

Mg-Al-LDH对塔河沥青质及其亚组分的吸附研究

朱孟爽, 罗根祥, 许凌子, 林东浩, 黄 金, 齐明玉

(辽宁石油化工大学 石油化工学院, 辽宁 抚顺 113001)

摘 要: 采用 pH 恒定共沉淀法合成了双金属氢氧化物 Mg-Al-LDH, 采用 X 射线衍射(XRD)、扫描电镜(SEM)、能谱(EDS)及 BET 等手段对其微观形貌、结构和组成进行表征。结果表明, 成功制备出具有层状结构且有序程度较高的 LDHs, 其孔径属于介孔范畴。采用甲苯-正庚烷法将塔河沥青质(T_A)分离成重组分(A_1)和轻组分(A_2), 并对其进行元素分析, 得知 A_1 的极性最大, 其次依次为 T_A 和 A_2 。进一步考察了 Mg-Al-LDH 对塔河沥青质及其亚组分 A_1 、 A_2 的吸附性能, 研究发现 Mg-Al-LDH 对 T_A 及其亚组分 A_1 、 A_2 的吸附可在 2~3 h 达到平衡, 实验数据与准二级动力学拟合较好, 所得吸附等温线符合 Langmuir 模型, Mg-Al-LDH 对 T_A 及其亚组分 A_1 、 A_2 的吸附量分别为 71.38、140.65、39.31 mg/g。

关键词: 双金属氢氧化物; 沥青质; 亚组分; 吸附

中图分类号: TQ110.9 **文献标志码:** A **doi:**10.3969/j.issn.1006-396X.2022.03.002

Study on the Adsorption of Asphaltenes and Their Sub-Components by Mg-Al-LDH in Tahe

Zhu Mengshuang, Luo Genxiang, Xu Lingzi, Lin Donghao, Huang Jin, Qi Mingyu

(School of Petrochemical Engineering, Liaoning Petrochemical University, Fushun Liaoning 113001, China)

Abstract: Mg-Al-LDH was synthesized by the constant pH co-precipitation method, and the micro-structure and composition of the layered bimetallic hydroxides were characterized by X-ray diffraction (XRD), scanning electron microscopy (SEM), energy dispersive spectroscopy (EDS) and BET. The results show that LDHs were successfully prepared with a layered structure, a high degree of order, and mesopores. The toluene-*n*-heptane method was used to separate the asphaltenes in Tahe into heavy component A_1 and light component A_2 . The elemental analysis indicates that A_1 had the highest polarity, followed by the Tahe asphaltenes and A_2 . This paper further investigated the adsorption properties of Mg-Al-LDH for asphaltenes and their sub-components A_1 and A_2 in Tahe and found that the adsorption equilibrium can be reached within 2~3 h. The experimental data fitted well with the pseudo-second-order kinetics, and the adsorption isotherms followed the Langmuir model. The adsorption capacity of Mg-Al-LDH was 71.38, 140.65 and 39.31 mg/g for asphaltenes in Tahe and their sub-components A_1 and A_2 , respectively.

Keywords: Bimetallic hydroxide; Asphaltenes; Sub-components; Adsorption

沥青质是重油的高分子质量组分, 是原油中极性最强的部分^[1]。沥青质由一系列相对较大的含有芳香环的大分子、相对较短的链烷烃支链、含有一个或多个杂原子(如氮、氧、硫)和钒、铁、镍等金属的杂芳环和萘环组成^[2]。这些原子导致沥青质呈现极性结构, 使其在原油中缔合并形成聚集体。沥青质分子的这种自缔合行为导致它们从原油中沉淀,

随后形成固体颗粒和沉积物。此外, 沥青质具有表面活性, 可以稳定油中不必要的水乳液, 造成油水分离困难^[3]。因此, 原油在生产、加工和运输过程中出现储层损害、管道和储罐堵塞等诸多问题^[4]。另外, 在油气开采过程中原油沥青质在储层岩石表面上的吸附会导致润湿性、亲水性减弱, 从而造成储层岩石的油相相对渗透率下降, 影响原油的采收

