

响应面优化氧化锌催化超声降解十二烷基苯磺酸钠

刘 宏¹, 陈 猛¹, 张 鹏¹, 杨留留¹, 陈厚望¹, 王利刚²

(1. 苏州科技大学环境科学与工程学院, 江苏苏州 215009;

2. 苏州汇天河环境技术有限公司, 江苏苏州 215000)

[摘要] 阴离子表面活性剂十二烷基苯磺酸钠(SDBS)具有亲水和亲油的双重性能, 广泛应用于日常生产生活的清洗作业中, 由此产生对水体环境及人体健康均有危害的难降解有机废水。采用氧化锌(ZnO)催化超声降解 SDBS, 探究影响 SDBS 降解效果的因素条件。通过单因素实验, 考察了 ZnO 投加量、超声功率、超声时间、温度、pH 等因素对 SDBS 降解效果的影响, 随后根据单因素实验结果, 采用三因素三水平的响应面分析法进行优化, 确定 SDBS 降解的最佳工艺条件。研究表明, ZnO 催化超声对 SDBS 有很好的降解效果, 单因素实验最佳处理条件: ZnO 投加量为 2 g/L, 超声功率为 300 W, 温度为 40 ℃, pH 为 11, 在此条件下 SDBS 降解率为 91%。响应面优化实验结果显示, ZnO 投加量与超声功率, 温度与超声功率两两交互作用明显, 其最佳降解工艺条件: 温度为 46 ℃, ZnO 投加量为 2.8 g/L, 超声功率为 246 W, 在此工艺条件下 SDBS 降解率最高可达 92%。研究结果为半导体材料催化超声降解废水中的阴离子表面活性剂提供了一定理论基础。

[关键词] 响应面法; 超声; 氧化锌; 十二烷基苯磺酸钠

[中图分类号] X703 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1005-829X(2022)08-0149-08

Optimization of ZnO-catalyzed ultrasonic degradation of sodium dodecylbenzene sulfonate by response surface methodology

LIU Hong¹, CHEN Meng¹, ZHANG Peng¹, YANG Liuliu¹, CHEN Houwang¹, WANG Ligang²

(1. *School of Environmental Science and Engineering, Suzhou University of Science and Technology, Suzhou 215009, China*; 2. *Suzhou Hthclean Co., Ltd., Suzhou 215000, China*)

Abstract: Sodium dodecylbenzene sulfonate (SDBS), an anionic surfactant with both hydrophilic and lipophilic properties, is widely used in the cleaning operation of daily production and life, resulting in difficult to degrade organic wastewater that is hazardous to the water environment and human health. ZnO-catalyzed ultrasound was used for degradation of SDBS, and the factors affecting the degradation effect of SDBS were investigated. The effects of ZnO dosage, ultrasonic power, ultrasonic time, temperature and pH on the degradation of SDBS were investigated by single-factor experiments. Subsequently, based on the results of single-factor experiments, a three-factor and three-level response surface analysis was used for optimization to determine the optimal process conditions of SDBS degradation. The results showed that ZnO-catalyzed ultrasound had a good degradation effect on SDBS. The optimal treatment conditions in the single-factor experiment were as follows: ZnO dosage 2 g/L, ultrasonic power 300 W, temperature 40 ℃, pH 11, and the degradation rate of SDBS was 91%. The results of the response surface optimization experiments showed that the interaction between ZnO dosage and ultrasonic power, and temperature and ultrasonic power was obvious, and the optimal degradation conditions were 46 ℃, ZnO dosage of 2.8 g/L and ultrasonic power of 246 W. The degradation rate of SDBS under these conditions was up to 92%. The results provide a theoretical basis for the catalytic ultrasonic degradation of anionic surfactants in wastewater by semiconductor materials.

Key words: response surface methodology; ultrasound; zinc oxide; SDBS

[基金项目] 国家自然科学基金青年基金项目(51708381); 江苏省自然科学基金面上项目(BK20181466); 江苏省苏州市民生科技项目(SS2019028)

十二烷基苯磺酸钠(SDBS)是一种阴离子表面活性剂,含有亲水基团和疏水基团,具有清洗、乳化分散、抗静电等功效,常用于工农业及日常清洗作业。SDBS易与污水中的污染物结合形成胶体,加重废水处理的难度^[1];同时,SDBS的积累具有一定生物毒性^[2]。目前国内外去除SDBS的主要方法有物理法、化学法、生物法。鉴于物理吸附法难以进行深度处理,且表面活性剂一般具有毒性,采用生物法处理时对微生物的生存环境有较高要求^[3],因此多数研究采用高级氧化技术降解SDBS,如Fenton氧化、光催化氧化、臭氧氧化等^[4-7]。但在实际废水处理中,由于废水常含有大量杂质且浊度较高,导致实际处理效果难以达到预期。超声波作为一种特殊的能量形式,在废水中的穿透性远远强于紫外光。用超声波代替紫外光能达到更好的降解效果^[8]。陈珊珊等^[9]对超声催化ZnO降解染料废水进行研究,结果表明罗丹明B染料降解率可达97.98%。可见超声催化ZnO在污染物的降解中具有应用潜力。

