

文章编号: 0253-2697(2013)06-1157-06 DOI:10.7623/syxb201306016

阳离子微球与部分水解聚丙烯酰胺的絮凝作用

李光辉 张贵才 葛际江 周 帅 刘月亮

(中国石油大学石油工程学院 山东青岛 266580)

摘要:应用反相微乳液聚合制成了不同阳离子度聚丙烯酰胺微球(MPAM),通过黏度、浊度、Zeta 电势分析,研究了微球阳离子度、电解质浓度(C_E)对 MPAM-HPAM 复合体系聚沉规律的影响。实验结果表明,在临界聚沉盐浓度(C_{csc})时,复合体系由絮凝相转变为均匀分散体系,且 C_{csc} 随着微球阳离子度增大而增加。当 $C_E < C_{csc}$ 时,体系絮凝量随着 C_E 增加而增大,随着 HPAM 剂量增加先增大后减小,在电中和点附近,絮凝量达最大,这一趋势与体系中微球 Zeta 电势变化相对应;当 $C_E \geq C_{csc}$ 时,微球对分子量为 1400×10^4 的 HPAM 形成拟交联,可大幅提高体系黏度;这种均匀分散体系在蒸馏水稀释后,还能再次絮凝。

关键词:阳离子微球;HPAM 再利用;聚合物驱;提高采收率;临界聚沉盐浓度

中图分类号:TE357.4

文献标识码:A

Coagulation effect of cationic microspheres with residual hydrolyzed polyacrylamide

LI Guanghui ZHANG Guicai GE Jijiang ZHOU Shuai LIU Yueliang

(School of Petroleum Engineering, China University of Petroleum, Qingdao 266580, China)

Abstract: Polyacrylamide microspheres with different cationic degrees was synthesized using inversed microemulsion and effects of cationic degrees and electrolyte concentrations of microspheres on coagulation laws of a polyacrylamide microspheres and hydrolyzed polyacrylamide composite system was examined by means of viscometry, turbidimetry and the Zeta potential analysis. The experimental results show that the composite system evolves from a coagulation phase to a well-dispersed system at the critical coagulation salt content, which increases with the increase of cationic degrees of microspheres. When an electrolyte concentration is greater than a critical coagulation salt content, the coagulation volume of the system increases with the increase of electrolyte concentrations, moreover, it increases firstly then decreases with increasing the dose of hydrolyzed polyacrylamide. The coagulation volume of the system reaches to a maximum at the neutralization point of electron charge, which agrees well with the Zeta potential trend of microspheres of the system. When an electrolyte concentration is much greater than a critical coagulation salt content, the system viscosity of hydrolyzed polyacrylamide (14 million Dalton) increases strikingly due to a pseudo-crosslinking effect, but that of hydrolyzed polyacrylamide sharply drops down; especially when this evenly dispersed system is diluted with distilled water, coagulation can occur again.

Key words: cationic microspheres; hydrolyzed polyacrylamide reutilization; polymer flooding; enhanced oil recovery; critical coagulation salt content

聚合物驱后地层中残余大量的部分水解聚丙烯酰胺(HPAM),这些残余 HPAM 的再利用对聚合物驱后进一步提高油田采收率具有重要意义^[1-3]。阴离子聚电解质通过静电作用,会对阳离子微球形成包覆、絮凝等现象^[4-6],因此阳离子微球具有聚合物驱后残余 HPAM 再利用的潜在价值。且阳离子微球能提高阴离子聚电解质的黏弹性,增强 HPAM 黏弹驱油机理,

实现非均相驱替^[7-8]。在油田聚合物驱过程中,高分子量 HPAM 通过炮眼、孔喉等的机械剪切以及热、生物等降解作用,残余聚合物的分子量大幅下降。笔者采用分子量为 1400×10^4 和 100×10^4 的 HPAM 模拟地层中残余的 HPAM,制成了不同阳离子度(5%~50%)的纳米聚丙烯酰胺微球(MPAM),分析了 HPAM 浓度、阳离子度、盐浓度对 MPAM-HPAM 组

基金项目:国家自然科学基金青年科学基金项目(No. 51104170)资助。

第一作者:李光辉,男,1982年8月生,2004年毕业于石油大学(华东),现为中国石油大学(华东)博士研究生,主要从事油田化学与提高采收率研究。Email: Jakielgh@163.com