收稿日期:2021-03-23 修回日期:2021-07-12

基金项目:中国石化资助课题(118009-1)。

作者简介:朱孟爽(1994-),女,硕士研究生,从事石油及石油副产品加工方面的研究;E-mail:2092872164@qq.com。

通信联系人:许凌子(1982-),女,硕士,实验师,从事石油化工产品分析方面的研究;E-mail:11587809@qq.com。

率。由于沥青质的吸附在原油的加工过程中易形成反应釜壁相结焦现象,因此研究沥青质的吸附行为对指导原油的开采和加工具有重要的意义。N. N. Shayan 等^[5]和 S. S. Wang 等^[6]分别利用赤铁矿(α - Fe_2O_3)纳米粒子和高岭石对沥青质进行吸附和去除,但是赤铁矿(α - Fe_2O_3)纳米粒子对沥青质的吸附量过低,而高岭土则需经多次吸附才可去除98%的沥青质,且吸附过程繁琐,成本较高。层状双金属氢氧化物(LDHs)是由阳离子主体层和阴离子中间层组成的层状金属氢氧化物^[7]。双金属氢氧化物具有纳米层板结构,比表面积大,其层板间带有电荷,使其能够通过离子交换和静电相互作用进行吸附,是重要的纳米级吸附材料^[8-9]。另外,双金属氢氧化物制备方法简单、成本低廉,因此被广泛用作吸附材料、阻燃材料、催化剂以及油田化学品等^[10]。

本文采用Mg-Al-LDH为吸附材料,基于吸附等温线和吸附动力学原理,分析了Mg-Al-LDH对塔河沥青质(T_A)及其亚组分 A_1 、 A_2 的吸附性能;利用XRD、BET和SEM等表征手段,揭示了Mg-Al-LDH对 T_A 及其亚组分 A_1 、 A_2 的吸附机理。

1 实验部分

1.1 实验材料

T_A ,经塔河减渣分离;重组分 A_1 、轻组分 A_2 ,经 T_A 分离; $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 、 Na_2CO_3 、 NaOH (分析纯,国药集团化学试剂有限公司)。

1.2 实验仪器

D/max RB型X射线衍射仪,日本理学公司,CuK辐射,工作电压为40 kV,工作电流为30 mA,测试波长为1.540 57 nm,步长为0.02($2\theta/\text{min}$), 2θ 在 $5^\circ \sim 75^\circ$;SU8010型扫描电子显微镜,日本电子公司,加速电压为15.0 kV,工作距离为8.0~8.9 mm;Autosorb-IG2-mp全自动比表面积和孔径分布分析仪,美国康塔仪器公司;WFZ UV-2000型紫外可见分光光度计,尤尼柯仪器有限公司;EA3000元素分析仪,意大利欧维特(EuroVector)公司;C、H、N模式条件:980 $^\circ\text{C}$,采集时间300 s;S模式条件:980 $^\circ\text{C}$,采集时间500 s;O模式条件:1 070 $^\circ\text{C}$,采集时间500 s。

1.3 样品制备

采用pH恒定共沉淀法^[11]制备Mg-Al-LDH。将 $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 与 $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 按照Mg、Al物质的量比为2:1,配制总浓度为1 mol/L的硝酸盐溶液。将 Na_2CO_3 与 NaOH 按照物质的量比为1:10配制碱液。将硝酸盐溶液与碱液以8~10 mL/min的

速度同时滴加至烧杯中,滴加完毕维持pH在10左右,继续快速搅拌20 min左右,将悬浮液放入反应釜中,60 $^\circ\text{C}$ 下老化24 h,取出并水洗抽滤数次直至pH呈中性,将滤饼烘干、研磨,得到产品,记为Mg-Al-LDH。参考NB/SH/T 0509—2010石化行业标准,用正庚烷为沉淀溶剂溶解过滤,得到 T_A 。采用甲苯-正庚烷混合溶剂法分离 T_A ^[12],得到其亚组分,记重组分为 A_1 、轻组分为 A_2 。

