

神华煤直接液化工工艺中硫元素的回收利用

吴 琼¹, 高宇龙², 刘柯澜³

(1. 中国神华煤制油化工有限公司, 北京 100011; 2. 中国神华煤制油化工有限公司 鄂尔多斯煤制油分公司, 内蒙古 鄂尔多斯 017000;
3. 神华宁煤集团 煤制油分公司, 宁夏 银川 750000)

摘 要:神华煤直接液化原料煤中的硫元素和催化剂助剂中的硫元素在煤直接液化过程中大部分转化为 H₂S 气体, 并分散于中压气、干气、液化气和酸性水中。为满足产品质量和工艺技术指标要求, 并回收循环利用硫元素, 鄂尔多斯煤直接液化项目采用气体脱硫工艺回收中压气、干气、液化气中 H₂S 气体, 装置运行稳定, 回收率分别为 97.28%、99.92% 和 99.99%; 采用污水汽提工艺分离收集酸性水中 H₂S 气体, 回收率达 99.6%; 脱硫回收和汽提收集到的含 H₂S 酸性气混合后采用 Claus 硫磺回收工艺将 H₂S 转化成硫磺, 平均每年回收硫磺 14 683.5 t, 硫磺产品作为催化剂助剂供煤液化反应和加氢稳定反应注硫使用, 从而实现硫元素循环利用, 减少了环境污染。

关键词:煤直接液化; 硫元素; 污水汽提; 气体脱硫; 硫磺回收

中图分类号: TQ529.1 文献标志码: A 文章编号: 1006-6772(2016)05-0095-05

Recycle of sulfur element in Shenhua direct coal liquefaction technology

WU Qiong¹, GAO Yulong², LIU Kelan³

(1. China Shenhua Coal to Liquid and Chemical Co., Ltd., Beijing 100011, China; 2. Ordos Coal Liquefaction Company, China Shenhua Coal to Liquid and Chemical Co., Ltd., Ordos 017000, China; 3. Group Coal to Liquid Company, Shenhua Ningxia Coal Industry Yinchuan 750000, China)

Abstract: Sulfur in coal feedstock and catalyst additives most converted to H₂S and went into middle-pressure process gas, dry gas, LPG, and acid water during Shenhua coal direct liquefaction process. In order to meet the requirements of products quality and process condition, the gas desulfurization process was employed by Erdos direct coal liquefaction demonstration plant to recycle sulfur element in gas component. The sulfur recovery rates of middle-pressure process gas, dry gas, LPG reached 97.28%, 99.92% and 99.99% respectively. The stripping process was used to removed H₂S from acid water and the recovery rate was up to 99.6%. The H₂S from stripping process and desulfurization process was mixed first, then the H₂S was converted to sulfur by Claus sulfur recycle process and the average recycling quantity was 14 683.5 t/a. Sulfur product was used as catalyst additives of coal liquefaction reaction and injected sulfur of hydrogenation reaction to realize sulfur element recycle and reduce the pollution of the environment.

Key words: direct coal liquefaction; sulfur element; stripping process; sulfur removal from gas; sulfur recycle

0 引 言

近年来我国大气质量逐年下降, 主要大气污染物排放量居世界首位, 区域性、复杂型大气污染严重。大量研究证明 SO₂、NO_x 和可吸入颗粒物是雾霾的主要组成, 煤炭燃烧的烟气、工业废气和汽车尾气等排放的大量 SO₂ 和 NO_x, 与水泥、建筑等行业产

生的扬尘结合雾气形成了雾霾^[1]。为降低 SO₂ 排放, 减少大气污染, 环保部和质量监督检验检疫总局先后 2 次发布污染物排放标准, 严格限制燃煤锅炉和炼油工业 SO₂ 排放。2011 年 7 月 29 日发布 GB 13223—2011《火电厂大气污染物排放标准》, 要求自 2014 年 7 月 1 日起现有燃煤锅炉烟气 SO₂ 排放限值为 200 mg/m³, 新建锅炉烟气 SO₂ 排放限值为

收稿日期: 2016-05-16; 责任编辑: 孙淑君 DOI: 10.13226/j.issn.1006-6772.2016.05.018

基金项目: 神华集团科研资助项目(SHJT-13-30)

作者简介: 吴 琼(1983—), 男, 内蒙古鄂尔多斯人, 工程师, 硕士, 从事煤制油化工行业规划与项目前期管理工作。E-mail: wuqiong@cslc.com

引用格式: 吴 琼, 高宇龙, 刘柯澜. 神华煤直接液化工工艺中硫元素的回收利用[J]. 洁净煤技术, 2016, 22(5): 95-99, 52.

