การดีคลอริเนชั่นของสารเฮกซะคลอโรเบนซีนที่ปนเปื้อนในตะกอนดินภายใต้สภาวะไร้ออกซิเจน

นางสาวปริญญ์ดา ถึงมี

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาการจัดการสิ่งแวดล้อม สหสาขาวิชาการจัดการสิ่งแวดล้อม
บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2545

ISBN 974-17-2631-7

ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ANAEROBIC DECHLORINATION OF HEXACHLOROBENZENE IN CONTAMINATED SEDIMENT

Miss Parinda Tungmee

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 974-17-2631-7

Thesis Title	Anaerobic dechlorination of hexachlorobenzene in contaminated sediment
By	Miss Parinda Tungmee
Field of Study	Environmental Management
Thesis Advisor	Saroch Boonyakitsombut, Ph.D.
Thesis Co-advisor	Professor Michael K Stenstrom, Ph.D.

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

..... Dean of Graduate School
(Professor Suchada Kiranandana, Ph.D.)

THESIS COMMITTEE

..... Chairman
(Assistant Professor Sutha Khaodhiar, Ph.D.)

..... Thesis Advisor
(Saroch Boonyakitsombut, Ph.D.)

..... Member
(Associate Professor Amorn Petsom, Ph.D.)

..... Member
(Ekawan Luepromchai, Ph.D.)

ปริญญ์ดา ถึงมี : การดีคลอริเนชั่นของสารเฮกซะคลอโรเบนซีนที่ปนเปื้อนในตะกอนดินภายใต้สภาวะไร้ออกซิเจน. (ANAEROBIC DECHLORINATION OF HEXACHLOROBENZENE IN CONTAMINATED SEDIMENT)
อ. ที่ปรึกษา : ดร.สาโรช บุญยกิจสมบัติ,อ.ที่ปรึกษาร่วม : Prof. Michael K Stenstrom
58 หน้า. ISBN 974-17-2631-7.

เฮกซะคลอโรเบนซินเป็นสารมลพิษที่ตกค้างยาวนานซึ่งมีการพบการปนเปื้อนในตะกอนดินจากคลองหัวลำพูที่ตั้งอยู่บริเวณข้างนิคมอุตสาหกรรมบางปู ประเทศไทย งานวิจัยนี้ศึกษาการกำจัดสารเฮกซะคลอโรเบนซีนที่ปนเปื้อนในดินตะกอนโดยใช้จุลินทรีย์ภายใต้สภาวะไร้ออกซิเจน วัตถุประสงค์ของงานวิจัยเน้นที่การเพิ่มอัตราการดีคลอริเนชั่นด้วยการศึกษาบทบาทของชนิดของแหล่งคาร์บอนและพลังงานแก่จุลินทรีย์และปริมาณของจุลินทรีย์ที่ใช้ต่อปริมาณตะกอนดินที่ปนเปื้อน การทดลองจัดทำขึ้นในหลอดฉีดยาขนาด 20 มิลลิลิตร บรรจุตะกอนดินที่ปนเปื้อนสารเฮกซะคลอโรเบนซีน และจุลินทรีย์ที่บดละเอียดจากระบบบำบัดน้ำเสียแบบ ยูเอเอสบี ซึ่งยังไม่เคยผ่านการสัมผัสกับสารที่ศึกษานี้มาก่อน โดยรวมกันได้ 10 กรัม และใส่สารละลายของสารอาหารที่จำเป็นต่อการทำงานของแบคทีเรียในสภาวะไร้อากาศ การทดลองได้ดำเนินการในช่วง 9 สัปดาห์ และทำการเก็บตัวอย่างเพื่อวิเคราะห์สารเฮกซะคลอโรเบนซีนที่เหลือทุกๆ 2 สัปดาห์ ผลการวิเคราะห์จะนำสมการอันดับ 1 มาอธิบายเพื่อสามารถนำค่าคงที่มาเปรียบเทียบลักษณะการลดลงของสารเฮกซะคลอโรเบนซีน

