



Simultane Entfernung von organischen Spurenstoffen und Phosphor aus kommunalem Abwasser unter Einsatz einer Adsorptions-/Fällmittelsuspension

Daniela Reif · Liad Weisz · Kara Kobsik · Heidemarie Schaar · Ernis Saracevic · Jörg Krampe · Norbert Kreuzinger

Angenommen: 12. Dezember 2022 / Online publiziert: 13. Januar 2023
© Der/die Autor(en) 2023

Zusammenfassung In der vorliegenden Studie wurde die Wirksamkeit einer Adsorptions-/Fällmittel-Prototypsuspension der Firma Donau Chemie AG zur simultanen Entfernung von Spurenstoffen und Phosphor aus kommunalem Abwasser untersucht. Die Suspension enthält Polyaluminiumchlorid zur Fällung von gelöstem Orthophosphat, Pulveraktivkohle (PAK) zur Adsorption von organischen Spurenstoffen sowie anorganische Stabilisatoren, die die Suspension der PAK unterstützen. Vergleichende Laborversuche mit herkömmlicher PAK und der Prototypsuspension mit einem PAK-Gehalt von 16,5 % wurden mittels zweier unabhängiger Methoden (Spurenstoffanalytik und In-vitro-Bioassays) bewertet. Die Ergebnisse zeigten, dass die Suspension zu einer Verbesserung der Oberflächeneigenschaften der Aktivkohle führt und somit eine höhere Anzahl von bekannten und unbekannt Substanzen adsorbiert werden kann. Die Anwendbarkeit der Suspension wurde in drei verschiedenen Abwässern untersucht und ist vor allem vom Verhältnis zwischen gelöstem organischem Kohlenstoff (dissolved organic carbon – DOC) und Gesamtphosphor im Zulauf abhängig. Bei höheren DOC-Konzentrationen ist ein höherer Anteil an PAK in der Suspension notwendig, um eine massive Überdosierung des Fällmittels zu verhindern. Während des großtechnischen Versuchs, der auf einer kommunalen Kläranlage durchgeführt wurde, kam

es zu einem Anstieg der prozentuellen Entfernung um mehr als 90 % für Carbamazepin, mehr als 50 % für Diclofenac und Metoprolol und um etwa 30 % für Benzotriazol. Bei einer konstanten Dosiermenge von 90 L d⁻¹ wurde die auf Basis der Labortests erwartete Spurenstoffentfernung von mehr als 75 % für alle Stoffe erreicht. Der Prototyp zeigte sich als einfacher zu lagern und zu dosieren als herkömmliche PAK. Weiters kann die vorhandene Infrastruktur für die chemische Phosphorfällung für die organische Spurenstoffentfernung mitgenutzt werden.

Schlüsselwörter Weitergehende Abwassereinigung · Organische Spurenstoffe · Pulveraktivkohle · P-Entfernung

Simultaneous removal of organic micropollutants and phosphorus from municipal wastewater using an adsorption/precipitation suspension

Abstract The present study investigated the effectiveness of a prototype adsorption/precipitation agent suspension from Donau Chemie AG for the simultaneous removal of organic micropollutants and phosphorus from municipal wastewater. The suspension contains poly aluminum chloride for the precipitation of dissolved orthophosphate, powdered activated carbon (PAC) for the adsorption of organic trace substances, and inorganic stabilizers that support the suspension of the PAC. Comparative laboratory experiments with conventional PAC and the prototype suspension with a PAC content of 16.5% were evaluated by two independent methods (trace substance analysis and in vitro bioassays). The results showed that the suspension improves the surface properties of the activated carbon, and thus a higher number of

known and unknown substances can be adsorbed. The applicability of the suspension was investigated in three different wastewaters and is mainly dependent on the ratio between dissolved organic carbon (dissolved organic carbon—DOC) and total phosphorus in the inflow. At higher DOC concentrations, a higher proportion of PAC in the suspension is necessary to prevent the over-dosing of the precipitation agent. During the large-scale test carried out on a municipal wastewater treatment plant, there was an increase in the percentage removal of more than 90% for carbamazepine, more than 50% for diclofenac and metoprolol, and about 30% for benzotriazole. At a constant dosing rate of 90 L d⁻¹, the expected organic micropollutant removal of more than 75% for all substances was achieved based on laboratory tests. The prototype proved to be easier to store and dose than conventional PAC. Furthermore, the existing infrastructure for chemical phosphorus precipitation can also be used for organic micropollutant removal.

Keywords Advanced wastewater treatment · Organic micropollutants removal · Powdered activated carbon · P-removal

1 Einleitung

Organische Spurenstoffe – darunter Arzneimittel, Chemikalien aus Haushalts- oder Körperpflegeprodukten und Industrie – wurden in den letzten Jahren weltweit in Flüssen, Seen und Grundwasserkörpern nachgewiesen und stellen eine zunehmende Bedrohung für Mensch, Tier und Umwelt dar (Halling-Sørensen et al. 1998; Michael et al. 2013; Backhaus und Karlsson 2014; Luo et al. 2014). Die Eintragspfade in die Umwelt sind vielfältig und umfassen Punktquellen wie Kläranlagenabläufe, Mischwas-

Univ.-Ass. DI D. Reif, BSc (✉) ·
DI L. Weisz, BSc · K. Kobsik, BSc ·
DI Dr. H. Schaar · DI Dr. E. Saracevic ·
Univ.-Prof. Dr.-Ing. J. Krampe ·
Ass.-Prof. Mag. Dr. N. Kreuzinger
Institut für Wassergüte und
Ressourcenmanagement, Technische
Universität Wien, Karlsplatz
13/226, 1040 Wien, Österreich
daniela.reif@tuwien.ac.at

serentlastungen und Industrieabwässer sowie diffuse Quellen, z. B. Landwirtschaft, Oberflächenabfluss oder Niederschlag (Collado et al. 2014; Launay et al. 2016; Ghirardini et al. 2021). Einige dieser Stoffe zeichnen sich durch hohe Beständigkeit gegen biologischen, thermischen und photolytischen Abbau aus und verbleiben somit im Wasserkreislauf, wo sie potenziell negative Auswirkungen auf die aquatische Umwelt und die menschliche Gesundheit haben können.

Aufgrund der schieren Anzahl der Verbindungen und der noch teils unbekannteren Folgen wurden die Forderungen nach einer strengeren Regulierung dieser Einträge immer lauter, was in dem im Oktober 2022 veröffentlichten Entwurf zur Novellierung der Europäischen Kommunalen Abwasserrichtlinie (Urban Wastewater Treatment Directive – UWWTD) berücksichtigt wurde. Einen wichtigen Punkt stellt dabei die weitergehende Abwasserreinigung dar, die für Kläranlagen ≥ 100.000 EW ab 2035 und für jene Kläranlagen zwischen 10.000 und 100.000 EW, die in ein spurenstoffempfindliches Gebiet einleiten, ab 2040 verpflichtend werden soll. Spurenstoffempfindliche Gebiete sind u. a. Fließgewässer mit einem Verdünnungsverhältnis < 10 , Badegewässer, Seen, Wasserkörper, die zur Trinkwassergewinnung genutzt werden, und jene Gebiete, in denen eine Spurenstoffentfernung notwendig ist, um die Vorgaben der Wasserrahmenrichtlinie und Umweltqualitätsnormen einzuhalten. Die geforderte Entfernungsleistung über den gesamten Abwasserreinigungsprozess (biologisch und weitergehend) beträgt 80 % und wird anhand eines Sets von Indikatorsubstanzen bewertet (EU-Kommission 2022).

Die weitergehende Reinigung kann, gereiht nach Komplexität des Verfahrens: i) adsorptiv, durch die Dosierung von Pulveraktivkohle (PAK) oder den Einsatz von granulierter Aktivkohle in Filtern (GAK); ii) oxidativ, durch Ozonung oder iii) durch Größenausschluss mittels dichter Membranfiltration (Nanofiltration, Umkehrosmose) erfolgen. Um die Vorteile des jeweiligen Verfahrens optimal nutzen zu können und zusätzlichen Rückhalt gegenüber weiteren Mikroverunreinigungen, wie Mikroplastik oder antibiotikaresistenten Bakterien und Antibiotikaresistenzgenen zu bieten, werden zudem verschiedene Kombinationsverfahren – sogenannte Multibarrierensysteme – untersucht.

