REMOVAL OF DISSOLVED ORGANIC MATTERS AND BACTERIOPHAGES IN NATURAL WATER BY IN-LINE COAGULATION COMBINED WITH CERAMIC MEMBRANE

Miss Phantipa Chaimongkol

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Science Program in Environmental Management
(Interdisciplinary Program)
Graduate School
Chulalongkorn University
Academic Year 2008

Copyright of Chulalongkorn University

การบำบัดสารอินทรีย์ละลายน้ำและแบคทีเรียโอฟาจในแหล่งน้ำธรรมชาติโดยการรวมตะกอนในเส้นท่อร่วมกับการกรองด้วยเซรามิคเมมเบรน

นางสาวพรรณธิพา ไชยมงคล

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาการจัดการสิ่งแวดล้อม (สหสาขาวิชา)
บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2551
ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

510823

Thesis Title	REMOVAL OF DISSOLVED ORGANIC MATTERS AND BACTERIOPHAGES IN NATURAL WATER BY IN-LINE COAGULATION COMBINED WITH CERAMIC MEMBRANE
By	Miss Phantipa Chaimongkol
Field of Study	Environmental Management
Advisor	Associate Professor Suraphong Wattanachira, D.Eng.

Accepted by the Graduate School, Chulalongkorn University in Partial Fulfillment of the Requirements for the Master's Degree

..... Dean of the Graduate School
(Associate Professor Pornpote Piumsomboon,Ph.D.)

THESIS COMMITTEE

.....Chairman
(Assistant Professor Ekawan Luepromchai, Ph.D.)

.....Advisor
(Associate Professor Suraphong Wattanachira, D.Eng.)

.....Examiner
(Charongpun Musikavong, Ph.D.)

.....Examiner
(Nyein Nyein Aung, Ph.D.)

.....External Examiner
(Assistant Professor Bunyarit panyapinyopol, Ph.D.)

พรรณธิพาไชยมงคล: การบำบัดสารอินทรีย์ละลายน้ำและแบคทีริโอฟาจในแหล่งน้ำธรรมชาติโดยการรวมตะกอนในเส้นท่อร่วมกับการกรองด้วยเซรามิคเมมเบรน (REMOVAL OF DISSOLVED ORGANIC MATTERS AND BACTERIOPHAGES IN NATURAL WATER BY IN-LINE COAGULATION COMBINED WITH CERAMIC MEMBRANE) อ. ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก : รศ.ดร. สุรพงษ์ วัฒนะจีระ, 98หน้า.

