

การจัดอาร์เซไนต์ อาร์เซเนต และไดเมทิลอาร์เซนิคแอซิดในน้ำเสียด้วยกากตะกอนจากการผลิต
น้ำประปา



นางสาวไพรัตน์ ศรีชัยนาท

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาเคมี ภาควิชาเคมี
คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2556
ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย



5372522823

REMOVAL OF ARSENITE, ARSENATE AND DIMETHYLARSENIC ACID FROM
WASTEWATER BY SLUDGE FROM TAP WATER PRODUCTION

Miss Pairat Srechainate

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Science Program in Chemistry

Department of Chemistry

Faculty of Science

Chulalongkorn University


Academic Year 2013

Copyright of Chulalongkorn University

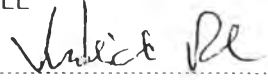


Thesis Title	REMOVAL OF ARSENITE, ARSENATE AND DIMETHYLARSENIC ACID FROM WASTEWATER BY SLUDGE FROM TAP WATER PRODUCTION
By	Miss Pairat Srechainate
Field of Study	Chemistry
Thesis Advisor	Assistant Professor Apichat Imyim, Ph.D.


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

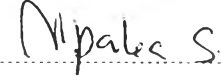
..... Dean of the Faculty of Science
(Professor Supot Hannongbua, Dr.rer.nat.)

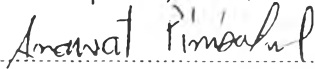
THESIS COMMITTEE

..... Chairman
(Associate Professor Vudhichai Parasuk, Ph.D.)

..... Thesis Advisor
(Assistant Professor Apichat Imyim, Ph.D.)

..... Examiner
(Assistant Professor Narong Praphairaksit, Ph.D.)

..... Examiner
(Nipaka Sukpirom, Ph.D.)

..... External Examiner
(Assistant Professor Anawat Pinisakul, Ph.D.)

ไพรัตน์ ศรีชัยนาท : การขจัดอาร์เซไนต์ อาร์เซเนต และไดเมทิลอาร์เซนิกแอซิดในน้ำเสียด้วยกากตะกอนจากการผลิตน้ำประปา. (REMOVAL OF ARSENITE, ARSENATE AND DIMETHYLARSENIC ACID FROM WASTEWATER BY SLUDGE FROM TAP WATER PRODUCTION) อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก: ผศ. ดร.อภิชาติ อิ่มยิ้ม, 72 หน้า.