1.4 吸附实验

取10.00 mL质量浓度为30~180 mg/L的吸附质于容量瓶中,按照吸附质质量浓度为1 g/L的比例向容量瓶中加入0.010 0 g Mg-Al-LDH,密封置于台式恒温振荡器中(30 $^\circ\text{C}$,170 r/min)震荡24 h,经离心机离心(4 000 r/min,5 min),使用紫外分光光度计,在波长为500 nm处测量上层清液的吸光度,计算吸附量。

1.5 吸附等温线

吸附等温实验数据分别使用Langmuir模型(式(1))与Freundlich模型(式(2))拟合。Langmuir模型是一种理想化模型,描述了均匀表面上的单分子层吸附^[13]。Freundlich模型属于经验模型,假设吸附为多层吸附。

$$1/q_e = 1/q_m K_L C_e + 1/q_m \quad (1)$$

$$q_e = K_F C_e^{1/n} \quad (2)$$

式中, q_e 为吸附平衡时吸附剂的吸附量,mg/g; q_m 为最大吸附量,mg/L; K_L 为Langmuir吸附平衡常数,L/mg; C_e 为吸附平衡时吸附质的质量浓度,mg/L; K_F 为Freundlich吸附平衡常数,mg/g; n 为吸附强度常数, $1/n$ 越大,表明吸附剂表面有更多的吸附位点。

1.6 吸附动力学

分别取100.00 mL质量浓度均为180 mg/L的 T_A 及其亚组分 A_1 、 A_2 的甲苯溶液于容量瓶中,加入0.100 0 g的Mg-Al-LDH,置于台式恒温振荡器中震荡,每隔一段时间从容量瓶中取出5.00 mL样品,离心后取上层清液测吸光度,计算吸附量。将所得数据用准一级动力学方程(式(3))、准二级动力学方程(式(4))进行拟合^[14-15]。

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t \quad (3)$$

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \quad (4)$$

式中, k_1 为一级反应速率常数, min^{-1} ; k_2 为二级反应速率常数, $\text{g}/(\text{mg} \cdot \text{min})$; q_t 为 t 时刻的吸附量,mg/g。

2 结果与讨论

2.1 表征分析

2.1.1 吸附剂的 XRD 表征分析 图 1 为 Mg-Al-LDH 的 XRD 图谱。

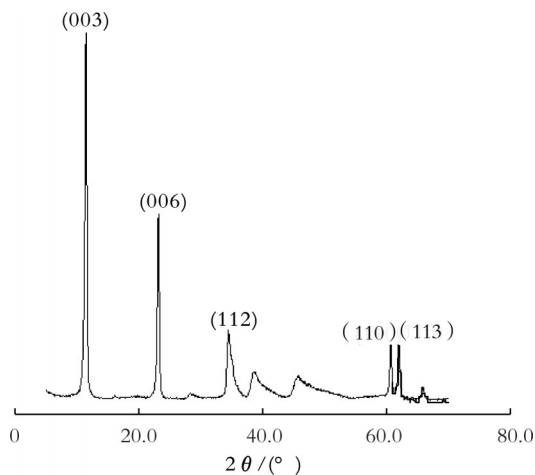


图 1 Mg-Al-LDH 的 XRD 图谱

Fig.1 X-ray diffraction pattern of Mg-Al-LDH

由图 1 可知, Mg-Al-LDH 的特征峰的中心角度 2θ 在 11.58° 、 23.30° 、 34.54° 、 60.77° 、 62.02° , 对应

(003)、(006)、(112)、(110)、(113) 晶面, 并与卡片 JCPDS35-0965 相吻合, 说明具有 LDHs 材料的层状结构; 在低 2θ 处, 出现了强度高、对称性好的 (003) 特征峰, 该峰峰形尖锐, 说明结晶性能良好; 在高 2θ 处, 图像基线则较为平缓, 呈现出 LDHs 材料的典型层状结构^[16]。整体看来, XRD 图谱基线平稳、晶相单一、结晶度好, 说明制备了较为完整的镁铝双金属氢氧化物。

