

“Integrating organic micropollutant removal by activated carbon into advanced wastewater filtration”

Abstract

Municipal wastewater treatment plants (WWTPs) represent a major source of nutrient and organic micropollutant (OMP) entry into the aquatic ecosystem. In order to avoid potential negative ecological effects and preserve drinking water sources, upgrading WWTPs to serve as an effective barrier for OMPs is currently discussed. The present study investigates the integration of powdered and granular activated carbon (PAC, GAC) into advanced wastewater filtration for combined OMP and nutrient removal.

The impacts of coagulation on the adsorption of OMPs onto PAC were studied in lab-scale experiments. Coagulation has minor effects on dissolved organic matter constituents that are relevant for direct competition or pore blocking. Incorporation of PAC particles into ferric hydroxide flocs does not influence the mass transfer of OMPs to the PAC surface. As a result, the dosing sequence of coagulant and PAC is not critical for efficient adsorption of OMPs.

Direct addition of PAC to a deep-bed filter was investigated at pilot-scale. PAC doses of up to 50 mg/L show no major negative effects on filtration performance. The filter runtime until particle breakthrough is mainly determined by the coagulant dose and does not decrease significantly due to the additional solids load caused by PAC. Adsorption onto accumulating PAC in the top layer of the filter bed leads to improved OMP adsorption with increasing filter runtime, but adsorption onto freshly added PAC in the filter supernatant is still responsible for a high proportion of overall OMP removal.

Adsorption of OMPs is substance specific, ranging from removals >80 % with PAC doses of 20-35 mg/L for well-adsorbing OMPs benzotriazole and carbamazepine to very low removals <30 % for diatrizoic acid and gabapentin even with PAC doses as high as 50 mg/L.

Laboratory tests investigated continuous dosing, single-pulse addition of PAC and combinations of both strategies as possible means of improving the adsorption efficiency. Continuous dosing results in constant removal levels at longer filter runtimes, which are mainly determined by the fresh PAC dose rather than the total PAC amount embedded. Single-pulse addition leads to complete OMP adsorption at the beginning of filtration and subsequent gradual OMP breakthrough. It is shown that homogeneous PAC distribution throughout the entire filter bed improves OMP removal in comparison to shallow embedding of PAC within the top section of the filter bed.

The integration of GAC into deep-bed filtration was assessed as upper filter layer in dual-media downflow filtration and as a mono-media upflow filter in combination with inline coagulation. Both options are capable of effectively removing suspended solids and phosphorus, but further evaluation is necessary to determine optimal process parameters for improved filtration efficiency. In comparison to PAC, adsorption onto GAC achieves similar OMP removals at equal carbon usage rates for most compounds. However, degradable OMPs show significantly higher removals in GAC filtration, emphasizing the relevance of GAC as filter media to promote biological OMP abatement.

Adsorption tests with different secondary effluents show that OMP removals correlate highly with the corresponding reduction of UV absorbance at 254 nm (UVA_{254}) in PAC applications. Lab-scale correlations were successfully applied to predict OMP removals in a pilot-scale application. Real-time UVA_{254} measurements prove to be effective for online monitoring of OMP removals. Dynamic PAC dosing according to differential UVA_{254} measurements is capable of achieving stable OMP removals, even though precise removal predictions based on real-time measurements are not accurate for all OMPs. Overall, UVA_{254} can serve as an effective surrogate parameter for OMP removal in technical PAC applications. Furthermore, it is shown that DOC-normalized PAC doses are suitable to improve OMP removal prediction compared to common volume proportional PAC addition.

In conclusion, activated carbon can be integrated into tertiary wastewater filtration to form a single efficient and space-saving treatment step for advanced micropollutant and nutrient removal. The findings of this study contribute towards significantly reducing the uncertainties associated with the design and subsequent operation of future activated carbon stages.

Zusammenfassung

Kommunale Kläranlagen stellen einen Haupteintragspfad für Nährstoffe und anthropogene organische Spurenstoffe in die aquatische Umwelt dar. Um mögliche negative Effekte zu vermindern und Trinkwasserressourcen zu schützen, wird derzeit die Erweiterung der Kläranlagen um eine zusätzliche Reinigungsstufe diskutiert. In dieser Studie wird die Integration der Spurenstoffentfernung mittels pulverförmiger und granulierter Aktivkohle (PAK, GAK) in die Flockungsfiltration zur kombinierten Entfernung von Nähr- und Spurenstoffen untersucht.

