

# 新型磁性离子液体的萃取氧化脱硫研究

余文卉, 王涛, 李谭香凝, 王雨婷, 胡兵\*

(湖北工业大学材料与化学工程学院, 湖北 武汉 430068)

**摘要:**通过两步法合成了新型磁性离子液体 $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$ , 并利用 FT-IR、UV-Vis 和 VSM 对其进行表征。以  $H_2O_2$  为氧化剂, 考察了离子液体对模拟油中硫化物的萃取氧化脱硫效果。考察了反应温度、反应时间、离子液体质量、氧硫比和硫化物种类对脱硫率的影响。结果表明, 在反应温度为  $60^\circ C$ 、反应时间为 100 min、离子液体质量为 1.0 g、氧硫比为 5 时, 离子液体对二苯并噻吩的脱除率达 98.38%。 $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$  可在外加磁场作用下实现高效回收, 且重复使用 6 次后活性无明显下降。对不同硫化物的脱除效果为  $DBT > 4,6-DMDBT > BT > TH$ 。

**关键词:**离子液体; 萃取; 催化氧化; 脱硫

中图分类号: TH3

文献标志码: A

文章编号: 0253-4320(2021)02-0188-05

DOI: 10.16606/j.cnki.issn.0253-4320.2021.02.036

## Deep desulfurization of fuels by magnetic Lewis ionic liquid

YU Wen-hui, WANG Tao, LI Tan-xiang-ning, WANG Yu-ting, HU Bing\*

(School of Materials and Chemical Engineering, Hubei University of Technology, Wuhan 430068, China)

**Abstract:**  $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$ , a novel magnetic acidic ionic liquid, is synthesized via two-step method and characterized by FT-IR, UV-Vis and VSM. The extraction oxidation desulfurization performance of the ionic liquids for model oil is investigated with  $H_2O_2$  as oxidant. Effects of reaction temperature, reaction time, ionic liquids amount, molar ratio of O/S and sulfide type on desulfurization efficiency are studied in detail. Results show that the removal of DBT by the ionic liquid can reached 98.38% under optimum conditions that reaction temperature is at  $60^\circ C$ , reaction performs for 100 min, ionic liquids dosage is 1.0 g and the ratio of O/S is 5.  $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$  can achieve efficient separation by applying an external magnetic field and does not show significant decline in activity after it has been recycled for 6 times. It shows the best desulfurization efficiency to DBT, coming next with 4,6-DMDBT, BT and TH.

**Key words:** ionic liquid; extraction; catalytic oxidation; desulfurization

燃油中的硫化物燃烧后形成的  $SO_x$  等酸性气体对环境对人体产生严重危害<sup>[1-2]</sup>。为此, 世界各国制定了相应的法规以控制燃油中硫化物的含量<sup>[3-4]</sup>, 积极探究高效脱硫技术, 以满足对清洁能源日益增长的需求。

萃取耦合催化氧化脱硫 (ECODS) 技术由于在温和条件下对杂环含硫化合物具有较高选择性, 被认为是最理想的脱硫方法之一<sup>[5-7]</sup>。其中离子液体因具有无毒、低挥发性和高稳定性等独特的特性<sup>[8]</sup>, 广泛应用于 ECODS 中并取得了较好的成果。Lo<sup>[9]</sup> 于 2003 年首次将离子液体应用于萃取耦合催化氧化脱硫, 相比仅用离子液体萃取, 以  $H_2O_2$  为氧化剂进行萃取氧化的脱硫率提高了一个数量级。Gao 等<sup>[10]</sup> 研究了 Bronsted 酸性离子液体  $[C_4mim]HSO_4$  的萃取氧化脱硫性能, 结果发现在  $25^\circ C$ 、剂油体积比 1/2、氧硫摩尔比 5/1、反应时间 2 h 的条件

下, 二苯并噻吩 (DBT) 脱除率为 99.6%。循环使用 6 次离子液体催化活性无明显下降。Andevary 等<sup>[11]</sup> 合成了 Lewis 酸性离子液体  $[C_8mim]FeCl_3$  并以其为高效催化剂和萃取溶剂, 进行模型油的萃取氧化脱硫研究。在  $25^\circ C$ 、剂油体积比 1/10、氧硫摩尔比 5/1 条件下反应 15 min, DBT 完全脱除, 7 次回收利用后脱硫率仍保持在 97% 以上。