通信作者:张贵才,男,1966年3月生,1988年毕业于华东石油学院,现为中国石油大学(华东)教授、博士生导师,主要从事油田化学与提高采收率研究。Email: 13706368080@vip.163.com

成的复合体系相态变化规律的影响。

1 实验材料与方法

1.1 实验材料制备与表征

阳离子微球(MPAM)采用非离子表面活性剂体系,将丙烯酰胺和甲基丙烯酰氧乙基三甲基氯化铵(DMC)的水溶液分散在白油中,进行反相微乳聚合合成,交联剂的含量是水相质量的0.02%。经丙酮破乳并使用无水乙醇洗涤3次,在50℃下真空干燥24h,配制成1%水溶液作为母液,不同浓度微球使用母液稀释配制。微球的阳离子度以单体中DMC物质的量的浓度表示。采用桩西采油厂提供的分子量为 1400×10^4 和 100×10^4 的HPAM,前者特性黏度为2087 mL/g,水解度为25.2%,后者特性黏度为346 mL/g,水解度为25.8。为了描述方便,对复合体系进行编号,表示为MPAM _{α} -HPAM _{β} ,其中 α 表示微球的阳离子度, β 表示HPAM的分子量。例如,MPAM₂₀-HPAM₁₀₀表示阳离子度为20%的微球与分子量为 100×10^4 的HPAM复合体系。

1.2 临界交叠浓度

在水溶液中聚合物以线团形式存在,而微球由于表面交联密度低,表面离子水化后非常柔软,两者在结构上相似,都存在临界交叠浓度。通常聚合物或颗粒的临界交叠浓度由特性黏度法或零切黏度、弹性模量、平衡黏度等与聚合物浓度的变化关系来测定^[9]。笔者应用平衡黏度测量两者的临界交叠浓度。平衡黏度是指在某一剪切速率下,表观黏度随时间不再改变的平稳值。在此分别测量了HPAM₁₀₀、HPAM₁₄₀₀和MPAM₂₀、MPAM₅₀在30℃水溶液中的临界交叠浓度,确定了研究对象浓度范围。

1.3 临界聚沉盐浓度

电解质会造成絮凝体结构的重排^[10],随着电解质浓度(C_E)的变化,MPAM-HPAM复合体系初始生成白色絮凝体,然后逐渐分散。这里将完全分散时的电解质浓度定义为临界聚沉盐浓度(C_{csc})。临界聚沉盐浓度测定的实验方法如下:取10支10 mL的具塞试管,其中1支管加入质量比为1:1的0.2%HPAM和0.2%微球,并溶解过量NaCl作为对比样;其余9支管中加入相同浓度的HPAM与微球,质量比分别为1:9、2:8、3:7、4:6、5:5、6:4、7:3、8:2、9:1,保持混合液的总质量为5g,然后逐滴加入20%的NaCl溶液,通过观察法并结合体系浊度衡量体系稳定性,计算滴定终点时混合液中盐浓度,即为临界聚沉盐浓度。

1.4 沉淀量

在体系中电解质含量较低时,电解质不足以改变

HPAM在微球表面的吸附构型,使体系絮凝并生成沉淀。为了研究沉淀量的变化,参考Borkovec等人^[5-6]的研究结果可知,不同结构和分子量的聚电解质在颗粒表面的吸附,吸附层厚度一般都小于10 nm,远小于微球膨胀后粒径。因此,同一电解质浓度下,可以假定沉淀的密度基本相同,沉淀量取决于不同聚合物用量时絮凝颗粒的体积。在一定电解质浓度下,恒定MPAM和HPAM₁₀₀总质量浓度为1000 mg/L,改变HPAM₁₀₀和MPAM的质量比,在室温下放置5 d,记录沉淀量。

1.5 Zeta电势

在MPAM-HPAM复合体系中,电解质浓度增加,絮凝体逐渐减少,这一现象本质是两组分之间非价键相互作用(静电力、范德华力、空间作用等)的转变^[4]。为说明这一转变过程,笔者选取了MPAM₂₀-HPAM₁₀₀的复合体系,将微球的质量浓度固定为100 mg/L。在NaCl浓度分别为1%和1.5%时,改变HPAM的量(20~800 mg/L),将复合体系摇匀,室温(约15℃)下静置3 h,测定体系中微球的Zeta电势随HPAM加入量的变化,每个样品重复2次,取其平均值。

