การบำบัดน้ำเสียปนเปื้อนสารไตรคลอโรเอทีลีนโดยใช้สารเฟนตันรีเอเจนท์

นาย รณชัย ติยะรัตนาชัย

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต สาขาวิชาการจัดการสิ่งแวดล้อม สหสาขาวิชาการจัดการสิ่งแวดล้อม บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย ปีการศึกษา 2545 ISBN 974-17-1793-8 ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

USING FENTON'S REAGENT



Mr. Ronnachai Tiyarattanachai

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements for the Degree of Master of Science in Environmental Management Inter-departmental Program in Environmental Management

Graduate School

Chulalongkorn University

Academic Year 2002

ISBN 974-17-1793-8

Copyright of Chulalongkorn University

Thesis Title Treatment of Trichloroethylene Contaminated Wastewater Using Fenton's Reagent Ву Mr. Ronnachai Tiyarattanachai Program in Environmental Management Thesis Advisor Associate Professor Proespichaya Kanatharana, Ph.D. Thesis Co-advisor Professor Hsin-Neng Hsieh, Ph.D., P.E. Accepted by the Graduate School, Chulalongkorn University in Partial Fulfillment of the Requirements for the Master's Degree (Professor Suchada Kiranandana, Ph.D.) THESIS COMMITTEE 8 Om Chairman (Assistant Professor Sutha Khaodhiar, Ph.D.) (Associate Professor Proespichaya Kanatharana, Ph.D.) (Professor Hsin-Neng Hsieh, Ph.D., P.E.)

(Manaskorn Rachakornkij, Ph.D.)

รณชัย ติยะรัตนาชัย: การบำบัดน้ำเสียปนเปื้อนสารไตรคลอโรเอทีลีนโดยใช้ สารเฟนตันรีเอเจนท์ (TREATMENT OF TRICHLOROETHYLENE CONTAMINATED WASTEWATER USING FENTON'S REAGENT) อาจารย์ที่ปรึกษา: รศ.ดร.เพริศพิชญ์ คณาธารณา, อาจารย์ที่ปรึกษาร่วม Prof. Hsin-Neng Hsieh, Ph.D., P.E., 58 หน้า. ISBN 974-17-1793-8

สารเฟนตันรีเอเจนท์เป็นสารออกซิไดซ์แบบประยุกต์ที่มีประสิทธิภาพสูงใน
การบำบัดสารปนเปื้อนอินทรีย์ตัวหนึ่ง ปัจจุบันสารดังกล่าวมีบทบาทสำคัญในการ
บำบัดน้ำใต้ดิน และน้ำเสียที่ปนเปื้อนสารอันตรายอินทรีย์ ประสิทธิภาพของการ
บำบัดขึ้นอยู่กับสภาวะที่เหมาะสม ฉะนั้นควรที่จะมีการศึกษาสภาวะที่เหมาะสมใน
ห้องปฏิบัติการก่อนที่จะนำไปใช้ในงานจริง การใช้ไททาเนียมไดออกไซด์จะมีผล
เสริมกับสารเฟนตันรีเอ.จนท์ในการบำบัดน้ำเสีย งานวิจัยนี้ได้ศึกษาสภาวะที่เหมาะ
สมโดยการทดลองแปรผันปริมาณของสารตั้งต้นที่ต่างๆกันและสารไททาเนียมได
ออกไซด์ ตลอดจนการนำตะกอนของสารเหล็กและไททาเนียมไดออกไซด์กลับมาใช้
ใหม่ ข้อมูลที่ได้ในส่วนของประสิทธิภาพการบำบัดนำมาพิจารณาและประเมินในแง่
เศรษฐศาสตร์ เพื่อเลือกเงื่อนไขและอัตราส่วนของสารตั้งต้นที่เหมาะสมที่สุด

จากผลการศึกษาพบว่าอัตราส่วนของสารตั้งต้นที่เหมาะสมที่สุดคือ H₂O₂:Fe²⁺:TCE เท่ากับ 20:2:1 โดยโมล ผลการใช้ไททาเนียมไดออกไซด์ของการ ศึกษานี้ไม่มีนัยสำคัญในเชิงประสิทธิภาพของการบำบัด แต่พบว่าตะกอนสามารถที่ จะนำกลับมาใช้ใหม่และให้ผลการบำบัดที่ดี

ภาควิชาการจัดการสิ่งแวดล้อม	ลายมือชื่อนิสิต 🎾
สาขาวิชาการจัดการสิ่งแวดล้อม	ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา /องเฟรีรั
ปีการศึกษา2545	ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม #ผ่น 74/#ไ

