การดีคลอริเนชั่นของสารพีซีอีที่ปนเปื้อนในดินภายใต้สภาวะไร้ออกซิเจน โดยใช้ของเสียชนิดต่างๆ เป็นตัวให้อิเล็กตรอน

สำนักงานวิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

นางสาวสุนิษา หน่อเต็ม

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญา วิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาการจัดการสิ่งแวดล้อม (สหสาขาวิชา)
บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2548

ISBN 974-14-1965-1

ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

481974

ANAEROBIC DECHLORINATION OF PCE CONTAMINATED IN SOIL USING VARIOUS WASTES AS ELECTRON DONORS

Miss Sunisa Nortem

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Science Program in Environmental Management
(Inter-Department)
Graduate School
Chulalongkorn University
Academic Year 2005

ISBN 974-14-1965-1

Copyright of Chulalongkorn University

I22646437

Thesis Title	ANAEROBIC DECHLORINATION OF PCE CONTAMINATED IN SOIL USING VARIOUS WASTES AS ELECTRON DONORS
By	Miss Sunisa Nortem
Field of study	Environmental Management
Thesis Advisor	Petch Pengchai, Ph.D.
Thesis Co-advisor	Ekawan Luepromchai, Ph.D.

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

..... Dean of the Graduate School
(Assistant Professor M.R. Kalaya Tingsabadh, Ph.D.)

THESIS COMMITTEE

..... Chairman
(Manaskorn Rachakornkij, Ph.D.)

..... Thesis Advisor
(Petch Pengchai, Ph.D.)

..... Thesis Co-advisor
(Ekawan Luepromchai, Ph.D.)

..... Member
(Assistant Professor Wiboonluk Pungrasmi, Ph.D.)

..... Member
(Pichaya Rachdawong, Ph.D.)

สุนิษา หน่อเต็ม : การดีคลอริเนชั่นของสารพีซีอีที่ปนเปื้อนในดินภายใต้สภาวะไร้ออกซิเจนโดยใช้ของเสียชนิดต่างๆเป็นตัวให้อิเล็กตรอน (ANAEROBIC DECHLORINATION OF PCE CONTAMINATED IN SOIL USING VARIOUS WASTES AS ELECTRON DONORS). อ.ที่ปรึกษา: ดร.เพชร เพ็งชัย, อ.ที่ปรึกษาร่วม: ดร.เอกวัล ลือพร้อมชัย 126 หน้า. ISBN 974- 14-1965– 1.

สารเตตระคลอโรอีธีน(พีซีอี)เป็นสารปนเปื้อนที่พบเสมอในน้ำใต้ดินและดิน เพื่อกำจัดพีซีอีกระบวนการรีดักทีฟดีคลอริเนชั่นได้ทำขึ้นในถังปฏิกรณ์ดินโคลนภายใต้สภาวะไร้ออกซิเจน ถังปฏิกรณ์นี้บรรจุด้วยดินที่ปนเปื้อนด้วยพีซีอี สลัดจ์แบบเม็ดจากระบบบำบัดน้ำเสียแบบยูเอเอสบี สารอาหารแร่ธาตุ และของเสียหลากชนิด วัตถุประสงค์ของงานวิจัยนี้คือการหาชนิดและความเข้มข้นของของเสีย ที่เหมาะสมสำหรับการให้อิเล็กตรอนในปฏิกิริยารีดักทีฟดีคลอริเนชั่นของสารพีซีอี ทุกการทดลอง มีการทำซ้ำสามครั้ง ในระยะแรกได้หาความเข้มข้นของของเสียจากความเข้มข้นของสารให้อิเล็กตรอนที่รับประทานได้

พบว่าเมื่อเวลาผ่านไป 24 วัน 52.24%ของสารพีซีอีความเข้มข้น 100 มก./กก.ดิน จะถูกกำจัดจากดินที่ไม่มีการเติมตัวให้อิเล็กตรอน การเติมน้ำมันถั่วเหลืองเข้มข้น 5,000 มก./กก.สลัดจ์ และกลูโคส 10,000 มก./กก.สลัดจ์ เพื่อเป็นตัวให้อิเล็กตรอน สามารถกำจัดสารพีซีอีได้สูงขึ้นถึง 99.05% และ 99.47% ตามลำดับ เมื่อใช้กากน้ำตาลและของเสียน้ำมันที่ความเข้มข้นเดียวกันกับกลูโคสและน้ำมันถั่วเหลือง พบว่าของเสียที่ช่วยในการกำจัดพีซีอีได้ดีที่สุดสามชนิดแรกคือ ของเสียน้ำมันจากบริษัทลีโอฟู้ดความเข้มข้น 5,000 มก./กก.สลัดจ์(99.46%) น้ำมันถั่วเหลืองที่ใช้แล้วความเข้มข้น 5,000 มก./กก.สลัดจ์(99.46%) และน้ำมันหมูที่ใช้แล้วความเข้มข้น 500 มก./กก.สลัดจ์ (99.41%) ระหว่างของเสียทั้งสามชนิดนี้น้ำมันหมูที่ใช้แล้วได้รับพิจารณาให้เป็นตัวให้อิเล็กตรอนที่เหมาะสมที่สุด เนื่องจากมีราคาวัสดุถูกที่สุด