1.6 体系黏度

当 $C_E \geq C_{csc}$ 时,MPAM-HPAM分散体系相对均匀稳定。颗粒可以通过非价键作用对聚合物体系形成拟交联作用,改变体系的流变性^[11],在此考察了微球加入量对体系的黏度的影响。在0.1%HPAM溶液中,加入不同剂量的MPAM₂₀,分别测量了HPAM₁₀₀的1.5%NaCl溶液与HPAM₁₄₀₀的1.0%NaCl溶液的黏度变化规律。

1.7 稀释聚沉

当 $C_E \geq C_{csc}$ 时,质量分数分别为0.1%的MPAM₂₀与HPAM₁₀₀、HPAM₁₄₀₀配制成含有1.5%NaCl的均匀分散体系,分别加入蒸馏水,常温下观察混合的现象。

2 结果和讨论

2.1 HPAM与MPAM表征

图1为20%与50%阳离子度时微球膨胀前后的粒径体积分布,膨胀前为近单分散颗粒,平均粒径分别是68.57 nm和61.96 nm;膨胀后,微球粒径在100 nm、400~1000 nm、5000 nm处呈3个峰分布,且粒径分布较宽。

图2为平衡黏度法测定的HPAM溶液和微球分散液的临界交叠浓度。由图2(a)可见,随着HPAM质量浓度增加,黏度曲线分成3段不同斜率的直线。根据聚合物溶液浓度区域划分相关理论^[12],曲线第1处

折点对应 HPAM 由理想稀溶液向非缠连稀溶液过渡,曲线第 2 处折点为 HPAM 的临界交叠浓度。由图 2(a)可知,HPAM₁₀₀ 的两个临界质量浓度分别是 600 mg/L 和 2200 mg/L。对比图 2 中剪切速率分别为 10 s⁻¹ 和 25 s⁻¹ 的平衡黏度—质量浓度曲线可知,不同剪切速率下临界交叠浓度基本相同,说明实验条件下剪切速率对临界交叠浓度的测量影响较小。图 2(b)是在剪切率为 6 s⁻¹ 测定的 HPAM₁₄₀₀、MPAM₂₀ 及 MPAM₅₀ 水溶液的平衡黏度—质量浓度曲线。由图 2(b)可得,三者的临界交叠浓度依次为 1000 mg/L、2500 mg/L 和 2000 mg/L。

2.2 复合体系的临界盐浓度

图 3 为复合体系的临界盐浓度与 $m_{\text{HPAM}}/m_{\text{MPAM}}$ 的变化曲线。由图 3 可知,聚合物质量占两者总

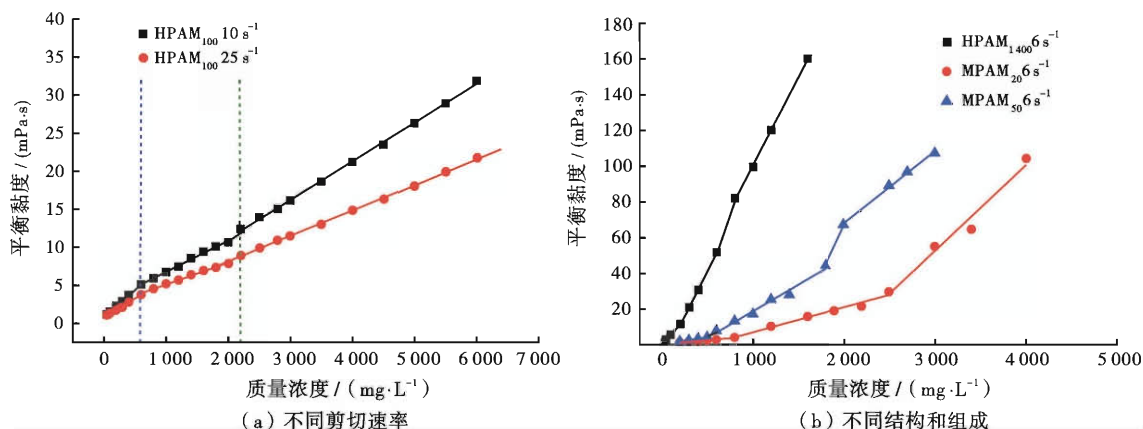


图 2 平衡黏度法测定不同体系的临界交叠浓度

Fig. 2 Critical overlap concentrations of different systems determined with equilibrium viscosity