笔者采用ZnO催化超声降解SDBS,通过单因素实验考察了ZnO催化剂投加量、超声功率、温度、pH、SDBS初始浓度的影响;根据单因素实验结果,进一步用Box-Behnken中心组合设计原理设计实验,用Design-Expert12对数据进行处理,考察ZnO投加量、温度、超声功率对SDBS去除效果的影响以及因素之间的交互作用,最终确定最佳工艺条件。

1 实验材料与方法

1.1 试剂与仪器

试剂:十二烷基苯磺酸钠(质量分数99%),合肥千盛生物科技有限公司;氧化锌(质量分数99%),上海阿拉丁生化科技股份有限公司;甲醇,色谱纯;其他试剂均为分析纯。

仪器:Agilent1260型高效液相色谱仪,安捷伦科技(中国)有限公司;pH B-5型手持pH计,杭州德为仪器科技有限公司;超声波细胞粉碎机,宁波新芝生物科技股份有限公司;HH.S11-2-3型电热恒温水浴锅,上海跃进医疗器械厂。

1.2 单因素实验

取100 mL不同质量浓度的SDBS溶液,置于250 mL广口锥形瓶中,调节pH后加入一定量ZnO,置于设置好功率和反应时间的超声仪器中进行超声实验。每隔一定时间取上清液,经0.22 μm 微孔滤膜过滤后,测定

SDBS浓度。考虑的实验因素有超声辐射时间、催化剂投加量、超声功率、温度、pH、初始浓度。

1.3 响应面优化实验

根据单因素实验结果,选择ZnO投加量、超声功率、温度作为自变量,SDBS浓度为应变量,用Design-Expert12软件设计实验方案及响应面,对实验结果进行分析,获得最佳优化工艺条件。

1.4 分析方法

选择1 000 mg/L的SDBS标准溶液(GBW(E)081639)作为贮备液,逐级稀释配制一系列浓度梯度标准溶液,分别为1、2、4、8、10、15、20 mg/L,进行液相色谱分析,根据所得峰面积绘制标准曲线,如图1所示。

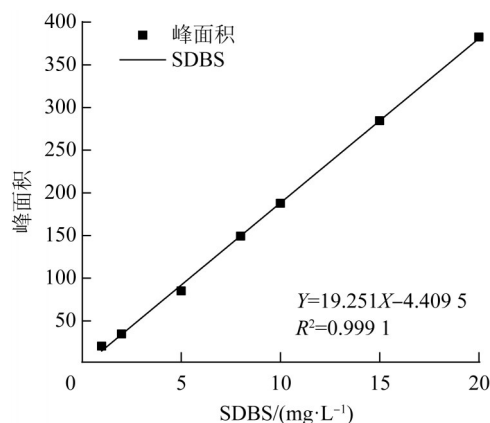


图1 SDBS质量浓度标准曲线

Fig. 1 Standard curve of SDBS mass concentration

仪器工作条件:C₁₈色谱柱(柱长150 mm,内径4.6 mm,粒径3.5 μm),柱温40 $^{\circ}\text{C}$,流动相^[10]为甲醇/水(体积比98:2),检测波长224 nm,进样体积5 μL ,流速1 mL/min。

2 结果与讨论

2.1 可行性研究

为验证ZnO能否催化超声降解SDBS,通过实验研究了超声、ZnO、ZnO催化超声3种方式对SDBS的降解效果,结果如图2所示。

由图2可见,仅有超声作用时SDBS的降解效果最差,3 h后SDBS降解率仅为15%。仅有超声作用时,因空化而产生的羟基自由基较少,对SDBS的降解率很低。仅使用ZnO时,因其具有吸附效果,一定程度上能去除SDBS,降解率也有所提升,为45%。在超声与ZnO的共同作用下,SDBS的降解率显著提升,反应3 h后

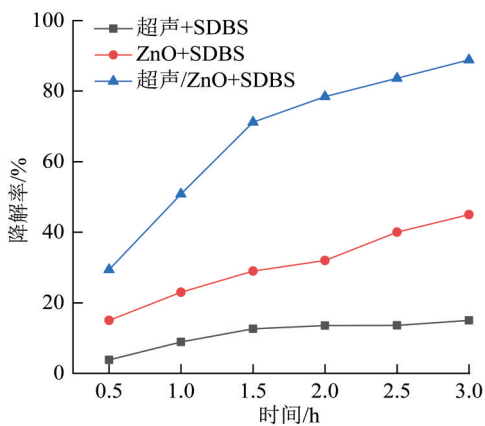


图2 不同处理方式对SDBS的降解效果

Fig. 2 Effects of different treatment methods on degradation of SDBS

SDBS降解率可达88.85%。可见ZnO催化超声弥补了单独超声、ZnO作用时的不足,增强了其催化效果,后续研究采用ZnO催化超声降解SDBS。

2.2 单因素实验

2.2.1 超声作用时间的影响

在ZnO投加量为2 g/L、超声功率为300 W、pH为11、温度为40 ℃的条件下,处理100 mg/L的SDBS废水,考察超声时间对SDBS降解的影响,结果如表1所示。

表1 超声作用时间对SDBS去除效果的影响						
Table 1 Effect of ultrasonic working time on SDBS removal						
时间/h	0.5	1.0	1.5	2.0	2.5	3.0
降解率/%	29.36	50.8	71.18	78.41	83.63	88.85
SDBS/(mg·L ⁻¹)	70.64	49.2	28.82	21.59	16.37	11.15