Beispiele dafür sind die Kombinationen aus PAK und Ultrafiltration oder Ozon und GAK-Filtration (Rizzo et al. 2019).

In der Schweiz und in einigen Bundesländern in Deutschland wird die sogenannte „vierte (weitergehende) Reinigungsstufe“ bereits seit Jahren erfolgreich eingesetzt (Bourgin et al. 2018). Dies zeigt, dass die Basis für eine breite Umsetzung vorhanden ist. Jedoch müssen die vielen Herausforderungen, mit denen die gesamte Branche im Moment konfrontiert wird, wie Mangel an Arbeitskräften und Betriebsmitteln oder steigende Energiekosten, ebenfalls berücksichtigt werden. Daher müssen für kleinere Kläranlagen, die aufgrund der Größe oder ihres empfangenden Gewässers von der Gesetzgebung betroffen sind, möglichst einfach zu implementierende und im besten Fall automatisierte Lösungen gefunden werden.

Für dieses Marktsegment hat die Donau Chemie AG ein Fällmittel/Pulveraktivkohle-Kombiprodukt (Donau PAC AQUACLEAR) entwickelt und das Institut für Wassergüte und Ressourcenmanagement mit der Durchführung von Labor- und großtechnischen Versuchen auf einer kommunalen Kläranlage zur Verifizierung der Wirksamkeit des Produkts beauftragt. Ein großer Vorteil ist die suspendierte, flüssige Form, welche die Nutzung von bestehenden Behältern für Fällmittel und die Dosierung durch Pumpen, die gegebenenfalls ebenso vorhanden sind, ermöglicht. Dadurch können zum einen Investitionskosten und zum anderen auch Sicherheitsrisiken wie Staubexplosionsgefahr, die normalerweise bei der PAK-Lagerung zu berücksichtigen sind, reduziert werden (Brandt et al. 2017).

PAK kann in die biologische Stufe oder in einen nachfolgenden Kontaktreaktor dosiert werden. Die erste Option erfordert die geringsten Investitionen und Umbauten (García et al. 2021), begünstigt die Integration der PAK in die Schlammflocken und fördert das Wachstum von immobiliser Biomasse mit guten Nitrifikationseigenschaften (Ng und Stenstrom 1987; Cecen und Aktas 2012; Ng et al. 2013). Jedoch ist aufgrund der Konkurrenz um die Adsorptionsplätze an der Aktivkohle bei gelösten organischen Stoffen eine höhere PAK-Dosis notwendig, um den gewünschten Reinigungseffekt zu erzielen (Streicher et al. 2016; Zietzschmann et al. 2016). Wird die PAK in den nachge-

schalteten Kontaktreaktor dosiert (z. B. Ulmer-Verfahren), ist eine zusätzliche Filterstufe zur Abtrennung der PAK notwendig, um einen Austrag des Materials in die Umwelt – der mit einer Abnahme der Effizienz des Verfahrens verbunden ist – zu verhindern. Oftmals werden in diesem Kontext auch Eisen- oder Aluminiumsalze zur Verbesserung der Abtrennbarkeit eingesetzt. Es handelt sich dabei um dieselben Produkte, die auch zur chemischen Phosphorfällung verwendet werden. Metallsalze sind positiv geladen und können die Abstoßung der negativen Ladungen der PAK-Partikel oder Schlammflocken ausgleichen, deren gegenseitige Abstoßung verringern und somit die Bildung größerer Partikelagglomerate fördern (Krahnstöver und Wintgens 2018b). In diesem Kontext wurde in früheren Studien der Einfluss von Fällmitteln wie Eisen- oder Aluminiumsalzen auf die Adsorptionskapazität der PAK untersucht, wobei kein signifikanter Effekt bei vorhergehender, nachgeschalteter oder simultaner Zugabe auf die Adsorption der Spurenstoffe beobachtet wurde (Altmann et al. 2015; Meinel et al. 2016).

Da die PAK/Fällmittel-Kombination zur simultanen Entfernung von Phosphor und organischen Spurenstoffen bislang noch nicht bekannt war, wurden im Rahmen dieser Arbeit folgende Aspekte untersucht:

- i) Der Einfluss der Suspendierung der PAK im Fällmittel auf die verfügbare Adsorptionskapazität in vergleichenden Labortests mit PAK und der Prototypsuspension.
- ii) Die Anwendbarkeit des Produkts für drei Kläranlagenabläufe mit unterschiedlicher Abwassermatrix.
- iii) Die Wirksamkeit der Prototypsuspension zur simultanen Entfernung von Phosphor und organischen Spurenstoffen unter realen Zulaufbedingungen an einer kommunalen Kläranlage mit 6000 EW.

Zur Beantwortung der Fragestellungen wurden die Ergebnisse ausgewählter Indikator-Spurenstoffe ausgewertet. Zudem wurden die Proben der vergleichenden Laborversuche (Punkt i) mittels biologischer Wirktests (CALUX© In-vitro-Bioassays) auf zwei Wirkmechanismen (Östrogenität und toxischer PAH (polyaromatic hydrocarbons)-Xenobiotikastoffwechsel) hin untersucht. Um die Auswirkungen auf den Kläranlagenbetrieb während Dosierung im Regelbetrieb zu evaluieren, wurden

zusätzlich konventionelle Parameter wie chemischer Sauerstoffbedarf (CSB), Ammonium- (NH₄-N), Nitrit- (NO₂-N) und Nitrat-Stickstoff (NO₃-N) sowie Orthophosphat (PO₄-P) und Phosphor-Gesamt (GP) aus dem Betriebsprotokoll der Kläranlage herangezogen.

2 Material und Methoden

2.1 Eingesetztes Adsorptionsmittel

Als Pulveraktivkohle wurde die PAK Carbopal AP® (Donau Carbon, Deutschland), eine handelsübliche PAK, verwendet.

Die untersuchte Donau PAC AQUA CLEAR®-Prototypsuspension (Donau Chemie AG, Österreich) enthielt 16,5% dieser PAK, Polyaluminiumchlorid und zusätzliche anorganische Verbindungen, welche die Ladungen kompensieren und somit die Suspension der PAK im Fällmittel ermöglichen. Zum Zweck der Vergleichbarkeit stammte die PAK für die vergleichenden Labortests (Punkt i) von derselben Aktivkohlecharge. Der Gesamtfeststoffgehalt des Prototyps betrug 36,9%.

2.2 Laborversuche

Eingangs wurden vergleichende Experimente (A1 und A2) mit PAK und der Prototypsuspension durchgeführt und die erhaltenen Ausgangs- und Endproben mittels Spurenstoffanalytik und In-vitro-Bioassays bewertet. Für diese Versuche wurde eine Ablaufprobe der Kläranlage A verwendet.

Die Tests A3, B und C untersuchten die allgemeine Anwendbarkeit des Prototyps für den Einsatz auf Kläranlagen mit unterschiedlichen Abwassereigenschaften.

In allen Versuchen wurden drei spezifische PAK-Dosen von 1, 1,5 und 2 mg PAK mg⁻¹ DOC in Triplikaten untersucht. Für die In-vitro-Bioassays wurden die Triplikate zu einer Mischprobe zusammengeführt. Die Blindproben (Abwasser ohne Adsorptionsmittel)

wurden in Duplikaten gemessen und dienten dazu, eine Verfälschung der Ergebnisse aufgrund der Adsorption von Stoffen an den Versuchskolben oder durch photokatalytischen Abbau zu erfassen. Die Versuchskolben, die eine bekannte Menge an Probe und Adsorptionsmittel enthielten, wurden auf dem horizontalen Schüttler CERTOMAT® U (B. Braun, Deutschland) bei 120 Umdrehungen pro Minute und Raumtemperatur (ca. 23 °C) geschüttelt. Nach 24 h Kontaktzeit wurde die suspendierte PAK durch 1-µm-Glasfaserfilter von VWR (USA) entfernt und das erhaltene Filtrat analysiert.

Eine Übersicht über die eingesetzten Proben und verwendeten Analysemethoden ist in Tab. 1 gegeben.