由 Scherrer 公式(式(5))可得晶粒粒径。

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (5)$$

由布拉格方程(式(6))计算层间距^[17]。

$$2d \sin \theta = \lambda \quad (6)$$

式中, β 为 XRD 衍射峰的半高峰宽; θ 为布拉格角, ($^\circ$); λ 为 X-射线波长, 其值为 1.54057 nm ; D 为粒径尺寸, nm ; d 为层间距, nm ; K 为 Scherrer 常数, 取值 0.9 。

XRD 结构参数^[18]由 $a = 2d_{(110)}$ 、 $c = d_{(001)}$ 计算, 结果见表 1。其中, a 为平均阳离子半径, nm ; c 为八面体层电荷, nm 。

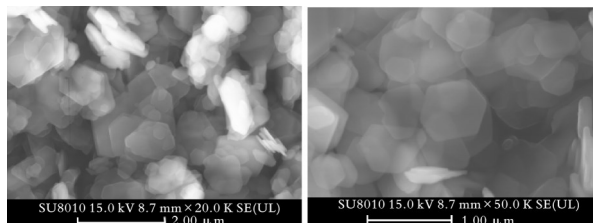
表 1 Mg-Al-LDH 的 XRD 结构参数

Table 1 XRD structural parameters of Mg-Al-LDH

$2\theta_{(003)}/(^{\circ})$	$d_{(003)}/\text{nm}$	$D_{(003)}/\text{nm}$	$2\theta_{(006)}/(^{\circ})$	$d_{(006)}/\text{nm}$	$D_{(006)}/\text{nm}$	a/nm	c/nm
11.580	0.767 5	18.643 6	23.300	0.383 1	17.025 7	30.051 0	230.032 0

由表 1 可知, (003) 晶面的间距 $d_{(003)}$ 对应 Mg-Al-LDH 中间层的层间距, 它与插层阴离子的电荷、半径及层板的电荷密度有关。为了能易于离子交换, 需要更大的层间距来减小离子交换的阻力。研究表明^[19], 插层阴离子为 CO_3^{2-} 的 $d_{(003)}$ 在 $0.7500 \sim 0.7800$, 表 1 中 Mg-Al-LDH 的 $d_{(003)}$ 为 0.7675 nm , 在其范围之内, 说明成功制备了 Mg-Al-LDH。

2.1.2 吸附剂的 SEM 表征分析 图 2 为 Mg-Al-LDH 的 SEM 图像。



(a) 放大 20.0 k

(b) 放大 50.0 k

图 2 Mg-Al-LDH 的 SEM 图像

Fig.2 SEM image of Mg-Al-LDH

由图 2(a)可以看出, Mg-Al-LDH 呈现形貌规整的六边形片状, 六边形形态是双金属氢氧化物, 根据结晶习性(即菱形对称)自然生长的结果^[20], 证

明所制备的 Mg-Al-LDH 符合层状双金属氢氧化物的形貌特征。由图 2(b)可以看出, Mg-Al-LDH 呈六边形, 边缘薄, 整体颗粒分布均匀。由此可见, 本实验制备的 Mg-Al-LDH 表面积较大, 具有丰富的吸附点位, 这有利于吸附实验的进行。

2.1.3 吸附剂 EDS 表征分析 Mg-Al-LDH 的 EDS 元素分析结果见表 2。

表 2 Mg-Al-LDH 的 EDS 元素分析

Table 2 EDS analysis of Mg-Al-LDH

质量分数/%			原子分数/%		
O	Mg	Al	O	Mg	Al
55.64	29.78	14.58	66.32	23.37	10.31

由表 2 可以看出, Mg-Al-LDH 表面大部分是氧元素, 同时也检测到了 Mg 和 Al 元素, 另外 Mg 与 Al 的原子分数比为 $2:1$, 符合实验过程中要求的 Mg 与 Al 原子数比。