然而, 研究中存在的一些不足制约了离子液体大规模工业化应用。如昂贵的原材料大大增加了脱硫成本; 一些离子液体脱硫性能不好导致脱硫过程的复杂化和氧化剂的大量使用; 离子液体与燃油难以分离使其重复利用性下降<sup>[12]</sup>。因此, 研制稳定、低成本、高效率的离子液体对其工业化应用具有重要意义。

磁性离子液体由于具有优异的催化氧化性能, 且可在外加磁场作用下实现离子液体与燃油的高效

收稿日期: 2020-03-22; 修回日期: 2020-12-12

基金项目: 湖北省自然科学基金项目 (2013CKB032); 湖北工业大学博士基金项目 (0701); 湖北省高校创新创业教育改革专项 (019-12030); 大学生创新创业训练项目 (201810500025)

作者简介: 余文卉 (1999-), 女, 本科生, 主要研究方向为离子液体脱硫, 15072806631@163.com; 胡兵 (1968-), 男, 博士, 教授, 硕士生导师, 主要从事离子液体的设计、合成及其催化氧化脱硫的研究, 通讯联系人, hbwh04@163.com。

分离,引起了研究者的广泛关注<sup>[13-15]</sup>。笔者以 1,8-二氮杂二环[5.4.0]壬-7-烯(DBU)为阳离子,合成了新型磁性离子液体 $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$ ,以  $H_2O_2$  为氧化剂,对模拟油进行 ECODS 研究,考察了反应温度、反应时间、离子液体质量、氧化剂用量及硫化物种类对脱硫效率的影响,并研究了离子液体的再生性能,初步提出了脱硫反应机理。

## 1 实验部分

### 1.1 仪器及试剂

1,8-二氮杂二环[5.4.0]壬-7-烯(分析纯,质量分数为 99%),国药集团化学试剂有限公司生产;1-氯丁烷(分析纯,98%,上海麦克林生化有限公司生产);无水三氯化铁(化学纯,97%)、过氧化氢(分析纯,质量分数为 30%)、乙酸乙酯(分析纯,质量分数为 99%)、正辛烷(分析纯,质量分数为 99%),国药集团化学试剂有限公司生产;苯并噻吩(分析纯,质量分数为 97%)、二苯并噻吩(分析纯,质量分数为 99%)、4,6-二甲基二苯并噻吩(分析纯,97%)、噻吩(分析纯,98%),上海麦克林生化有限公司生产。

### 1.2 离子液体的制备

$[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$  通过两步方法合成,如图 1 所示。将 0.1 mol DBU 和等量的 1-氯丁烷在 100 mL 的水热反应釜中混合,80℃ 下反应 24 h。反应结束后用乙酸乙酯洗涤固体产物 $[C_4DBU]Cl$  以除去未反应的原料,并于 60℃ 下真空干燥 24 h。将 0.2 mol 的 $[C_4DBU]Cl$  溶解于乙腈中,缓慢加入无水  $FeCl_3$ (0.4 mol),并在 50℃ 下搅拌反应 8 h,过滤后旋转蒸发除去乙腈,在 60℃ 下真空干燥 12 h,得到最终产物 $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$ 。

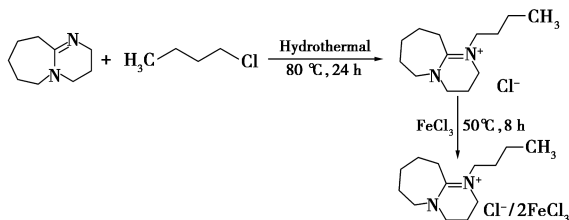


图 1 离子液体的合成步骤

### 1.3 模拟油的脱硫研究

在正辛烷中溶解相应含量的噻吩(TH)、苯并噻吩(BT)、二苯并噻吩(DBT)和 4,6-二甲基二苯并噻吩(4,6-DMDBT)制备硫质量分数为 1 000  $\mu\text{g/g}$  的模拟油。ECODS 过程如下:在恒温水浴锅中将