WU Qiong, GAO Yulong, LIU Kelan. Recycle of sulfur element in Shenhua direct coal liquefaction technology[J]. Clean Coal Technology, 2016, 22(5): 95-99, 52.

100 mg/m³,重点地区的锅炉烟气 SO₂ 特别排放限值为 50 mg/m³。2015 年 4 月 16 日发布 GB 31570—2015《石油炼制工业污染物排放标准》,要求新建企业自 2015 年 7 月 1 日起,现有企业自 2017 年 7 月 1 日起,一般地区工艺加热炉 SO₂ 排放限值为 100 mg/m³,酸性气回收装置 SO₂ 排放限值为 400 mg/m³;大气环境容量小,生态环境脆弱,容易发生严重大气污染的地区工艺加热炉 SO₂ 排放限值为 50 mg/m³,酸性气回收装置 SO₂ 排放限值为 100 mg/m³。面对日益严格的环保要求,神华鄂尔多斯煤直接液化项目利用自身工艺多次加氢的特点,生产出清洁高效的油品,产品具有低硫(约 1×10⁻⁶)、低氮(约 1×10⁻⁶)、低芳烃(2%以下)、低凝点(-70℃)、高热值和高热容等特点,从汽车尾气排放端减少了 SO₂ 等污染物的排放。同时项目投入了大量资金和人力开展污染物回收利用的研究,并总结生产运行经验,有针对性地实施了技术改造。如何加强煤直接液化污染物回收和循环利用,减少污染物排放,成为煤直接液化工艺当前及未来的重要研究领域。

1 煤直接液化过程硫元素的转化

神华煤直接液化工艺中硫元素主要来源于原料煤中的硫元素和催化剂助剂中的硫元素,两项合计占总硫的 98% 左右。原料煤中的硫分为无机硫和有机硫两类,无机硫主要以黄铁矿硫、硫酸盐硫形态存在,有机硫主要以硫醇、硫醚、噻吩、苯并噻吩、二苯并噻吩等形态存在。催化剂助剂为液硫和二硫化碳。

煤直接液化过程中液化原料煤中的硫元素和催化剂助剂中的硫元素经过煤液化反应、加氢稳定反应、加氢改质反应三级加氢,大量转变为 H₂S,这些 H₂S 分散到 3 股物料中,一部分进入加氢反应后的中压分离气和干气,另一部分进入水相中形成含硫酸性水,剩余部分与硫醇等有机硫溶解在液化气中^[2]。

气化原煤中的硫元素经过煤气化反应、变换反应后转变为 H₂S 和少量的 COS,再经低温甲醇洗浓缩 H₂S,产生的 H₂S 酸性气送往硫磺回收^[3-4]。

2 含硫污水中 H₂S 的收集

2.1 含硫污水来源与污染物含量

神华鄂尔多斯煤直接液化项目煤液化、加氢稳

定、加氢改质、硫磺回收等装置运行中产生的含硫酸性水,均含有 H₂S 和 NH₃。项目采用污水汽提工艺对酸性水中的 H₂S 进行汽提收集,酸性水中污染物含量见表 1。

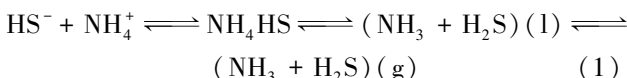
表 1 含硫污水污染物含量
Table 1 Contamination content of sulphur-bearing sewage

来源	kg/h				
	H ₂ S 含量	NH ₃ 含量	CO ₂ 含量	挥发酚 含量	油类 含量
煤液化	982	823	706	446.5	1900.3
加氢稳定	490	655	41	40.3	12.2
加氢改质	104	94			4.1
硫磺回收	0.3	0.2			