เมื่อความเข้มข้นของพีซีอีในระบบถูกเปลี่ยนเป็น 150 200 250 และ 500 มก./กก.ดิน พบว่าน้ำมันหมูที่ใช้แล้วความเข้มข้น 500 มก./กก.สลัดจ์ สามารถกำจัดสารพีซีอีได้ 88.7 87.9 80.7 และ 37.3% ตามลำดับ การเพิ่มขึ้นของสารทีซีอี ดีซีอี และ คลอไรด์ไอออนในระบบ แสดงให้เห็นว่ามีปฏิกิริยารีดักทีฟดีคลอริเนชั่นเกิดขึ้นในถังปฏิกรณ์ และปริมาณแก๊สที่เกิดขึ้นสูงก็บ่งบอกว่ามีกระบวนการย่อยสลายของเสียด้วยแบคทีเรียที่ไม่ใช้ออกซิเจน ผลการทดลองที่ได้แสดงว่ามีความเป็นไปได้ที่จะใช้ของเสียเป็นตัวให้อิเล็กตรอนสำหรับปฏิกิริยาดีคลอรีเนชั่นของพีซีอีสำหรับดินปนเปื้อนพีซีอีที่ความเข้มข้น 100 - 250 มก./กก.ดิน การเติมน้ำมันหมูที่ใช้แล้วสามารถให้ค่าประสิทธิภาพการบำบัดที่ยอมรับได้และยังช่วยลดค่าใช้จ่ายในการบำบัดแบบชีวภาพ

สหสาขาวิชา...การจัดการสิ่งแวดล้อม...ลายมือชื่อนิสิต.....

สาขาวิชา...การจัดการสิ่งแวดล้อม.....ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา.....

ปีการศึกษา.....2548.....ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม.....

4789494920 : MAJOR ENVIRONMENTAL MANAGEMENT
KEY WORD: TETRACHLOROETHENE / DECHLORINATION
SUNISA NORTEM: ANAEROBIC DECHLORINATION OF PCE CONTAMINATED IN SOIL USING VARIOUS WASTES AS ELECTRON DONORS. THESIS ADVISOR: PETCH PENGCHAI, Ph.D. THESIS CO-ADVISOR: EKAWAN LUEPROMCHAI, Ph.D., 126 pp. ISBN 974- 14- 1965- 1.

Tetrachloroethylene (PCE) is a common contaminant of groundwater and soil. To remove PCE, reductive dechlorination was conducted in soil slurry reactors under anaerobic condition. The reactors contained PCE contaminated soil, granular sludge from UASB wastewater treatment process, mineral medium, and various wastes. The objective of this study was to investigate the appropriate type and concentration of wastes which could be used to provide electrons for PCE reductive dechlorination. All experiments were conducted in triplicate. The concentration of wastes was initially identified using food grade electron donor substrates.

After 24 days, 55.24% of 100 mg-PCE/ kg-soil was removed from soil with no electron donor addition. The addition of 5,000 mg-soybean oil/ kg-sludge or 10,000 mg-glucose/ kg-sludge as electron donor increased percent PCE removal to 99.05% and 99.47%, respectively. When adding molasses and oil wastes at concentrations similar to glucose and soybean oil, the best three substrates for PCE removal were 5,000 mg-waste oil from Leo Food/ kg-sludge (99.46%), 5,000 mg-used soybean oil/ kg-sludge (99.46%) and 500 mg-used lard/ kg-sludge (99.41%).

When PCE concentrations were varied at 150, 200, 250 and 500 mg/ kg-soil and used lard at 500 mg/ kg-sludge, removal efficiency were 88.7, 87.9, 80.7 and 37.3% of PCE respectively. PCE dechlorination in the reactors was represented by the increasing of TCE, DCE and chloride ion in the system. Moreover, the high amount of gas production indicated waste digestion process by anaerobic bacteria. Anaerobic digestion of wastes was measured from gas production. The above results suggested the potential of using wastes as electron donors for declormating PCE, especially at the concentration of 100-250 mg-PCE /kg-soil. Supplying used lard to provide electron donor in PCE contaminated site could reduce the capital cost of bioremediation.