งานวิจัยนี้มีวัตถุประสงค์หลักเพื่อประเมินประสิทธิภาพการบำบัดสารอินทรีย์ละลายน้ำ ด้วยการรวมตะกอนในเส้นท่อโดยใช้ PACl (Polyaluminium Chloride) เป็นสารรวมตะกอนร่วมกับการกรองด้วยเซรามิคเมมเบรนโดยพิจารณาผ่านดัชนีตัวแทนสารอินทรีย์ละลายน้ำ DOC, UV-254, SUVA, THMFPและ FEEM Intensity น้ำตัวอย่างที่ใช้ในการทดลองนี้เก็บมาจากแม่น้ำปิงและอ่างเก็บน้ำอ่าง แก้ว จากผลการศึกษาพบว่าสภาวะที่สามารถบำบัดสารอินทรีย์ละลายน้ำในแม่น้ำปิงได้ดีที่ สุดคือการรวมตะกอนในเส้นท่อโดยใช้ PACl 2.5 mg/l Al เป็นสารรวมตะกอนร่วมกับการกรองด้วยเซรามิคเมมเบรน UF (Ultrafiltration) และสภาวะที่สามารถบำบัดสารอินทรีย์ละลายน้ำในอ่างเก็บน้ำอ่างแก้วได้ดีที่สุดคือการรวมตะกอนในเส้นท่อโดยใช้ PACl 3.0 mg/l Al เป็นสารรวมตะกอนร่วมกับการกรองด้วยเซรามิคเมมเบรน UF (Ultrafiltration) อย่างไรก็ตามการใช้ตัวกรองเซรามิคเมมเบรน MF (Microfiltration) ถือเป็นอีกทางเลือกที่เหมาะสมในการประยุกต์ใช้จริงในแง่ของอัตราการกรองที่มากกว่าการกรองด้วยตัวกรองเซรามิคเมมเบรน UF และจากการศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างTHMFP กับดัชนีตัวแทนสารอินทรีย์ละลายน้ำ พบว่า DOC และ UV-254 เป็นดัชนีตัวแทนสารอินทรีย์ละลายน้ำที่มีความสัมพันธ์กับ THMFP ดีที่สุดในน้ำตัวอย่างจากแม่น้ำปิงและ อ่างเก็บน้ำอ่างแก้ว งานวิจัยนี้ได้ทำการศึกษาเพิ่มเติมในด้านประสิทธิภาพการบำบัดโคลิฟอร์มรวมและ*อี. โคไล* ในน้ำตัวอย่างดังกล่าวด้วยการรวมตะกอนในเส้นท่อโดยใช้ PACl เป็นสารรวมตะกอนร่วมกับการกรองด้วยเซรามิคเมมเบรน ซึ่งโคลิฟอร์มรวมและ*อี. โคไล*ถือเป็นดัชนีชี้วัดการปนเปื้อนของจุลชีพที่อาจเป็นอันตรายต่อระบบทางเดินอาหารของมนุษย์ และเป็นดัชนีที่นิยมในการตรวจวัดอย่างหนึ่งในปัจจุบัน จากผลการศึกษาพบว่าในน้ำจากแม่น้ำปิงมีโคลิฟอร์มรวมและ *อี. โคไล* จำนวน 75 CFU/ml และ 4 CFU/ml ตามลำดับ ในน้ำจากอ่างเก็บน้ำอ่าง แก้วมีจำนวน 500 CFU/ml และ 40 CFU/ml ตามลำดับ เมื่อบำบัดด้วยตัวกรองเซรามิคเมมเบรน1.0μm และการรวมตะกอนในเส้นท่อร่วมกับการกรองด้วยเซรามิคเมมเบรน1.0μm แล้วพบว่าไม่สามารถบำบัดโคลิฟอร์มรวมได้หมด แต่เมื่อบำบัดด้วยตัวกรองเซรามิคเมมเบรน MF หรือ UF และการรวมตะกอนในเส้นท่อร่วมกับการกรองด้วยเซรามิคเมมเบรน MF หรือ UF แล้วพบว่าสามารถบำบัดโคลิฟอร์มรวมและ*อี. โคไล* ได้หมด

สาขาวิชา การจัดการสิ่งแวดล้อม ลายมือชื่อนิสิต .....

ปีการศึกษา 2551 ลายมือชื่อ อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก .....

5087528920: MAJOR ENVIRONMENTAL MANAGEMENT
KEYWORDS: CERAMIC MEMBRANE/ DISSOLVED ORGANIC MATTER (DOM)/ TRIHALOMETHANE FORMATION POTENTIAL (THMFP)/ FLUORESCENCE EXCITATION-EMISSION MATRIX (FEEM)/ IN-LINE COAGULATION

PHANTIPA CHAIMONGKOL: REMOVAL OF DISSOLVED ORGANIC MATTERS AND BACTERIOPHAGES IN NATURAL WATER BY IN-LINE COAGULATION COMBINED WITH CERAMIC MEMBRANE. ADVISOR: ASSOC. PROF. SURAPHONG WATTANACHIRA, D. Eng., 98pp.

