

三种燃油原位脱硫反应体系的构建及对比研究

王敏¹, 陈平^{1,2,3}, 赵志西^{1,2,3}, 孙传庆^{1,2,3}, 王庆^{1,2,3*}

(1.新疆师范大学化学化工学院, 新疆乌鲁木齐 830054;
2.新疆储能与光电催化材料重点实验室, 新疆乌鲁木齐 830054;
3.新疆师范大学电化学技术与应用工程研究中心, 新疆乌鲁木齐 830054)

摘要:以异丙醇为相转移剂构建了3种可以实现模拟燃油原位氧化脱硫的反应体系,通过改变体系中试剂的体积比,确定最佳的反应体系为异丙醇-乙腈反应体系且体积比为1:1。在最佳反应体系下,利用单因素法分别考察了Pt/C质量、助剂种类、模拟燃油初始硫质量分数以及有机硫化物的种类对脱硫效果的影响,并进行了新构建的燃油脱硫反应体系的动力学分析。结果表明,3种反应体系的模拟燃油脱硫率从高到低依次为:异丙醇-乙腈>异丙醇-DMF>异丙醇-去离子水,且最佳配比为1:1;在0.15 g Pt/C催化剂的作用下,模拟燃料油的脱硫效果最好。KOH在4种酸碱添加剂中脱硫效果最好,初始硫质量分数对脱硫效果影响很小;在相同的反应条件下,去除不同硫化物的效果是:DBT>4,6-DMDBT>BT。

关键词:燃油原位脱硫;反应体系;构建;对比研究

中图分类号:TQ028

文献标志码:A

文章编号:0253-4320(2020)11-0155-04

DOI:10.16606/j.cnki.issn.0253-4320.2020.11.032

Construction and comparative study of three fuel oil in-situ desulfurization reaction systems

WANG Min¹, CHEN Ping^{1,2,3}, ZHAO Zhi-xi^{1,2,3}, SUN Chuan-qing^{1,2,3}, WANG Qing^{1,2,3*}

(1.School of Chemistry & Chemical Engineering, Xinjiang Normal University, Urumqi 830054, China;
2.Xinjiang Key Laboratory of Energy Storage and Photoelectrocatalytic Materials, Urumqi 830054, China;
3.Research Center of Electrochemical Technology and Application Engineering, Xinjiang Normal University, Urumqi 830054, China)

Abstract: By using isopropanol as the phase transfer agent, three reaction systems that can realize the in-situ oxidative desulfurization of fuel oil are constructed. Through changing solvent ratio in the system, isopropanol-acetonitrile reaction system with a solvent ratio of 1:1 is determined as the best reaction system. Under the optimal reaction system, the single factor method is utilized to investigate the influences of the consumption of Pt/C, the type of acid-base additives, the initial sulfur content of the simulated fuel oil, and the type of organic sulfur compound on the desulfurization. The dynamics of the newly constructed desulfurization reaction system is studied. It is shown that the desulfurization efficiencies of simulated fuel oil by three reaction systems is in the order of high to low: isopropanol-acetonitrile, isopropanol-DMF, and isopropanol-deionized water, and the best solvent ratio is 1:1; The desulfurization effect of simulated fuel oil reaches the best under the action of 0.15 g Pt/C catalyst; KOH shows the best desulfurization effect among four kinds of acid-base additives; Initial sulfur content has a slight influence on the desulfurization effect; Under the same reaction conditions, the removal effects of different sulfides are in the order of high to low: DBT>4,6-DMDBT>BT.

Key words: fuel oil in-situ desulfurization; reactive system; construction; comparative study

石油精炼过程中,有机硫化物会腐蚀管道和设备,影响催化效率^[1-2];加剧石油产品结焦,降低油品的质量^[3];影响油品的储存安定性,加剧油品的变质^[4]。加氢脱硫技术(HDS)是目前工业上主流的脱硫方法,但对于噻吩硫(约占总硫的70%)的去除效果不佳^[5-7]。因此,生物脱硫^[8]、吸附脱硫^[9]、

氧化脱硫^[10]、萃取脱硫^[11]等非加氢脱硫技术(NHDS)获得广泛关注。

氧化脱硫技术(ODS)因其操作简单、选择性高等优势逐步成为非加氢脱硫最常用的脱硫方法^[12]。张伟^[13]用乙腈萃取-臭氧氧化体系可将商品柴油硫质量分数由1450 μg/g降低到50 μg/g,脱硫率高

