、TMP和TP的最佳质量分数分别为40%、30%和50%;增加三嗪除硫剂的反应时间,除硫效率在5 h后迅速下降,且THT出现难溶性固化物,因此反应时间不易过长。

### 参考文献

- [1] Li Dapeng, Zhang Lei, Yang Jianwei, *et al.* Effect of H<sub>2</sub>S concentration on the corrosion behavior of pipeline steel under the coexistence of H<sub>2</sub>S and CO<sub>2</sub> [J]. *International Journal of Minerals, Metallurgy and Materials*, 2014, 21(4): 388-394.
- [2] 徐天凤. 原油中H<sub>2</sub>S的检测技术及除硫剂的研发[D]. 杭州: 浙江大学, 2012.
- [3] Hsu C S, Robinson P R. Sulfur Removal and Recovery [M]. Berlin: Springer Handbook of Petroleum Technology, 2017: 649-673.
- [4] Mohamed A F, Taher A A, Amal E. Fundamentals of petroleum refining [M]. Safat: Macmillan, 2010: 377-382.
- [5] 唐婧亚, 韩金玉, 王华. 可脱除硫化氢的液体除硫剂研究进展[J]. *现代化工*, 2013, 33(9): 22-26.
- [6] Baker R W, Lokhandwala K. Natural gas processing with membranes: An overview [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2008, 47(7): 2109-2121.
- [7] Dillon E T. Composition and method for sweetening hydrocarbons: US, 4978512 [P]. 1990-12-18.
- [8] 胡延, 张国欣, 张浩, 等. 三嗪类脱硫剂的室内合成及性能研究[J]. *石油化工应用*, 2016, 35(8): 120-121.
- [9] Nagl G J. Removing hydrogen sulfide [J]. *Hydrocarbon Engineering*, 2001, 6(2): 35-38.
- [10] Taylor G N, Matherly R. The laboratory evaluation and optimization of hydrogen sulphide scavengers using sulphur specific FPD gas chromatography [C] // paper 140401-MS presented at the SPE International Symposium on Oilfield Chemistry, 11-13 April, The Woodlands, Texas, USA. DOI: <https://doi.org/10.2118/140401-MS>.
- [11] 李勇明, 赵金洲, 张峰, 等. 适用于油气井生产中的除硫: CN 102698576A [P]. 2010-10-03.
- [12] Owens T R. Formulation for hydrogen sulfide scavenging from hydrocarbon streams and use thereof; WO, 2008/049188-A1 [P]. 2008-05-02.
- [13] Wang Xiaoting, Zheng Yajun, Shi Jun, *et al.* Elucidating the reaction mechanisms between triazine and hydrogen sulfide with pH variation using mass spectrometry [J]. *Analytical Chemistry*, 2018, 90(18): 11138-11145.
- [14] Bakke J M, Buhaug J, Riha J. Hydrolysis of 1, 3, 5-tris(2-hydroxyethyl) hexahydro-s-triazine and its reaction with H<sub>2</sub>S [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2001, 40(26): 6051-6054.
- [15] Taylor G N, Matherly R. Structural elucidation of the solid byproduct from the use of 1, 3, 5-tris( hydroxyalkyl) hexahydro-s-triazine based hydrogen sulfide scavengers [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2011, 50(2): 735-740.
- [16] Ramalingam S, Yasa S, Bertrand T, *et al.* Advanced simulation of H<sub>2</sub>S scavenging process with triazine at different depths of gas well [J]. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2018, 49(1): 417-427.
- [17] 王宏, 张俊晟, 田永宏, 等. 原油化学脱硫剂的研究与应用现状[J]. *油田化学*, 2015, 32(2): 313-316.
- [18] 胡延. 渤海油田注水用液体脱硫剂的筛选和现场应用[J]. *油田化学*, 2019, 36(2): 277-279, 290.
- [19] 杨光, 薛岗, 蒋成银, 等. 国内外三嗪类液体脱硫剂的研究进展[J]. *石油化工应用*, 2018, 37(10): 19-23, 33.
- [20] 吴新民, 邵秀丽, 薛晨, 等. pH值对碳钢在高含硫油田水中腐蚀行为的影响[J]. *中国腐蚀与防护学报*, 2013, 33(2): 159-163.
- [21] Taylor G N, Matherly R. Gas chromatographic-mass spectrometric analysis of chemically derivatized hexahydrotriazine-based hydrogen sulfide scavengers; Part II [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2010, 49(14): 6267-6269.
- [22] Williams H, Dyer S, Moreira Bezerra M C, *et al.* The effect of sulphide scavengers on scaling tendency and scale inhibitor performance [A]. SPE International Conference on Oil Field Scale, May, 26-27, 2010 [C]. Aberdeen UK: Society of Petroleum Engineerspress, 2010.
- [23] Taylor G N, Prince P, Matherly R, *et al.* Identification of the molecular species responsible for the initiation of amorphous dithiazine formation in laboratory studies of 1, 3, 5-tris( hydroxyethyl) -hexahydro-s-triazinane as a hydrogen sulfide scavenger [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2012, 51(36): 11613-11617.
- [24] 唐婧亚. 三嗪液体脱硫剂的合成及性能评价[D]. 天津: 天津大学, 2013.
- [25] 张点. 三嗪除硫剂的合成与性能评价[D]. 西安: 西安石油大学, 2018.
- [26] 张容, 任泽坤, 张森, 等. 油气田硫化氢数据管理系统的研发[J]. *石油规划设计*, 2019, 30(1): 41-42, 47-48.
- [27] 翁帮华, 杨杰, 陈昌介, 等. 气田水中硫化物控制指标及处理措施[J]. *天然气工业*, 2019, 39(3): 109-115. ■