Inter-department...Environmental Management...Student's signature.....
Field of study...Environmental Management...Advisor's signature.....
Academic year.....2005.....Co-advisor's signature.....

ACKNOWLEDGEMENTS

I wish to express my deep gratitude to my thesis advisor, Dr. Petch Pengchai, who always provide me the useful guidance, suggestion, encouragement and understanding and also patiently practice my technical skill during the whole research. Gratefully thanks to Dr. Ekawan Luepromchai, my co-advisor for all her kind assistance. I am grateful to Dr. Manaskorn Rachakornkij, Assistant Professor Dr. Wiboonluk Pungrasmi and Dr. Pichaya Rachdawong for many valuable comments.

I would like to acknowledge to laboratory and officers from National Research Center for Environmental and Hazardous Waste Management, Chulalongkron University and Environmental Engineering Department at Chiang Mai University.

Thanks to all my friends and my lovely family for their wholehearted understanding, encouragement, and patient support throughout my entire study.

CONTENTS

Page

ABSTRACT IN THAI..... iv

ABSTRACT IN ENGLISH..... v

ACKNOWLEDGEMENTS..... vi

CONTENTS..... vii

LIST OF FIGURES..... xi

LIST OF TABLES..... xiii

NOMENCLATURES..... xiv

CHAPTER I

INTRODUCTION..... 1

1.1 Statement of Problem..... 1

1.2 Objectives..... 2

1.3 Hypothesis..... 3

1.4 Scopes of the Study..... 3

CHAPTER II

BACKGROUND AND LITERATURE REVIEWS..... 6

2.1 Properties of Tetrachloroethene..... 8

2.2 Remediation..... 9

2.3 In Situ Bioremediation..... 10

2.4 Aerobic and Anaerobic Biological Processes..... 12

2.5 Anaerobic Degradation Process..... 13

2.6 Dechlorination..... 15

2.7 Dechlorination by Halorespiring Microorganisms..... 17

2.8 PCE Anaerobic Reductive Dechlorination..... 19

2.9 Hydrogen Release Compound (HRC) for Remediation..... 20

2.9.1 Plume Wide Remediation..... 20

2.9.2 Plume Cut-Off / Barrier Remediation..... 21

2.10 Wastes for In Situ Anaerobic Bioremediation..... 22

Page

2.11 Properties of Substrate..... 23
2.11.1 Fat and Oils..... 23
2.11.2 Soybean Oil..... 26
2.11.3 Sugar and Molasses..... 26
2.12 Literature Review..... 29
2.12.1 Relationship between electron donors and PCE reductive dechlorination..... 29
2.12.2 An effectiveness of the microbial consortium for anaerobic reductive dechlorination..... 31
2.12.3 Using Edible oil for enhance anaerobic reductive dechlorination..... 32

CHAPTER III

METHODOLOGY..... 36
3.1 Materials and Apparatus..... 36
3.1.1 Soil Sample Collection and Preparation..... 36
3.1.2 Preparation of Granular Sludge Seed..... 37
3.1.3 Wastes Preparation..... 38
3.1.4 Soil Slurry Reactor..... 39
3.1.5 Nutrient Media..... 42
3.1.6 Chemicals..... 43
3.1.7 Gas Chromatograph..... 43
3.1.8 Ion Chromatograph..... 44
3.2 Preliminary Experiment Design..... 45
3.3 Experimental Design..... 46
3.3.1 Investigation of the optimum concentration of glucose and soybean oil..... 46
3.3.2 Determination of the effectiveness of molasses and used-edible oil..... 47
3.3.3 Determination of the optimum concentration of PCE when applied molasses or used-edible oil as substrate.... 48

Page

3.4 Time of Sampling..... 49
3.5 Soil Extraction Method..... 50
3.6 GC Analysis..... 51

CHAPTER IV

RESULTS AND DISCUSSIONS..... 52
4.1 The Effective of Sludge, Nutrient and Carbon Source for PCE Reductive Dechlorination..... 52
4.2 Optimum concentration of food grad substrate to enhance PCE dechlorination..... 54
4.2.1 Decrease of PCE Dechlorination..... 54
4.2.2 The Production of PCE Intermediates TCE and DCE 60
4.2.3 Total Gas Production..... 64
4.2.4 Chloride Production..... 67
4.3 Optimum concentration of molasses and edible oil wastes to enhance PCE dechlorination..... 69
4.3.1 Decrease of PCE Dechlorination..... 69
4.3.2 Production of PCE Intermediates, i.e. TCE and DCE..... 74
4.3.3 Gas Production..... 76
4.3.4 Chloride Production..... 76
4.4 Optimum concentration of PCE using the 500 mg-used lard/kg-sludge as electron donor for PCE reductive dechlorination..... 79
4.4.1 Decrease of PCE Dechlorination..... 79
4.4.2 The Production of PCE Intermediates TCE and DCE..... 81
4.4.3 Total Gas Production..... 83
4.4.4 Chloride Production..... 84

