Rapport Nr 2022-8

Biologisk rening av organiska mikroföroreningar

En jämförande studie i fullskala av aerobt granulärt och aktivt slam

Britt-Marie Wilén Cecilia Burzio Jennifer Ekholm Ola Svahn Frank Persson Oskar Modin Mark de Blois David Gustavsson

Svenskt Vatten Utveckling (SVU) är kommunernas eget FoU-program om kommunal VA-teknik. Programmet finansieras i sin helhet av kommunerna. Programmet lägger tonvikten på tillämpad forskning och utveckling inom det kommunala VA-området. Författarna är ensamt ansvariga för rapportens innehåll, varför detta ej kan åberopas såsom representerande Svenskt Vattens ståndpunkt.

Svenskt Vatten Utveckling Svenskt Vatten AB POSTADRESS BOX 14057, 16714 Bromma BESÖKSADRESS Gustavslundsvägen 12, 16751 Bromma TELEFON 08-506 002 00 E-MAIL svensktvatten@svensktvatten.se www.svensktvatten.se

Bibliografiska uppgifter Nr 2022-8

RAPPORTENS TITEL	Biologisk rening av organiska mikroföroreningar. En jämförande studie i fullskala av aerobt granulärt och aktivt slam
TITLE OF THE REPORT	Biological removal of organic micropollutants. A comparative study in full-scale of aerobic granular sludge and activated sludge
FÖRFATTARE	Britt-Marie Wilén, Cecilia Burzio, Jennifer Ekholm, Ola Svahn, Frank Persson, Oskar Modin, Mark de Blois och David Gustavsson
RAPPORTNUMMER	2022-8
ANTAL SIDOR	62
SAMMANDRAG	Rapporten sammanfattar resultat från en studie där organiska mikroföroreningar, främst läkemedel, har analyserats på ett avloppsreningsverk som har två parallella biologiska reningsprocesser i fullskala konventionellt aktivt slam och aerobt granulärt slam. De två processerna har jämförts när det gäller reningen av organiska mikroföroreningar.
SUMMARY	The report summarizes the results from a study where organic micropollutants, mainly pharmaceuticals, have been analysed at a full-scale wastewater treatment plant with two parallel treatment processes: conventional activated sludge and aerobic granular sludge. The two processes have been compared in terms of removal efficiency of organic micropollutants.
SÖKORD	Organiska mikroföroreningar, läkemedel, avloppsvatten, aerobt granulärt slam, aktivt slam, avskiljningshastighetskonstanter
KEYWORDS	Organic micropollutans, pharmaceuticals, wastewater, aerobic granular sludge, activated sludge, removal rate constants
MÅLGRUPPER	Processingenjörer, konsulter
RAPPORT	Finns att hämta hem som pdf från Vattenbokhandeln. https://vattenbokhandeln.svensktvatten.se/
UTGIVNINGSÅR	2022
UTGIVARE	© Svenskt Vatten AB
REFERENS	Wilén B-M., Burzio C., Ekholm J., Svahn O., Persson F., Modin O., de Blois M. och Gustavsson D. (2022). Biologisk rening av organiska mikroföroreningar. En jämförande studie i fullskala av aerobt granulärt och aktivt slam. SVU-rapport 2022-8. Stockholm, Svenskt Vatten.
Om projektet	
PROJEKTNUMMER	20-103
PROJEKTETS NAMN	Reduktion av läkemedel i aerobt granulärt och aktivt slam
PROJEKTETS FINANSIERING	Svenskt Vatten Utveckling

Förord

Den här rapporten sammanfattar resultat från projektet "Reduktion av läkemedel i aerobt granulärt och aktivt slam" finansierat av Svenskt Vatten Utveckling (SVU) under perioden 2020-09-01 till 2021-10-31. Projektet har utgjort en del av ett doktorand-projekt utfört av Cecilia Burzio (finansierat av Formas och Chalmers tekniska högskola) som handlar om läkemedelsreduktion i biologiska processer. Mätningarna har gjorts på Österröds avloppsreningsverk i Strömstads kommun. Alla analyser av organiska mikroföroreningar har gjorts av Ola Svahn på MoLab, Högskolan Kristianstad.

Österröds avloppsreningsverk är det första reningsverket i Sverige med aerobt granulärt slam. Reningsverket har en parallell aktivslamprocess vilket ger unika möjligheter att jämföra avskiljningen av organiska mikroföroreningar i dessa två olika biologiska reningssteg, en med suspenderad biomassa och en med biofilm (granuler). Rapporten innehåller förutom resultaten från projektet även en litteraturöversikt över kunskapsläget inom avskiljning av organiska mikroföroreningar i avloppsreningsverk med fokus på avskiljning genom biologiska processer.