5 mL 模拟油、一定量离子液体和  $H_2O_2$  倒入装有冷凝回流装置及磁力搅拌器的双颈烧瓶(40 mL)中,在实验温度下不断搅拌。每隔 20 min 取上层油相,利用高效液相色谱测定模拟油中含硫化物的质量分数并计算脱硫效率( $\mu$ ):

$$\mu = (1 - C_t/C_0) \times 100\% \quad (1)$$

式中: $C_0$  与  $C_t$  分别为模拟油中的初始硫质量分数及反应时间  $t$  后的硫的质量分数, $\mu\text{g/g}$ 。

色谱条件:色谱柱为 Exformma  $C_{18}$  (4.6 mm  $\times$  250 mm, 5  $\mu\text{m}$ ),流动相为  $V(\text{水}):V(\text{甲醇})=10:90$ ,流速为 1 mL/min,紫外-可见光检测器波长为 25.4 nm,柱温为 25℃。

### 1.4 催化剂的表征

利用 Bruker  $\alpha$ -T 型红外光谱仪(FT-IR)对催化剂进行表征,采用 KBr 压片,扫描范围为 500~4 000  $\text{cm}^{-1}$ 。利用 4Thermo-Heylos 型紫外-可见吸收光谱仪对催化剂进行表征,扫描范围 200~800 nm。利用美国 Lake Shore 公司生产的 MODEL 4HF 振动样品磁强计对催化剂进行磁性测量,外加磁场范围为 -10 000~10 000 Oe。

## 2 结果与讨论

### 2.1 催化剂的表征

离子液体的红外光谱如图 2 所示。由图 2 中可以看出,3 423  $\text{cm}^{-1}$  为环上 C—H 键的伸缩振动,2 864  $\text{cm}^{-1}$  和 2 930  $\text{cm}^{-1}$  为亚甲基上 C—H 键的伸缩振动,1 621  $\text{cm}^{-1}$  和 1 537  $\text{cm}^{-1}$  处的特征峰则分别由 C=N 键的伸缩振动和弯曲振动引起,1 475  $\text{cm}^{-1}$  为 C—H 键的弯曲振动,1 332  $\text{cm}^{-1}$  和 1 190  $\text{cm}^{-1}$  处的峰分别由 C—C 键和 C—N 键的弯曲振动引起。离子液体的红外特征峰证实了阳离子的结构特征,证明其为目标产物。

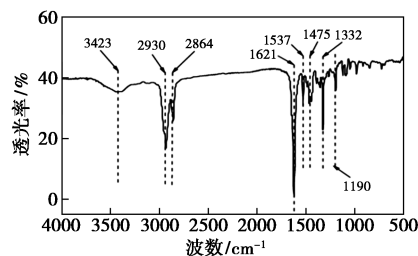


图 2 离子液体的 FT-IR 谱

不同离子液体的 UV-Vis 光谱如图 3 所示。由图 3 中可以看出,在波长 315 nm 和 362 nm 处出现明显吸收峰,根据 Liu 等<sup>[16]</sup>的研究结果,其分别归因于  $FeCl_4^-$  和  $Fe_2Cl_7^-$  的存在,证明了离子液体阴离

子的结构。

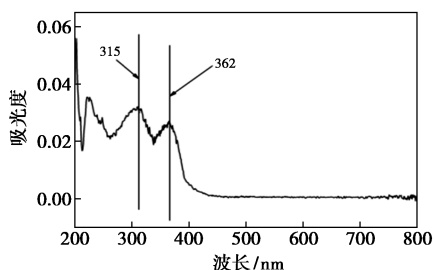


图 3 离子液体的 UV-Vis 谱

利用振动样品磁强计 (VSM) 在  $-10\ 000 \sim 10\ 000$  Oe 的外加磁场范围内测量了  $[\text{C}_4\text{DBU}]\text{Cl}/2\text{FeCl}_3$  在 300 K 下的磁化率, 结果如图 4 所示。由图 4 中可以看出,  $[\text{C}_4\text{DBU}]\text{Cl}/2\text{FeCl}_3$  与所施加磁场的关系近似线性, 表现出典型的顺磁性。通过线性拟合确定饱和和磁化强度为  $4.52 \times 10^{-5}$  emu/g, 对磁铁具有很强的响应。因此, 利用磁场可以很容易地将模拟油和离子液体分离。