质量的比例为 0.05~0.90 时,同一复配体系的临界盐浓度变化幅度很小,可视为体系的临界盐浓度与两物质的组成比例无关。可见,在实验条件下,MPAM-HPAM 复合体系的絮凝形成,可以由电解质浓度控制。并且 MPAM₂₀ 与 MPAM₅₀ 有不同阳离子度,随着 HPAM 相对含量变化有相同趋势。

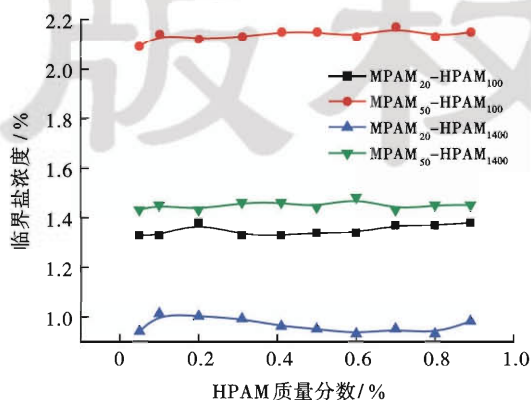


图 3 临界聚沉盐浓度随 HPAM 质量分数变化

Fig. 3 Relationship between C_{cs} and the mass fraction of HPAM

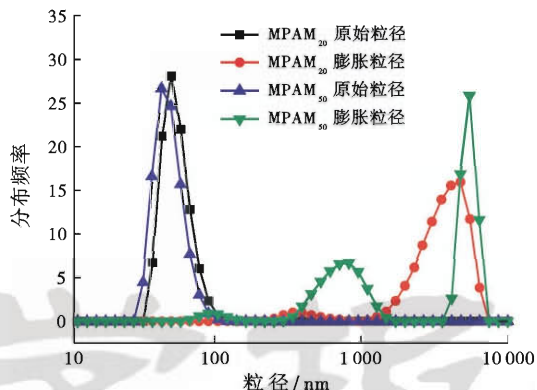


图 1 MPAM₂₀ 和 MPAM₅₀ 膨胀前后的粒径分布

Fig. 1 Microsphere diameters distribution of before and after swelling for MPAM₂₀ and MPAM₅₀

在此基础上,使用 1000 mg/L 的 HPAM 和 200 mg/L 的 MPAM,测定了不同阳离子度微球与两种分子量的 HPAM 复配的临界盐浓度。结果表明,随着微球的阳离子度上升,复合体系临界盐浓度增加(图 4)。聚电解质在带相反颗粒表面吸附时,存在圈状、尾状、链状、环绕构型^[13]。影响构型的因素较多,诸如聚电解质分子量、两者相对大小及电荷密度、表面官能团性能、电解质含量等。聚电解质吸附后形成的圈及尾伸出微球的扩散双电层外,则易形成块状絮凝。电解质通过两方面影响絮凝形状,即屏蔽电荷使聚合物部分解吸和压缩微球表面吸附聚合物使其趋向环绕在微球表面的平铺状吸附^[13-14]。通常随着阳离子度增加,电荷密度增加,表现为微球的 Zeta 电位增加(图 5),更易形成圈状吸附,因而需要更多的电解质屏蔽吸附位置,压缩 HPAM 在微球表面的吸附构型趋于平铺^[10];在阳离子度为 40% 与 50% 时,Zeta 电势下降,临界聚沉盐浓度依然增大,造成原因可能有 2 方面:①阳离子度升高导致的微球交联密度增加;②粒径变小。这 2 方面原因使得微球表面阳离子链节相距较近,而抑制 DMC

中氯离子的解吸,从而表现出 Zeta 电势降低,但是 HPAM 吸附时,氯离子的解析使体系熵增加^[4],有利于吸附过程,进而表现出表面电荷密度更大的微球特征。另外,在阳离子度等于 5% 时,HPAM₁₀₀ 体系的 C_{csc} 低于 HPAM₁₄₀₀ 体系的 C_{csc} ,原因是 1 000 mg/L 的 HPAM₁₀₀ 浓度远小于临界交叠浓度,5% DMC 微球容易填充在 HPAM 分子空隙,且静电作用力极小,无絮凝产生。当阳离子度大于 5% 时,HPAM₁₀₀ 体系的 C_{csc} 高于 HPAM₁₄₀₀ 体系的 C_{csc} ,是由于 HPAM₁₀₀ 线团半径小,可以在微球表面形成紧密的补丁状吸附层^[15],补丁之间存在空间和静电作用,难以压缩以改变其吸附构型,因而相对 HPAM₁₄₀₀ 需要更多的电解质屏蔽表面电荷。在常温下,MPAM-HPAM 体系在临界聚沉盐浓度以下,形成块状絮凝。因此,在应用阳离子微球进行聚合物驱后调剖时,可以根据地层矿化度选择合适阳离子度的微球。