In Laborversuchen wurden zunächst die Auswirkungen der Flockungsmittelzugabe auf die Adsorption von Spurenstoffen untersucht. Es wird gezeigt, dass durch Flockung die für Adsorptionskonkurrenz und Porenverblockung verantwortlichen Organikbestandteile lediglich geringfügig entfernt werden. Gleichzeitig bewirkt der Einschluss von PAK-Partikeln in Eisenhydroxidflocken keine messbare Verschlechterung des Stofftransports zur Aktivkohleoberfläche. Demnach besitzt die Flockung keinen relevanten Einfluss auf die Effizienz der Spurenstoffadsorption.

Die Direktdosierung von PAK in den Zulauf eines Flockungsfilters wurde im Pilotmaßstab untersucht. PAK-Mengen bis zu 50 mg/L haben nur geringfügige Auswirkungen auf die Filtration. Haupteinflussfaktor für die erreichbare Filterlaufzeit bis zum Partikeldurchbruch ist die Flockungsmittelmenge, wohingegen die erhöhte Feststofffracht aufgrund der PAK-Dosierung nicht zu einer Verringerung der Filterlaufzeit führt. Durch die Ansammlung von PAK in den oberen Schichten des Filterbettes verbessert sich die Spurenstoffentfernung mit zunehmender Filterlaufzeit. Die Adsorption an frischer PAK im Filterüberstau ist jedoch trotzdem für einen Großteil der Gesamtentfernung verantwortlich.

In weiteren Labortests wurden unterschiedliche PAK-Dosierstrategien hinsichtlich der erreichbaren Aktivkohleausnutzung untersucht. Die kontinuierliche PAK-Dosierung führt zu annähernd konstanten Entfernungen nach längerer Filterlaufzeit, die vorwiegend durch die Menge an kontinuierlich frisch dosierter PAK bestimmt werden, während die absolut eingelagerte PAK-Menge von untergeordneter Bedeutung ist. Durch Vorkonditionierung des Filters mit PAK wird zu Beginn der Filtration eine vollständige Spurenstoffentfernung erzielt und es kommt anschließend zu einem kontinuierlichen Konzentrationsanstieg. Es wird außerdem gezeigt, dass durch homogene Verteilung der PAK im gesamten Filterbett eine deutliche Verbesserung der Spurenstoffentfernung gegenüber flacher Einlagerung innerhalb der obersten Filterschichten erzielt werden kann.

Die Integration von GAK in die Flockungsfiltration wurde als Zweischichtfilter im Abstrombetrieb und als Einschicht-Aufstromfilter untersucht. Mit beiden Optionen ist eine effektive Feststoff- und Phosphorentfernung möglich, jedoch ist zur Gewährleistung des dauerhaft stabilen Betriebs eine weitere Optimierung der Prozessparameter erforderlich. Durch Adsorption an GAK wird bei gleichem Aktivkohleverbrauch eine ähnliche adsorptive Spurenstoffentfernung wie mit PAK erzielt. Zusätzlich kommt es bei der GAK-Filtration außerdem zu einer deutlichen Verringerung einiger Spurenstoffe durch biologischen Abbau im Filterbett.

Durch Adsorptionsversuche mit verschiedenen Kläranlagenabläufen wird gezeigt, dass die Entfernung mehrerer Spurenstoffe mit der gleichzeitigen Verringerung der UV_{254} -Absorption korreliert. Mit Hilfe von Laborkorrelationen konnte die Spurenstoffentfernung in einer Pilotanlage erfolgreich vorhergesagt werden. Echtzeitmessungen der UV_{254} -Absorption

können zur Online-Überwachung der Spurenstoffentfernung genutzt werden. Eine dynamische PAK-Dosierung entsprechend der UV_{254} -Entfernung ist in der Lage, konstante Spurenstoffentfernungen zu erzielen, wenngleich eine genaue Online-Vorhersage nicht für alle Spurenstoffe möglich ist. Insgesamt ist die UV_{254} -Absorption in PAK-Anwendungen als effektiver Ersatzparameter zur Anzeige der Spurenstoffentfernung nutzbar. Des Weiteren wird deutlich, dass ein Bezug der PAK-Dosierung auf den DOC eine bessere Vergleichbarkeit der Spurenstoffentfernungen in unterschiedlichen Abwässern im Vergleich zu volumenproportionaler Dosierung ermöglicht.

Diese Arbeit zeigt, dass die Integration der Aktivkohleadsorption in die Flockungsfiltration eine effiziente und platzsparende Reinigungsstufe zur weitergehenden Spuren- und Nährstoffentfernung darstellt. Die Ergebnisse tragen zu einer Verbesserung des Wissensstands bei der Auslegung und dem Betrieb zukünftiger Aktivkohlestufen bei.