จากผลการวิเคราะห์ในชุดควบคุมไม่พบการลดลงของเฮกซะคลอโรเบนซีนอย่างมีนัยสำคัญ จุลินทรีย์ที่ใช้ทดลองมีความสามารถทำให้เกิดการดีคลอริเนชั่นโดยจากการทดลองได้ค่าอัตราการดีคลอริเนชั่นอยู่ในช่วง 0.028 ถึง 0.143 วัน$^{-1}$ กลูโคสให้ค่าอัตราดีคลอริเนชั่นสูงสุด คือ 0.143 วัน$^{-1}$ ทั้งนี้พบว่าบทบาทของการเติมแหล่งคาร์บอนและ พลังงานให้แก่ระบบส่งผลให้ค่าอัตราการดีคลอริเนชั่นอาจเพิ่มขึ้นถึง 5.18 เท่า ส่วนปริมาณจุลินทรีย์ต่อตะกอนดินที่เพิ่มขึ้นส่งผลให้ค่าอัตราการดีคลอริเนชั่นอาจเพิ่มขึ้น 2.16 เท่า ดังนั้นการเติมแหล่งคาร์บอนและพลังงานและปริมาณของจุลินทรีย์ต่อตะกอนดินมีผลต่อการเกิดการดีคลอริเนชั่นในสภาวะไร้ออกซิเจนของสารเฮกซะคลอโรเบนซีน

สหสาขาวิชา...การจัดการสิ่งแวดล้อม....ลายมือชื่อนิสิต.....
สาขาวิชา.....การจัดการสิ่งแวดล้อม.....ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา.....
ปีการศึกษา.....2545.....ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม.....

4489422420 : MAJOR ENVIRONMENTAL MANAGEMENT
KEY WORD: HEXACHLOROBENZENE / DECHLORINATION
PARINDA TUNGMEE: ANAEROBIC DECHLORINATION OF
HEXACHLOROBENZENE IN CONTAMINATED SEDIMENT.
THESIS ADVISOR: SAROCH BOONYAKITSOMBUT, Ph.D.
THESIS CO-ADVISOR : PROF.MICHAEL K STENSTROM, Ph.D, 58 pp.
ISBN 974-17-2631-7.

Hexachlorobenzene (HCB) is persistent organic pollutant that was found in the sediment from the canal near Bang Poo Industrial Estate, Thailand. Microbial anaerobic dechlorination was investigated to remove HCB from contaminated sediment. The objective of this study was to accelerate the dechlorination rate of HCB by examine the role of various types of carbon-source supplementation and the role of sludge to contaminated sediment quantity. The dechlorination was demonstrated in twenty-ml syringe under anaerobic condition containing HCB-contaminated sediment and homogenized granular sludge from anaerobic digestion, which was maintained at total of ten grams (dry weight of sediment and wet weight of homogenized granular sludge), and ten ml of nutrient media. The experiments were conducted for nine weeks and samples were analyzed every two weeks.

The decreasing of HCB at designated time was fitted with first-order equation in order to obtain the comparable dechlorination rate. No significant decreasing of HCB was observed in control set. The dechlorination rate was observed in the range of 0.028 to 0.143 day^{-1}, which glucose provided the highest dechlorination rate as 0.143 day^{-1}. It was found that the rate of dechlorination was increased 5.18 times when carbon-source was added. It was 2.16 times increasing in dechlorination rate when higher sludge to sediment ratio was used. The combined role of carbon source supplementation and sludge to sediment ratio resulted in increasing dechlorination rate of 5.59 times. These results implied that both carbon-source and sludge quantity affect the microbial dechlorination of hexachlorobenzene.

Inter-department..Environmental Management..Student's signature...Parinda Tungmee
Field of study...Environmental Management...Advisor's signature...Saroch Boonyakitsombut
Academic year.....2002.....Co-advisor's signature.....

ACKNOWLEDGEMENTS

I wish to express my deep gratitude to my thesis advisor, Dr. Saroch Boonyakitsombut, who always provide me the useful guidance, suggestion, encouragement and understanding and also patiently practise my technical skill during the whole research. Gratefully thanks to Prof. Dr. Michael K Stenstrom, my co-advisor and Prof. I-Ming Chen, Taiwan for all his kind assistance.

I would like to acknowledge to laboratory staffs and officers from National Research Center-Environmental and Hazardous Waste Management, Chulalongkron University and Environmental Engineering Department at King Mongkut's University of Technology Thonburi.

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

CONTENTS

Pages

ABSTRACT IN THAI..... iv

ABSTRACT IN ENGLISH..... v

ACKNOWLEDGMENTS..... vi

CONTENTS..... vii

LIST OF FIGURES..... x

LIST OF TABLES..... xi

NOMENCLATURES..... xii

CHAPTER 1 INTRODUCTION..... 1

1.1 Statement of Problem 1

1.2 Objectives..... 3

1.3 Scopes of the Study..... 4

1.4 Methodology..... 5

CHAPTER 2 THEORETICAL BACKGROUND AND LITERATURE REVIEW..... 6

2.1 Hexachlorobenzene's Property 6

2.2 Anaerobic Degradation Process 6

2.3 Dechlorination..... 8

2.3.1 Physiology of Biodegradative Microorganisms..... 11

2.3.2 Dechlorination by Halorespiring Microorganisms..... 12

2.3.3 Mechanism of Anaerobic Dechlorination..... 13

2.4 Literature Review..... 16

CHAPTER 3 METHODOLOGY..... 22

3.1 Materials and Apparatus..... 22

3.1.1 Sediment Sample..... 22

CONTENTS (Cont.)