2.3 Großtechnischer Versuch

Die Prototypsuspension wurde anstelle des bisherigen Fällmittels (Eisen(III)-chlorid) auf der Kläranlage A für 30 Tage im Juli und August 2021 eingesetzt. Zwei Wochen vor und nach Dosierung dienten als Vergleichszeitraum, um den vorherigen Zustand und den Zeitraum nach der Dosierung zu bewerten. Der gesamte Untersuchungszeitraum betrug 58 Tage.

Die in den Laborversuchen ermittelte Dosierung an Adsorptions-/Fällmittelsuspension betrug 90 L d⁻¹ und wurde auf Basis einer spezifischen PAK-Dosis von 2 mg PAK mg⁻¹ DOC und der mittleren Zulaufmenge berechnet. Insgesamt wurden etwa 2700 L (bzw. 3500 kg) der Prototypsuspension dosiert. Während der ersten Woche des Testzeitraums kam es mehrfach zu Ausfällen der Dosierung. Die fehlenden Mengen an Fällmittel wurden nach Entdeckung des Ausfalls stoßweise nachdosiert, um eine ausreichende Menge an PAK für die organische Spurenstoffadsorption zur Verfügung zu stellen. In Kooperation mit den Pumpenherstellern konnte durch eine Änderung von kontinuierlicher zu intermittierender Zugabe für

den Rest der Versuchsdauer ein stabiler Betrieb erreicht werden.

Die Tagesmischproben des Zu- und Ablaufs wurden vom Kläranlagenpersonal rückgestellt, bei 4 °C aufbewahrt und einmal wöchentlich für die Analyse an die TU Wien geliefert. In allen Ablaufproben wurde der SAK₂₅₄ (spektraler Absorptionskoeffizient bei 254 nm Wellenlänge) gemessen. SAK₂₅₄ kann als Surrogat-Parameter für den gelösten Kohlenstoff (DOC) herangezogen werden (DIN 38404-3:2005-07) und die prozentuelle Abnahme wird aufgrund der relativ einfachen Bestimmung häufig zur Überwachung von weitergehenden Abwasserreinigungsprozessen eingesetzt. Die Abnahme des SAK₂₅₄ korreliert in der Regel sehr gut mit der organischen Spurenstoffentfernung. Auf Basis der Zulaufmengen wurden die Tagesmischproben zu volumenproportionalen Wochenmischproben vereint und ebenfalls auf den Gehalt an organischen Spurenstoffen analysiert. Um die Dynamik zu Beginn der Dosierung besser erfassen zu können, wurden zudem ausgewählte Tagesmischproben während der Referenz- und Untersuchungszeiträume gemessen.

Weiters wurde der Einfluss der Prototyp-Dosierung auf die Betriebsparameter der Kläranlage (TS-Gehalt im Belebungsbecken, Schlammflockeneigenschaften) und die Entfernung der konventionellen Parameter (Kohlenstoff, Stickstoff und Phosphor) untersucht. Dazu wurden Daten aus dem Betriebsprotokoll der Kläranlage (Zeitraum 01.06.2021 bis 31.08.2021) ausgewertet.

2.4 Ausgewählte Spurenstoffe und chemische Analytik

Die untersuchten organischen Spurenstoffe sind in Tab. 2 gegeben. Die Quantifizierung wurde mittels Flüssig-Chromatographie (Luna Reversed Phase column (5 µm, 3,0 × 150 mm) mit einem Gradienten (0,8 mL × min⁻¹, ul-

Tab. 1 Durchgeführte Laborversuche, verwendete Proben/Adsorbentien und analysierte Parameter

Versuch/Fragestellung	Adsorbent	Anlage	DOC mg L ⁻¹	Spezifische PAK-Dosis (mg PAK mg ⁻¹ DOC)	Organische Spurenstoffanalyse	In-vitro-Bioassays
A1/i)	Carbopal AP®	A	4,5	1/1,5/2	x	x
A2/i)	DonauPAC-AQUACLEAR®	A	4,5	1/1,5/2	x	x
A3/ii)	DonauPAC-AQUACLEAR®	A	5,9	1/1,5/2	x	
B/ii)	DonauPAC-AQUACLEAR®	B	5,6	1/1,5/2	x	
C/ii)	DonauPAC-AQUACLEAR®	C	15,4	1/1,5/2	x	

Kläranlage A (A): 6000 Einwohnergleichwerte (EW); Kläranlage B: 54.000 EW; Kläranlage C: 950.000 EW

Tab. 2 Analyierte organische Spurenstoffe

Spurenstoff	Abkürzung	Kategorie (-)	Adsorbierbarkeit an handelsüblichen Aktivkohlen ^a (-)
Metoprolol ^b	MTP	Arzneimittelrückstand	Sehr gut/gut
Benzotriazol ^c	BTA	Korrosionsschutzmittel	Sehr gut/gut
Sulfamethoxazol	SMX	Arzneimittelrückstand	Mittel/mäßig
Carbamazepin ^b	CBZ	Arzneimittelrückstand	Sehr gut/gut
Acesulfam K	ACS	Synthetischer Süßstoff	Kaum/nicht
Bezafibrat	BZF	Arzneimittelrückstand	n.a.
Diclofenac ^b	DCF	Arzneimittelrückstand	Sehr gut/gut
Ibuprofen	IBP	Arzneimittelrückstand	Mittel/mäßig

Kursiv hervorgehobene Substanzen = Indikatorsubstanz gemäß dem Vorschlag zur Novellierung der UWWTD
^a Klassifizierung der Adsorbierbarkeit gemäß DWA-M 285-2
^b Kategorie I = sehr gut entfernbare Substanzen
^c Kategorie II = gut entfernbare Substanzen

trapures Wasser mit 0,1% Essigsäure und Acetonitril mit 0,1% Essigsäure) und angeschlossenen Massenspektrometer (6500+ QTRAP LC-MS/MS System, SCIEX, Framingham, MA, USA) durchgeführt.

Die Stoffe Sulfamethoxazol, Acesulfam K, Bezafibrat und Ibuprofen werden in den meisten Kläranlagen bereits während der Nitrifikation und Denitrifikation gut abgebaut und waren daher nur in einzelnen Proben messbar. Daher werden diese Substanzen in weiterer Folge nicht betrachtet und der Fokus wird auf jene Stoffe gelegt, die im Entwurf zur Novellierung der UWWTD genannt sind.

Der spektrale Absorptionskoeffizient (SAK₂₅₄) wurde mit einem UV/VIS-Spektrometer Lambda 35 (Perkin Elmer, USA) in allen Proben gemessen. Weiters wurde der gelöste organische Kohlenstoff (dissolved organic carbon – DOC) gemäß EN 1484 mit dem TOC-L-Analysator von Shimadzu (Japan) in Proben aus Laborversuchen, ausgewählten Tagesmischprobenproben und in allen Wochenmischproben bestimmt. Wochenmischproben wurden weiters auf ihren Gehalt an Orthophosphat (PO₄-P/ISO 6878) und abfiltrierbare Stoffe (AFS/DIN 38409-2) analysiert. Der PAK-Schlupf wurde mittels Schwarzgradbestimmungstests bewertet (Metzger et al. 2011). Daten für konventionelle Abwasserparameter wie Temperatur, pH-Wert, elektrische Leitfähigkeit, biochemischer und chemischer Sauerstoffbedarf (BSB₅/DIN 38 4099 und CSB/ISO 6060-1989), Ammonium (NH₄-N/ISO 7150-1), Nitrat (NO₃-N/DIN 38405 D9-2), Nitrit (NO₂-N/ISO 26777), Gesamtstickstoff und Gesamtphosphor (GN und GP/ISO 6878:2004) sowie der Trockensubstanzgehalt (TS/DIN 38409-1)

des Belebtschlammes wurden aus dem Betriebsprotokoll der Kläranlage A entnommen. Um eine genügende Anzahl an Werten zu erfassen, wurden alle Daten im Zeitraum von 01.06.2021 bis 31.08.2021 berücksichtigt.