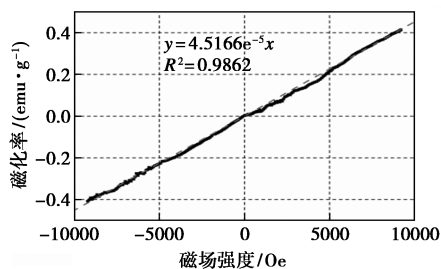


图 4 离子液体的磁性测量

## 2.2 脱硫条件的优化

### 2.2.1 不同脱硫体系对脱硫率的影响

为阐明  $[\text{C}_4\text{DBU}]\text{Cl}/2\text{FeCl}_3$  在氧化脱硫和萃取脱硫的效果, 对不同脱硫体系进行了评价, 结果如表 1 所示。由表 1 中可以看出, 当未添加氧化剂时,  $[\text{C}_4\text{DBU}]\text{Cl}/2\text{FeCl}_3$  对 DBT 的萃取率为 34.54%; 引入  $\text{H}_2\text{O}_2$  后, 脱硫效率显著提高, 对 DBT 脱除率达 98.38%;  $\text{H}_2\text{O}_2$  在无催化剂作用下的氧化效果不佳, 这是由于  $[\text{C}_4\text{DBU}]\text{Cl}/2\text{FeCl}_3$  阴离子中  $\text{Fe}^{3+}$  与  $\text{H}_2\text{O}_2$  形成的芬顿体系对氧化过程有增强作用。此外, 无水  $\text{FeCl}_3$  对噻吩类化合物及其氧化产物的吸附能力使得其具有 28.45% 的脱硫率。

表 1 不同脱硫体系的比较

离子液体种类	温度/ ℃	氧化剂	反应时 间/min	离子液体 质量/g	DBT 脱除 率/%
$[\text{C}_4\text{DBU}]\text{Cl}/2\text{FeCl}_3$	60	$\text{H}_2\text{O}_2$	100	1.0	98.38
$[\text{C}_4\text{DBU}]\text{Cl}/2\text{FeCl}_3$	30	—	20	1.0	34.54
	60	$\text{H}_2\text{O}_2$	100	—	9.42
无水 $\text{FeCl}_3$	60	$\text{H}_2\text{O}_2$	100	—	28.45

### 2.2.2 反应温度和反应时间对脱硫率的影响

在离子液体质量为 1.0 g、氧硫比为 5 的条件下, 研究了不同温度下离子液体脱硫率随反应时间的变化情况, 结果如图 5 所示。由图 5 中可以看出, 当反应温度从 30℃ 升到 60℃ 时, 反应 100 min 的脱硫率由 64.21% 提高至 98.38%。这是由于低温下氧化反应受动力学限制, 脱硫效率不高。提高温度可增加 DBT 与离子液体和  $\text{H}_2\text{O}_2$  间的接触, 且有效降低离子液体的黏度, 有利于脱硫过程的进行。然而, 高温会加剧  $\text{H}_2\text{O}_2$  的自分解, 活性物质减少<sup>[17]</sup>, 也不利于  $\text{Fe}^{3+}$  与  $\text{H}_2\text{O}_2$  生成强氧化的羟基自由基。因此, 脱硫体系的最佳温度和反应时间分别为 60℃ 和 100 min。

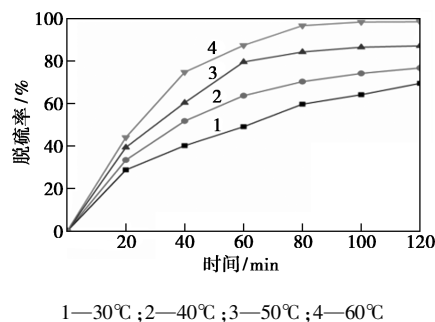


图 5 反应温度及反应时间对脱硫率的影响

### 2.2.3 离子液体质量对脱硫率的影响

在温度为 60℃、氧硫比为 6 的条件下, 离子液体质量对脱硫率的影响如图 6 所示。由图 6 中可以看出, 增加离子液体质量有利于 DBT 的脱除, 当离子液体由 0.5 g 增至 1.0 g 时, 反应 100 min 后脱硫率由 62.18% 提高至 98.38%。随着离子液体的增多, 具有更多的催化活性中心, 提高了 DBT 与离子液体的接触机会, 有效提升萃取和催化氧化效率。然而, 继续增加离子液体质量时, 反应速率虽明显提高, 但 DBT 脱除率几乎不变。因此, 最佳离子液体质量为 1.0 g。