Pages

3.1.2 Granular Sludge Seed..... 22
3.1.3 Reactor 23
3.1.4 Nutrient media..... 23
3.1.5 Chemicals..... 24
3.1.6 Gas Chromatography..... 24
3.2 Experimental Designs..... 25
3.2.1 The Role of Carbon-Source Supplementation..... 25
3.2.2 The Role of Sludge:Sediment Ratio with and without Carbon-Source..... 26
3.2.3 Control Condition 26
3.3 Time of Sampling..... 27
3.4 Extraction Method..... 28
3.5 GC-Analysis..... 28

CHAPTER 4 RESULTS AND DISCUSSIONS..... 29
4.1 The Role of Carbon-Source Supplementation..... 29
4.2 The Role of Sludge:Sediment Ratio 34
4.3 The Combined Role of C-Source Supplementation and Sludge to Sediment Ratio..... 35
4.4 Total Gas and Methane Production..... 36
4.5 The Recovery of HCB from Sediment Slurry..... 38
4.6 Possible Mechanisms..... 40

CHAPTER 5 CONCLUSIONS AND SUGGESTIONS FOR FUTURE WORK 42
5.1 Conclusion 42
5.2 Suggestion for Future Work..... 42

REFERENCES..... 44

APPENDICES..... 48

BIOGRAPHY..... 58

LIST OF FIGURES

Pages

2.1 Schematic diagram of the patterns of carbon flow in anaerobic degradation 7
2.2 Mechanism of reductive dechlorination of chlorinated benzenes..... 8
2.3 Steps in the process of biodegradation of PCE by reductive dechlorination... 13
2.4 Proposed pathway for HCB dechlorination by anaerobic microbial Community..... 16
3.1 Dried-ground and sieved sediment sample..... 22
3.2 Homogenized granular sludge..... 23
3.3 Test-tube (syringe)..... 23
3.4 Diagram of the role of carbon-source supplementation experiment..... 25
3.5 Diagram of the role of sludge to sediment ratio experiment..... 26
3.6 Diagram of control condition..... 26
3.7 One set of experiment, five times of sampling with triplicates each..... 27
3.8 The elevation of septum cause by gas production in test-tube..... 28
4.1 HCB concentration in control set with and without yeast extract..... 29
4.2 HCB concentration from glucose supplementation set 31
4.3 HCB concentration from lactate supplementation set..... 32
4.4 HCB concentration from ethanol supplementation set 32
4.5 HCB concentration from formate supplementation set 32
4.6 HCB concentration from the combination of acetate, butyrate and propionate supplementation set 33
4.7 HCB concentration from 20:80 sludge to sediment with and without glucose supplementation set 34
4.8 HCB concentration from 20:80 and 50:50 sludge to sediment with and without glucose supplementation set 34
4.9 The combination role of substrate and sludge quantity..... 35
4.10 Total gas production from the experiment..... 37
4.11 %HCB removal couple with methane production at final set of experiment.. 38
4.12 Possible mechanisms which can cause the decreasing of HCB..... 40

LIST OF TABLES

		Pages
1.1	Experimental designs.....	5
2.1	Chemical-specific factors which influence the biodegradation of recalcitrant compounds.....	9
2.2	Environmental-specific factors.....	10
2.3	Abbreviations, chemical names and chlorine to carbon ratios of common alkyl and aryl halides contaminants.....	11
3.1	Composition of inorganic nutrient media for anaerobic studies.....	24
4.1	Summary of the first-order rate constant and correlation efficient of HCB test in different carbon source supplementation	30
4.2	Recovery efficiency of HCB using for extraction from different matrix...	39

NOMENCLATURES

COD	=	chemical oxygen demand
DCB	=	dichlorobenzene
EPA	=	environmental protection agency
HCB	=	hexachlorobenzene
Kow	=	octanol-water partition coefficient
PCBs	=	polychlorinated biphenyls
POPs	=	persistent organic pollutants
ppm	=	part per million
TTCB	=	tetrachlorobenzene
TCB	=	trichlorobenzene
UASB	=	upflow anaerobic sludge blanket