根据各装置产生的含硫污水量及表 1 中污染物含量计算,煤液化装置含硫污水 H₂S 含量 1.92%,加氢稳定装置含硫污水 H₂S 含量 1.38%,加氢改质装置含硫污水 H₂S 含量 1.27%,硫磺回收装置含硫污水 H₂S 含量 0.02%。

2.2 含硫污水汽提收集 H₂S 原理

煤直接液化产生的含硫污水是 H₂S-NH₃-H₂O 三元水溶液,NH₃ 和 H₂S 在水中处于化学、电离、相平衡状态:



水解反应和解析都是吸热反应,当温度升高,平衡向右移动;随着 H₂S 和 NH₃ 不断被分离出去,气相分压降低,平衡进一步向右移动。利用 H₂S 和 NH₃ 在水中的溶解度和挥发度不同,在加热和汽提作用下除去含硫污水中的 H₂S 和 NH₃^[5]。

2.3 污水汽提收集 H₂S 流程

脱 H₂S 塔在一定压力下操作,有利于 NH₃ 溶解于水,对 H₂S 的影响较小,因此为得到高浓度的 H₂S 酸性气体,在脱 H₂S 塔中、上部建立较高压力和低温条件,进行以吸收—精馏为主的过程,使塔内上升气流中的 NH₃ 被洗涤进入液相后,以 NH₄HS、(NH₄)₂S 形式被“固定”下来。在塔的下段则为解析被“固定”的铵盐,并将解析出来的 H₂S 和 NH₃ 汽提分离,最终在脱 H₂S 塔底得到脱 H₂S 中间污水。

2.4 污水汽提收集 H₂S 效果分析

神华鄂尔多斯煤直接液化项目在原设计基础上,结合实际运行经验,通过添加破乳剂、提高操作

压力和操作温度、实施含硫污水管线升级改造、汽提塔塔盘改造、塔底重沸器材质升级改造、增加注碱系统等措施,改进了汽提工艺,提高了 H₂S 回收率。目前装置运行稳定,各项指标达到工艺要求,以下为污水汽提回收 H₂S 效果分析,数据取自 DCS(集散控制系统)数据和现场化验,结果见表 2。

表 2 污水汽提效果

Table 2 Effect of sewage stripping process

物料	流量/ (t·h ⁻¹)	硫化物 含量/%	硫化物含量/ (t·h ⁻¹)
处理前污水	102.39	0.96	0.980
处理后污水	81.60	0.004 9	0.004
分离后酸性气	2.58	37.82	0.976

装置满负荷运行时污水进料流量为 102.39 t/h,硫化物含量为 0.96%,硫化物含量 0.98 t/h;经污水汽提工艺处理后污水流量为 81.60 t/h,硫化物含量为 0.004 9%,硫化物含量 0.004 t/h;通过汽提工艺分离出含 H₂S 酸性气体总流量 2.58 t/h,酸性气中 H₂S 含量 37.82%;经计算污水中回收 H₂S 气体含量 0.976 t/h,回收率为 99.6%。

3 含硫气体中 H₂S 收集

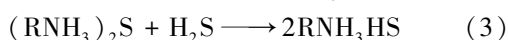
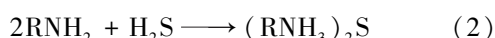
含硫气体主要来自煤液化生产中心部分装置的中压气和轻烃回收装置的干气。神华煤直接液化工艺采用气体脱硫工艺回收中压气和干气中的 H₂S 气体,确保中压气和干气达到工艺技术指标要求。

3.1 含硫气体硫含量

煤液化低分气、煤液化膜分离三级氢、加氢稳定低分气、加氢改质低分气进入气体脱硫工艺装置后混合为中压气,中压气组分主要为 H₂ 和 CH₄,H₂S 体积分数为 0.18%;轻烃回收装置干气组分主要为 H₂、CH₄ 及 C₂ 组分,H₂S 体积分数为 0.41%。脱硫装置原料气组成实测数据见表 3。