1001

4489432720: MAJOR ENVIRONMENTAL MANAGEMENT

KEYWORD: FENTON, TCE, TIO₂, TREATMENT CONDITION, WASTEWATER

RONNACHAI TIYARATTANACHAI: TREATMENT OF TCE CONTAMINATED WASTEWATER USING FENTON'S REAGENT. THESIS ADVISOR: ASSOC. PROF. PROESPICHAYA KANATHARANA, Ph.D., THESIS CO-ADVISOR: PROF. HSIN-NENG HSIEH, Ph.D., P.E., 58 pp. ISBN 974-17-1793-8

Fenton's reagent is a powerful oxidizing agent. It shows highly efficient treatment of hazardous organic contaminants contaminated in groundwater and wastewater. The treatment efficiency is obtained by treatment at the optimum condition. The optimum condition is recommended to be studied through the laboratory experiments before being implemented to the real treatment plant.

The optimum condition was studied by varying the ratio of chemicals that form Fenton's reagent; H_2O_2 and Fe^{2+} and TCE. The study was also carried by adding the titanium dioxide (TiO₂) for increasing the rate of Fenton's reaction to treat the wastewater. In addition, recycling of iron and TiO₂ sludge for wastewater treatment was also studied. The economic was evaluated base on the treatment efficiency at the optimum conditions and ratio of initial substances. The results showed that at the optimum molar concentration ratio of H_2O_2 : Fe^{2+} :TCE is 20:2:1. However, enhancement of the treatment by TiO₂ was insignificant. The results of recycling of the reagents showed satisfying result.

ACKNOWLEDGEMENTS

I would like to express my heartfelt gratitude to Dr. Proespichaya Kanatarana and Dr. Hsin-Neng Hsieh, my thesis advisor and co-advisor, for providing valuable support that made the completion of this thesis possible. They have been constant sources of encouragement for me. Special thanks are given to Dr. Daniel J. Watts for his valuable suggestions, Dr. Sutha Khaodhiar, and Dr. Manasakorn Rachakornkij for serving as my thesis committee.

This thesis would not have materialized without the help of my colleagues and friends. I would like to express my appreciation to Mr. Chandrakant Patel and Mr. Frank Johansson, Assistant Director of the Geo-Environmental Laboratory and Director of Material Laboratory at the New Jersey Institute of Technology for their assistance in setting up and running the experiments.

I also would like to express my appreciation to friends in Analytical and Environmental Chemistry/Trace Analysis Research Unit and Biophysics: Biocurrents and Biosensors Research Unit at Prince of Songkla University for their helping on established of research atmosphere.

I also would like to express my appreciation to the scholarship from National Research Center for Environmental and Hazardous Waste Management (NRC-EHWM). Without this scholarship, this research will not be achieved.

Finally, I wish to thank my family for their support and encouragement throughout my studies.

CONTENTS

j	Pages
ABSTRACT IN THAI	iv
ABSTRACT IN ENGLISH	v
ACKNOWLEDGEMENTS	vi
CONTENTS	vii
LIST OF FIGURES	х
LIST OF TABLES	xii
LIST OF ABBREVIATIONS	xiii
CHAPTER 1 INTRODUCTION	1
CHAPTER 2 THEORETICAL BACKGROUND AND LITERATURE	
REVIEW	3
2.1 Trichloroethylene	3
2.1.1 Introduction	3
2.1.2 Chemical and Physical Properties	3
2.1.3 Hazard Identification	4
2.1.4 Toxicology Information	5
2.1.5 Regulations	7
2.1.6 TCE in Environment	7
2.2 Fenton's reagent	8
2.2.1 Introduction	8
2.2.2 Chemical Reactions	9
2.2.3 Reactions of Hydroxyl Radicals	12
2.2.4 Factors Affecting Fenton's Reagent	13
2.2.5 Procedures Required in Achieving Fenton's Reaction	n 18
2.3 Titanium dioxide	19
2.3.1 Introduction	19
2.3.2 Mechanism of the TiO ₂ -photocatalyzed Oxidative	
Degradation	19
2.3.3 Comparison Between TiO ₂ and Fenton's Reagent	21
2.3.4 Synergic Effect between TiO2 and Fenton's Reagen	t 21

CONTENTS (Continued)