收稿日期:2020-07-31;修回日期:2020-09-05

基金项目:新疆维吾尔自治区自然科学基金面上项目(2019D01A72);新疆师范大学电化学技术与应用工程研究中心一般项目(XJNUGCZX122018B04)

作者简介:王敏(1995-),男,硕士研究生,研究方向为模拟燃油氧化脱硫,1090597652@qq.com;王庆(1980-),男,博士,讲师,研究方向为环境功能材料的开发与应用,通讯联系人,wangqing2002108@163.com。

达 97%。张红星等^[14]以异丙醇为氢源,偶氮二异丁腈为链反应引发剂,氧弹反应器为反应室,开发了一种原位生成 H_2O_2 并对模型油氧化脱硫的集成脱硫方法。课题组前期的最优条件为:反应温度为 $50^\circ C$ 、Pt/C 质量为 0.15 g、NaOH 质量为 0.036 g、 $V(\text{异丙醇}):V(\text{去离子水})=8:1$ 、模拟燃油用量为 20 mL。笔者以溶解在异辛烷中的苯并噻吩(BT)作为车用燃油的代表,对比分析了去离子水、乙腈和 DMF 3 种体系及其与异丙醇体积比以及 NaOH、KOH、 $NaHCO_3$ 和乙酸 4 种助剂对脱硫效果的影响,为燃油氧化脱硫体系的选择提供一定依据。

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

铂炭催化剂(Pt/C)、苯并噻吩(BT)、二苯并噻吩(DBT)、4,6-二甲基二苯并噻吩(4,6-DMDBT)、十四烷,上海麦克林生化科技有限公司生产;乙腈、异丙醇、氢氧化钾,天津市北联精细化学品开发有限公司生产;乙酸、异辛烷、氢氧化钠,天津市致远化学试剂有限公司生产;*N,N*-二甲基甲酰胺(DMF)、碳酸氢钠,天津市永晟精细化工有限公司生产。以上试剂均为分析纯。

集热式磁力搅拌器,DF-101S 型,常州普天仪器制造有限公司生产;离心机,TG20G 型,盐城市凯特实验仪器有限公司生产;气相色谱仪,Agilent 6820N 型,安捷伦科技有限公司生产。

1.2 氧化脱硫过程

将 74.7 mg BT 溶解在 100 mL 异辛烷中,配成硫质量分数为 $250 \mu g/g$ 的模拟燃油。分别将 20 mL 模拟燃油、一定量 Pt/C、异丙醇、去离子水/乙腈/DMF 和 NaOH/KOH/ $NaHCO_3$ /乙酸加入到带有冷凝回流装置的圆底烧瓶中, $50^\circ C$ 持续反应 50 min,每 10 min 用移液器取上层油相,过 $0.45 \mu m$ 有机滤膜,通过气相色谱仪测定其硫质量分数。反应结束后,10 000 r/min 离心 10 min,回收 Pt/C。

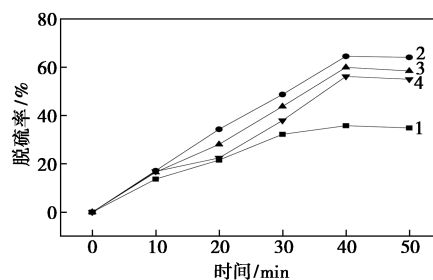
2 结果与讨论

2.1 体系及体积比对脱硫效果的影响

2.1.1 异丙醇-去离子水体系

在温度为 $50^\circ C$ 、模拟燃油用量为 20 mL、反应时间为 50 min 时,分别加入异丙醇 5、10、15 mL 以及去离子水 0、5 mL,即控制 $V(\text{异丙醇}):V(\text{去离子水})$ 为 0、1、2、3,考察异丙醇-去离子水体系体积比对脱硫效果的影响,结果如图 1 所示。由图 1 可知,异丙

醇用量为 10 mL、去离子水用量为 0 时,反应 40 min 脱硫率仅为 35.784%; $V(\text{异丙醇}):V(\text{去离子水})$ 为 1、2、3 时,脱硫率分别为 64.523%、59.927%、56.187%。相对于仅存异丙醇,加入去离子水可明显提高脱硫率,且最优体积比为 $V(\text{异丙醇}):V(\text{去离子水})$ 为 1:1。