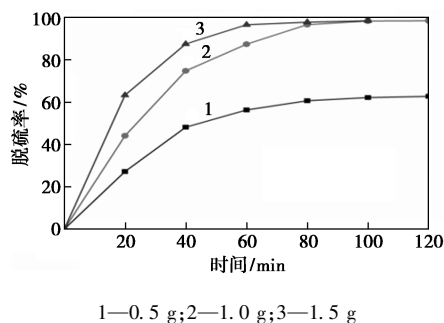


图 6 离子液体质量对脱硫率的影响

### 2.2.4 氧硫摩尔比对脱硫率的影响

在温度为 60℃、离子液体质量为 1.0 g、反应时

间为 100 min 时,考察了  $H_2O_2$  的使用量对脱硫率的影响,结果如图 7 所示。由图 7 中可以看出,氧硫摩尔比为 2 时,脱硫率仅为 53.07%,氧化活性物质不足导致氧化不完全;当氧硫摩尔比提高到 5 时,充足的  $H_2O_2$  可有效增加羟基自由基生成量,DBT 去除率可达 98.38%;氧硫摩尔比进一步提高到 6 时,催化氧化达到饱和,过多的  $H_2O_2$  导致其自分解增加,不仅降低了活性中心的利用率,且生成的水会阻碍离子液体与硫化物接触,降低脱硫率,100 min 内 DBT 的去除率仅为 96.47%。从经济和脱硫效率角度考虑,选择氧硫摩尔比为 5 为最佳氧化剂用量。

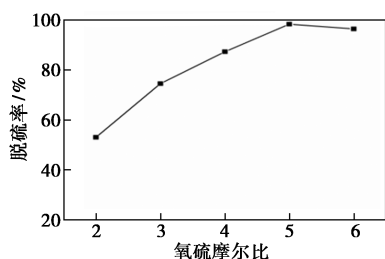


图 7 氧硫摩尔比对脱硫率的影响

### 2.2.5 硫化物种类对脱硫率的影响

由于实际燃油中有机硫化物成分复杂,为满足工业需求,对不同噻吩类化合物的脱除性能进行评价,结果如表 2 所示。由表 2 中可以看出,对 DBT、BT、TH 和 4,6-DMDBT 的脱除率分别为 98.38%、75.63%、67.48% 和 90.16%。如 Liu 等<sup>[18]</sup> 研究表明,硫原子周围较高的电子密度有利于 ECODS 反应,DBT、4,6-DMDBT、TH 和 BT 的电子密度分别为 5.758、5.760、5.739 和 5.696,较低电子密度导致 BT 和 TH 难以被氧化,脱硫效果不佳。然而,由于硫原子周围甲基引起的空间位阻,与 DBT 具有相似电子密度的 4,6-DMDBT 反应活性较低。因此,选择不同硫化物的顺序为 DBT、4,6-DMDBT、BT、TH。

表 2 不同硫化物种类的脱硫率

硫化物种类	脱硫率/%	电子密度
二苯并噻吩	98.38	5.758
4,6-二甲基二苯并噻吩	90.16	5.760
苯并噻吩	75.63	5.696
噻吩	67.48	5.739

### 2.3 离子液体的重复利用

脱硫反应结束后,在外加磁场作用下进行离子液体与上层油相的分离。在 60℃ 下对分离后的离子液体进行减压蒸馏以去除残留  $H_2O_2$ ,利用四氯化碳对离子液体进行反萃取除去脱硫产物后,向再生后的离子液体中加入新鲜  $H_2O_2$  及模拟油,相同条

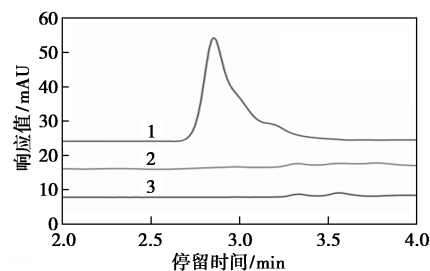
件下进行脱硫循环实验,结果如表 3 所示。由表 3 中可以看出,离子液体的脱硫活性在循环使用 6 次后略有下降,脱硫率从 98.38% 降到 95.79%,具有良好的重复利用性。此外,每次循环后对分离出的磁性离子液体进行称重,发现  $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$  在每个循环中的平均质量损失小于 1%,证明了磁性分离的可行性。

表 3 离子液体的循环使用

	循环次数					
	1	2	3	4	5	6
脱硫率/%	98.38	97.73	97.48	97.08	96.51	95.79
质量损失率/%	0.78	0.92	1.17	0.85	1.03	0.97