2.1.4 吸附剂 BET 表征分析 为探究 Mg-Al-LDH 的物理性质, 对其进行了 BET 表征。结果显示, Mg-Al-LDH 的比表面积为 $90.96 \text{ m}^2/\text{g}$, 总孔容

为 0.48 cm³/g,平均孔径为 21.66 nm,测定结果表明 Mg-Al-LDH 的孔径属于介孔范围。

2.1.5 吸附质元素分析 T_A及其亚组分 A₁和 A₂的元素分析结果见表 3。

表 3 T_A及其亚组分 A₁和 A₂的元素分析

Table 3 Elemental analysis of T_A and its subcomponents A₁ and A₂

样品	w(元素)/%				
	N	C	H	S	O
T _A	1.697	85.976	7.052	4.267	1.008
A ₁	1.555	85.422	6.741	4.136	2.146
A ₂	1.608	85.422	8.104	3.863	1.003

杂原子与碳原子和氢原子的质量比 $m_{(O+N+S)}/m_{(C+H)}$ 见表 4。

表 4 沥青质及其亚组分 A₁和 A₂杂原子和 C+H 原子的质量比

Table 4 Mass ratio of heteroatoms and C+H atoms of asphaltene and its subcomponents A₁ and A₂

样品	$m_{(O+N+S)}/m_{(C+H)}$
T _A	0.074 7
A ₁	0.085 0
A ₂	0.069 3

$m_{(O+N+S)}/m_{(C+H)}$ 可以反映沥青质及其亚组分 A₁和 A₂杂原子比例的变化,比值越高,沥青质及其亚组分的极性越高^[21]。由表 4 可知,亚组分 A₁的 $m_{(O+N+S)}/m_{(C+H)}$ 最大,可知亚组分 A₁极性最强,其次依次是 T_A和亚组分 A₂。

表 5 Langmuir模型和 Freundlich模型对 Mg-Al-LDH 吸附的拟合数据

Table 5 Fitting adsorption data of Mg-Al-LDH by Langmuir and Freundlich models

样品	Langmuir 模型			Freundlich 模型		
	$q_m/(\text{mg}\cdot\text{g}^{-1})$	$K_L/(\text{L}\cdot\text{mg}^{-1})$	R^2	$1/n$	$K_F/(\text{mg}\cdot\text{g}^{-1})$	R^2
T _A	71.38	0.018	0.997	0.592	3.12	0.982
A ₁	140.65	0.006	0.999	0.800	1.25	0.983
A ₂	39.31	0.007	0.996	0.575	0.95	0.947

2.2.2 吸附动力学 Mg-Al-LDH对 T_A及其亚组分 A₁和 A₂的吸附动力学曲线见图 4。由图 4 可知,吸附量随着时间的增加而变大,T_A及其亚组分 A₁和 A₂在 12 h 内基本达到吸附饱和。由图 4 还可以看出,整体吸附过程大致分为两个阶段,T_A及其亚组分 A₂前 3 h 吸附量迅速增加,3 h 后吸附速率下降;亚组分 A₁则在前 2 h 吸附量迅速增加,2 h 后吸附速率下降。由于吸附初始阶段存在大量的吸附位点,T_A及其亚组分 A₁和 A₂被吸附到 Mg-Al-LDH

2.2 吸附性能分析
2.2.1 吸附等温线 使用Langmuir模型和Freundlich模型,拟合了Mg-Al-LDH对 T_A及其亚组分 A₁和 A₂吸附数据,结果见图 3。

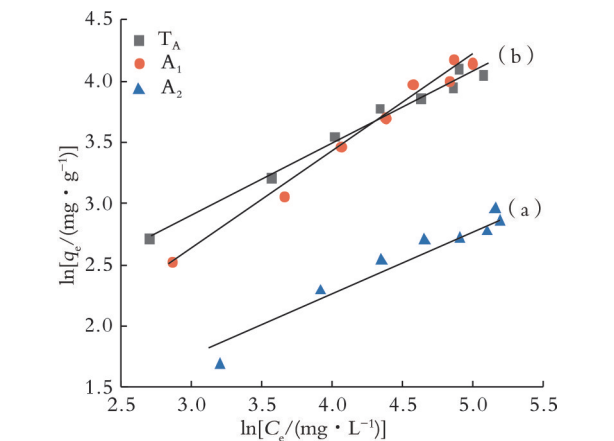


图 3 Langmuir模型(a)和 Freundlich模型(b)拟合曲线
Fig.3 Fitting curve of Langmuir model(a) and Freundlich model(b)