由表1可知,SDBS降解率随超声作用时间的延长而增大,在0~1.5 h范围内SDBS降解迅速,1.5 h时降解率达到71%。1.5~3 h内降解速率相对缓慢,3 h时降解率仅增长19%。在ZnO催化超声降解SDBS过程中,超声波在水中会发生空化作用产生羟基自由基,通过自由基氧化反应去除SDBS;且在超声的强化下,ZnO会发生类似光催化的电子跃迁,产生更多羟基自由基,从而进一步去除SDBS。超声作用时间越长,空化趋于饱和,空化强度降低,因此降解率提高缓慢。

2.2.2 催化剂投加量的影响

在超声功率为300 W、pH为11、温度40 ℃、超声作用时间为3 h的条件下处理100 mg/L的SDBS废水,考察ZnO投加量对SDBS降解率的影响,如表2所示。

表2 ZnO投加量对SDBS去除效果的影响					
Table 2 Effect of ZnO dosage on SDBS removal					
ZnO/(g·L ⁻¹)	0.5	1.0	2.0	3.0	4.0
降解率/%	59.6	75.5	87.72	84.57	79.2
SDBS/(mg·L ⁻¹)	40.4	24.5	12.28	17.43	20.8

由表2可知,ZnO投加量在0.5~2 g/L时,SDBS呈明显下降趋势,ZnO为2 g/L时SDBS达到最低值,降解率最高,为87%,这是由于ZnO在超声作用下发生电子跃迁产生羟基自由基,氧化分解水中的污染物。ZnO投加量为2~4 g/L时,最终SDBS质量浓度随ZnO的增加而升高,降解率降低。当ZnO达到一定值时,过多的固体介质会阻碍超声波的传递性能,降低超声波的利用率,从而影响SDBS的降解。

2.2.3 超声功率影响

在催化剂投加量为2 g/L、pH为11、温度为40 ℃、超声作用时间为3 h的条件下处理100 mg/L SDBS废水,考察超声功率对SDBS降解率的影响,如表3所示。

表3 超声功率对SDBS去除效果的影响					
Table 3 Effect of ultrasonic power on SDBS removal					
超声功率/W	100	200	300	400	500
降解率/%	59.06	83.63	88.96	78.72	6.75
SDBS/(mg·L ⁻¹)	40.94	16.37	11.04	21.28	38.25

由表3可见,超声功率在100~300 W时,随着功率的增大空化效应随之增强,产生更多的羟基自由基;同时,ZnO在超声催化下也产生羟基自由基,进一步加强了对SDBS的降解效果。结果显示,超声功率为300 W时,SDBS降解率达到最高值85%。但超声功率超过300 W后,SDBS降解效果反而下降,随着超声功率的增强,羟基自由基之间相互碰撞的几率变大,发生湮灭,降低了SDBS的降解效率。另外,超声功率过强会抑制气泡的产生,弱化空化效果,影响对污染物的降解。

2.2.4 温度的影响

在催化剂投加量为2 g/L、超声功率为300 W、pH为11、超声作用时间为3 h的条件下处理100 mg/L的SDBS废水,考察温度对SDBS降解率的影响,如表4所示。

表4 温度对SDBS去除效果的影响					
Table 4 Effect of temperature on SDBS removal					
温度/℃	20	30	40	50	60
降解率/%	72.63	87.62	89.32	75.1	67.17
SDBS/(mg·L ⁻¹)	27.37	12.38	10.68	24.9	32.83

由表4可见,温度从20℃增加到40℃,SDBS的降解率随之增大,此阶段空化作用逐渐增强,产生的羟基自由基较多,40℃时SDBS降解率达到最高值,为88.5%。此后随着温度继续升高,空化作用产生气泡的蒸汽压逐渐变大,导致气泡在闭合时的缓冲作用增强,减弱了空化作用,产生的羟基自由基减少。温度为40~60℃时,SDBS降解率逐渐降低。

2.2.5 SDBS初始质量浓度的影响

在催化剂投加量为2 g/L、超声功率为300 W、pH为11、温度为40℃、超声时间为3 h的条件下,处理100 mL SDBS废水,考察SDBS初始质量浓度对降解效果的影响,结果如表5所示。

表5 SDBS初始质量浓度对去除效果的影响

Table 5 Effect of initial concentration on SDBS removal

初始质量浓度/(mg·L ⁻¹)	25	50	100	200	400
降解率/%	97.9	93.16	89.65	51.24	35.96
SDBS/(mg·L ⁻¹)	2.1	6.84	10.35	48.76	64.03

由表5可知,随着SDBS初始质量浓度的增加,降解率逐渐降低;当SDBS质量浓度达到一定值时,ZnO表面被SDBS覆盖,活性位置被占据,影响超声空化气泡的成核,从而降低降解效果。

2.2.6 pH的影响

在催化剂投加量为2 g/L、超声功率为300 W、温度为40℃、超声工作时间为3 h的条件下处理100 mg/L的SDBS废水,考察pH对SDBS降解率的影响,如表6所示。