2.5 In-vitro-Bioassays

Die Mischproben der Versuche A1 und A2 wurden aus Blindproben ohne zugesetzte PAK erstellt und durch Festphasenextraktion mit Oasis HLB-Kartuschen (500 mg, 6 cc, Waters 186000115; Waters Corporation, Taunton, MA, USA) aufkonzentriert. Eine Leerprobe (deionisiertes Wasser) wurde zur Qualitätskontrolle mitgeführt. Die erhaltenen Extrakte wurden von BioDetection Systems mit zwei verschiedenen CALUX®-Reporter-Gen-Assays auf Östrogenität (ER α) und PAH (polyaromatic hydrocarbons)-Stoffwechsel analysiert. Im Gegensatz zur chemischen Einzelstoffanalytik, bei welcher einzelne Substanzen gemessen werden, erfassen Bioassays die Summenwirkung aller Substanzen, welche dieselbe biologische Wirkung induzieren. Die Ergebnisse werden in bioanalytisch äquivalenten Konzentrationen (BEQ) von Referenzchemikalien mit bekannter Wirkung umgerechnet. Die BEQ für den ER α -Bioassay wird als 17 β -Östradiol-Äquivalent (EEQ) und jene für den PAH-Bioassay als Benzo[a]pyren-Äquivalent (B[a]P-EQ) ausgedrückt. Aus den BEQ-Werten können Entfernungen für die jeweiligen Toxizitätsparameter berechnet werden.

2.6 Datenauswertung und Berechnungen

Die Reduktion der jeweiligen Parameter (organische Spurenstoffe, BEQ, SAK₂₅₄) wurde gemäß folgender Gleichung berechnet. Die Anfangskonzentration der Labortests wurde als Mittelwert der Blindproben (Abwasser ohne Adsorptionsmittel) ermittelt. Beim großtechnischen Versuch wurden hingegen die Zulaufkonzentrationen herangezogen.

$$\text{Entfernung (\%)} = \frac{c_{0,i} - c_i}{c_{0,i}} * 100$$

3 Ergebnisse und Diskussion der Laborversuche

3.1 Spurenstoffentfernung und Toxizitätsreduktion mit handelsüblicher PAK und der Prototypsuspension

Die prozentuelle Entfernung der organischen Spurenstoffe Metoprolol, Benzotriazol, Carbamazepin und Diclofenac mit der Prototypsuspension und der Standard-PAK ist in Abb. 1 dargestellt. Neben diesen vier Indikatorsubstanzen wurden weiters Sulfamethoxazol, Acesulfam K, Bezafibrat und Ibuprofen analysiert, aber infolge zahlreicher Messwerte unter der Bestimmungsgrenze hier nicht dargestellt. Die Entfernung der dargestellten und weiteren Substanzen folgte im Wesentlichen dem bekannten Muster. Positiv geladene und neutrale sowie hydrophobe Stoffe wie Metoprolol und Benzotriazol bzw. Carbamazepin wurden bereits bei niedrigen PAK-Dosen um mehr als die Hälfte entfernt, während die Entfernungen von negativ geladenen, hydrophilen Verbindungen, durch

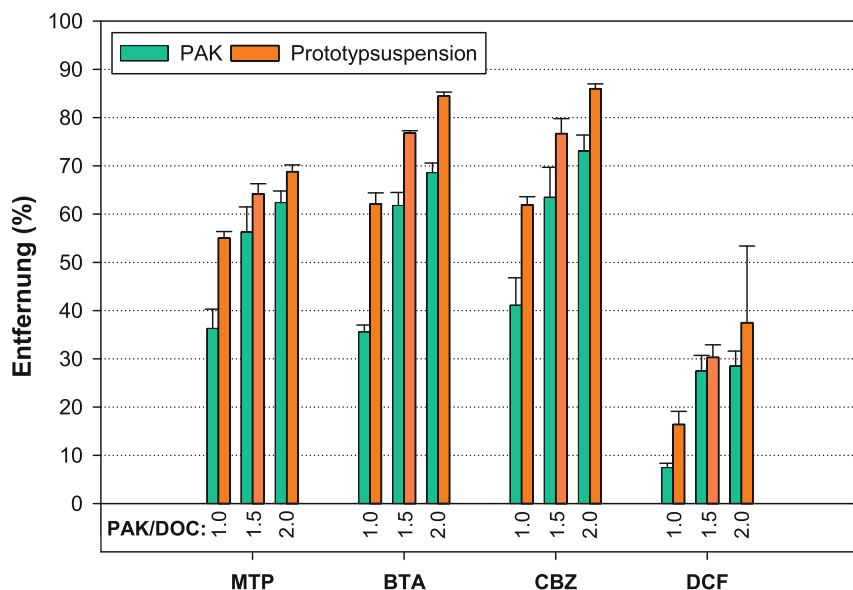


Abb. 1 Entfernung der Indikatorsubstanzen Metoprolol (*MTP*), Benzotriazol (*BTA*), Carbamazepin (*CBZ*) und Diclofenac (*DCF*) durch die PAK und die Prototypsuspension in Abhängigkeit der spezifischen PAK-Dosis

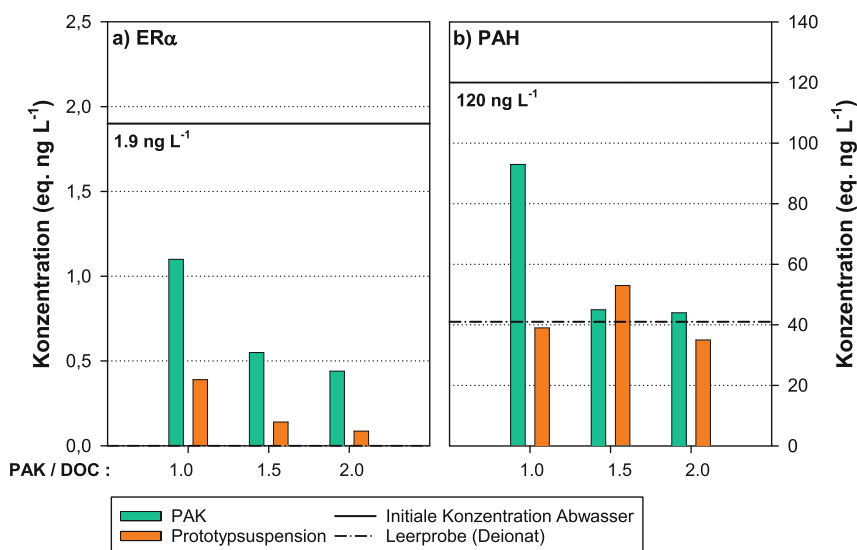


Abb. 2 a) ER α -Konzentration und b) PAH-Konzentration bei Behandlung des Ablaufs mit verschiedenen Prototypdosen, die PAK/DOC-Verhältnissen von 1 bis 2 entsprechen

die Abstoßung der ebenfalls negativ geladenen PAK, im Allgemeinen niedriger sind (Boehler et al. 2012; Altmann et al. 2014; Mailler et al. 2015). Es zeigt sich weiters, dass bei derselben spezifischen PAK-Dosis fast alle organischen Spurenstoffe signifikant besser durch die Prototypsuspension als durch die PAK allein entfernt wurden.

Abb. 2 zeigt die Ergebnisse der In-vitro-Bioassays. Die Extraktions-Qualitätskontrollprobe (deionisiertes Wasser) war unterhalb der Bestimmungsgrenze ($0,018 \text{ ng L}^{-1}$) für EEQ und betrug

41 ng L^{-1} für B[a]P-EQ. Ein Ausschlag dieses Parameters kann bereits durch minimale Umwelteinflüsse sowie durch Verunreinigungen der Suspensionsmittel auftreten und muss bei der Betrachtung der Ergebnisse berücksichtigt werden, um eine Überinterpretation zu vermeiden. Die BEQ in den Abwasserproben (basierend auf den Blindproben der Experimente) betragen $1,90 \text{ ng EEQ L}^{-1}$ und $120 \text{ ng B[a]P-EQ L}^{-1}$ für die ER α - bzw. PAH-Bioassays. Ein Vergleich mit einer Studie des Umweltbundesamts zeigt, dass der EEQ-Wert deutlich höher

ist als jene Werte, die in neun verschiedenen österreichischen Kläranlagenabläufen ermittelt wurden ($0,32$ bis $1,30 \text{ ng EEQ L}^{-1}$), ist. Der erhaltene Wert für die PAH-Toxizität liegt hingegen im angegebenen Bereich ($0,38$ bis 210 ng L^{-1} für B[a]P-EQ). In Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Spurenstoffanalyse nahm die EEQ-Reduktion mit steigender spezifischer PAK-Dosis zu und die Prototypsuspension bewirkte eine höhere Entfernung als die Standard-PAK. Die Entfernungen mittels Standard-PAK stimmen gut mit Literaturwerten überein, die bei spezifischen PAK/DOC-Verhältnissen von $0,8$ bis 4 bei etwa 75% liegen (Völker et al. 2019). Die B[a]P-EQ-Ergebnisse sind aufgrund der hohen BEQ in der Blindprobe von geringerer Aussagekraft. Die Toxizitätsreduktion betrug 68 bis 71% durch den Prototyp und 23 bis 63% bei Einsatz der PAK.