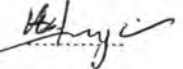
กากตะกอนจากการประปานครหลวง (บางเขน, ประเทศไทย) ถูกนำมาใช้เป็นตัวดูดซับทางเลือกราคาประหยัดสำหรับการกำจัดอาร์เซไนต์ As(III), อาร์เซเนต As(V) และไดเมทิลอาร์เซนิกแอซิด (DMA) ในน้ำปนเปื้อนอาร์เซนิก ใช้เทคนิคเอกซเรย์ฟลูออเรสเซนซ์ (XRF) และอินดักทีฟลีคัปเปิลพลาสมาออฟติคัลสเปกโทรเมตรี (ICP-OES) ในการวิเคราะห์ชนิดและปริมาณของธาตุที่มีอยู่ในกากตะกอน ผลการวิเคราะห์ด้วยเทคนิค ICP-OES บ่งชี้ว่ากากตะกอนนั้นมีปริมาณอะลูมิเนียมและเหล็กสูงมากที่สุดที่ 113.8 และ 43.7 มิลลิกรัมต่อกรัมตามลำดับ และผลของเอ็กซ์เรย์ดิฟแฟรกชันแสดงโครงสร้างสารประกอบของอะลูมิเนียมและเหล็กในกากตะกอนน่าจะเป็นโครงสร้างอสัณฐาน และค่าพีเอชของสารละลายที่ทำให้ผลรวมของประจุบนผิวของกากตะกอนมีค่าเป็นศูนย์ (pHpzc) คือค่าพีเอชที่ 6.7 จากการศึกษาการดูดซับในระบบแบชท์ พบว่าค่าพีเอชที่เหมาะสมในการดูดซับ As(III), As(V) และ DMA คือ 2 และระยะเวลาของการดูดซับที่เข้าสู่สมดุลคือ 12 ชั่วโมง สำหรับการศึกษาจลนศาสตร์ของการดูดซับ พบว่าพฤติกรรมของการดูดซับ As(III), As(V) และ DMA เป็นไปตามความสัมพันธ์แบบการดูดซับแบบอันดับสองเทียม ในงานวิจัยนี้ได้ทำการศึกษาไอโซเทอมของการดูดซับด้วย พบว่าการดูดซับ As(V) เป็นไปตามความสัมพันธ์ของแบบจำลองของแลงเมียร์ ขณะที่การดูดซับ As(III) และ DMA เป็นไปตามความสัมพันธ์แบบจำลองของแลงเมียร์และฟรุนดิช โดยความจุในการดูดซับสูงสุดที่คำนวณได้จากการทดลองของ As(III), As(V) และ DMA เท่ากับ 8.76, 1.89 and 1.78 มิลลิกรัมต่อกรัมตามลำดับ จากนั้นศึกษาผลของตัวรบกวนฟอสเฟตและซิลเฟต พบว่าฟอสเฟตส่งผลกระทบต่อ การดูดซับอาร์เซนิก แต่ซิลเฟตไม่ส่งผลกระทบต่อ เมื่อศึกษาการดูดซับอาร์เซนิกในระบบคอลัมน์ แสดงให้เห็นว่าประสิทธิภาพของการดูดซับ As(III) และ DMA ลดลงเมื่อเพิ่มอัตราการไหลของสารละลาย ขณะที่ประสิทธิภาพของการดูดซับ As(V) ไม่เปลี่ยนแปลงที่อัตราการไหลของสารละลายระหว่าง 0.5 ถึง 4.0 มิลลิลิตรต่อนาที นอกจากนี้กากตะกอนมาใช้ในการกำจัดอาร์เซนิกทั้งหมดในน้ำตัวอย่างจริงที่มีความเข้มข้นของอาร์เซนิกประมาณ 74 ถึง 77 มิลลิกรัมต่อกรัม และใช้กำจัด As(V) ในน้ำตัวอย่างที่มาจากสระน้ำจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัยที่มีการเติมอาร์เซนิก ผลการทดลองทั้งหมดแสดงให้เห็นว่ากากตะกอนจากการประปานครหลวงบางเขนมีประสิทธิภาพที่ดีในการใช้เป็นตัวดูดซับ As(V) ในน้ำ

ภาควิชา เคมี

สาขาวิชา เคมี

ปีการศึกษา 2556

ลายมือชื่อนิสิตไพรัตน์.....ศรีชัยนาท.....

ลายมือชื่อ อ.ที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์หลัก 

5372522823 : MAJOR CHEMISTRY

KEYWORDS: ARSENIC / ADSORPTION / WATER TREATMENT SLUDGE

PAIRAT SRECHAINATE: REMOVAL OF ARSENITE, ARSENATE AND DIMETHYLARSENIC ACID FROM WASTEWATER BY SLUDGE FROM TAP WATER PRODUCTION. ADVISOR: ASST. PROF. APICHAT IMYIM, Ph.D., 72 pp.