表6 pH对SDBS去除效果的影响

Table 6 Effect of pH on SDBS removal

pH	3	5	7	9	11
降解率/%	87.88	80.19	71.23	64.54	48.45
SDBS/(mg·L ⁻¹)	12.12	19.81	28.77	35.46	51.55

溶液pH对有机物的形态有很大影响。由表6可见,SDBS降解率随pH的增加而降低。与中性(pH为7)和碱性条件(pH为11)相比,酸性条件(pH为3)更有利于超声空化作用及ZnO催化作用。此外,pH较低时SDBS分子通过扩散进入液体表面与气体接触的表面层,再挥发进入气相区,在空化作用形成的高温高压条件下发生热分解反应^[9,11]。当pH逐渐提高至中性和碱性时,SDBS分子无法进入气相区,只能在膜区反应,无法接触足够的羟基自由基,降解效果受到影响。由于SDBS废水的pH为11,考

虑到经济成本,为避免实验药剂浪费,因此实验中pH选择11。

综上,可初步筛选出ZnO催化超声去除SDBS的最佳工艺条件,即ZnO投加量为2 g/L、超声功率为300 W、温度为40℃、pH为11、超声时间为3 h。SDBS降解率随ZnO投加量、超声功率及温度的增加而呈现先增加后降低的趋势;超声作用时间、初始质量浓度和pH对SDBS降解率的影响呈现单向增加或减少的趋势。因此选择ZnO投加量、超声功率和温度进行响应面优化研究。

2.3 响应面优化实验

2.3.1 设计及数据

根据单因素实验结果,确定ZnO催化超声处理SDBS的主要影响因素为温度(X_1)、ZnO投加量(X_2)和超声功率(X_3)。拟设计各因素的取值范围分别选择30~50℃、2~3 g/L、200~300 W。以SDBS降解率作为响应值,记作应变量Y。用Box-Behnken中心组合设计原理设计实验,用响应面^[12]对数据进行优化。各因素水平和编码见表7。

表7 响应面实验因素水平及编码

Table 7 Response surface experiment factor level and coding

影响因素	编码	水平和范围		
		-1	0	1
温度/℃	X_1	30	40	50
ZnO投加量/(g·L ⁻¹)	X_2	2	2.5	3
超声功率/W	X_3	200	250	300

用多项式回归分析对实验数据进行拟合,得到典型的3因素二次多项式模型,见式(1)。

$$Y = \beta_0 + \sum \beta_i X_i + \sum \beta_{ii} X_i^2 + \sum \sum \beta_{ij} X_i X_j + \varepsilon \quad (1)$$

式中: β_0 ——常数项,表示中心点修正系数;

X_i, X_j ——实验因素;

β_i ——线性系数;

β_{ii} ——二次项系数;

β_{ij} ——交互项系数;

ε ——构建模型的残差。

2.3.2 回归方程及方差分析

共设计17种实验方案,其中5组为验证Pure error(纯误差)的零点实验,序号分别为3、5、10、14、15。实验设计方案及结果如表8所示。

对实验数据进行二次多项回归拟合,得到三元二次回归方程(以编码值表示),如式(2)所示。

表8 实验设计方案和结果

Table 8 Experimental design and results

序号	温度 (X_1)/°C	ZnO 投加量 (X_2)/(g·L ⁻¹)	超声功率 (X_3)/W	降解率 (Y)/%
1	30	2.5	200	76.67
2	30	2	250	73.66
3	40	2.5	250	89.54
4	40	2	200	83.23
5	40	2.5	250	89.94
6	50	2.5	300	81.82
7	40	3	200	85.59
8	40	2	300	67.7
9	50	3	250	89.9
10	40	2.5	250	90.14
11	40	3	300	81.89
12	30	2.5	300	64.56
13	50	2	250	88.71
14	40	2.5	250	89.34
15	40	2.5	250	89.74
16	50	2.5	200	83.75
17	30	3	250	79.02

$$Y = -157.048\,75 + 3.805\,12X_1 + 24.690\,00X_2 + 1.043\,47X_3 - 0.208\,500X_1X_2 + 0.005\,090X_1X_3 - 0.118\,300X_2X_3 - 0.049\,100X_1X_1^2 - 8.030\,00X_2^2 - 0.003\,252X_3^2 \quad (2)$$

通过方差分析(ANOVA)检查软件拟合二次曲面响应面模型质量的显著性,见表9。

表9 方差分析结果

Table 9 Results of variance analysis

方差来源	平方和	自由度	均方	F值	Prod>F值	显著性
模型	1 016.41	9	112.93	47.67	0.000 1	高度显著
A- X_1	315.88	1	315.88	133.34	<0.000 1	高度显著
B- X_2	66.70	1	66.70	28.16	0.001 1	高度显著
C- X_3	138.36	1	138.36	58.40	0.001 1	高度显著
AB	4.35	1	4.35	1.84	0.217 6	不显著
AC	25.91	1	25.91	10.94	0.013 0	显著
BC	34.99	1	34.99	14.77	0.006 3	高度显著
A ²	101.51	1	101.51	42.85	0.000 3	高度显著
B ²	16.97	1	16.97	7.16	0.031 7	显著
C ²	278.30	1	278.30	117.48	<0.000 1	高度显著
残差	16.58	7	2.37			
失拟	16.18	3	5.39	53.94	0.001 1	高度显著
纯误差	0.400 0	4	0.100 0			
总和	1 032.99	16				