Beide angewendete Methoden zeigen, dass mittels der suspendierten PAK in der Prototypsuspension eine größere Anzahl von unbekanntem und bekannten Stoffen adsorbiert werden kann. In früheren Studien wurde kein Effekt von Fällmittel auf die adsorptive Spurenstoffentfernung beobachtet. Daher zeigt sich, dass die vorhergehende Suspension der PAK im sauren Fällungsmittel einen positiven Effekt auf die Adsorptionskapazität haben könnte. Mineralische Elemente, die an der PAK-Oberfläche haften, können im sauren Milieu in Lösung gehen und somit die Anzahl der freien Adsorptionsstellen an der PAK erhöhen (Shen et al. 2008; Bhatnagar et al. 2013).

3.2 Einfluss der Kläranlagenmatrix auf die Anwendbarkeit des Produkts

Die Labortests A3, B und C wurden durchgeführt, um die allgemeine Anwendbarkeit und in weiterer Folge den notwendigen PAK-Gehalt der Prototypsuspension für eine effiziente und wirtschaftliche Spurenstoffentfernung in verschiedenen Kläranlagenabläufen zu definieren. Tab. 3 zeigt die Entfernungsraten der vier Indikatorsubstanzen in allen untersuchten Abwasserproben.

Es zeigt sich, dass die Entfernung selbst bei ähnlicher spezifischer Dosis von der Kläranlagenablaufmatrix beeinflusst wird, wenn auch nur geringfügig. Jedoch lässt sich abschätzen, dass durch die Zugabe der PAK-Suspension mit einer spezifischen Dosis von 2 bis $3 \text{ mg PAK mg}^{-1} \text{ DOC}$ in Kombination mit

Tab. 3 Entfernung der vier Indikatorsubstanzen Metoprolol, Benzotriazol, Carbamazepin und Diclofenac in drei Kläranlagenabläufen bei unterschiedlicher spezifischer PAK-Dosis

	PAK/DOC	Metoprolol	Benzotriazol	Carbamazepin	Diclofenac
A3	1,05 ± 0,03	53,8 ± 35,6	57,1 ± 5,5	48,5 ± 6,4	31,4 ± 5,9
	1,40 ± 0,04	52,7 ± 11,1	58,3 ± 2,8	54,0 ± 0,7	30,0 ± 3,8
	2,13 ± 0,01	93,5 ± 10,2	72,2 ± 3,0	68,2 ± 4,0	40,8 ± 3,2
B	0,88 ± 0,01	48,6 ± 3,4	27,9 ± 9,7	27,7 ± 8,9	4,8 ± 2,3
	1,46 ± 0,01	94,7 ± 2,0	82,2 ± 3,2	84,4 ± 2,7	38,5 ± 3,4
	2,20 ± 0,02	99,0 ± 0,2	94,4 ± 1,6	96,1 ± 0,5	60,8 ± 2,4
C	0,73 ± 0,06	57,8 ± 3,9	43,6 ± 9,3	62,0 ± 1,6	11,1 ± 4,9
	0,95 ± 0,10	63,4 ± 2,5	59,3 ± 11,1	67,5 ± 3,4	19,9 ± 7,5
	1,28 ± 0,02	70,6 ± 2,8	76,0 ± 7,3	77,1 ± 2,9	36,6 ± 11,5

dem biologischen Abbau eine 80%ige Entfernung für alle analysierten Verbindungen erreicht werden kann. Diese Angabe steht im Einklang mit Literaturstudien, die ein PAK/DOC-Verhältnis zwischen 2 und 3 empfehlen, wenn PAK in die biologische Stufe dosiert wird (Streicher et al. 2016; Pistocchi et al. 2022). Für die großtechnischen Tests in der Kläranlage A wurde eine spezifische PAK-Dosis von 2 gewählt, um einen signifikanten Effekt beobachten zu können, ohne die Spurenstoffe vollständig zu entfernen.

Prinzipiell kann die PAK-Dosis durch den Anteil der PAK im Fällmittel und die absolute Zugabemenge an Suspension gesteuert werden. Der PAK-Gehalt sollte an die Menge des zu fällenden Phosphors angepasst werden, um beide Wirkstoffe optimal nutzen zu können. Für die Kläranlagen A und B wäre ein PAK-Anteil von mindestens 15% notwendig, für C müsste er 40% betragen. Ein kritisches Verhältnis zwischen DOC und Phosphor könnte die Nutzung der Suspension begrenzen.

4 Ergebnisse und Diskussion des großtechnischen Versuchs

4.1 Zulaufmengen und SAK₂₅₄

Abb. 3 zeigt die Zulaufmenge zur Kläranlage A während des Untersuchungszeitraums zwischen 23.06.2021 und 19.08.2021. Der Testzeitraum, bei welchem die Dosierung von Donau PAC AQUACLEAR anstatt des üblicherweise eingesetzten Fällmittels stattfand, ist grau hinterlegt. Aufgrund der häufigen Niederschlagsereignisse im Sommer 2021 war die Zulaufmenge zur Kläranlage zum Teil deutlich höher als im Referenzzeitraum vor Beginn der Dosierung. Die Zulaufspitzen, die durch die Übernahme von in Regenüberlaufbecken gespeichertem Niederschlags-

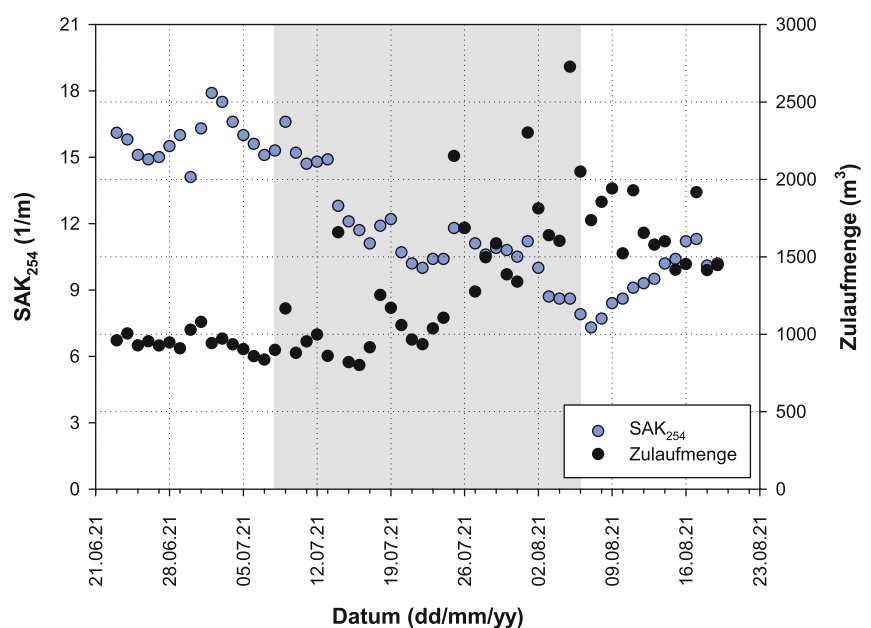
wasser verursacht wurden, sind im Diagramm gut zu erkennen. Ab Ende Juli (auch im Zeitraum nach Beendigung der Versuche) wurde die durchschnittliche Zulaufmenge, die als maßgebliche Größe für die Dosierung diente (1547 m³ d⁻¹), überschritten. Weiters zeigt die Grafik den Verlauf des SAK₂₅₄, dessen prozentuelle Abnahme als Surrogat-Parameter für die Spurenstoffentfernung verwendet wird und in allen Zulauf- und Ablauf-Tagesmischproben gemessen wurde. Es ist deutlich ersichtlich, dass der SAK₂₅₄ – und damit auch der Gehalt an organischen Verbindungen – ab Beginn der Dosierung kontinuierlich ab- und nach Beendigung der Dosierung wieder zunahm, jedoch weiterhin unter dem Wert des Referenzzeitraums vor Beginn der Dosierungen lag. Dies zeigt, dass auch nach Beendigung der Dosierung ein Teil der

Aktivkohle noch im Schlamm enthalten ist, und weiterhin zu einer Reduktion der im Kläranlagenablauf enthaltenen organischen Parameter führt, bis es zu einem Austrag der eingesetzten Kohle aus dem Belebungsbecken über den Überschussschlammabzug kommt.