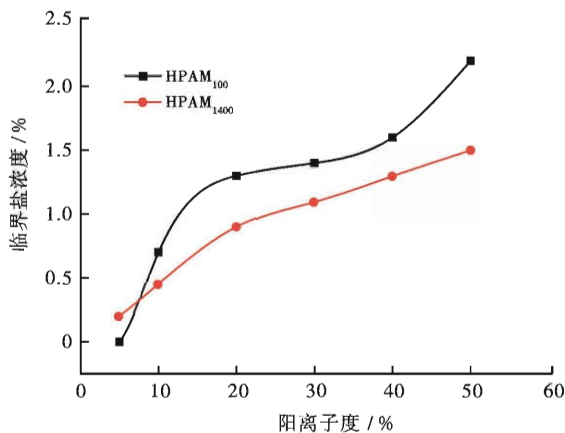


图 4 临界聚沉盐浓度与微球阳离子度的关系

Fig. 4 Relationship between C_{csc} and cationic degrees of microspheres

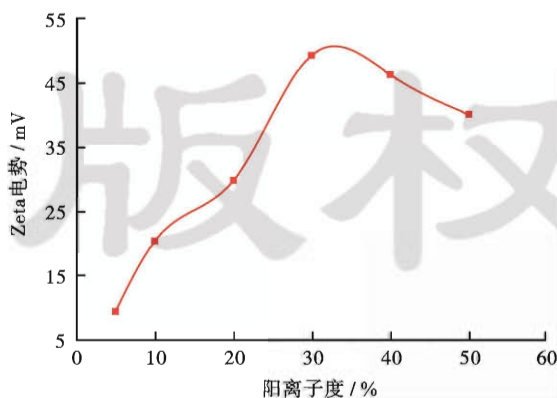


图 5 微球 Zeta 电势与阳离子度关系

Fig. 5 Relationship between Zeta potential and cationic degrees of microspheres

2.3 当 $C_E < C_{csc}$ 时复合体系沉淀量

图 6 为当 $C_E < C_{csc}$ 时,向微球悬浮液中加入 HPAM₁₀₀

的生成沉淀量与聚合物/微球质量比的变化曲线。随着聚合物量的增加,沉淀量先增加、后减少,表现出一个吸附—聚沉—过吸附—稳定的过程,这是聚电解质和相反电荷单分散颗粒相互作用的一般特征^[16]。MPAM₅₀ 沉淀峰值大于 MPAM₂₀,这是由于 MPAM₅₀ 微球表面吸附点多,吸附量也相应增大,以及盐浓度升高使微球稳定性变差共同造成最大沉淀量增加。由曲线 2 和曲线 3 可知,盐浓度增加,最大沉淀量增多,沉淀峰值变宽,这一结果与 Hierrezuelo 等的研究结果一致,即微球聚沉时,电解质浓度的增加,聚合物的浓度范围和吸附量增大。Hierrezuelo 等认为,盐浓度增加造成聚合物吸附层变的疏松所致,并估算吸附层体积约占其 95 nm 的苯乙烯颗粒体积的 10%~20%^[6]。而本实验中微凝胶的颗粒粒径为数百纳米,比 Hierrezuelo 实验的苯乙烯微球大的多,吸附层厚度相对较小,沉淀量的增加主要是形成沉淀的微球数量增加所致。且沉淀随着 HPAM 过量加入没有完全消失,是由于本实验的阳离子微球单分散性差,小颗粒的电荷密度大,先达到最大吸附量,因而出现沉淀逐渐增多的现象,而后由于小颗粒的吸附时发生电荷反向,使部分沉淀溶解而减少,由于部分大颗粒由于空间限制难以重新分散,从而表现出沉淀没有完全消失。