CHAPTER V

CONCLUSIONS AND SUGGESTIONS FOR FUTURE WORK..... 85
5.1 Conclusions..... 85
5.2 Suggestions for Future Work..... 88

Page

REFERENCES..... 90
APPENDICE..... 95
BIOGRAPHY..... 126

LIST OF FIGURES

Page

2.1 Anaerobic biological transformation of tetrachloroethene (PCE)..... 12
2.2 Aerobic biological transformation of trichloroethene (TCE)..... 13
2.3 Schematic diagram of the patterns of the carbon flow in anaerobic..... 14
2.4 Mechanism of reductive dechlorination of chlorinated compounds..... 16
2.5 Steps in the process of biodegradation of PCE by reductive dechlorination..... 18
2.6 Anaerobic reductive dechlorination..... 19
2.7 Soybean oil structure and its substituted fatty acids..... 26
3.1 Dried and sieved soil sample..... 37
3.2 Homogenized granular sludge seed..... 38
3.3 Example of organic wastes..... 39
3.4 Materials used for constructing the reactor..... 40
3.5 Example of soil slurry reactors..... 41
3.6 Soil slurry on the orbital shaker..... 41
3.7 Gas chromatography..... 44
3.8 Ion chromatography..... 45
3.9 Diagram of pre-experiment..... 46
3.10 Diagram of soil slurry reactors with various amount of glucose or edible oil as electron donor..... 47
3.11 Diagram of soil slurry reactors that utilized waste as carbon source 48
3.12 Diagram for determination the optimum concentration of PCE using an appropriated waste as carbon source supplementation..... 49
3.13 Syringe septum was pushed up by gas production during organic digestion Process in soil slurry..... 50
4.1 Effects of various conditions for PCE dechlorination..... 53
4.2 Comparison of the efficiency of substrate between no carbon source addition (dot line) and various concentration of Glucose (solid line)..... 58

Page

4.3 Comparison of the efficiency of substrate between no carbon source addition (dot line) and various concentration of soybean oil (solid line)..... 59
4.4 Total TCE production (mg/kg-soil) using glucose as substrate..... 61
4.5 Total DCE production (mg/kg-soil) using glucose as substrate..... 62
4.6 Total TCE production (mg/kg-soil) using soybean oil as substrate..... 63
4.7 Total DCE production (mg/kg-soil) using soybean oil as substrate..... 63
4.8 Total gas production (ml) using glucose as substrate..... 65
4.9 Total gas production (ml) using soybean oil as substrate..... 66
4.10 Chloride productions..... 68
4.11 PCE residual from three waste act as carbon source..... 71
4.12 Total TCE production using wastes as carbon source..... 75
4.13 Total DCE production using wastes as carbon source..... 75
4.14 Gas production using waste as carbon source..... 77
4.15 Chloride productions using wastes as carbon source..... 78
4.16 Total TCE productions using the 500 mg-Lard/kg-sludge as carbon source.... 82
4.17 Total gas production (ml) using Lard concentration 500 mg/kg-sludge as carbon source..... 83
4.18 Chloride productions using Lard concentration 500 mg/kg-sludge as carbon source..... 84

LIST OF TABLES

Page

2.1 HRC a cost effective remediation strategy on plume wide remediation 21
2.2 HRC a cost effective remediation strategy on plume cut-off / barrier Remediation..... 22
2.3 Component of fatty acids 24
2.4 General composition of fat and oil..... 25
2.5 Properties of Molasses..... 28
3.1 Composition of MS medium used for this study..... 42
4.1 PCE dechlorination efficiency when using glucose and soybean oil as organic substrates within 24 days..... 55
4.2 Efficiency of PCE removal using molasses and oil wastes as organic substrates within 24 days..... 70
4.3 Cost analysis and other information..... 73
4.4 PCE removal efficiency using Lard 500 mg/kg as substrate..... 80

NOMENCLATURES

AAM	=	American Academy of Microbiology
DCE	=	dichloroethene
DNAPL	=	dense non-aqueous phase liquids
GC	=	gas chromatography
GW	=	groundwater
IC	=	ion chromatography
kg	=	kilograms
mg	=	milligrams
MSM	=	mineral salt medium
NAPL	=	non-aqueous phase liquids
PCB	=	polychlorinated biphenyls
PCE	=	tetrachloroethene
ppm	=	part per million
TCE	=	trichloroethylene
VC	=	vinyl chloride
UASB	=	upflow anaerobic sludge blanket