3.2 H₂S 收集工艺原理

含硫气体采用醇胺法脱硫,即用弱碱性水溶液贫液为吸收剂,在吸收塔内吸收原料气体中 H₂S,吸收了 H₂S 的水溶液在再生塔内加热进行溶液再生,再生后的贫液循环使用^[6]。反应如下:



式中,R 为醇基。

表 3 脱硫装置原料气组成

Table 3 Composition of feed gas in desulfurizer %

原料气组成	中压气	干气
φ(H ₂)	82.49	55.27
φ(N ₂)	2.58	2.14
φ(CO)	0.89	3.75
φ(CO ₂)	1.02	2.38
φ(CH ₄)	6.21	23.50
φ(乙烷+乙烯)	2.95	10.14
φ(C ₃)	2.19	0.93
φ(C ₄)	0.80	0.54
φ(H ₂ S)	0.18	0.41
其他	0.69	0.94

3.3 工艺流程

中压气进入中压气脱硫塔的下部。贫胺液从塔上部进入,与中压气在塔内逆流接触,气体中的 H₂S 及部分 CO₂ 被胺液吸收并自塔底流出,净化中压气送往 PSA 变压吸附系统回收 H₂。

干气分液后进入干气脱硫塔下部,贫胺液从塔上部进入,与干气在塔内逆流接触。气体中的 H₂S 及部分 CO₂ 被胺液吸收并自塔底流出,净化干气送至燃料气系统作为工艺加热炉燃料。

3.4 含硫气体回收 H₂S 效果分析

神华鄂尔多斯煤直接液化项目采用醇胺法脱硫工艺,运行初期系统干气来料量约为 50 000 m³/h,超设计负荷 30% 左右(按装置 110% 最大操作弹性计算,超最大能力 18%),过大的气相负荷导致塔在进料量波动或胺液质量发生变化时频繁出现发泡液泛情况,严重影响净化干气产品质量。同时造成胺液损失量较大,装置的能耗增加,脱硫塔脱硫效率降低,影响全厂管网、制氢装置等主工艺装置的安全稳定运行。

针对上述问题,鄂尔多斯煤制油公司对干气脱硫系统进行扩能改造,在原有支撑圈、降液板、受液盘等固定件不变的前提下,更换原有塔盘,改造机泵,并对贫胺液管线和富胺液管线进行了扩径。

改造后装置运行稳定,正常工况下满足回收中压气和干气中 H₂S 的生产要求,且保持高回收率。以下为含硫气体回收 H₂S 效果分析,数据取自 DCS(分散控制系统)数据和现场化验。净化后的中压气和干气组成见表 4。

对比表 3 和表 4,经醇胺法脱硫原料中压气中 H₂S 体积分数由 0.18% 下降到 0.004 9%,脱硫率达

97.28% ;干气中 H_2S 体积分数由 0.41% 下降到 0.000 31% ,脱硫率达 99.92% 。

表4 净化中压气和干气组成

Table 4 Composition of purified middle-pressure

gas and dry gas

%

产品气组成	净化中压气	净化干气
$\varphi(H_2)$	84.03	55.01
$\varphi(N_2)$	2.75	2.71
$\varphi(CO)$	0.77	3.98
$\varphi(CO_2)$	0.72	1.58
$\varphi(CH_4)$	5.72	23.84
$\varphi(\text{乙烷}+\text{乙烯})$	2.72	10.27
$\varphi(C_3)$	1.92	0.93
$\varphi(C_4)$	0.62	0.55
$\varphi(H_2S)$	0.004 9	0.000 31
其他	0.74	1.13

装置满负荷运行时,原料中压气和干气中的 H_2S 经脱硫塔吸收转移到酸性气中, H_2S 酸性气体总流量 3.26 t/h,酸性气中 H_2S 体积分数 25.31% ;经计算酸性气中回收 H_2S 气体 0.825 t/h。