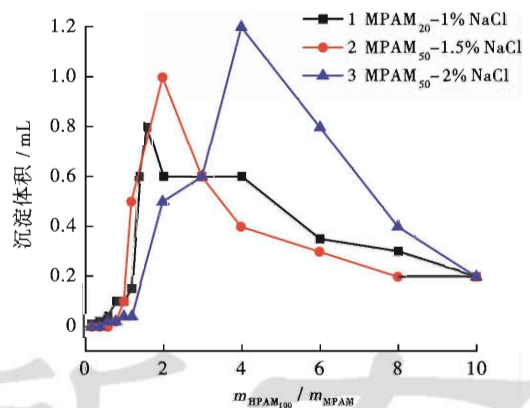


图 6 当 $C_E < C_{csc}$ 时聚沉体积与 $m_{HPAM_{100}} / m_{MPAM}$ 的关系

Fig. 6 Relationship between coagulation volume and the mass ratio of HPAM₁₀₀ and MPAM when $C_E < C_{csc}$

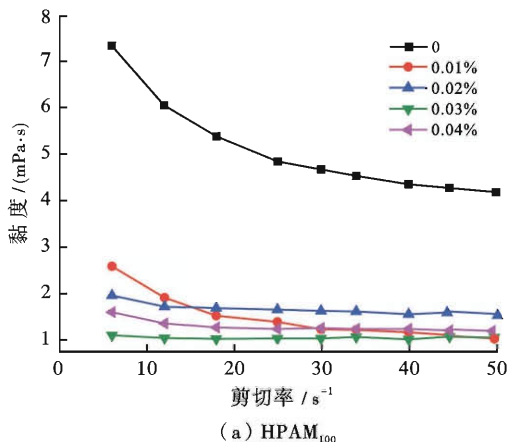
实验中还发现,在最大聚沉点附近聚沉速度最大,继续增加聚合物的相对含量,沉淀产生的速度变慢。这一沉淀速率变化趋势与 MPAM₂₀-HPAM₁₀₀ 体系中微球的 Zeta 电势密切相关,在电中和点附近电斥力变弱,范德华引力和补丁电荷作用使得体系聚沉加快^[17];聚合物量继续增加,颗粒表面聚合物吸附量增大,电荷反向,且 Zeta 电势增大,静电斥力增强,聚沉变慢(图 7)。此外,对比图 7 中 NaCl 浓度分别为 1%

与 1.5% 的曲线可知,随着盐浓度增加,电解质屏蔽作用增强,复合体系中颗粒的 Zeta 电势降低。在 1.5% NaCl 体系中,静电屏蔽作用使得颗粒的静电斥力作用减小,然而体系较为稳定。这与 Hierrezuelo 的研究结论有差异,其认为电解质浓度越大,体系越不稳定^[10]。这是由于颗粒表面吸附了较多聚合物线团,颗粒相互接近时,表面聚合物线团的空间斥力取代静电力成为体系稳定的主要作用^[14]。

在实际应用中,可以根据沉淀量变化曲线预先估计地层中残余 HPAM 的浓度,考虑微球在地层中运移时的稀释、扩散、反应等消耗,选择合适阳离子微球的浓度,控制最大沉淀量的生成位置,实现调剖深度控制。

2.4 当 $C_E \geq C_{csc}$ 时复合体系黏度及稀释聚沉现象

图 8 为当 $C_E \geq C_{csc}$ 时,MPAM₂₀ 的加入量对聚合物黏度的影响。在 HPAM₁₀₀ 溶液中[图 8(a)],加入 0.01%~0.04% 微球,体系的黏度大幅度下降。这是由于大量 HPAM 分子在微球表面紧密吸附,降低了溶液中 HPAM₁₀₀ 浓度,体系黏度也随之降低;且随着微球剂量的进一步增加,更多 HPAM₁₀₀ 产生吸附,体