Den här studien är även en del av ett större projekt, AGNES II (finansierat av bland andra SVU, Sweden Water Research och Chalmers tekniska högskola), där uppstarten och driften av Nereda[®]-processen som togs i drift 2018 har studerats. Även inom det projektet deltar en doktorand, Jennifer Ekholm.

En vetenskaplig tidskriftsartikel har även bearbetats inom projektet: Removal of organic micropollutants from municipal wastewater by aerobic granular sludge and conventional activated sludge (Burzio, C., Ekholm J., Modin O., Falås P., Svahn O., Persson F., van Erp T., Gustavsson D. och Wilén B-M 438, Journal of Hazardous Materials, 438, 129528, doi:101.1016/j.hazmat.2022.129528.)

Britt-Marie Wilén Cecilia Burzio Jennifer Ekholm Ola Svahn Frank Persson Oskar Modin Mark de Blois David Gustavsson

Innehåll

	Förord	
	Sammanfattning	4
	Summary	5
1	Inledning	6
2	Projektets mål och genomförande	7
3	Problemet med organiska mikroföroreningar	8
	3.1 Organiska mikroföroreningar i miljön	
	3.2 Organiska mikroföroreningar i avloppsvatten	
4	Reduktion av organiska mikroföroreningar i avloppsreningsverk	
	4.1 Fysikaliska och kemiska reningsmetoder	
	4.2 Biologiska reningsprocesser	
	4.3 Mekanismer bakom biologisk rening	13
	4.4 Sorption	15
	4.5 Aerobt granulärt slam (AGS)	
	4.6 Avskiljning av organiska mikroföroreningar i aerobt granulärt slam	17
5	Rening från mikroföroreningar vid Österröds avloppsreningsverk	
	5.1 Processbeskrivning	19
	5.2 Provtagningsstrategi	20
	5.3 Nedbrytningskinetik	20
	5.4 Transformationskonstanter	21
	5.5 Analytiska metoder	21
	5.6 Mikrobiell analys	21
6	Resultat och diskussion	23
	6.1 Driftsförhållanden och driftsprestanda	23
	6.2 Avskiljning av mikroföroreningar i anläggningen	24
	6.3 Transformationshastigheter	
	6.4 Inverkan av aeroba och anoxiska förhållanden	
	6.5 Mikrobiell analys	29
7	Slutsatser	32
	Referenser	
	Bilaga A Tabeller och figurer	48

Sammanfattning

Reningen av organiska mikroföroreningar, främst läkemedel, har analyserats och jämförts i två parallella biologiska reningsprocesser som drivs i fullskala på ett reningsverk i Strömstad: konventionellt aktivt slam och aerobt granulärt slam.

Mycket forskning har gjorts inom området avskiljning av organiska mikroföroreningar eftersom det förväntas bli utsläppskrav på dessa i framtiden. De metoder som studerats mest är kemisk-fysikaliska metoder som adsorption till aktivt kol och oxidation med ozon. Det här är metoder som har visat sig vara mycket effektiva jämfört med de biologiska reningsprocesser som utnyttjas för avskiljning av organiskt material samt kväve och fosfor. Men det är ändå intressant att undersöka hur och i vilken omfattning olika typer av biologiska reningsprocesser kan avskilja organiska mikroföroreningar. Biofilmsprocesser har i flera tidigare studier visat sig vara effektivare än aktivt slam. Aerobt granulärt slam är en relativt ny typ av biofilmsprocesse.

På Österröds avloppsreningsverk i Strömstad finns Nordens första anläggning med aerobt granulärt slam. Processen drivs parallellt med en konventionell aktivslamprocess. De två processerna tar emot samma avloppsvatten. I aktivslamprocessen är bakteriebiomassan suspenderad i vattnet, och processen drivs kontinuerligt och med olika syrehalt i olika bassänger. Det aeroba granulära slammet är en biofilm i form av granuler där syrehalten minskar från ytan och inåt granulerna. Driften sker satsvis så att en viss mängd renat vatten tappas ur samtidigt som en lika stor mängd orenat vatten fylls på. Koncentrationen av slam (biomassa) är cirka tre gånger högre i det granulära slammet än i det aktiva slammet. Det medför att vattnets uppehållstid kan hållas mycket kortare i granulprocessen, i den här studien 11,4 timmar jämfört med 16,2 timmar för aktivslamprocessen. Den här studien visar också att den mikrobiella artrikedomen (diversiteten) är högre i granulerna än i det aktiva slammet.