4 液化气中硫收集

4.1 液化气硫含量

神华煤直接液化工艺中轻烃回收装置生产的液化气含有 H_2S 、硫醇、羟基硫等有机硫,有毒性、腐蚀性和恶臭,不能直接满足液化气产品质量标准。因此,项目采用了脱硫工艺和脱硫醇工艺对液化气中含有的 H_2S 、硫醇、羟基硫等进行了脱除并收集^[7]。液化气组分主要为 C_3 和 C_4 组分, C_3 组分体积分数为 63.77% , C_4 组分体积分数为 31.30% ,硫含量为 0.5% 。

4.2 液化气中硫收集原理

液化气脱除 H_2S 同样采用醇胺法脱硫。

脱硫醇工艺原理:用 NaOH 水溶液加磺化钛氰钴做贫液吸收剂,在纤维膜反应器内碱液在催化剂作用下与原料气体中 H_2S 和硫醇反应,脱除液化气中的微量 H_2S 及大部分硫醇^[8-9]。

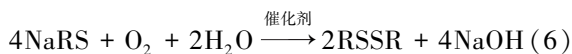
在纤维膜反应器中发生的微量 H_2S 脱除反应:



液化气中的硫醇碱抽提反应:



硫醇钠的氧化和碱液的再生反应:



4.3 工艺流程

液化气送至脱硫塔下部,贫胺液冷却后从塔上部进入,液化气和贫胺液在塔内逆流接触,液化气中的 H_2S 被胺液吸收并从塔底流出。脱 H_2S 后的液化气进入脱硫醇装置,除去杂质后进入脱硫反应器顶部,与循环碱液在反应器中完成 H_2S 、硫醇的脱除反应,反应后的液化气和碱液进行沉降分离,分离出的液化气去水洗部分进行水洗,底部碱液进行再生。

4.4 液化气脱硫效果分析

神华鄂尔多斯煤直接液化项目液化气脱硫和脱硫醇装置运行稳定,正常工况下满足液化气产品质量要求,且保持高脱除率。根据 DCS 采集数据和现场分析化验数据计算,液化气经脱 H_2S 和硫醇后 H_2S 含量由 0.5% 下降到 0.000 11% ,脱硫率达 99.99% 以上,完全达到产品质量要求。

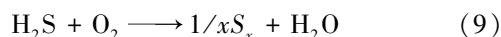
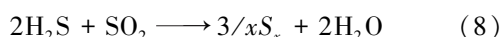
5 硫磺回收利用

经污水汽提后的酸性气、气体脱硫产生的酸性气与煤气化低温甲醇洗后浓缩的 H_2S 酸性气混合后进入硫磺回收工艺阶段,该过程为煤直接液化含硫废水、废气处理、回收硫磺最后环节。

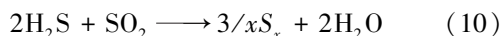
5.1 反应原理

硫磺回收采用 Claus 部分燃烧法工艺,即将全部酸性气引入制硫燃烧炉,在炉中按制硫所需 O_2 量控制配风比,使 H_2S 在炉中约 50% 发生高温反应生成气态硫磺。未反应的 H_2S 和 SO_2 再经过转化器,在催化剂的作用下,进一步制硫^[10]。尾气处理部分采用加氢还原—吸收工艺 SSR,在 LS-951 催化剂的作用下进行加氢、水解反应,使尾气中的 SO_2 、 S_2 、 COS 、 CS_2 还原、水解为 H_2S ^[11-12]。

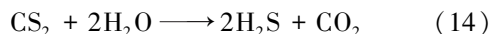
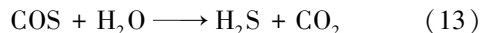
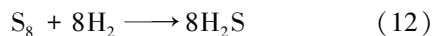
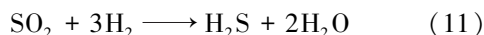
在燃烧炉内反应:



在一、二级转化器内反应:



在加氢反应器内反应:



5.2 主要工艺流程

硫磺回收处理的酸性气及产品去向如图 1 所示。

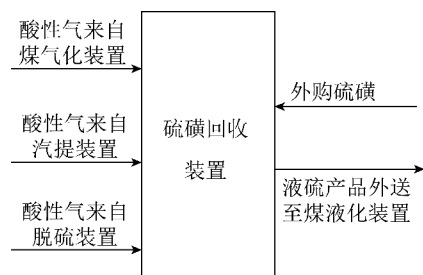


图1 硫磺回收物料流程

Fig. 1 Process of sulphur recycle materials

含 H_2S 酸性气进入制硫燃烧炉,在制硫燃烧炉内含量约 50% 进行高温克劳斯反应,并转化为硫,余下的 H_2S 中有 1/3 转化为 SO_2 。制硫燃烧炉排出的高温过程气冷凝分离液体硫磺与过程气,液体硫磺进入硫封罐,过程气依次通过一级转化器和二级转化器,在催化剂的作用下, H_2S 和 SO_2 转化为硫磺。反应后液体硫磺进入硫封罐,脱气后的液硫送至煤液化装置作为催化剂助剂,顶部出来的制硫尾气与 H_2 混合后发生加氢反应转化为 H_2S 返回脱硫装置。

5.3 硫磺回收效果分析

神华鄂尔多斯煤直接液化项目硫磺回收装置运行初期出现了一些问题。例如:① 尾气加热器结垢换热效果较差,影响加氢反应器反应效果;② 蒸汽过热器换热面积不足,尾气焚烧炉产生的高温烟气无法将制硫余热锅炉产生的 3.5 MPa 饱和蒸汽过热至蒸汽管网要求的指标;③ 进入急冷塔系统气相负荷约为 $10\,973\text{ m}^3/\text{h}$,高于原设计值,导致急冷水冷却器换热面积不能满足要求,影响吸收塔吸收效果。

针对上述问题,鄂尔多斯煤制油公司根据运行经验对尾气加热器、蒸汽过热器、急冷水冷却器进行了技术改造。

改造后装置实现稳定运行,加工能力满足煤液化装置高负荷运转。根据 DCS 采集数据和现场分析化验数据计算,混合后酸性气进料流量为 $8\,285\text{ kg/h}$, H_2S 体积分数为 26.25%;混合气中除了含有 H_2S 外,也含有少量的 CS_2 、 COS 和硫醇。

酸性气中 H_2S 经硫磺回收装置处理后生产出液体硫磺产品,硫磺流量为 $1\,974\text{ kg/h}$,纯度为 99.2%。合格产品经管道运输至煤液化装置,供煤液化装置和加氢稳定装置注硫使用。硫磺产品的用途是催化剂助剂,设计指标和控制指标 $\geq 99\%$;产量为 $14\,683.5\text{ t/a}$ 。

硫磺回收装置 H_2S 转化率为 98.38%,平均回

收硫磺 $14\,683.5\text{ t/a}$,根据全厂硫平衡测算,煤中硫和催化剂助剂加入的硫元素,经过收集、回收,最终以硫磺形态回收的硫元素占总硫的 38.43%,回收硫磺供煤液化装置和加氢稳定装置注硫,实现循环利用。

6 结 语

神华鄂尔多斯煤直接液化项目采用气体脱硫、污水汽提等工艺技术分离收集中压气、干气、液化气、含硫污水中 H_2S 气体及少量的硫醇等有机硫,经过在运行初期对操作条件的不断摸索,并针对运行中出现的问题,通过实施有效的技术改造措施,工艺装置实现了稳定运行,且具有较高的回收率,达到产品质量和工艺技术指标要求。回收的含 H_2S 酸性气采用 Claus 硫磺回收工艺将 H_2S 转化成硫磺, H_2S 转化率为 98.38%,平均每年回收硫磺 $14\,683.5\text{ t}$,回收硫磺全部作为催化剂助剂循环利用,减少环境污染。

参考文献 (References):