系的黏度没有较大改变。在 HPAM₁₄₀₀ 体系中[图 8(b)],0.01% 微球即可大幅提高体系的黏度,且随着微球量的增加,体系的黏度持续增加,当微球浓度为 0.04% 时,增黏幅度可达 60%。根据 Einstein 相对黏度的表达式

$$\eta_r = 1 + 2.5\phi_p$$

式中: ϕ_p 为微球的体积分数, η_r 为相对黏度。

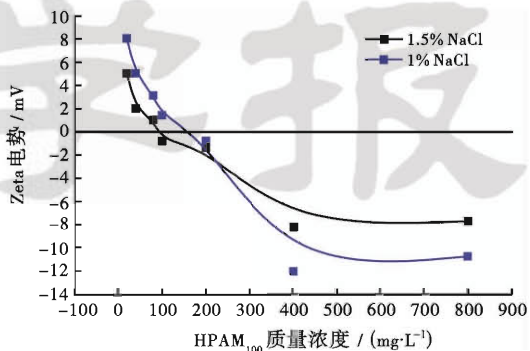


图 7 MPAM₂₀-HPAM₁₀₀ 复合体系中微球的 Zeta 电势随着 HPAM₁₀₀ 加入量的变化曲线

Fig. 7 The Zeta potential of microspheres in MPAM₂₀-HPAM₁₀₀ complex system changes with dose of HPAM₁₀₀

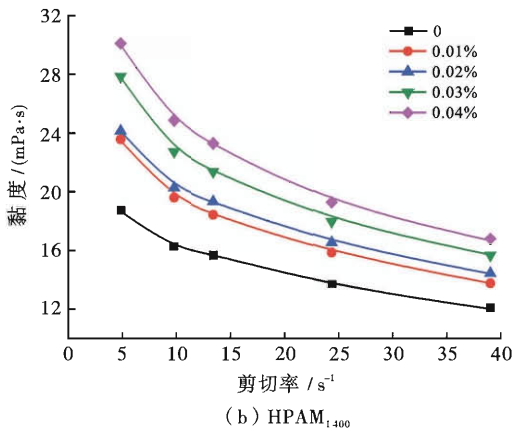


图 8 当 $C_E \geq C_{csc}$ 时 MPAM₂₀ 加入量对 HPAM₁₀₀ 和 HPAM₁₄₀₀ 黏度的影响

Fig. 8 Effect of MPAM₂₀ dose on the viscosity of HPAM₁₀₀ and HPAM₁₄₀₀ when $C_E \geq C_{csc}$

假定 MPAM 膨胀后的密度接近于水的密度,可以估算,质量分数为 0.04% 的微球加入水中,水黏度增加约 1 mPa·s,而体系黏度增加达 10 mPa·s,黏度增幅达 60%。这说明微球在聚合物体系中,由于两者的非价键力(静电力、氢键等)相互作用形成了拟交联,大幅提高了体系的黏度。由此可见,微球对不同分子量的 HPAM 的作用机理不同。对于 HPAM₁₀₀,分子线团直径相对较小,能以补丁状紧密吸附在微球表面,降低 HPAM 相互缠结,从而降低黏度;而对于 HPAM₁₄₀₀,分子线团直径较大,可能形成微球穿插与分子链之间的网络结构^[11]。

在临界盐浓度以上的 MPAM-HPAM 复合体系较为均匀稳定,室温下放置数天无絮凝沉淀。向体系中加入一定量的蒸馏水,由于蒸馏水对电解质的稀释作用,使电解质对微球和 HPAM 的静电屏蔽作用减弱,静电引力增强,体系再次聚沉。该特性对于注海水油田或注入水比地层水矿化度高的油水井调剖具有一定应用价值。

3 结 论

(1) 室温下,MPAM 与 HPAM 复合体系在一定的盐浓度下,存在聚沉至相对稳定的过程。这一临界

浓度与微球的阳离子度密切相关,受 $m_{\text{HPAM}}/m_{\text{MPAM}}$ 影响较小。

(2) 在溶液中电解质浓度低于临界盐浓度下,MPAM-HPAM 体系聚沉速度及沉淀量决定于 HPAM 与 MPAM 的质量比及盐浓度,在电中和点附近产生沉淀的速度最快,沉淀量最大,而且随盐浓度升高沉淀量增加。阳离子微球应用于聚合物驱后残余聚合物时,可根据地层矿化度选择微球阳离子度,并且根据残余聚合物的量选择合适微球浓度,控制最大沉淀量出现时间,可从而实现调剖深度控制。

(3) 在高于临界盐浓度下,MPAM 对 1400×10^4 HPAM 产生拟交联,有一定增黏作用。由于蒸馏水的稀释作用使 MPAM-HPAM 的复合体系能再次形成絮凝。