4.2 Entfernung organischer Spurenstoffe

In Abb. 4 sind die prozentuellen Entfernungen ausgewählter organischer Spurenstoffe aus dem Abwasser der Kläranlage A dargestellt, welche in den Wochenmischproben und ausgewählten Tagesmischproben während der Untersuchungen auf der Kläranlage unter Realbedingungen ermittelt wurden.

Neben den in der Abbildung dargestellten Stoffen (Metoprolol, Benzo-

**Abb. 3** Tägliche Zulaufmenge und SAK₂₅₄ im Kläranlagenablauf während des Untersuchungszeitraums auf der Kläranlage A

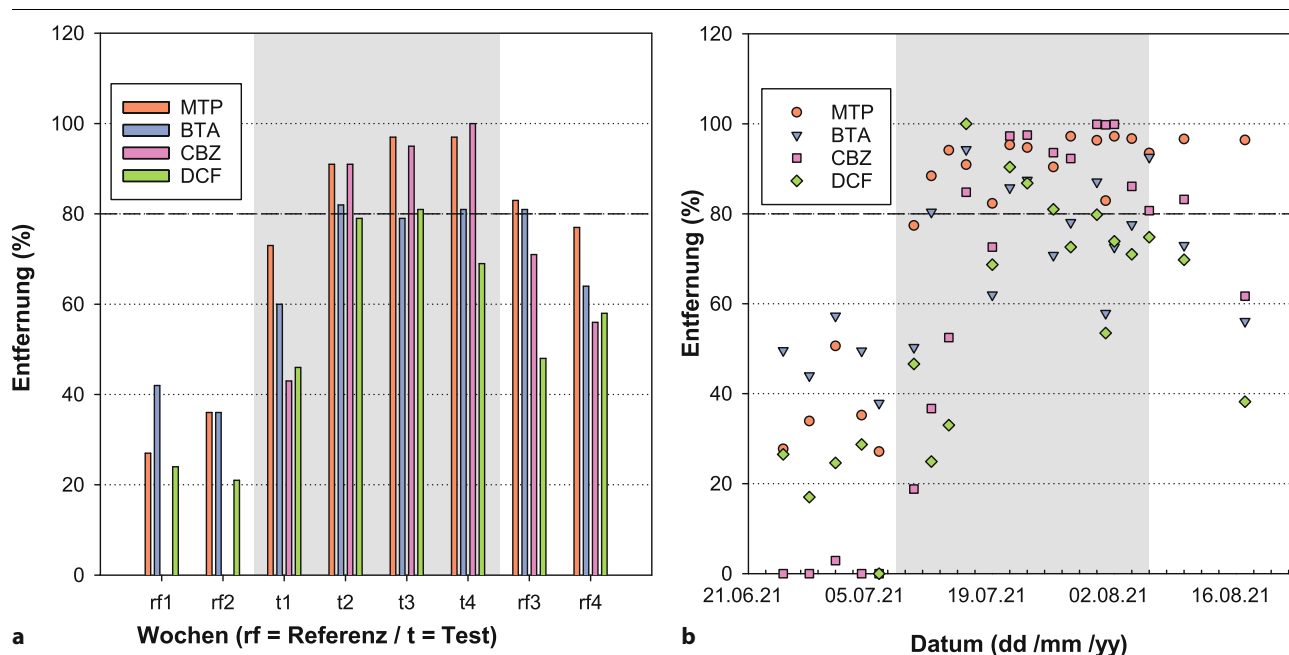


Abb. 4 Entfernung der Indikatorsubstanzen MTP (= Metoprolol), BTA (= Benzotriazol), CBZ (= Carbamazepin) und DCF (= Diclofenac) in **a** Wochenmischproben und **b** ausgewählten Tagesmischproben

triazol, Carbamazepin und Diclofenac) wurden weiters die Stoffe Acesulfam K, Bezafibrat, Sulfamethoxazol und Ibuprofen analysiert. Jedoch wurde für diese Stoffe bereits ohne eine weitergehende Reinigung eine hohe Entfernung von mehr als 90 % festgestellt.

Für alle untersuchten Stoffe, für die in der vorangegangenen Referenzperiode nur eine geringe Entfernung gefunden wurde, ist durch die Zugabe des Produkts eine deutliche Steigerung der prozentuellen Entfernung zu beobachten. Auf Basis der Wochenmischproben zeigt sich, dass ab der zweiten Woche im Testzeitraum (und nachdem die betrieblichen Probleme mit der Dosierpumpe gelöst wurden) Entfernungen von $95,0 \pm 3,5\%$ für Metoprolol, $80,7 \pm 1,5\%$ für Benzotriazol, $95,3 \pm 4,5\%$ für Carbamazepin und $76,3 \pm 6,4\%$ für Diclofenac erreicht wurden. Nach Beendigung der Dosierung nahm die prozentuelle Entfernung der betrachteten Stoffe erneut ab. Dennoch war die Entfernung über einen gewissen Zeitraum noch signifikant höher als im Referenzzeitraum vor Beginn der Dosierung. Dies ist, wie beim SAK₂₅₄ bereits er-

wähnt, auf den verbleibenden Anteil der Aktivkohle im Belebtschlamm der Kläranlage A zurückzuführen.

Die Entfernung der organischen Spurenstoffe wird durch die Zulaufmenge und Fracht beeinflusst. So ist zum Beispiel am 01.08.2021 für alle Stoffe eine verringerte Entfernung zu beobachten, was mit einer deutlich erhöhten Zulaufmenge ($2302 \text{ m}^3 \text{ d}^{-1}$) und der verringerten Kontaktzeit zwischen Abwasser und PAK/Schlamm begründet werden kann (Neef et al. 2022). Zu Beginn des Testzeitraums kam es zudem zu mehreren Pumpenausfällen, was dazu führte, dass an einzelnen Tagen bzw. am Wochenende kein Adsorptions-/Fällmittel zudosiert wurde. Am 12.07.2021 wurde z. B. nach zwei Tagen Pumpenausfall die fehlende Menge stoßweise nachdosiert. Für die beiden Stoffe Benzotriazol und Metoprolol wurden an diesem Tag hohe Entfernungen verzeichnet; für Carbamazepin und Diclofenac hingegen wurde an diesem Tag eine geringe Reinigungsleistung beobachtet. Am 19.07.2021, nach einem zweitägigen Ausfall der Dosierpumpe, wurde die fehlende Menge

ebenfalls manuell im Nachhinein zugegeben. In diesen Tagesmischproben war die Entfernung aller vier Substanzen leicht reduziert.