通过 Langmuir 方程和吸光度-浓度标准曲线法,计算了 Mg-Al-LDH 对 T_A及其亚组分 A₁和 A₂的最大吸附容量、吸附等温线参数,结果见表 5。

由表 5 可知,Mg-Al-LDH 对 T_A及其亚组分 A₁和 A₂的等温吸附更符合 Langmuir 模型^[22],表明 Mg-Al-LDH 对 T_A及其亚组分 A₁和 A₂的吸附均属于单分子层吸附,一个吸附质占据一个吸附位点;Mg-Al-LDH 对亚组分 A₁的吸附量最大,可达 140.65 mg/g,其次是对 T_A以及亚组分 A₂的吸附量,其值分别是 71.38、39.31 mg/g,与 1/n 的大小顺序相同。

表面,随后吸附位点越来越少,因此最终导致吸附量变化缓慢。

分别采用准一级动力学和准二级动力学模型拟合 Mg-Al-LDH 吸附 T_A及其亚组分 A₁和 A₂的吸附数据,结果见图 5。吸附动力学拟合参数列于表 6。由图 5 及表 6 可知,准二级动力学方程拟合的较好,相关系数大,表明化学吸附是 Mg-Al-LDH 对 T_A及其亚组分 A₁和 A₂的吸附控制机理,其吸附以离子交换为主。

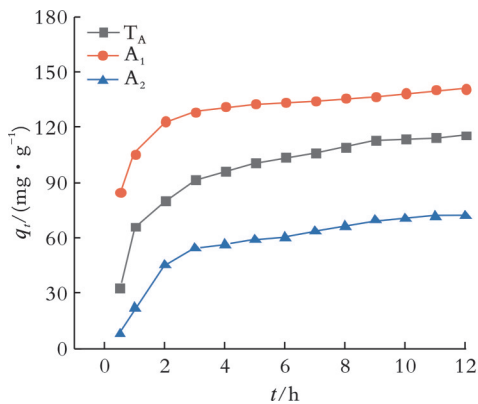


图4 Mg-Al-LDH对T_A及其亚组分A₁和A₂的吸附动力学曲线

Fig.4 Adsorption kinetics curve of Mg-Al-LDH to T_A and its subcomponents A₁ and A₂

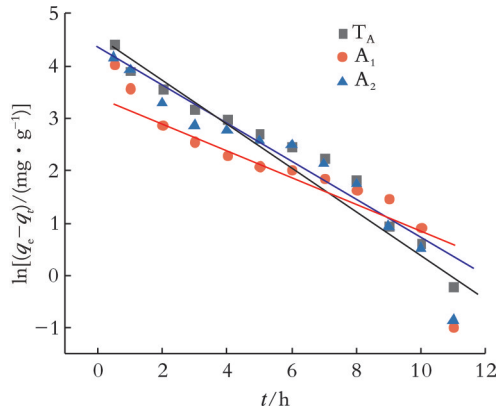
3 结 论

(1)通过pH恒定共沉淀法成功制备了Mg-Al-LDH。XRD表征结果表明,Mg-Al-LDH晶体结构良好、有序并具有层状结构;BET表征结果表明,Mg-Al-LDH的孔径属于介孔范畴,具有较大的比表面积,有利于吸附;SEM表征结果表明,Mg-Al-LDH边缘薄,颗粒分布均匀分散,有利于吸附;EDS表征结果证明,Mg与Al的质量比为2:1。