Pa	ges
CHAPTER 3 TREATMENT OF TRICHLOROETHYLENE	
CONTAMINATED WASTEWATER	24
3.1 Abstract	24
	25
3.2 Introduction	
3.2.1 Fenton's Reagent	25
3.2.2 Titanium dioxide	27
3.2.3 Synergic Effect between TiO ₂ and Fenton's Reagent	28
3.3 Materials and Methods	29
3.3.1 Experimental Devices	29
3.3.2 Analytical Methods	30
3.3.3 Experimental Methodology	30
3.3.4 Economic Study	33
3.4 Results and discussions	33
3.4.1 Optimal Conditions of Using Fenton's Reagent	
to Treat TCE Contaminated Wastewater with	
the Present of Suspended TiO ₂	34
3.4.2 Recycling of Reagent Sludge	38
3.4.3 Economic Study	39
3.5 Conclusions	42
CHAPTER 4 RECOMMENDATIONS FOR FUTURE RESEARCH	44
REFERENCES	45
APPENDIX	50
CUDDICULIM VITAE	58

LIST OF TABLES

		Pages
1.1	Relative oxidation power of the reactive species	2
2.1	Chemical and physical properties of TCE	3
2.2	Acute toxicity for TCE from inhalation	5
3.1	GC column temperature program	30
3.2	Conditions setting in the study	32
3.3	Comparison of K_{TCE} and K_{H2O2} among different condition	37
3.4	Prices of chemicals.	39
3.5	Comparison of treatment cost for 1L of 100 ppm TCE in	
	wastewater using condition B and D; reaction time 15 min	40
A1	Treatment of 100 ppm TCE contaminated wastewater using	
	Fenton's reagent	51
A2	Treatment of 100 ppm contaminated wastewater using	
	Fenton's reagent from recycled reagent	52

LIST OF FIGURES

		Pages
2.1	Structural formula of Trichloroethylene	4
2.2	Effect of pH on Fenton's reagent	16
2.3	Typical pH profile of Fenton's reactions	17
3.1	Diagram of experimental procedures	33
3.2	Comparison of TCE removal and H ₂ O ₂ degradation on	
	conditions A, B, C, and D.	34
3.3	TCE removal and H_2O_2 degradation on conditions B and D.	
	Condition B; $R_1 = 10:1:1$, Condition D; $R_1 = 10:1:1$,	
	$TiO_2 = 500 \text{ mg/L}$	35
3.4	TCE removal and H ₂ O ₂ degradation on conditions B and D.	
	Condition B; $R_2 = 20:1:1$, Condition D; $R_2 = 20:1:1$,	
	$TiO_2 = 500 \text{ mg/L}$	35
3.5	TCE removal and H ₂ O ₂ degradation on conditions B and D.	
	Condition B; $R_3 = 20:2:1$, Condition D; $R_3 = 20:2:1$,	
	$TiO_2 = 1,000 \text{ mg/L}.$	36
3.6	TCE removal and H ₂ O ₂ degradation on conditions B and D.	
	Condition B; $R_4 = 40:2:1$, Condition D; $R_4 = 40:2:1$,	
	$TiO_2 = 250 \text{ mg/L}$	36
3.7	Comparison of %TCE removal at different R,	
	reaction time = 5 min	37
3.8	Comparison of %TCE removal between recycled sludge and	
	fresh reagent from R ₂ and R ₄ respectively	39
3.9	Root Cause Analysis	41
C1	Gas Chromatographer (GC) Hewlett Packard model 5890 with	
	Electron Capture Detector (ECD)	55
C2	Dynamic Headspace Concentrator Tekmar model 4000	55
C3	Junior Orbit Shaker from Lab-Line Instruments, Inc	56
C4	Centrifuger Sorwall RC 28S from Dupont	56
C5	Comparison of sample in condition B on the left and	
	condition D on the right	57

LIST OF FIGURES (Continued)

		Pages
C6	Recycled sludge; left: pure iron sludge, right: sludge of	
	mixed iron and TiO ₂	57

LIST OF ABBREVIATIONS

AOPs = Advanced Oxidation Processes

AR = Analytical Reagent

CAA = Clean Air Act

CWA = Clean Water Act

DCA = Dichloroacetic acid

ECD = Electron Capture Detector

EPCRA = Emergency Planning and Community Right to Know

GAC = Granular Activated Carbon

TCE = Trichloroethylene

GC = Gas Chromatographer

HOC = Halogenated Organic Compound

IARC = International Agency for Research on Cancer (IARC)

MCL = Maximum Contaminant Level

NTP = National Toxicology Program (NTP)

OSHA = Occupational Safety & Health Administration

PEL = Permissible Exposure Limit

RCRA = Resource Conservation and Recovery Act

SARA = Superfund Amendment Reauthorization Act

TCA = Trichloroacetic acid

TRI = Toxic Chemical Release Inventory

TWA = Time-Weighted Average

UHP = Ultra High Purity

USEPA = U.S. Environmental Protection Agency

VOC = Volatile Organic Compound

WHO = World Health Organization