4.3 Auswirkungen auf die konventionellen Parameter

In Tab. 4 sind die mittleren Entfernungsdaten dargestellt, die im jeweiligen Zeitraum im Betriebsprotokoll festgehalten wurden. Es zeigt sich, dass die prozentuelle Entfernung von Kohlenstoffverbindungen in etwa konstant blieb, jene für Phosphor leicht abnahm und jene für Stickstoff anstieg. Die geringeren Entfernungsdaten für CSB und Gesamtphosphor sind auf die niedrigeren Zulaufkonzentrationen zurückzuführen, die generell die Effizienz der biologischen Abwasserbehandlung reduziert. Die Entfernung des Gesamtstickstoffs war hingegen im Versuchszeitraum geringfügig höher, was durch Literaturstudien bestätigt wird, in denen von positiven Effekten der PAK-Dosierung auf die Nitrifikationsleistung berichtet wird (Cecem und Aktas 2012). Für Gesamtphosphor und Orthophos-

Tab. 4 Entfernungen konventioneller Parameter während des Untersuchungszeitraums

Periode		n	CSB	P-Gesamt	N-Gesamt
Referenzperiode VOR Dosierung	01.06.2021–06.07.2021	7	$94,59 \pm 1,72$	$92,05 \pm 2,72$	$87,36 \pm 4,52$
Testzeitraum	07.07.2021–06.08.2021	7	$94,07 \pm 1,78$	$85,88 \pm 5,98$	$93,58 \pm 2,35$
Referenzperiode NACH Dosierung	07.08.2021–31.08.2021	5	$92,35 \pm 0,51$	$80,63 \pm 3,73$	$91,76 \pm 3,16$

phat konnten die vorgeschriebenen Emissionsgrenzwerte von $GP = 1 \text{ mg L}^{-1}$ und $PO_4\text{-P} = 0,5 \text{ mg L}^{-1}$ während des Testbetriebs eingehalten werden.

4.4 Auswirkungen auf die Schlammeigenschaften

Die Zudosierung der Prototypsuspension anstatt des bisherigen Fällmittels führte zu einer geringfügigen Erhöhung der Trockensubstanz im Belebungsbecken und im Austrag der Zentrifuge (um etwa 3%). Das Schlammvolumen sowie der Schlammvolumenindex nahmen nach Beginn der Dosierung sukzessive ab, was zu einem Anstieg der Sichttiefe in den beiden Nachklärbecken führte. Dies zeigt, dass durch die Dosierung in den Zulauf der Biologie eine gute Integration der Aktivkohle in die Schlammflocken erfolgte und es zu einer Verbesserung der Absetzeigenschaften kam, was mit Ergebnissen früherer Studien übereinstimmt.

In den letzten beiden Testwochen konnten auch bei mikroskopischen Aufnahmen eindeutig Aktivkohlepartikel in Belebtschlammproben der Kläranlage A identifiziert werden. Eine Veränderung der mikrobiologischen Artenzusammensetzung der Protozoen wurde im Mikroskop nicht beobachtet. Generell sind vor allem typische Vertreter für aerobe Stabilisierungsanlagen, wie Wimper- oder Rädertierchen zu finden.

Ein Austrag von Aktivkohle über den Ablauf der Kläranlage, der sogenannte PAK-Schlupf, wurde während des gesamten Versuchszeitraums nicht beobachtet. Der Schwebstoffgehalt im Ablauf (abfiltrierbare Stoffe), der seitens der TU Wien in den Wochenmischproben gemessen wurde, lag während des Referenz- und Testbetriebs zwischen $0,9$ und $1,2 \text{ mg L}^{-1}$. Als Grenzwert für den PAK-Schlupf wird im DACH-Raum meist ein Wert von 1 mg L^{-1} an Pulveraktivkohle angegeben (Krahnstöver und Wintgens 2018a). Zusätzlich wurden sogenannte Schwarzgradbestimmungen durchgeführt. Im Filtrerrückstand der Wochenmischproben wurden während des Untersuchungszeitraums keine relevanten Konzentrationen an Aktivkohle detektiert.

5 Zusammenfassung und Fazit

Die Donau PAC AQUACLEAR Prototypsuspension mit einem PAK-Anteil von 16,5% wurde zur Entfernung von organischen Spurenstoffen aus Abwasser im Labor- und Großmaßstab untersucht. Die Proben wurden auf organische Spurenstoffe, biologische Wirkmechanismen sowie konventionelle Abwasserparameter untersucht. Die wichtigsten Ergebnisse dieser Studie sind im Folgenden zusammengefasst:

- Die Ergebnisse der Laborversuche, die mittels zweier unabhängiger Methoden (organische Spurenstoffanalytik und In-vitro-Bioassays) erhoben wurden, zeigen, dass sich die Suspensionsleistung der PAK im sauren Suspensionsmittel positiv auf die Oberflächeneigenschaften auswirkt, sodass eine größere Anzahl an bekannten und unbekanntem Stoffen an deren Oberfläche adsorbieren kann.
- Der zu entfernende Phosphor und der DOC im Abwasser sind die Hauptkriterien für die Bestimmung des erforderlichen PAK-Massenanteils in der Suspension. Die PAK-Dosis sollte, wenn möglich, an das Abwasser angepasst werden, um eine effiziente Nutzung der Adsorptions-/Fällmittelsuspension zu gewährleisten.
- Die vorgeschriebenen Ablaufkonzentrationen für Gesamtphosphor und Orthophosphat konnten während der großtechnischen Versuche eingehalten werden. Eine Tagesdosis von 90 L d^{-1} führte zu einer Erhöhung der Entfernungsleistung um mehr als 90% für Carbamazepin, 50% für Diclofenac und Metoprolol und 30% für Benzotriazol. Die Gesamtentfernung während der letzten drei Testwochen auf Basis der Wochenmischproben betrug: $95,3 \pm 4,5\%$ für Carbamazepin, $76,3 \pm 6,4\%$ für Diclofenac, $95,0 \pm 3,5\%$ für Metoprolol, und $80,7 \pm 1,5\%$ für Benzotriazol.

Zusammengefasst zeigt sich, dass die Prototypsuspension zur simultanen Phosphor- und Spurenstoffentfernung eingesetzt werden kann. Das Produkt kann mittels bestehender Behälter und Pumpen für die P-Fällung angewendet

werden, was es zu einer interessanten Option für kleine bis mittelgroße Kläranlagen macht, bei denen spezifische Investitionskosten meist höher sind als bei größeren Anlagen. Das Adsorptions-/Fällmittel könnte zudem auch zur Abdeckung von Spitzenlasten oder während gewissen Produktionskampagnen in der Industrie eingesetzt werden. Darüber hinaus ermöglicht die Vorsuspension der PAK im Fällmittel eine Kombination verschiedener Eigenschaften zur Optimierung der standortspezifischen Wechselwirkungen zwischen Adsorptionsmittel und Adsorbat, was nach wie vor eine der größten Herausforderungen bei Adsorptionstechnologien darstellt (Dotto und McKay 2020). Solche Optimierungen können für eine breite Palette von Substanzen erreicht werden, was zu einer verbesserten Prozesseffizienz und einem geringeren Ressourcenbedarf führt. Es zeigt sich, dass Donau PAC AQUACLEAR ein neuartiges und vielversprechendes Mittel zur Spurenstoffentfernung darstellt, dessen weitere Entwicklung empfohlen wird.

Danksagung Die Autor:Innen bedanken sich beim Betriebspersonal der Kläranlage A für die gute Kooperation während der Durchführung des großtechnischen Versuchs.

Funding Open access funding provided by TU Wien (TUW).

Interessenkonflikt

D. Reif, L. Weisz, K. Kobsik, H. Schaar, E. Saracevic, J. Krampe und N. Kreuzinger geben an, dass kein Interessenkonflikt besteht.

Open Access Dieser Artikel wird unter der Creative Commons Namensnennung 4.0 International Lizenz veröffentlicht, welche die Nutzung, Vervielfältigung, Bearbeitung, Verbreitung und Wiedergabe in jeglichem Medium und Format erlaubt, sofern Sie den/die ursprünglichen Autor(en) und die Quelle ordnungsgemäß nennen, einen Link zur Creative Commons Lizenz beifügen und angeben, ob Änderungen vorgenommen wurden.

Die in diesem Artikel enthaltenen Bilder und sonstiges Drittmaterial unterliegen ebenfalls der genannten Creative Commons Lizenz, sofern sich aus der Abbildungslegende nichts anderes ergibt. Sofern das betreffende Material nicht unter der genannten Creative

Commons Lizenz steht und die betreffende Handlung nicht nach gesetzlichen Vorschriften erlaubt ist, ist für die oben aufgeführten Weiterverwendungen des Materials die Einwilligung des jeweiligen Rechteinhabers einzuholen.