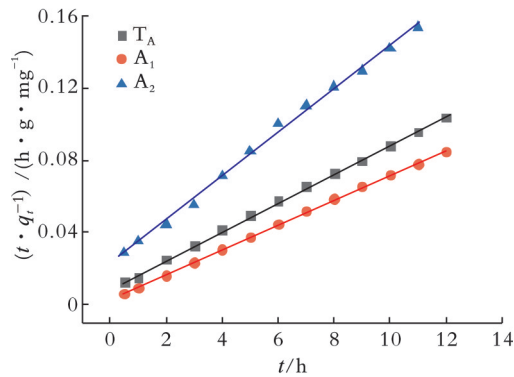
(2)吸附实验证明,Mg-Al-LDH对T_A及其亚组分A₁和A₂都有很好的吸附效果;Langmuir模型能够很好地描述T_A及其亚组分A₁和A₂在Mg-Al-LDH上的吸附行为,且吸附过程属于单分子层化学吸附;吸附动力学分析说明吸附过程分为“先快后慢”的两个阶段,吸附过程符合准二级动力学模型,表明吸附是以离子交换为主的化学吸附。

(3)Mg-Al-LDH对亚组分A₁的吸附性能最好,

其次是T_A和亚组分A₂。通过元素分析可知,亚组分A₁的极性最强,其次依次为T_A和亚组分A₂,这是由于极性越大,正负电荷之间间距越大,正电荷对负电荷束缚能力越小,更有利于吸附,这与文中的Mg-Al-LDH的吸附机理相吻合。



(a) 准一级动力学



(b) 准二级动力学

图5 准一级动力学和准二级动力学模型拟合曲线
Fig.5 Curve fitted by quasi-first-order kinetics and quasi-second kinetics models

表6 吸附动力学拟合参数

Table 6 Adsorption kinetic fitting parameters

样品	C ₀ /(mg·L ⁻¹)	准一级动力学		准二级动力学	
		k ₁ /(min ⁻¹)	R ²	k ₂ /(g·mg ⁻¹ ·min ⁻¹)	R ²
T _A	180	0.385	0.958	0.007	0.999
A ₁	180	0.337	0.843	0.017	0.999
A ₂	180	0.392	0.913	0.006	0.997

参 考 文 献

- [1] Adams J J. Asphaltene adsorption, a literature review[J]. Energy & Fuels, 2014, 28(5): 2831-2856.
- [2] Nassar N N, Hassan A, Pereira-Almao P. Effect of surface acidity and basicity of aluminas on asphaltene adsorption and oxidation[J]. Journal of Colloid & Interface Science, 2011, 360(1): 233-238.
- [3] Mclean J D, Kilpatrick P K. Effects of asphaltene solvency on stability of water-in-crude-oil emulsions[J]. Journal of Colloid & Interface Science, 1997, 189(2): 242-253.
- [4] Mochida I, Zhao X Z, Sakanishi K. Catalyst deactivation during the hydrotreatment of asphaltene in an australian brown coal liquid[J]. Fuel, 1988, 67(8): 1101-1105.