The main objectives of this study were to evaluate Dissolved Organic Matter (DOM) surrogate parameters (DOC, UV-254, and SUVA) removal, DOM characterization and DOM removal by FEEM, THMFP removal, and correlation between THMFP and DOM surrogate parameters from raw water and filtrated water by In-line coagulation combined with ceramic membrane. Water samples were collected from Ping River and Ang Keaw Reservoir. In-line coagulation using Polyaluminium Chloride (PACl) as coagulant was induced to be pretreatment of ceramic membrane filtration. According to the DOM surrogate parameters removal results, In-line coagulation with PACl dose of 2.5 mg/lAl combined with UF was the optimal condition for DOM removal in Ping River water while In-line coagulation with PACl dose of 3.0 mg/lAl combined with UF was the most achievable condition for DOM removal in Ang Keaw reservoir water,. However, the keys to select the appropriate membrane pore size for practical operation were the filtrate quality and filtrate quantity that depend up on the utilizable purpose. Therefore, In-line coagulation combined with MF was the alternatives to UF in order to produce high flow rate filtration. The suitable DOM surrogate parameters that could be used to predict the quantity of THMFP in Ping River water and Ang Keaw Reservoir water were DOC and UV-254. This study also interested on the microbial indicators to evaluate the filtrated water quality from this treatment applicability. Total coliform and *E. coli* were used as indicator for determining the fecal pollution reduction in this experiment. Total coliform and *E. coli* were found from Ping River water in amount of 75 CFU/ml and 4 CFU/ml, respectively and from Ang Keaw Reservoir water in amount of 500 CFU/ml and 40 CFU/ml, respectively. From the results obtained from both of two raw water sources, 1.0μm ceramic membrane and In-line coagulation combined with 1.0μm ceramic membrane could fairly remove total coliform while MF/UF ceramic membrane and In-line coagulation combined with MF/UF ceramic membrane could remove total coliform and *E. coli* completely.

Field of Study : Environmental Management Student's Signature : Phantipa

Academic Year : 2008 Advisor's Signature: Suraphong

ACKNOWLEDGEMENTS

I would like to express my sincere gratitude to my thesis advisor, Associate Professor Dr. Surapong Wattanachira, for his kindness, valuable suggestions, guidance, advice, and especially strong encouragement throughout the thesis work. Special respect and thanks are also extended to Associate Professor Hiroyuki Takayama for his valuable suggestions and comments.

Special thanks also go to all students and staff at the National Center of Excellence for Environmental and Hazardous Waste Management (NCE-EHMW) program, Chulalongkorn University. I would like to express gratitude to all staff members of the Department of Environmental Engineering, Faculty of Engineering, Chiang Mai University for the use of their laboratory facilities and providing valuable information. I also thank all friends at the Department of Environmental Engineering, Chiang Mai University for their support and helps over the entire experimental period.

My appreciation also goes to Dr. Yasuhiro Matsui for his guidance, valuable technical transfer, warm support and good cheer.

I am truly appreciative of Miss Tansiphorn Janhom's valuable suggestion, guidance and helps for all parts of my thesis. I also would like to extend my grateful thanks to Mr. Parkphum Rakruam for all his helps over the entire period.

Finally, I could not accomplish without the inspiration from my parents, my grandparent, my brother and my aunt throughout my thesis work even on the difficult time.