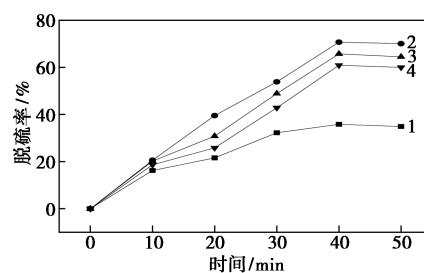


1—0;2—1:1;3—2:1;4—3:1

图 1 异丙醇-去离子水体系对脱硫效果的影响

2.1.2 异丙醇-乙腈体系

在温度为 $50^\circ C$ 、模拟燃油用量为 20 mL、反应时间为 50 min 时,分别加入异丙醇 5、10、15 mL,DMF 用量为 0、5 mL,即控制 $V(\text{异丙醇}):V(\text{乙腈})$ 为 0、1、2、3,考察异丙醇-乙腈体系体积比对脱硫效果的影响,结果如图 2 所示。由图 2 可知,异丙醇用量为 10 mL、乙腈用量为 0 时,反应 40 min 脱硫率仅为 35.784%; $V(\text{异丙醇}):V(\text{乙腈})$ 为 1、2、3 时的脱硫率分别为 70.654%、65.670%、60.875%。相对于仅存异丙醇,加入乙腈可明显提高脱硫率,且最优体积比为 $V(\text{异丙醇}):V(\text{乙腈})=1:1$ 。



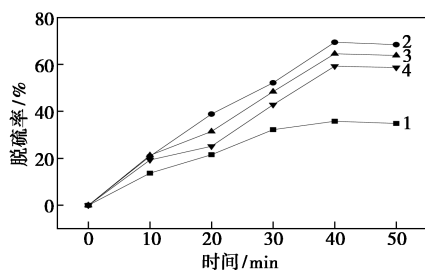
1—0;2—1:1;3—2:1;4—3:1

图 2 异丙醇-乙腈体系对脱硫效果的影响

2.1.3 异丙醇-DMF 体系

在温度为 $50^\circ C$ 、模拟燃油用量为 20 mL、反应时间为 50 min 时,分别加入异丙醇 5、10、15 mL,DMF 0、5 mL,即控制 $V(\text{异丙醇}):V(\text{DMF})=0、1、2、3$,考察异丙醇-DMF 体系对脱硫效果的影响,结果如图 3 所示。由图 3 可知,当异丙醇用量为 10 mL、DMF 用量为 0 时,反应 40 min 脱硫率仅为 35.784%; $V(\text{异丙醇}):V(\text{DMF})=1、2、3$ 时的脱硫率分别为

69.427%、64.546%、59.259%。相对于仅存异丙醇,加入DMF可明显提高脱硫率,且最优体积比为 $V(\text{异丙醇}):V(\text{DMF})=1:1$ 。



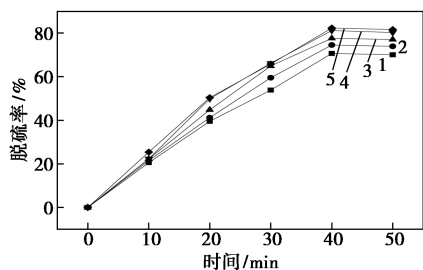
1—0;2—1:1;3—2:1;4—3:1

图3 异丙醇-DMF体系对脱硫效果的影响

综上所述,在温度 50°C 、模拟燃油用量为 20 mL 、反应时间为 50 min 时,与仅存异丙醇相比,加入去离子水、乙腈、DMF均可明显提高脱硫效率。这是由于仅存在异丙醇时,反应为单纯的相转移过程;加入去离子水、乙腈、DMF均可与异丙醇原位产生氧化剂^[15],从而大大提高脱硫效率。3种反应体系中,不同试剂体积比的脱硫效果均为: $1:1>2:1>3:1$,这是由于氧化脱硫过程中的副产物丙酮及未反应的异丙醇均会对该过程起到一定的制约作用^[16]。此外,乙腈和DMF体系的脱硫效果明显优于去离子水体系;与乙腈相比,DMF价格昂贵且毒性大^[17-18],从环保和经济的角度考虑,最优体系为异丙醇-乙腈体系。