注:P<0.01代表模型“高度显著”;P<0.05代表“显著”,P>0.05代表不显著。

由表9可知:模型F值为47.67,远大于1,表明该模型显著。同时,温度、ZnO投加量、超声功率这3个因素项的F值分别为133.34、28.16、58.40,皆大于1,表明其对最终出水效果的影响均显著。温度、ZnO投加量和超声功率对应的P值均<0.05,也说明它们对降解效果影响显著。此外,AC、BC这2种交

互情况对应的P值<0.05,AB对应的P值>0.05,表明温度与超声功率交互显著^[13],ZnO投加量与超声功率交互作用显著,温度与ZnO投加量交互作用不显著。模型决定系数(R²)为98.39%,校正决定系数(R²_{adj})为99.33%,表示模型有98.39%的概率算出响应值,出现误差的概率为0.67%;变异系数(CV)为1.86%<10%,信噪比为23.074 3>4。

2.3.3 残差分析

残差是设计软件模型的实际值与实验模型给出的预测值之间的差值。其中,内学生化残差用来表示标准偏差偏离实际值及预测值的程度,是否呈线性分布。外学生化残差用来描述各组数据是否异常,应合理分布在±3.5范围内^[14]。实验模型的残差图如图3所示。

如图3(a)所示,实验数据点均匀分布在拟合直线的两侧,进一步证实预测值与实际值比较接近。由图3(b)、(c)可见,实验数据点随机分布,无任何规律。由于实验操作过程存在失误,有2个数据点超出范围,在后续数据处理中舍去。图3(d)中,实验数据点基本呈直线^[15],表示该实验模型计算的 实际值与预测值有良好的线性关系^[13],该模型具有较好的实验指导性和准确性。

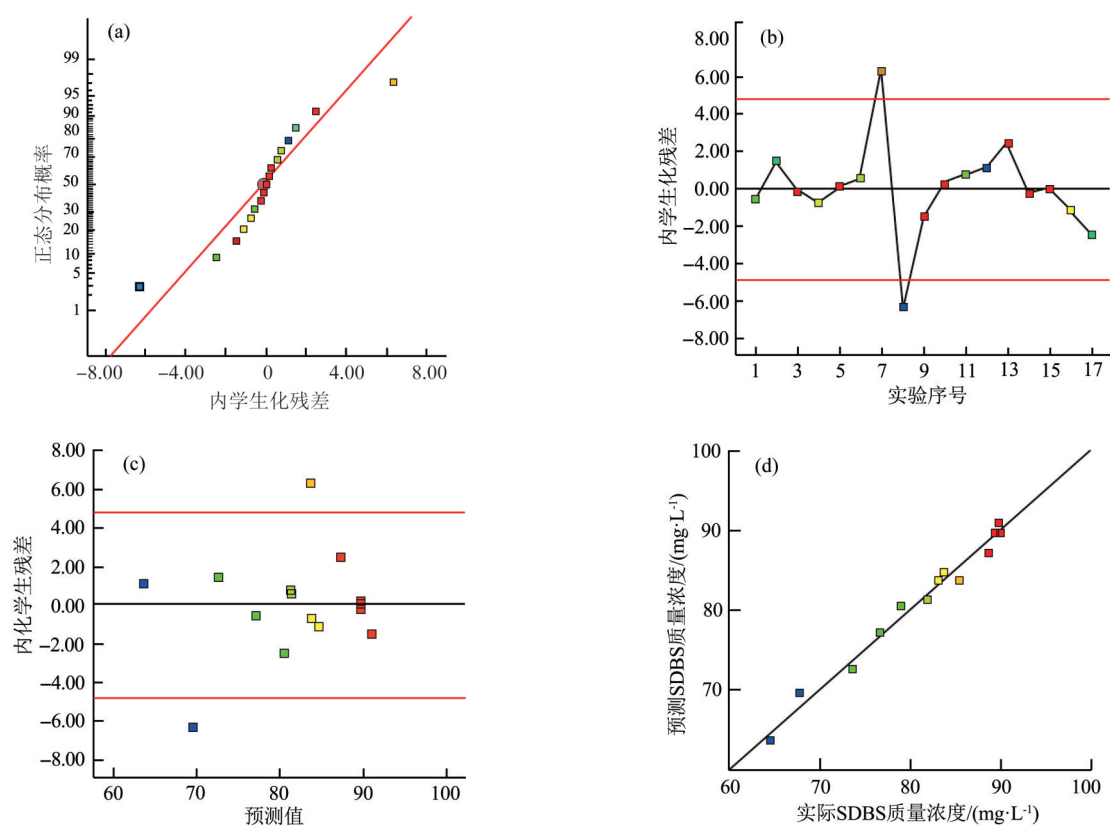
2.3.4 因素效应分析

为进一步了解实验因素对ZnO催化超声去除SDBS的影响,以及温度、ZnO投加量、超声功率之间的交互作用,用Design-Expert12.0制作二次响应曲面图及等高线图,如图4所示。