CONTENTS

Page

ABSTRACT (IN THAI) iv

ABSTRACT (ENGLISH) v

ACKNOWLEDGEMENTS vi

CONTENTS vii

LIST OF TABLES x

LIST OF FIGURES xi

LIST OF ABBREVIATIONS xiii

CHAPTER I INTRODUCTION 1

1.1 Motivation 1

1.2 Objectives 5

1.3 Hypotheses 5

1.4 Scopes of work 6

CHAPTER II BACKGROUND AND LITERATURE REVIEWS 7

2.1 Ceramic membrane filtration 7

2.1.1 Membrane filtration for DOM removal 9

2.1.2 Membrane filtration for microbial removal 11

2.2 Polyaluminium Chloride (PACl) coagulation 12

2.3 Dissolved Organic Matter (DOM) and their surrogates 13

2.3.1 Dissolve Organic Carbon (DOC) 14

2.3.2 Ultraviolet absorbance at wavelength 254 nm (UV-254) 14

2.2.4 Specific Ultraviolet Adsorbance (SUVA) 15

2.3.4 Trihalomethanes Formation Potential (THMFP) 15

2.3.5 Fluorescent Excitation-Emission Matrix, FEEM 17

2.4 Viral indicators 19

CHAPTER III METHODOLOGY 21

3.1 Studied Site 21

3.1.1 Ping River 21

3.1.2 Ang Keaw Reservoir 22

Page

3.2 Experimental Procedure 23
3.2.1 Removal of DOMs.....23
3.2.2 Removal of Microorganisms.....25
3.3 Jar-Test Experiment 25
3.4 In-line coagulation combined with ceramic membrane filtration experiment.....26
3.4.1 Ceramic membrane module preparation.....26
3.4.2 The operation of in-line coagulation combined with ceramic membrane filtration.....26
3.4.3 Flux measurement.....27
3.5 Analytical Methods.....28
3.5.1 Physico-chemical parameters.....28
3.5.1.1 pH.....28
3.5.1.2 Temperature 28
3.5.1.3 Turbidity 29
3.5.1.4 Alkalinity.....29
3.5.1.5 Electro Conductivity.....29
3.5.2 DOM Parameters.....29
3.5.2.1 DOC.....29
3.5.2.2 UV-254 29
3.5.2.3 THMFP.....29
3.5.2.5 Fluorescence Excitation-Emission Matrix (FEEM)....31
3.6 Analysis of Microorganisms.....34
3.6.1 Analysis of Bacteria.....34
3.6.2 Analysis of Bacteriophages.....35
3.6.2.1 Host Preparation.....36
3.6.3 Culture Media, Reagents and Diluents.....37
CHAPTER IV RESULTS AND DISCUSSIONS.....41
4.1 Characteristics of Ping River water and Ang Keaw Reservoir water.....41
4.2 Correlation between DOM surrogate parameters and THMFP.....42
4.3 The removal of DOM surrogates (DOC, UV-254, and SUVA).....47

Page

4.2.1 DOC removal.....47
4.2.2 UV-254 removal.....50
4.2.3 SUVA removal.....51
4.4 DOM characterization and DOM removal efficiency by FEEM.....54
4.5 The removal efficiency of THMFP.....60
4.6 Water quality monitoring by microbial indicators.....62
4.6.1 Total coliform and *E. coli* indicator.....62
4.6.2 Bacteriophage indicator.....66

CHAPTER V CONCLUSIONS.....70
CHAPTER VI RECOMMENDATIONS FOR FUTURE WORK.....72
REFERENCES.....73
APPENDICES.....80
APPENDIX A CALIBRATION DATA AND CURVES.....81
APPENDIX B EXPERIMENTAL DATA.....93
BIOGRAPHY.....98

LIST OF TABLES

Page

Table 3.1 Schedules of water collection from Ping River and Ang Keaw Reservoir.....23

Table 3.2 Temperature programs for analyzing THMs.....30

Table 3.3 The summary of analytical methods and instruments.....34

Table 3.4 The ingredients of MSB, MSA, and ssMSA.....38

Table 3.5 The ingredients of TYGB, TYGA, and ssTYGA.....40

Table 3.6 The ingredients of top and bottom agar for *E. coli* K12 as host strain.....40

Table 4.1 Characteristics of raw water from Ping River and Ang Keaw Reservoir..41

Table 4.2 Correlation between THMFP and DOM surrogate parameters.....46

Table 4.3 DOC, UV-254, and SUVA values of raw water and treated water.....53

Table 4.4 Summary of the proposed mapping of FEEM regions and fluorescent DOM substances.....57

Table 4.5 Total coliform and *E.coli* results of filtrated Ping River water from In-line coagulation with 2.5 mg/l Al combined with 1.0μm, MF, and UF 64

Table 4.6 Total coliform and *E.coli* results of filtrated Ang Keaw Reservoir water from In-line coagulation with 3.0 mg/l Al combined with 1.0μm, MF, and UF 65

Table 4.7 Bacteriophage count results from filtrated Ping River water and filtrated Ang Keaw Reservoir water by In-line coagulation combined with 1.0μm, MF, and UF.....68