- [1] 刘 强,李 平. 大范围严重雾霾现象的成因分析与对策建议 [J]. 中国社会科学院研究生院学报,2014(5):63-68.
Liu Qiang, Li Ping. An analysis on the causes of large-scale smog in china and policy recommendation [J]. Journal of Graduate School of Chinese Academy of Social Sciences, 2014(5):63-68.
- [2] 吴秀章,石玉林,马 辉. 煤炭直接液化油品加氢稳定和加氢改质的试验研究 [J]. 石油炼制与化工,2009,40(5):1-5.
Wu Xiuzhang, Shi Yunlin, Ma Hui. Study on the hydrogenation and hydro-upgrading of oil product from direct coal liquefaction process [J]. Petroleum Processing and Petrochemicals, 2009, 40(5):1-5.
- [3] 许仁春. Shell 煤粉气化高水气比 CO 耐硫变换工艺流程优化 [J]. 中氮肥,2011(5):1-4.
Xu Renchun. Optimization of high water/gas ratio CO shift process flow [J]. M-Sized Nitrogenous Fertilizer Progress, 2011(5):1-4.
- [4] 刘 庆. NHD 和低温甲醇洗酸性气脱除工艺的比较和选择 [J]. 煤化工,2008,36(2):40-43.
Liu Qing. Comparison and selection of two acid gas removal processes [J]. Coal Chemical Industry, 2008, 36(2):40-43.
- [5] 王建立. 煤制油酸性水汽提脱氨塔技术改造 [J]. 科技创新导报,2012(34):94-95.
- [6] 陈丁鹤,杨桂荣. 干气脱硫的参数控制 [J]. 当代化工,2009,38(6):603-605.
Chen Dinghe, Yang Guirong. Parameter control for dry gas desulfurization [J]. Contemporary Chemical Industry, 2009, 38(6):603-605.

(下转第 52 页)