参 考 文 献

- [1] 王刚,王德民,夏惠芬,等. 聚合物驱后用甜菜碱型表面活性剂提高驱油效率机理研究[J]. 石油学报,2007,28(4):86-90.
Wang Gang, Wang Demin, Xia Huifen, et al. Mechanism for enhancing oil-displacement efficiency by betaine surfactant after polymer flooding[J]. Acta Petrolei Sinica, 2007, 28(4): 86-90.
- [2] 赵福麟,王业飞,戴彩丽,等. 聚合物驱后提高采收率技术研究[J]. 中国石油大学学报:自然科学版,2006,30(1):86-89.
Zhao Fulin, Wang Yefei, Dai Caili, et al. Techniques of enhanced oil recovery after polymer flooding[J]. Journal of the University of Petroleum, China: Edition of Nature Science, 2006, 30(1): 86-89.
- [3] 冯其红,史树彬,付晓,等. 残留聚合物再利用数值模拟研究[J]. 石油学报,2010,31(5):801-805.
Feng Qihong, Shi Shubin, Fu Xiao, et al. Numerical simulation of the residual polymer reutilization[J]. Acta Petrolei Sinica, 2010, 31(5): 801-805.
- [4] Zeng Z, Patel J, Lee S H, et al. Synthetic polymer nanoparticle-polysaccharide interactions: a systematic study[J]. Journal of the American Chemical Society, 2012, 134(5): 2681-2690.
- [5] Popa I, Gillies G, Papastavrou G, et al. Attractive and repulsive electrostatic forces between positively charged latex particles in the presence of anionic linear polyelectrolytes[J]. The Journal of Physical Chemistry B, 2010, 114(9): 3170-3177.
- [6] Hierrezuelo J, Vaccaro A, Borkovec M. Stability of negatively charged latex particles in the presence of a strong cationic polyelectrolyte at elevated ionic strengths[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2010, 347(2): 202-208.
- [7] 崔晓红. 新型非均相复合驱油方法[J]. 石油学报,2011,32(1):122-126.
Cui Xiaohong. A study on the heterogeneous combination flooding system[J]. Acta Petrolei Sinica, 2011, 32(1): 122-126.
- [8] 白玉湖,张贤松. 聚合物溶液黏弹性驱油微观机理[J]. 石油学报,2011,32(5):852-856.
Bai Yuhu, Zhang Xiansong. The microscopic mechanism of oil displacement by viscoelastic polymer solution flooding[J]. Acta Petrolei Sinica, 2011, 32(5): 852-856.
- [9] Li H, Hou W, Zhang Y. Rheological properties of aqueous solution of new exopolysaccharide secreted by a deep-sea mesophilic bacterium[J]. Carbohydrate Polymers, 2011, 84(3): 1117-1125.
- [10] Adachi Y, Aoki K. Restructuring of small flocs of polystyrene latex with polyelectrolyte[J]. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 2009, 342(1/3): 24-29.
- [11] Dennis J E St, Meng Q K, Zheng R B, et al. Carbon microspheres as network nodes in a novel biocompatible gel[J]. Soft Matter, 2011, 7(9): 4170-4173.
- [12] Ying Q, Chu B. Overlap concentration of macromolecules in solution[J]. Macromolecules, 1987, 20(2): 362-366.
- [13] Chodanowski P, Stoll S. Polyelectrolyte adsorption on charged particles; Ionic concentration and particle size effects—a Monte Carlo approach[J]. The Journal of Chemical Physics, 2001, 115(10): 4951-4960.
- [14] Borkovec M, Papastavrou G. Interactions between solid surfaces with adsorbed polyelectrolytes of opposite charge[J]. Current Opinion In Colloid & Interface Science, 2008, 13(6): 429-437.
- [15] Popa I, Gillies G, Papastavrou G, et al. Attractive electrostatic forces between identical colloidal particles induced by adsorbed polyelectrolytes[J]. The Journal of Physical Chemistry B, 2009, 113(25): 8458-8461.
- [16] Hierrezuelo J, Sadeghpour A, Szilagyi I, et al. Electrostatic stabilization of charged colloidal particles with adsorbed polyelectrolytes of opposite charge[J]. Langmuir, 2010, 26(19): 15109-15111.
- [17] Gillies G, Lin W, Borkovec M. Charging and aggregation of positively charged latex particles in the presence of anionic polyelectrolytes[J]. The Journal of Physical Chemistry B, 2007, 111(29): 8626-8633.

(收稿日期 2013-04-26 改回日期 2013-07-20 责任编辑 黄小娟)