LIST OF FIGURES

Page

Figure 2.1 The magnification of ceramic membrane structure 8
Figure 3.1 Sampling point in Ping River 21
Figure 3.2 Sampling point in Ping River....22
Figure 3.3 Sampling point in Ang Keaw Reservoir....22
Figure 3.4 Diagram of overall experimental procedure for DOMs removal evaluation 24
Figure 3.5 Diagram of experimental procedure for bacteriophages, total coliform and *Escherichia coli* removal 24
Figure 3.6 Jar-Test apparatus....25
Figure 3.7 Ceramic membrane modules....26
Figure 3.8 The pictorial of experimental set-up of in-line coagulation combined with ceramic membrane....27
Figure 3.9 Schematic of in-line coagulation combined with ceramic membrane....28
Figure 3.10 Example of the three-dimensional view of FEEM....33
Figure 4.1 Correlation between THMFP and DOM surrogate parameters of Ping River water....44
Figure 4.2 Correlation between THMFP and DOM surrogate parameters of Ang Keaw Reservoir water....45
Figure 4.3 DOC removals by Jar Test and In-line coagulation combined with ceramic membrane from Ping River water....48
Figure 4.4 DOC removals by Jar Test and In-line coagulation combined with ceramic membrane from Ang Keaw Reservoir water....49
Figure 4.5 UV-254 removals by Jar Test and In-line coagulation combined with ceramic membrane from Ping River water 50
Figure 4.6 UV-254 removals by Jar Test and In-line coagulation combined with ceramic membrane from Ang Keaw Reservoir water 50
Figure 4.7 SUVA values of Ping River water and Ang Keaw Reservoir water treated by Jar Test and In-line coagulation combined with

Page

ceramic membrane 52
Figure 4.8 Examples of FEEM peaks reduction at peak position A, B, and C in the contour graphs with 2 QSU contour interval.....54
Figure 4.9 Position A, B, and C marked on the boundaries of FEEM peaks defined excitation and emission wavelength for five regions created 55
Figure 4.10 Reduction of FEEM peaks of Ping River water 58
Figure 4.11 Reduction of FEEM peaks of Ang Keaw Reservoir 59
Figure 4.12 THMFP removals by Jar Test and In-line coagulation combined with ceramic membrane from Ping River water.....60
Figure 4.13 THMFP removals by Jar Test and In-line coagulation combined with ceramic membrane from Ang Keaw Reservoir water.....61
Figure 4.14 Example of bacteriophages plaques.....69

LIST OF ABBREVIATIONS

AMW	Apparent Molecular Weight
AWWA	American Water Works Association
$CaCO_3$	Calcium Carbonate
$CHBr_3$	Bromoform
$CHCl_2Br$	Bromodichloromethane
$CHCl_3$	Chloroform
$CHClBr_2$	Dibromochloromethane
Cl	Chlorine
cm	Centimeter
°C	Degree Celsius
DBPs	Disinfection by Products
DOC	Dissolved Organic Carbon
DOM	Dissolved Organic Matter
DPD	*N*, *N*-diethyl-*p*-phenylenediamine
ECD	Electron Capture Detector
EDTA	Disodiumethylenediamine Tetraacetate Dehydrate
EPA	Environmental Protection Agency
g/cm^3	Gram per Cubic Centimeter
g/L	Gram per Liter
g/mol	Gram per Molar
GC	Gas Chromatograph
hr	Hour
KHP	Potassium Hydrogen Phthalate
KI	Potassium Iodide
L/mg-m	Liter per milligram-meter
MF	Microfiltration
MCL	Maximum Contaminant Level
mg/l	Milligram per Liter
MWCO	Molecular Weight Cut Off
NOM	Natural Organic Matter

NTU	Nepheo Turbidity Unit
PACl	Polyaluminium Chloride
S	Second
SUVA	Specific Ultraviolet Absorption
THMFP	Trihalomethanes Formation Potential
THMs	Trihalomethanes
TOC	Total Organic Carbon
UF	Ultrafiltration
USEPA	United States Environmental Protection Agency
UV-254	Ultraviolet absorbtion at wave length 254 nanometer
UV	Ultraviolet Absorbtion