- [5] Shayan N N, Mirzayi B. Adsorption and removal of asphaltene using synthesized maghemite and hematite nanoparticles[J]. *Energy & Fuels*, 2015, 29(3): 1397-1406.
- [6] Wang S S, Liu Q, Tan X L, et al. Adsorption of asphaltenes on kaolinite as an irreversible process[J]. *Colloids and Surfaces A Physicochemical and Engineering Aspects*, 2016, 504: 280-286.
- [7] 于喜洋, 顾贵洲, 李政. 水滑石材料处理工业废水的研究进展[J]. *石油化工高等学校学报*, 2021, 34(6): 16-21.
Yu X Y, Gu G Z, Li Z. Research progress of hydrotalcite materials in treating industrial wastewater[J]. *Journal of Petrochemical Universities*, 2021, 34(6): 16-21.
- [8] Yang Q Z, Sun D J, Zhang C G, et al. Synthesis and characterization of polyoxyethylene sulfate intercalated Mg-Al-Nitrate layered double hydroxide[J]. *Langmuir*, 2003, 19(14): 5570-5574.
- [9] 孔茜, 杜倩. 镁铝LDH制备表征及吸附磷酸根离子的性能研究[J]. *环境科学与技术*, 2011, 34(3): 102-104.
Kong Q, Du Q. Preparation and characterization of magnesium-aluminum LDH and its adsorption of phosphate ions[J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, 34(3): 102-104.
- [10] 李昌勇, 苏景裕, 谢非. 纳米镍/镁铝水滑石/活性炭复合材料的制备及染料污水的降解[J]. *环境工程学报*, 2016, 10(5): 2309-2314.
Li C Y, Su J Y, Xie F. Preparation of nano-nickel/magnesium-aluminum hydrotalcite/activated carbon composites and degradation of dye wastewater[J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 2016, 10(5): 2309-2314.
- [11] Sharma U, Tyagi B, Jasra R V. Synthesis and characterization of Mg-Al- CO_3 layered double hydroxide for CO_2 adsorption[J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2008, 47(23): 9588-9595.
- [12] Tojima M, Suhara S, Imamura M, et al. Effect of heavy asphaltene on stability of residual oil[J]. *Catalysis Today*, 1998, 43(3): 347-351.
- [13] Ayawei N, Ebelegi A N, Wankasi D. Modelling and interpretation of adsorption isotherms[J]. *Journal of Chemistry*, 2017, 2017(1): 1-11.
- [14] 李明艳, 崔爽, 刘宁宁. 金属有机骨架材料ZIF-67对甲基橙的吸附性能[J]. *辽宁石油化工大学学报*, 2021, 41(4): 34-40.
Li M Y, Cui S, Liu N N. Adsorption properties of metal organic frameworks ZIF-67 on methyl orange[J]. *Journal of Liaoning Petrochemical University*, 2021, 41(4): 34-40.
- [15] Rajic N, Stojakovic D, Jevtic S, et al. Removal of aqueous manganese using the natural zeolitic tuff from the vranjska banja deposit in serbia[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, 172(2): 1450-1457.
- [16] Wang Q, Tay H H, Chen L W, et al. The effect of trivalent cations on the performance of Mg-M- CO_3 layered double hydroxides for high-temperature CO_2 capture[J]. *Chemosuschem*, 2010, 3(8): 965-973.
- [17] Prasanna S V, Kamath P V. Chromate uptake characteristics of the pristine layered double hydroxides of Mg with Al[J]. *Solid State Sciences*, 2008, 10(3): 260-266.
- [18] Khitous M, Salem Z, Halliche D. Removal of chromium from synthetic and real effluents using uncalcined MgAl- NO_3 layered double hydroxide: Column study and modeling[J]. *Separation Science & Technology*, 2015, 50(16): 2458-2466.
- [19] 张法智, 段雪. 插层结构无机功能材料的组装化学及工程[C]. *中国化学会第二十五届学术年会论文摘要集(下册)*. 北京: 中国化学会, 2006: 61.
- [20] 胡小平, 衡惠敏, 卢涛, 等. 镁铝层状双金属氢氧化物的制备及表征[J]. *中国粉体技术*, 2012, 18(3): 31-35.
Hu X P, Heng H M, Lu T, et al. Preparation and characterization of Mg Al layered bimetallic hydroxide[J]. *Chinese Powder Technology*, 2012, 18(3): 31-35.
- [21] 贾雪梅, 程铁欣, 周广栋. 沥青质及其亚组分与烷基苯磺酸盐溶液在降低界面张力中的协同作用[J]. *高等学校化学学报*, 2020, 41(7): 1631-1637.
Jia X M, Cheng T X, Zhou G D. Synergistic effect of asphaltene and its sub components and alkylbenzene sulfonate solution in reducing interfacial tension[J]. *Chemistry Journal of Chinese Universities*, 2020, 41(7): 1631-1637.
- [22] Franco-Ariza C A, David J, Farid G C, et al. Adsorption and catalytic oxidation of asphaltenes in fumed silica nanoparticles: Effect of the surface acidity[J]. *Dyna*, 2016, 83(198): 171-179.

(编辑 闫玉玲)