2.2 Pt/C质量对脱硫效果的影响

在温度为 50°C 、 $V(\text{异丙醇}):V(\text{乙腈})=1$ 、模拟燃油用量为 20 mL 时,考察Pt/C质量对脱硫效果的影响,并与未加入Pt/C时的脱硫率进行对比,结果如图4所示。由图4可知,反应 40 min 时,不加Pt/C时的脱硫率仅为 70.654% ;加入Pt/C 0.05 、 0.10 、 0.15 、 0.20 g 时脱硫率分别为 74.491% 、 77.578% 、 81.161% 、 82.298% ,加入Pt/C可提高模拟燃油的脱硫效率,这是由于Pt/C作催化剂可使催化体系原位产生更多的氧化剂^[19-20],将BT氧化成 BTO_2 从



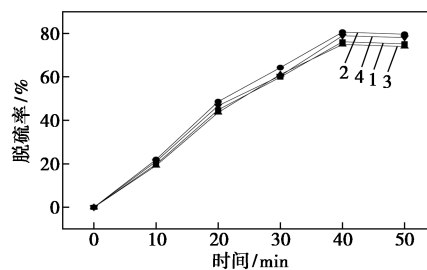
1—0;2—0.05 g;3—0.10 g;4—0.15 g;5—0.20 g

图4 Pt/C质量对脱硫效果的影响

油相脱离。随着Pt/C质量的增加,脱硫效率升高,但与 0.15 g Pt/C 相比,Pt/C质量为 0.2 g 时脱硫率提高不明显,故最优Pt/C质量为 0.15 g 。

2.3 酸碱助剂对脱硫效果的影响

在温度为 50°C 、Pt/C质量为 0.15 g 、 $V(\text{异丙醇}):V(\text{乙腈})=1$ 、模拟燃油用量为 20 mL 、反应时间为 50 min 时,分别加入 0.036 g NaOH 、 KOH 、 NaHCO_3 、乙酸,考察酸碱助剂对脱硫效果的影响,结果如图5所示。由图5可知,反应 40 min 时,加入 0.036 g NaOH 、 KOH 、 NaHCO_3 、乙酸的脱硫率分别为 76.153% 、 80.597% 、 74.901% 、 78.908% 。不同酸碱助剂BT的脱除效果顺序为 $\text{KOH}>\text{乙酸}>\text{NaOH}>\text{NaHCO}_3$,故后续采用KOH为助剂进行脱硫实验。

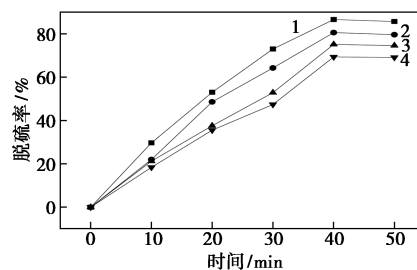


1—NaOH;2—KOH;3—NaHCO₃;4—乙酸

图5 酸碱助剂对脱硫效果的影响

2.4 初始硫质量分数对脱硫效果的影响

在温度为 50°C 、Pt/C质量为 0.15 g 、 $V(\text{异丙醇}):V(\text{乙腈})=1$ 、KOH质量为 0.036 g 、模拟燃油用量为 20 mL 、反应时间为 50 min 时,初始硫质量分数对脱硫效果的影响如图6所示。由图6可知,反应 40 min 时,初始硫质量分数分别为 100 、 250 、 500 、 $1000\text{ }\mu\text{g/g}$ 的模拟燃油的脱硫率分别可达 86.608% 、 80.597% 、 75.150% 、 69.344% 。由此可见,初始硫质量分数的增加会导致脱硫率的下降。但对于整个反应过程来说,硫的整体脱除量却在不断升高,如初始硫质量分数为 $250\text{ }\mu\text{g/g}$ 和 $1000\text{ }\mu\text{g/g}$ 的模拟燃油反应 40 min ,分别有 196.896 、 $691.726\text{ }\mu\text{g/g}$ 的硫被脱除^[21]。



1— $100\text{ }\mu\text{g/g}$;2— $250\text{ }\mu\text{g/g}$;3— $500\text{ }\mu\text{g/g}$;4— $1000\text{ }\mu\text{g/g}$