由图4可知:当3个因素中任意一个因素固定时,考虑另外2个因素的交互作用对SDBS降解率的影响,响应值总是随其他因素的变化先上升后下降,表明各因素均能在实验水平范围内找到最佳值^[16]。响应面越陡峭,说明2种因素的交互作用越明显^[17],对SDBS的降解效果越好,反之则交互作用不明显。当温度固定时,ZnO投加量与超声功率交互作用显著;ZnO投加量固定时,温度与超声功率交互作用显著;而超声功率固定时,温度与ZnO投加量的交互作用不显著。

2.3.5 响应面实验结果验证

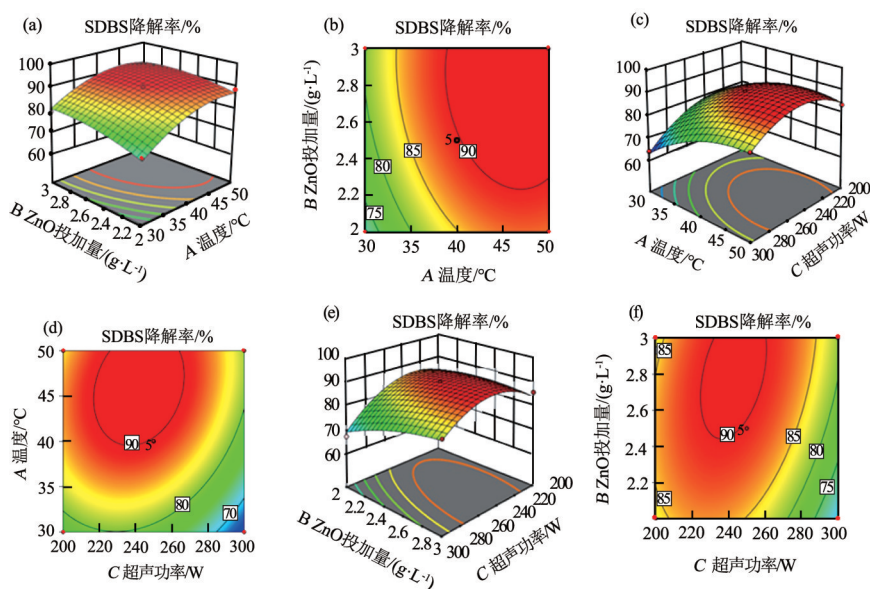
通过最优化求解得到该模型的最佳工艺条件:温度为45.68℃,ZnO投加量为2.76 g/L,超声功率为246.33 W,此时理论降解率为92.42%。在此条件下



(a) 残差与正态分布关系;(b) 残差与实验序号关系;(c) 内学生化残差与预测值关系;(d) SDBS质量浓度实际值与预测值的关系

图3 实验模型残差

Fig. 3 Residual diagram of experimental model



(a) 温度与ZnO投加量响应面(超声功率250 W);(b) 温度与ZnO投加量等高线(超声功率250 W);(c) 温度与超声功率响应面(ZnO投加量2.5 g/L);
 (d) 温度与超声功率等高线(ZnO投加量2.5 g/L);(e) ZnO与超声功率响应面(温度45 °C);(f) ZnO与超声功率等高线(温度45 °C)

图4 不同因素间交互作用对SDBS去除效果的影响

Fig. 4 The interaction between different factors affects the SDBS removal effect

对响应面优化实验结果进行验证,考虑到实验过程某些误差会影响结果,随机进行3组实验,相对误差在3%之内,说明模型预测性能好。

2.4 ZnO循环使用次数对降解率的影响

为降低成本,考虑对ZnO进行回收再利用,ZnO循环使用次数对SDBS去除效果的影响如表10所示。

表10 ZnO循环使用次数对SDBS去除效果的影响

Table 10 Effect of ZnO cycles on SDBS removal			
循环使用次数/次	1	2	3
SDBS降解率/%	89	80	56

由表10可见,重复利用后ZnO的催化性能明显下降,原因可能在于:(1)ZnO经超声强化后结构受到一定程度的损坏^[8],从而影响催化效果;(2)ZnO吸附了一定SDBS,使得表面活性位点减少^[9],影响羟基自由基的产生,从而降低SDBS降解率。

2.5 催化降解机理探讨

ZnO催化超声降解SDBS的可能机理如图5所示。

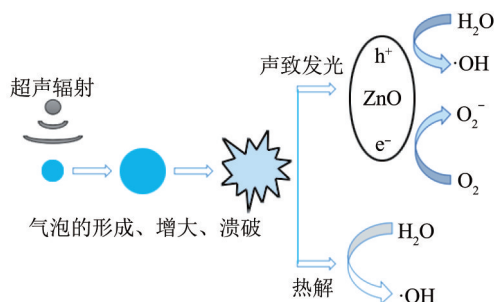


图5 催化降解原理

Fig. 5 Schematic diagram of catalytic degradation

超声在水中传播会发生空化作用,产生大量气泡。这些气泡在纳秒内破裂形成热核,其温度接近5 000 K,压力高达1 000 MPa^[18],水分子被热解为羟基自由基和氢原子^[19]。此外,ZnO也会因空化作用带来的声致发光现象^[20-21]而产生羟基自由基和空穴:产生的极短暂的短波长亮光接近紫外光,能够激发ZnO产生电子(e⁻)和空穴(h⁺);e⁻与水中的O₂反应产生活性物质O₂⁻,O₂⁻与H⁺反应产生羟基自由基。h⁺除能直接氧化分解SDBS外,还能进一步与水反应产生羟基自由基^[22]。