- Li Yuge, Cao Zubin, Zhao Rongxiang, *et al.* Technical progress in methanol downstream products[J]. *Petrochemical Technology & Application*, 2013, 31(6):526-529.
- [15] 连作桦. 甲醇一步法制芳烃(汽油)装置的运行情况[EB/OL]. (2012-12-10)[2016-06-06]. <http://www.doc88.com/p-3167137871510.html>.
- [16] 戴厚良. 芳烃生产技术展望[J]. *石油炼制与化工*, 2013, 44(1):1-10.
- Dai Houliang. Outlook of aromatics production technology[J]. *Petroleum Processing and Petrochemicals*, 2013, 44(1):1-10.
- [17] 曹劲松, 张军民, 许磊, 等. 甲苯甲醇烷基化制PX技术的开发优势[J]. *石油化工技术与经济*, 2010, 26(1):8-10.
- Cao Jinsong, Zhang Junmin, Xu Lei, *et al.* Superiorities for developing PX production process through alkylation of toluene alcohol[J]. *Technology & Economics in Petrochemicals*, 2010, 26(1):8-10.
- [18] 顾道斌. 甲苯甲醇催化烷基化制对二甲苯技术研究进展[J]. *天然气化工(C1化学与化工)*, 2013, 38(6):62-66.
- Gu Daobin. Research advances in technologies of catalytic alkylation of toluene with methanol to para-xylene[J]. *Natural Gas Chemical Industry*, 2013, 38(6):62-66.
- [19] 朱伟平, 李飞, 薛云鹏, 等. 甲醇制芳烃技术研究进展[J]. *现代化工*, 2014, 34(4):36-42.
- Zhu Weiping, Li Fei, Xue Yunpeng, *et al.* Advances in methanol to aromatics technology[J]. *Modern Chemical Industry*, 2014, 34(4):36-42.
- [20] 刘艳, 常琴琴, 杨萌, 等. 甲醇制芳烃工艺研究进展[J]. *化学工程*, 2015, 43(9):74-78.
- Liu Yan, Chang Qinqin, Yang Meng, *et al.* Research progress of methanol to aromatics[J]. *Chemical Engineering (China)*, 2015, 43(9):74-78.
- [21] 李木金, 杨卫胜, 贺来宾, 等. 甲苯甲醇择形甲基化工艺在芳烃联合装置中的应用[J]. *炼油技术与工程*, 2015, 45(5):6-9.
- Li Mujin, Yang Weisheng, He Laibin, *et al.* Research on application of toluene methanol selective methylation process in aromatic complex[J]. *Petroleum Refinery Engineering*, 2015, 45(5):6-9.
- [22] 邹薇, 杨德琴, 孔德金, 等. 硅改性HZSM-5沸石上甲苯与甲醇选择性甲基化的研究[J]. *化学反应工程与工艺*, 2006, 22(4):305-309.
- Zou Wei, Yang Deqin, Kong Dejin, *et al.* Selective methylation of toluene with methanol over HZSM-5 zeolite modified by chemical liquid deposition[J]. *Chemical Reaction Engineering and Technology*, 2006, 22(4):305-309.
- [23] 李霞. 我国甲醇制芳烃行业的前景研究[J]. *乙烯工业*, 2015, 27(2):15-17.
- Li Xia. Prospects of MTA industry in China[J]. *Ethylene Industry*, 2015, 27(2):15-17.
- [24] 米多. 2015年纯苯市场调查[J]. *化学工业*, 2015, 33(6):32-34.
- Mi Duo. The pure benzene market survey in 2015[J]. *Chemical Industry*, 2015, 33(6):32-34.
- [25] 郑宝山, 张东明, 李宇静. 我国石化行业分析——炼油、乙烯、芳烃现状和展望[J]. *化学工业*, 2013, 31(5):8-16.
- Zheng Baoshan, Zhang Dongming, Li Yujing. Analysis of China's petrochemical industry: refining, ethylene and aromatics status quo and outlook[J]. *Chemical Industry*, 2013, 31(5):8-16.
- [26] 崔小明. 我国对二甲苯生产技术现状及市场分析[J]. *上海化工*, 2012, 37(12):31-35.
- Cui Xiaoming. Production technology and market situation of p-xylene analysis in China[J]. *Shanghai Chemical Industry*, 2012, 37(12):31-35.
- [27] 李明. 我国对二甲苯的供需现状及发展建议[J]. *乙醛醋酸化工*, 2013(6):20-23.
- Li Ming. Supply and demand situation and development suggestions of p-xylene[J]. *Acetaldehyde Acetic Acid Chemical Industry*, 2013(6):20-23.
- (上接第99页)
- [7] 王运波, 柏海燕, 于洋飞. 液化石油气中硫化物浓度的表征及单位换算[J]. *石油与天然气化工*, 2016, 45(2):83-86.
- Wang Yunbo, Bai Haiyan, Yu Yangfei. Characterization and unit conversion of sulfides concentration in LPG[J]. *Chemical Engineering of Oil & Gas*, 2016, 45(2):83-86.
- [8] 莫娅南, 王伯. 液化气脱硫技术及其工业应用[J]. *炼油与化工*, 2011, 22(5):15-17.
- Mo Ya'nan, Wang Bo. LPG desulfurization technology and its industrial application[J]. *Refining and Chemical Industry*, 2011, 22(5):15-17.
- [9] 柯明, 许赛威, 李成翠, 等. 液化石油气脱硫醇技术进展[J]. *石油炼制与化工*, 2008, 39(3):22-27.
- Ke Ming, Xu Saiwei, Li Chengcui, *et al.* Progress in LPG sweetening process[J]. *Petroleum Processing and Petrochemicals*, 2008, 39(3):22-27.
- [10] 陈康良. 克劳斯法硫磺回收工艺技术发展评述[J]. *天然气与石油*, 2013, 31(4):23-28.
- Chen Gengliang. Review on development of claus process used for sulfur recovery[J]. *Natural Gas and Oil*, 2013, 31(4):23-28.
- [11] 殷树青, 徐兴忠. 硫磺回收及尾气加氢催化剂研究进展[J]. *石油炼制与化工*, 2012, 43(8):98-104.
- Yin Shuqing, Xu Xingzhong. Research headway of sulfur recovery and tail gas hydrogenation catalysts[J]. *Petroleum Processing and Petrochemicals*, 2012, 43(8):98-104.
- [12] 张黎, 肖鸿亮, 陈康良. SSR硫磺回收尾气处理工艺及其应用[J]. *石油与天然气化工*, 2014, 43(5):478-482.
- Zhang Li, Xiao Hongliang, Chen Gengliang. Process and application of tail gas treatment for SSR sulfur recovery[J]. *Chemical Engineering of Oil & Gas*, 2014, 43(5):478-482.