Sludge of tap water production from the Metropolitan Waterworks Authority (Bangkhen, Thailand) was utilized as alternative low-cost adsorbent for the removal of arsenite (As(III)), arsenate (As(V)) and dimethylarsenic acid (DMA) from contaminated water. The elemental analysis of the sludge was done using X-ray fluorescence (XRF) technique and inductively coupled plasma optical emission spectrometry (ICP-OES). The result of ICP-OES indicated that the sludge have high contents of aluminium and iron at 113.8 and 43.7 mg/g, respectively. The XRD result illustrated that the structure of aluminium and iron compounds in the sludge might be amorphous, while the pH of point zero charge of the sludge was 6.7. In the batch study, the optimal pH of As(III), As(V) and DMA solution was 2 and the equilibrium contact time was 12 hours. For the kinetics study, the adsorption behaviours of As(III), As(V) and DMA showed a good compliance with the pseudo-second order kinetics model. The Langmuir and Freundlich adsorption isotherms were also studied, it was found that the adsorption of As(V) fitted to the Langmuir isotherm, while those of As(III) and DMA preferably obeyed both isotherms. The maximum adsorption amounts calculated from experiments of As(V), As(III) and DMA in the batch system were 8.76, 1.89 and 1.78 mg/g, respectively. After that, the effects of phosphate and sulphate anions were evaluated. It was found that phosphate significantly affected the adsorptive ability for arsenic, but sulphate did not interfere in adsorption. In case of the column study, the percent removal of As(III) and DMA decreased with increasing the flow rate of solution, whereas the flow rates of 0.5-4.0 mL/min did not affect the adsorption efficiency of As(V). Furthermore, the sludge was applied to remove total arsenic in contaminated water containing arsenic of around 74-77 mg/L and used for the removal of arsenic from a surface water sample collected from the Chulalongkorn University pond and spiked with As(V). All results showed that the sludge has a good potential to be used as adsorbent for removal As(V) from water.

Department: Chemistry

Student's Signature ทวิรัตน์ อธิษฐาน

Field of Study: Chemistry

Advisor's Signature อภิชาติ อิมยิม

Academic Year: 2013

ACKNOWLEDGEMENTS

For the success of this thesis, I wish to express the highest appreciation and paramount thanks to my advisor, Assistant Professor Dr. Apichat Imyim for his extreme kindness, valuable guidance, understanding and forgiveness for my mistake. In addition, I am also grateful to Associate Professor Dr. Vudhichai Parasuk, Assistant Professor Dr. Narong Praphairaksit, Dr. Nipaka Sukpirom and Assistant Professor Dr. Anawat Pinisakul, for their valuable suggestions and comments as committee members and thesis examiners.

This thesis cannot be completed without kindness and help from many people. Firstly, I would like to thank Assistant Professor Dr. Fuanfa Unob for her suggestion and helps. Next, I would like to thank all people in the Environmental Analysis Research Unit for the friendship and good supports. Furthermore, I would like to thank Miss Warangkana kaodee, Miss Pimpimon anekthirakun and Miss Amornrat saithongdee for their support.

Finally, I am grateful to my family for the education, understanding, love, care, support, and especially for the encouragement they provide me throughout my study.



CONTENTS

	Page
THAI ABSTRACT	iv
ENGLISH ABSTRACT	v
ACKNOWLEDGEMENTS.....	vi
CONTENTS.....	vii
LIST OF TABLES.....	xi
LIST OF FIGURES.....	xii
CHAPTER I INTRODUCTION	4
1.1 Statement of problem	4
1.2 Objective and scope of the research.....	5
1.3 Benefits of this research.....	5
CHAPTER II THEORY AND LITERATURE REVIEW.....	6
2.1 Arsenic	6
2.1.1 Arsenic element	6
2.1.2 Arsenic compounds	6
2.2 Method of removal of arsenic from wastewater.....	9
2.2.1 Oxidation.....	9
2.2.2 Coagulation, precipitation and filtration.....	10
2.2.3 Ion-exchange	10
2.2.4 Reverse osmosis	11
2.2.5 Biological process.....	11
2.2.6 Adsorption	11
2.3 Adsorption process	12
2.3.1 Adsorption mechanism	12
2.3.2 Physical adsorption or physisorption.....	13
2.3.3 Chemical adsorption or chemisorption.....	13
2.4 Adsorption equilibrium and adsorption isotherm	13
2.4.1 Langmuir isotherm	14