图6 初始硫质量分数对脱硫效果的影响

2.5 脱硫体系对不同硫化物的脱除效果及动力学分析

为了考察模拟燃油中有机硫化物的种类对脱硫效果的影响,分别在最优反应体系下进行模拟燃油中 DBT 和 4,6-DMDBT 的脱除实验,并与 BT 进行对比,结果见图 7。由图 7 可知,在最优反应条件下,以 Pt/C 为催化剂、乙腈-异丙醇-氢氧化钾为脱硫体系、反应时间为 40 min 时,模拟燃油中 BT、DBT、4,6-DMDBT 的脱除率分别为 79.622%、89.419%、82.918%,说明 DBT 比 BT 和 4,6-DMDBT 更容易被脱除,这与不同硫化物上硫原子的电子云密度差异和空间位阻效应有关^[22]。BT、DBT 和 4,6-DMDBT 上 S 原子对应的电子云密度分别为 5.739、5.758 和 5.760^[23]。BT 上 S 原子的电子云密度最小,所以较难脱除。虽然 DBT 的电子云密度与 4,6-DMDBT 接近,但由于 4,6-DMDBT 苯环上具有 2 个增加空间位阻的甲基,从而阻止硫原子与催化活性物种接触,因此氧化更加困难^[24]。

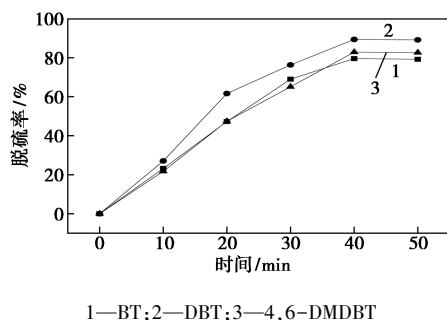


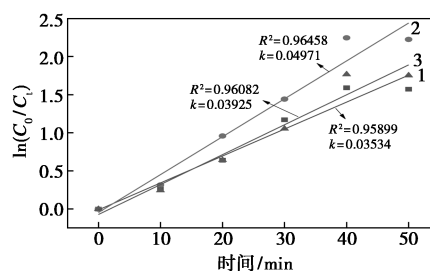
图 7 脱硫体系对不同硫化物的脱除效果

据文献[25]中报道,催化氧化脱硫反应速率符合一级反应动力学。从反应动力学角度进一步评估所构建的反应体系对模拟燃油中 BT、DBT、4,6-DMDBT 3 种硫化物的脱除效果,在反应过程中每间隔 10 min 取样,利用气相色谱仪分析反应体系油相中的硫质量分数,以 $\ln(C_t/C_0)$ 对反应时间 t 作图,通过最小二乘法线性拟合进行数据处理,得到:

$$\ln(C_t/C_0) = kt$$

式中: C_0 、 C_t 分别为反应时间为 0 和 t 时模拟油中的硫的质量分数, $\mu\text{g/g}$; k 为反应动力学常数, min^{-1} ; t 为反应时间, min 。

动力学分析结果如图 8 所示,其中 R^2 是相关系数。计算结果表明,该氧化脱硫体系中 BT、DBT、4,6-DMDBT 的一级反应动力学常数分别为 0.035 34、0.049 71、0.039 25 min^{-1} 。动力学常数越大,反应速率越快。因此,氧化体系对不同硫化物的脱除效果为 $\text{DBT} > 4,6\text{-DMDBT} > \text{BT}$,这与图 7 的实验结果一致。



1—BT;2—DBT;3—4,6-DMDBT

图 8 新构建反应体系中模拟燃油脱硫反应的动力学分析

3 结论

以异丙醇为相转移剂构建的 3 种反应体系均可以实现模拟燃油的原位催化氧化脱硫,其中异丙醇-乙腈反应体系的脱硫率最高,达 70.654%;在加入 0.15 g Pt/C 后可将 3 种反应体系的脱硫率均提高 10% 以上,表明催化剂 Pt/C 可以促进脱硫反应的进行,而反应体系本身才是实现原位脱硫的关键;最优反应体系下,碱性助剂比酸性助剂产生的脱硫效率更高,说明碱性条件下燃油原位催化氧化脱硫是实现燃油深度脱硫的一种新兴的有效的反应路径。