### 2.4 离子液体的溶解度分析

燃料油中离子液体的溶解不仅导致离子液体的损失,还会造成油品污染。采用高效液相色谱法 [Agilent 1220 Infinity LC 色谱柱, Exformma C18 (4.6 mm×250 mm, 5 μm)] 在一定条件下(流动相  $V(\text{水}):V(\text{甲醇})=20:80$ ;流速为 1 mL/min;紫外-可见检测器波长为 273 nm,柱温为 30℃)测定  $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$  在模拟油中的溶解度,结果如图 8 所示。由图 8 中可以看出,  $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$  在高效液相色谱图中的吸收峰出现在约 2.9 min 处。脱硫后,用高效液相色谱法检测上层油相,在停留时间 2.9 min 左右未出现吸收峰,说明离子液体在模拟油中无明显溶解度。



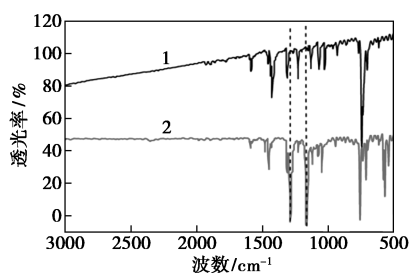
1—离子液体;2—脱硫前模拟油;3—脱硫后模拟油

图 8 离子液体及脱硫前后模拟油的液相色谱

### 2.5 脱硫产物及脱硫机理的分析

为进一步研究磁性离子液体的脱硫机理,分离出的萃取相经水洗、过滤和烘干后,对所得白色晶体进行 FT-IR 分析,结果如图 9 所示。由图 9 中可以看出,与纯 DBT 相比,脱硫产物在  $145\text{ cm}^{-1}$  和  $1287\text{ cm}^{-1}$  处出现 2 个新的特征峰。根据 Jiang 等<sup>[19]</sup> 的研究, $145\text{ cm}^{-1}$  和  $1287\text{ cm}^{-1}$  处的特征峰是由 S=O 键的伸缩振动引起,说明脱硫产物为二苯并噻吩亚砜(DBTO)和二苯并噻吩砜(DBTO<sub>2</sub>)的混

合物。因此,其脱硫机理如图 10 所示,DBT 首先从模拟油中提取到萃取相,然后在离子液体的催化下被  $H_2O_2$  氧化成 DBTO 与  $DBTO_2$ 。同时,脱硫过程中  $Fe^{3+}$  和  $H_2O_2$  在萃取相中发生类 Fenton 反应,生成的强氧化性羟基自由基 ( $\cdot OH$ ) 有利于 DBT 的氧化。



1—二苯并噻吩;2—脱硫产物

图 9 脱硫产物的 FT-IR 谱

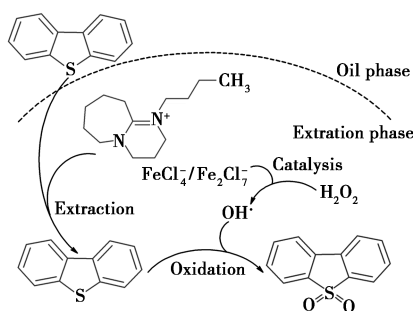


图 10 脱硫机理的预测

### 3 结论

(1) 制备了新型磁性离子液体  $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$ , 并以其为催化剂和萃取剂,  $H_2O_2$  为氧化剂, 进行模拟油萃取耦合催化氧化脱硫研究, 结果具有较好的脱硫效果。

(2) 在温度为  $60^\circ C$ 、离子液体质量为  $1.0 g$ 、氧硫摩尔比为 5 的条件下反应  $100 min$ , 对 DBT 的去除率达  $98.38\%$ 。对不同硫化物的选择性大小顺序为:  $DBT > 4,6-DMDBT > BT > TH$ 。

(3)  $[C_4DBU]Cl/2FeCl_3$  具有较强磁性, 在外加磁场作用下可实现高效回收。循环使用 6 次后, 对 DBT 的脱除率从  $98.38\%$  降至  $95.79\%$ , 具有良好的重复利用性。

### 参考文献

[1] Zhu W S, Wang C, Li H P, *et al.* One-pot extraction combined with metal-free photochemical aerobic oxidative desulfurization in deep eutectic solvent [J]. *Green Chem*, 2015, 17(4): 2464–2472.  
[2] 张东旭, 宋华, 苑丹丹. 合成条件对磷钨酸负载的金属有机框架

催化剂氧化脱硫性能的影响 [J]. *燃料化学学报*, 2019, 47(2): 183–190.