ZnO催化超声降解SDBS的过程是利用羟基自由基攻击SDBS的十二烷基和磺酸基,将其氧化为邻苯二酚衍生物,最终降解为CO₂、H₂O等^[23]。与R. MAHDAVI等^[24]、Y. M. HUNGE等^[25]的研究类似。

3 结论

(1)采用ZnO催化超声降解十二烷基苯磺酸钠,基于单因素实验和响应面法对影响因素进行优化。研究表明,ZnO投加量与超声功率,温度与超声功率在实验过程中两两交互作用明显。最佳工艺条件为温度45.68℃,氧化锌投加量2.76 g/L,超声功率246.33 W;该工艺条件下SDBS最高降解率为92.42%。

(2)ZnO催化超声具有良好的催化性能,在一定条件下能够有效降解SDBS,可为表面活性剂的治理提供研究思路和理论依据。

参考文献

- [1] 董晓清,李继,邵培兵.微电解处理含十二烷基苯磺酸钠废水的研究[J].环境工程,2014,32(S1):23-27.
DONG Xiaqing, LI Ji, SHAO Peibing. Study on treatment of sodium dodecylbenzene sulfonate wastewater by micro-electrolytic method[J]. Environmental Engineering, 2014, 32(S1): 23-27.
- [2] ZHU Shini, WANG Chao, YIP A C K, et al. Highly effective degradation of sodium dodecylbenzene sulphonate and synthetic greywater by Fenton-like reaction over zerovalent iron-based catalyst[J]. Environmental Technology, 2015, 36(11): 1423-1432.
- [3] 苏志伟,陈鲁川,雷乐成,等.BDD电极氧化降解SDBS的研究[J].高校化学工程学报,2020,34(6):1545-1550.
SU Zhiwei, CHEN Luchuan, LEI Lecheng, et al. Study on oxidative degradation of SDBS by BDD electrode[J]. Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities, 2020, 34(6): 1545-1550.
- [4] TAKAYANAGI A, KOBAYASHI M, KAWASE Y. Removal of anionic surfactant sodium dodecyl benzene sulfonate (SDBS) from wastewaters by zero-valent iron (ZVI): Predominant removal mechanism for effective SDBS removal[J]. Environmental Science and Pollution Research International, 2017, 24(9): 8087-8097.
- [5] 余月城,董正玉,吴丽颖,等.MnFe₂O₄活化过一硫酸盐降解废水中LAS[J].中国环境科学,2019,39(8):3323-3331.
SHE Yuecheng, DONG Zhengyu, WU Liying, et al. Degradation of LAS in wastewater by peroxymonosulfate activated by MnFe₂O₄[J]. China Environmental Science, 2019, 39(8): 3323-3331.
- [6] 张建交.纳米氧化锌的水热合成及其气敏性能[D].哈尔滨:哈尔滨理工大学,2014.
ZHANG Jianjiao. Hydrothermal synthesis of nanometer ZnO and their gas sensing properties[D]. Harbin: Harbin University of Science and Technology, 2014.
- [7] 刘学军.O₃/纳米TiO₂光催化十二烷基苯磺酸钠的降解研究[D].北京:中国工程物理研究院,2018.
LIU Xuejun. O₃/nano-TiO₂ photocatalytic degradation of sodium dodecylbenzenesulfonate. Beijing: China Academy of Engineering Physics, 2018.
- [8] 王君,潘志军,张朝红,等.普通锐钛型TiO₂催化超声降解十二