参考文献

- [1] 章群丹,田松柏,王小伟,等.含硫原油加工中的硫分布及传递[J].石油炼制与化工,2017,48(12):15-22.
- [2] Dong Y, Nie Y, Zhou Q, et al. Highly efficient oxidative desulfurization of fuels by Lewis acidic ionic liquids based on iron chloride[J]. Chemical Engineering & Technology, 2013, 36(3): 435-442.
- [3] Stanislaus A, Marafi A, Rana M S Rana M S, et al. Recent advances in the science and technology of ultra-low sulfur diesel (ULSD) production[J]. Catalyst Today, 2010, 15(3): 61-68.
- [4] 杨洪云,赵德智,沈耀亚.油品脱硫工艺及其发展趋势[J].石油化工高等学校学报,2001,14(3):26-27.
- [5] Jing B, Yang H, Zhang R Y, et al. Efficient oxidative desulfurization of diesel fuel using amide-based ionic liquids[J]. Chemical Engineering Journal, 2016, 283: 89-96.
- [6] 刘思彤,石薇薇,曹祖宾,等.FCC 汽油重馏分氧化-吸附脱硫的研究[J].现代化工,2018,38(4):148-151,153.
- [7] 陈政利,韩娜,苏炜,等.Co- β -SBA-15 催化氧化脱硫性能研究[J].现代化工,2019,39(5):177-181.
- [8] Juheon H, Boreum L, Sehwa K, et al. Techno-economic analysis of a biological desulfurization process for a landfill gas in Korea[J]. 2018, 53(17): 2769-2781.
- [9] 邵河,王海彦,康蕾.可控氧化锌纳米结构的制备及其反应吸附脱硫性能研究[J].现代化工,2018,38(4):114-117.
- [10] Hang Y, Li G, Kong L, et al. Deep oxidative desulfurization catalyzed by Ti-based metal-organic frameworks[J]. Fuel, 2018, 219: 103-110.

(下转第 163 页)