Weitere Details zur Lizenz entnehmen Sie bitte der Lizenzinformation auf <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.de>.

Literatur

- Altmann, J., A. S. Ruhl, F. Zietzschmann and M. Jekel (2014):** Direct comparison of ozonation and adsorption onto powdered activated carbon for micropollutant removal in advanced wastewater treatment. *Water research* 55: 185–193.
- Altmann, J., F. Zietzschmann, E.-L. Geiling, A. S. Ruhl, A. Sperlich and M. Jekel (2015):** Impacts of coagulation on the adsorption of organic micropollutants onto powdered activated carbon in treated domestic wastewater. *Chemosphere* 125: 198–204.
- Backhaus, T. and M. Karlsson (2014):** Screening level mixture risk assessment of pharmaceuticals in STP effluents. *Water research* 49: 157–165.
- Bhatnagar, A., W. Hogland, M. Marques and M. Sillanpää (2013):** An overview of the modification methods of activated carbon for its water treatment applications. *Chemical Engineering Journal* 219: 499–511.
- Boehler, M., B. Zwickenpflug, J. Hollender, T. Ternes, A. Joss and H. Siegrist (2012):** Removal of micropollutants in municipal wastewater treatment plants by powder-activated carbon. *Water Science and Technology* 66(10): 2115–2121.
- Bourgin, M., B. Beck, M. Boehler, E. Borowska, J. Fleiner, E. Salhi, R. Teichler, U. von Gunten, H. Siegrist and C. S. McArdell (2018):** Evaluation of a full-scale wastewater treatment plant upgraded with ozonation and biological post-treatments: Abatement of micropollutants, formation of transformation products and oxidation by-products. *Water research* 129: 486–498.
- Brandt, M., K. Johnson, A. Elphinston and D. Ratnayaka (2017):** Chemical storage, dosing and control. *Water Supply*: 513–552.
- Cecen, F. and O. Aktas (2012):** Integration of activated carbon adsorption and biological processes in wastewater treatment.
- Collado, N., S. Rodriguez-Mozaz, M. Gros, A. Rubirola, D. Barceló, J. Comas, I. Rodriguez-Roda and G. Buttiglieri (2014):** Pharmaceuticals occurrence in a WWTP with significant industrial contribution and its input into the river system. *Environmental pollution* 185: 202–212.
- Dotto, G. L. and G. McKay (2020):** Current scenario and challenges in adsorption for water treatment. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 8(4): 103988.
- EU-Kommission. (2022):** Proposal for a revised Urban Wastewater Treatment Directive. Retrieved 02.12.2022, from https://environment.ec.europa.eu/publications/proposal-revised-urban-wastewater-treatment-directive_en
- García, L., J. C. Leyva-Díaz, E. Díaz and S. Ordóñez (2021):** A review of the adsorption-biological hybrid processes for the abatement of emerging pollutants: Removal efficiencies, physicochemical analysis, and economic evaluation. *Science of the Total Environment* 780: 146554.
- Ghirardini, A., O. Zoboli, M. Zessner and P. Verlicchi (2021):** Most relevant sources and emission pathways of pollution for selected pharmaceuticals in a catchment area based on substance flow analysis. *Science of The Total Environment* 751: 142328.
- Halling-Sørensen, B., S. N. Nielsen, P. Lanzky, F. Ingerslev, H. H. Lützhøft and S. Jørgensen (1998):** Occurrence, fate and effects of pharmaceutical substances in the environment—A review. *Chemosphere* 36(2): 357–393.
- Krahnstöver, M. S. T. and T. Wintgens (2018a):** Aktivkohle-Schlupf aus Reinigungsstufen zur Eliminierung von Mikroverunreinigungen. Projektbericht an den Verband Schweizer Abwasser- und Gewässerschutzfachleute, Plattform Verfahrenstechnik Mikroverunreinigungen 12.
- Krahnstöver, T. and T. Wintgens (2018b):** Separating powdered activated carbon (PAC) from wastewater—Technical process options and assessment of removal efficiency. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 6(5): 5744–5762.
- Launay, M.A., U. Dittmer and H. Steinmetz (2016):** Organic micropollutants discharged by combined sewer overflows—characterisation of pollutant sources and stormwater-related processes. *Water Research* 104: 82–92.
- Luo, Y., W. Guo, H. H. Ngo, L. D. Nghiem, F. I. Hai, J. Zhang, S. Liang and X. C. Wang (2014):** A review on the occurrence of micropollutants in the aquatic environment and their fate and removal during wastewater treatment. *Science of the total environment* 473: 619–641.
- Mailler, R., J. Gasperi, Y. Coquet, S. Deshayes, S. Zedek, C. Cren-Olivé, N. Cartiser, V. Eudes, A. Bressy and E. Caupos (2015):** Study of a large scale powdered activated carbon pilot: Removals of a wide range of emerging and priority micropollutants from wastewater treatment plant effluents. *Water Research* 72: 315–330.
- Meinel, F., F. Zietzschmann, A. Ruhl, A. Sperlich and M. Jekel (2016):** The benefits of powdered activated carbon recirculation for micropollutant removal in advanced wastewater treatment. *Water research* 91: 97–103.
- Metzger, S., A. Rößler and H. Kapp (2011):** Optimierung der Pulveraktivkohleabtrennung durch Filtration als Grundlage zur Analgendifensionierung – Abschlussbericht Teilprojekt 2B des BMBF-Verbundprojektes „Erweiterung...“
- Michael, I., L. Rizzo, C. McArdell, C. Manaia, C. Merlin, T. Schwartz, C. Dagot and D. Fatta-Kassinos (2013):** Urban wastewater treatment plants as hotspots for the release of antibiotics in the environment: a review. *Water research* 47(3): 957–995.
- Neef, J., D. Leverenz and M.A. Launay (2022):** Performance of Micropollutant Removal during Wet-Weather Conditions in Advanced Treatment Stages on a Full-Scale WWTP. *Water* 14(20): 3281.
- Ng, A. S. and M. K. Stenstrom (1987):** Nitrification in powdered-activated carbon-activated sludge process. *Journal of Environmental Engineering* 113(6): 1285–1301.
- Ng, C. A., D. Sun, M. J. Bashir, S. H. Wai, L. Y. Wong, H. Nisar, B. Wu and A. G. Fane (2013):** Optimization of membrane bioreactors by the addition of powdered activated carbon. *Biore-source technology* 138: 38–47.
- Pistocchi, A., H. Andersen, G. Bertanza, A. Brandner, J.-M. Choubert, M. Cimbritz, J. E. Drewes, C. Koehler, J. Krampe and M. Launay (2022):** Treatment of Micropollutants in Wastewater: Balancing Effectiveness, Costs and Implications. **Rizzo, L., S. Malato, D. Antakyali, V. G. Beretsou, M. B. Dolić, W. Gernjak, E. Heath, I. Ivancev-Tumbas, P. Karaolia and A. R. L. Ribeiro (2019):** Consolidated vs new advanced treatment methods for the removal of contaminants of emerging concern from urban wastewater. *Science of the Total Environment* 655: 986–1008.
- Shen, W., Z. Li and Y. Liu (2008):** Surface chemical functional groups modification of porous carbon. *Recent Patents on Chemical Engineering* 1(1): 27–40.
- Streicher, J., A. S. Ruhl, R. Gnirß and M. Jekel (2016):** Where to dose powdered activated carbon in a wastewater treatment plant for organic micro-pollutant removal. *Chemosphere* 156: 88–94.
- Völker, J., M. Stapf, U. Miede and M. Wagner (2019):** Systematic Review of Toxicity Removal by Advanced Wastewater Treatment Technologies via Ozonation and Activated Carbon. *Environmental Science & Technology* 53(13): 7215–7233.
- Zietzschmann, F., G. Aschermann and M. Jekel (2016):** Comparing and modeling organic micro-pollutant adsorption onto powdered activated carbon in different drinking waters and WWTP effluents. *Water research* 102: 190–201.

Hinweis des Verlags Der Verlag bleibt in Hinblick auf geografische Zuordnungen und Gebietsbezeichnungen in veröffentlichten Karten und Institutsadressen neutral.