- 烷基苯磺酸钠(SDBS)的研究[J]. 环境科学研究, 2006, 19(3): 81-87.
- WANG Jun, PAN Zhijun, ZHANG Zhaohong, et al. Investigation on sonocatalytic degradation of sodium dodecylbenzenesulfonate (SDBS) in the presence of ordinary anatase TiO_2 [J]. Research of Environmental Sciences, 2006, 19(3): 81-87.
- [9] 陈珊珊, 万霞, 铁绍龙. 超声协同作用下亚微米掺铝氧化锌催化降解亚甲基蓝的研究[J]. 华南师范大学学报(自然科学版), 2012, 44(1): 76-81.
- CHEN Shanshan, WAN Xia, TIE Shaolong. Ultrasound assisted degradation of methylene blue by Fenton/ Co^{2+} system in the presence of $\text{Zn}(\text{Al})\text{O}$ [J]. Journal of South China Normal University (Natural Science Edition), 2012, 44(1): 76-81.
- [10] 于涛. 油井采出水中十二烷基苯磺酸盐高效液相色谱检测方法的改进[J]. 油田化学, 2021, 38(1): 179-183.
- YU Tao. Method improvement of dodecylbenzene sulfonate detection in oilfield produced water via high performance liquid chromatography[J]. Oilfield Chemistry, 2021, 38(1): 179-183.
- [11] 华彬, 陆永生, 唐春燕, 等. 超声技术降解酸性红B废水[J]. 环境科学, 2000, 21(2): 88-90.
- HUA Bin, LU Yongsheng, TANG Chunyan, et al. Studies on the sonolysis of acid red dye wastewater[J]. Environmental Science, 2000, 21(2): 88-90.
- [12] TASCA A L, MANNARINO G, GORI R, et al. Phosphorus recovery from sewage sludge hydrochar: Process optimization by response surface methodology[J]. Water Science and Technology: a Journal of the International Association on Water Pollution Research, 2020, 82(11): 2331-2343.
- [13] 陈俊, 吴妍蓓, 金杰, 等. 响应面法应用于臭氧处理偶氮废水优化研究[J]. 环境科学与技术, 2018, 41(8): 146-152.
- CHEN Jun, WU Yanbei, JIN Jie, et al. Optimization of ozonation treatment process for azo dyes wastewater with response surface methodology[J]. Environmental Science & Technology, 2018, 41(8): 146-152.
- [14] 王利平, 李祥梅, 沈肖龙, 等. 响应面方法优化Fenton试剂处理甲萘酚废水[J]. 环境工程学报, 2015, 9(4): 1797-1802.
- WANG Liping, LI Xiangmei, SHEN Xiaolong, et al. Optimization of 1-naphthol wastewater treatment by Fenton reagent using response surface methodology[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2015, 9(4): 1797-1802.
- [15] 李莉, 张赛, 何强, 等. 响应面法在试验设计与优化中的应用[J]. 实验室研究与探索, 2015, 34(8): 41-45.
- LI Li, ZHANG Sai, HE Qiang, et al. Application of response surface methodology in experiment design and optimization[J]. Research and Exploration in Laboratory, 2015, 34(8): 41-45.
- [16] 张鹏, 刘宏, 陈厚望, 等. 响应曲面法优化树脂吸附2-氨基-4-乙酰氨基苯甲酸[J]. 工业水处理, 2021, 41(6): 196-201.
- ZHANG Peng, LIU Hong, CHEN Houwang, et al. Response surface methodology to optimize resin adsorption of 2-amino-4-acetamidoanisole[J]. Industrial Water Treatment, 2021, 41(6): 196-201.
- [17] 陈红梅, 谢翎. 响应面法优化半枝莲黄酮提取工艺及体外抗氧化性分析[J]. 食品科学, 2016, 37(2): 45-50.
- CHEN Hongmei, XIE Ling. Optimization of extraction process for flavonoid from *Soutellaria barbata* by response surface methodology and evaluation of its antioxidant activity[J]. Food Science, 2016, 37(2): 45-50.
- [18] 何玲玲, 李昱, 齐齐, 等. 煅烧的 ZnWO_4 催化超声降解藏红T[J]. 环境化学, 2020, 39(5): 1290-1296.
- HE Lingling, LI Yu, QI Qi, et al. Sonocatalytic degradation of C. I. Basic Red 2 in the presence of calcined ZnWO_4 [J]. Environmental Chemistry, 2020, 39(5): 1290-1296.
- [19] YANG Yiqiong, ZHENG Zenghui, ZHANG Dongfeng, et al. Ultrasonic degradation of nitrosodipropylamine (NDPA) and nitrosodibutylamine (NDBA) in water[J]. Environmental Science and Pollution Research International, 2020, 27(23): 29143-29155.
- [20] 于颖, 石鑫, 刘忱, 等. 声致发光技术进展与应用前景[J]. 光学仪器, 2019, 41(2): 89-94.
- YU Ying, SHI Xin, LIU Chen, et al. Development and application prospects of sonoluminescence technology[J]. Optical Instruments, 2019, 41(2): 89-94.
- [21] YASUI K. Multibubble sonoluminescence from a theoretical perspective[J]. Molecules (Basel, Switzerland), 2021, 26(15): 4624.
- [22] DOBARADARAN S, NODEHI R N, YAGHMAEIAN K, et al. Catalytic decomposition of 2-chlorophenol using an ultrasonic-assisted $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-TiO}_2\text{/MWCNT}$ system: Influence factors, pathway and mechanism study[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2018, 512: 172-189.
- [23] 刘学军, 苏冰野, 谭昭怡, 等. 放射性洗涤废水的SDBS光催化降解研究[J]. 化学研究与应用, 2019, 31(1): 153-159.
- LIU Xuejun, SU Bingye, TAN Zhaoyi, et al. Photo-catalytic degradation of sodium dodecyl benzene sulfonate in radioactive washing wastewater[J]. Chemical Research and Application, 2019, 31(1): 153-159.
- [24] MAHDAVI R, ASHRAF TALESH S S. Enhancement of ultrasound-assisted degradation of Eosin B in the presence of nanoparticles of ZnO as sonocatalyst[J]. Ultrasonics Sonochemistry, 2019, 51: 230-240.
- [25] HUNGE Y M, YADAV A A, MATHE V L. Ultrasound assisted synthesis of $\text{WO}_3\text{-ZnO}$ nanocomposites for brilliant blue dye degradation[J]. Ultrasonics Sonochemistry, 2018, 45: 116-122.
- [作者简介] 刘宏(1982—), 副教授, E-mail: hong.liu@usts.edu.cn。
[收稿日期] 2022-07-06(修改稿)