	Page
2.4.2 Freundlich isotherm.....	15
2.4.3 BET Adsorption Isotherm.....	16
2.5 Adsorption kinetics.....	17
2.5.1 Pseudo-first order kinetics.....	17
2.5.2 Pseudo-second order kinetics.....	17
2.6 Tap water production.....	19
2.7 Sludge from tap water production (STWP).....	20
2.7.1 Sludge treatment.....	22
2.8 Management of sludge wastes containing arsenic.....	22
2.8.1 Landfill.....	22
2.8.2 Incineration.....	23
2.8.3 Stabilization/solidification (S/S).....	23
2.9 Metropolitan waterworks authority, Thailand.....	23
2.10 Literature review.....	24
2.10.1 Arsenic removal from water by low-cost adsorbent.....	25
2.10.2 Heavy metal and other compound removal from water by sludge.....	27
CHAPTER III EXPERIMENTAL.....	30
3.1 Analytical instruments.....	30
3.2 Chemicals.....	31
3.3 Preparation of adsorbent.....	32
3.4 Characterization of sludge.....	32
3.4.1 Elemental content using ICP-OES.....	32
3.4.2 Measurement of point of zero charge.....	33
3.5 Batch study.....	33
3.5.1 Effect of solution pH.....	33
3.5.2 Adsorption kinetics.....	33
3.5.3 Adsorption isotherms.....	34

	Page
3.5.4 Effect of competing ions.....	34
3.6 Column study.....	35
3.6.1 Effect of flow rate	35
3.6.2 Effect of adsorbent layer height	35
3.6.3 Breakthrough curve.....	36
3.7 Application in real contaminated water samples	36
CHAPTER IV RESULTS AND DISCUSSION.....	37
4.1 Characterization of adsorbent	37
4.1.1 Surface analysis	38
4.1.2 Elemental analysis (EA).....	38
4.1.3 X-ray fluorescence spectrometer	39
4.1.4 Inductively coupled plasma-optical emission spectrometry.....	39
4.1.5 X-ray diffractometry (XRD).....	40
4.1.6 Point of zero charge	41
4.2 Adsorption study by batch method.....	42
4.2.1 Effect of pH of arsenic solution	42
4.2.2 Effect of contact time	44
4.2.3 Adsorption kinetics.....	45
4.2.4 Effect of initial arsenic concentration and adsorption isotherms	49
4.2.5 Effect of competing ions.....	54
4.3 Adsorption study by column system.....	55
4.3.1 Effect of flow rate	56
4.3.2 Effect of adsorbent layer height	58
4.3.3 Breakthrough curve.....	60
4.4 Application in real contaminated water samples	61
4.4.1 Arsenic removal from contaminated water samples	61
4.4.2 Arsenic removal from surface water sample.....	62



	Page
CHAPTER V CONCLUSION	64
REFERENCES.....	67
VITA.....	68



LIST OF TABLES

Table	Page
2.1	7
3.1	30
3.2	31
3.3	31
3.4	32
4.1	38
4.2	38
4.3	39
4.4	40
4.5	47
4.6	47
4.7	52
4.8	52
4.9	54
4.10	56
4.11	57
4.12	57
4.13	59
4.14	59
4.15	59
4.16	62
4.17	62
4.18	63

LIST OF FIGURES

Figure	Page
2.1	7
2.2	8
2.3	14
2.4	15
2.5	17
2.6	18
2.7	20
2.8	21
3.1	35
4.1	37
4.2	40
4.3	41
4.4	43
4.5	45
4.6	48
4.7	48
4.8	51
4.9	53
4.10	53
4.11	55
4.12	56
4.13	57
4.14	60
4.15	61

LIST OF ABBREVIATION

%	Percent
°C	Degree celsius
μM	Microns
g	Gram
mg	Milligrams
M	Molar
mg/L	Milligram per litre
mg/g	Milligram per gram
L/mg	Litre per milligram
min	Minutes
L/min	Litre per minutes
mL	Milliliters
mmol	Millimole
nm	Nanometers
m ² /g	Square meter per gram
cm	Centimeters
cm ² /g	Square centimeter per gram
w/w	Weigh by weigh