- [3] 韩笑, 张瀚, 姚月, 等.  $H_3PMo_{10}V_2O_{40}/CNTs$  的制备及催化氧气氧化脱硫性能 [J]. *石油学报: 石油加工*, 2017, 33(1): 71–78.  
[4] 张同旺. S-Zorb 吸附剂颗粒活性位分布对汽油脱硫率的影响 [J]. *石油学报: 石油加工*, 2017, 33(2): 198–203.  
[5] 宋鹏俊, 张影, 闫锋, 等. FCC 柴油氧化萃取深度脱硫工艺研究 [J]. *石油炼制与化工*, 2010, 41(5): 14–18.  
[6] Hao L, Su T, Hao D, *et al.* Oxidative desulfurization of diesel fuel with caprolactam-based acidic deep eutectic solvents: Tailoring the reactivity of DESs by adjusting the composition [J]. *Chin J Catal*, 2018, 39: 1552–1559.  
[7] Lu H, Li P, Liu Y, *et al.* Synthesis of a hybrid Anderson-type polyoxometalate in deep eutectic solvents (DESs) for deep desulfurization of model diesel in ionic liquids (ILs) [J]. *Chem Eng J*, 2017, 313: 1004–1009.  
[8] Lü H, Wang S, Deng C, *et al.* Oxidative desulfurization of model diesel via dual activation by a protic ionic liquid [J]. *J Hazard Mater*, 2014, 279: 220–225.  
[9] Lo W H, Yang H Y, Wei G T. One-pot desulfurization of light oils by chemical oxidation and solvent extraction with room temperature ionic liquids [J]. *Green Chem*, 2003, 5(5): 639–642.  
[10] Gao H, Guo C, Xing J, *et al.* Extraction and oxidative desulfurization of diesel fuel catalyzed by a Brønsted acidic ionic liquid at room temperature [J]. *Green Chem*, 2010, 12: 1220–1224.  
[11] Andevary H H, Akbari A, Omidkhan M. High efficient and selective oxidative desulfurization of diesel fuel using dual-function [Omm]  $FeCl_4$  as catalyst/extractant [J]. *Fuel Processing Technology*, 2019, 185: 8–17.  
[12] Greaves T L, Drummond C J. Protic ionic liquids: Properties and applications [J]. *Chem Rev*, 2008, 108: 206–237.  
[13] Li H M, Zhu W S, Wang Y, *et al.* Deep oxidative desulfurization of fuels in redox ionic liquids based on iron chloride [J]. *Green Chem*, 2009, 11: 810–815.  
[14] Jiang W, Zhu W S, Li H M, *et al.* Fast oxidative removal of refractory aromatic sulfur compounds by a magnetic ionic liquid [J]. *Chem Eng Technol*, 2014, 37: 36–42.  
[15] Zhu W S, Wu P W, Yang L, *et al.* Pyridinium-based temperature-responsive magnetic ionic liquid for oxidative desulfurization of fuels [J]. *Chem Eng J*, 2013, 229: 250–256.  
[16] Liu W H, Etschmann B B, Brugger J, *et al.* UV-Vis spectrophotometric and XAFS studies of ferric chloride complexes in hypersaline LiCl solutions at  $25-90^\circ C$  [J]. *Chem Geol*, 2006, 231: 326–349.  
[17] 金伟, 田永胜, 曾丹林, 等.  $F127-MoO_3/Al_2O_3$  的制备及其催化氧化脱除二苯并噻吩的研究 [J]. *石油炼制与化工*, 2017, 48(10): 11–16.  
[18] Liu R, Dou S, Yu M, *et al.* Oxidative desulfurization of fuel oil catalyzed by magnetically recoverable nano- $Fe_3O_4/SiO_2$  supported heteropoly compounds [J]. *J Clean Prod*, 2017, 168: 1048–1058.  
[19] Jiang W, Jia H, Zheng Z L, *et al.* Catalytic oxidative desulfurization of fuels in acidic deep eutectic solvents with  $[(C_6H_{13})_3P(C_{14}H_{29})_3]_3PMo_{12}O_{40}$  as a catalyst [J]. *Petroleum Science*, 2018, 15: 841–848. ■