增强氧化还原动力学和结构稳定性。可以扩展这种合成路线,以制造其他过渡金属二硫化物材料,可以提供出色的锂存储性能。

参考文献

- [1] Gao X, Yu G, Zheng L C, *et al.* Strong electron coupling from the sub-nanometer Pd clusters confined in porous ceria nanorods for highly efficient electrochemical hydrogen evolution reaction [J]. *ACS Applied Energy Materials*, 2019, (2): 966–973.
- [2] Hu J, Huang B L, Zhang C X, *et al.* Engineering stepped edge surface structures of MoS₂ sheet stacks to accelerate the hydrogen evolution reaction [J]. *Energy & Environmental Science*, 2017, 10: 593–603.
- [3] Alex C, Bhat S A, John N S, *et al.* Highly efficient and sustained electrochemical hydrogen evolution by embedded Pd-nanoparticles on a coordination polymer—reduced graphene oxide composite [J]. *ACS Applied Energy Materials*, 2019, (2): 8098–8106.
- [4] Chen S Q, Chen X B, Wang G J, *et al.* Reaction mechanism with thermodynamic structural screening for electrochemical hydrogen evolution on monolayer 1T' Phase MoS₂ [J]. *Chemistry of Materials*, 2018, (30): 5404–5411.
- [5] He Q Q, Chen X B, Chen S Q, *et al.* Electrochemical hydrogen evolution at the interface of monolayer VS₂ and water from first-principles calculations [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2018, (11): 2944–2949.
- [6] Feng X, Wang H, Bo X, *et al.* Bimetal-organic framework-derived porous rodlike cobalt/nickel nitride for all-pH value electrochemical hydrogen evolution [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2019, (11): 8018–8024.
- [7] Muralikrishna S, Ravishankar T N, Ramakrishna T, *et al.* Non-noble metal graphene oxide-copper(II) ions hybrid electrodes for electrocatalytic hydrogen evolution reaction [J]. *Environmental Progress & Sustainable Energy*, 2016, (35): 565–573.
- [8] Leyla Najafi, Sebastiano Bellani, Reimier Oropesa-Nuñez, *et al.* Doped MoSe₂ nanoflakes 3d metal oxide hydr(oxy)oxides hybrid catalysts for pH universal electrochemical hydrogen evolution reaction [J]. *Adv Energy Mater*, Doi:10.1002/aenm.201801764.
- [9] Zang M J, Xu N, Cao G X, *et al.* Cobalt molybdenum oxide derived high-performance electrocatalyst for the hydrogen evolution reaction [J]. *ACS Catalysis*, 2018, (8): 5062–5069.
- [10] Zhang B, *et al.* Low-temperature electrochemical codeposition of aluminum-neodymium alloy in a highly stable solvate ionic liquid [J]. *Journal of Solid State Electrochemistry*, 2019, (23): 1903–1909.
- [11] Pohrellyuk I, Tkachuk O, Proskurnyak R, *et al.* Influence of regulated modification of nitride layer by oxygen on the electrochemical behavior of Ti₆Al₄V alloy in the Ringer's solution [J]. *Materials and Corrosion*, 2019, (70): 2320–2325.
- [12] Sun Y L, Wang B L, Yang N, *et al.* Synthesis of RGO-supported molybdenum carbide (Mo₂C-RGO) for hydrogen evolution reaction under the function of poly(ionic liquid) [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2019, (58): 8996–9005.
- [13] Wang J B, Chen L, Zeng L, *et al.* In situ synthesis of WSe₂/CMK-5 nanocomposite for rechargeable lithium-ion batteries with a long-term cycling stability [J]. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 2018, (6): 4688–4694.
- [14] Ma L, Xu L M, Lin W L, *et al.* Hydrothermal synthesis of selenium-doped graphene-like molybdenum disulfide/graphene hybrid as an efficient electrocatalyst for hydrogen evolution [J]. *Advanced Powder Technology*, 2016, (27): 2153–2160.
- [15] Zheng X L, Xu J B, Yan K Y, *et al.* Spaceconfined growth of MoS₂ nanosheets within graphite: The layered hybrid of MoS₂ and graphene as an active catalyst for hydrogen evolution reaction [J]. *Chem Mater*, 2014, 26(7): 2344–2353. ■
- (上接第 158 页)
- [11] 龙文字,刘继涛,秦永航,等.氧化-络合萃取法脱除重质燃料油中硫化物[J].*现代化工*, 2015, 35(12): 101–104, 106.
- [12] 毛春峰,李秀萍,赵荣祥,等.H₃PW(12)O(40)@C的制备和氧化脱除模拟油中硫化物[J].*现代化工*, 2017, 37(1): 123–127.
- [13] 张伟.分子氧化法深度脱除燃油中有机硫研究[D].广州:华南理工大学, 2014.
- [14] Zhang Hongxng, Gao Jiajun, Meng Hong, *et al.* Catalytic oxidative desulfurization of fuel by H₂O₂ in-situ produced via oxidation of 2-propanol [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2012, 51(13): 4868–4874.
- [15] Wang Qing, Wang Shengqiang, Yu Hongbing. Oxidative desulphurization of model fuel by in situ produced hydrogen peroxide on palladium/active carbon [J]. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 2017, 95(1): 136–141.
- [16] 安红强.氢氧直接合成过氧化氢及其与环己酮氨氧化反应集成过程的研究[D].天津:河北工业大学, 2010.
- [17] 李向峰,李星星,高豹,等.回收有机废液中乙腈和N,N-二甲基甲酰胺[J].*江西化工*, 2020, (2): 100–102.
- [18] 干雅平,徐明仙,王美华,等.合成革行业DMF废液精馏回收的萃取法预处理研究[J].*科技通报*, 2016, 32(5): 215–218.
- [19] Ye J, Liu J, Xu C, *et al.* Electrooxidation of 2-propanol on Pt, Pd and Au in alkaline medium [J]. *Electrochemistry Communications*, 2007, 9: 2760–2763.
- [20] 王庆,王胜强,于宏兵. Pd/C催化氧化吸附脱除燃油中噻吩类硫化物研究[J].*化学工程*, 2016, 44(7): 1–5.
- [21] 张丹丹. 燃料油中萃取催化氧化耦合脱硫[D]. 洛阳: 河南科技大学, 2018.
- [22] Yang Chunping, Zhao Kun, Cheng Yan, *et al.* Catalytic oxidative desulfurization of BT and DBT from n-octane using cyclohexanone peroxide and catalyst of molybdenum supported on 4A molecular sieve [J]. *Separation and Purification Technology*, 2016, 163: 153–161.
- [23] Dai B, Wu P, Zhu W S, *et al.* Heterogenization of homogenous oxidative desulfurization reaction on graphene-like boron nitride with a peroxomolybdate ionic liquid [J]. *RSC Advances*, 2016, 6(1): 140–147.
- [24] 刘汉林,李秀萍,赵荣祥. DESs/SG 催化剂的制备及其氧化脱硫性能[J].*燃料化学学报*, 2020, 48(3): 369–377.
- [25] Nie Y, Dong Y, Gao H, *et al.* Regulating sulfur removal efficiency of fuels by Lewis acidity of ionic liquids [J]. *Sci China: Chem*, 2016, 59(5): 526–531. ■