Mätningar på in- och utgående vatten i de två parallella processerna gjordes under vintern 2020/2021. Kompletterande mätningar gjordes på laboratoriet, där man till slam från de båda processerna satte ett antal utvalda organiska mikroföroreningar vid både syrerika och syrefattiga förhållanden.

Enligt tidigare forskning borde hög koncentration av aktiv biomassa och ett artrikt mikrobiellt samhälle gynna nedbrytningen av organiska mikroföroreningar, men det mönstret gick inte att se i den här studien. För de flesta föroreningar som uppmättes var avskiljningen något högre och snabbare för aktivt slam än för granulerna, trots att artrikedomen av mikroorganismer var större i granulerna. Även i labbförsöken blev det högre avskiljningshastigheter med biomassa från aktivt slam än med biomassa från granulärt slam. Ett undantag var diklofenak som avskildes bättre med granuler. För de flesta ämnen skedde omvandlingen snabbare i syrerika än i syrefattiga förhållanden.

Resultaten från projektet leder till frågan om det verkligen är den mikrobiella diversiteten som är viktig eller om andra parametrar avgör nedbrytningshastigheten, till exempel andelen aktiv biomassa. Granulerna är en typ av tjock biofilm med stort diffusionsmotstånd som gör att det är svårt att avgöra andelen aktiv biomassa. Aktivslamflockar är mindre och har större specifik yta i förhållande till volymen; de kan därför ha en mindre andel inaktiv biomassa. De två parallella reningssystemen drevs dessutom med olika uppehållstid. Aktivslamprocessen hade cirka 50 procent längre uppehållstid. Det gjorde att kontakttiden mellan avloppsvatten och biomassa blev längre, och det gav mer tid för avskiljning av mikroföroreningar.

Summary

The report summarizes the results from a study where organic micropollutants, mainly pharmaceuticals, have been analysed at a full-scale wastewater treatment plant with two parallel treatment processes: conventional activated sludge and aerobic granular sludge. The two processes have been compared in terms of removal efficiency of organic micropollutants.

A considerable amount of research has been performed on the removal of organic micropollutants from wastewater since discharge limits are expected in the future. The most studied methods are chemical-physical methods such as adsorption to activated carbon and oxidation with ozone. These methods have proved very efficient compared to biological processes that are designed to remove organic material, nitrogen and phosphorus. However, it is interesting to study to what extent different biological methods remove organic micropollutants. Biofilm processes have in several previous studies been found to remove organic micropollutants more efficient than activated sludge. Aerobic granular sludge is a relatively novel type of biofilm processes.

At the Österröd wastewater treatment plant in Strömstad, the first aerobic granular sludge plant in the Nordic countries is located. The process is operated in parallel with a conventional activated sludge plant. The two processes receive that same wastewater. In the activated sludge process the biomass is suspended in the water and the process is operated in a continuous mode with different dissolved oxygen concentrations in different tanks. The aerobic granular sludge is a biofilm in the form of granules where the dissolved oxygen concentration is reduced from the outer surface to its inner parts. Aerobic granular sludge systems are operated as sequencing batch reactors where the water is filled into the reactors at the same time as the treated wastewater is discharged. The concentration of biomass is approximately three times higher than in activated sludge plants. This means that the retention time of the water can be much shorter, in this study 11,4 hours, in aerobic granular sludge systems, compared to 16,2 hours in the activated sludge process. This study shows that the microbial diversity is higher in the granules than in the activated sludge.

Measurements in the incoming and effluent wastewater from the two parallel processes were performed during the winter 2020/2021. Additional measurements were performed in the laboratory where sludge from both processes were mixed with a selected number of organic micropollutants at both oxygen-rich and oxygen depleted conditions.

According to previous research, a high concentration of biomass and a diverse microbial community should be beneficial for the removal of organic micropollutants. This pattern could, however, not be seen in this study. For most micropollutants that were analysed, the removal was slightly higher and faster in the activated sludge compared to in the aerobic granular sludge, in spite of the higher microbial diversity in the aerobic granular sludge. Also in the laboratory experiments, the removal rate was higher in the activated sludge than in the aerobic granular sludge. One exception was diclofenac which was removed to a higher extent in aerobic granular sludge. For most substances the removal was faster at oxygen rich than oxygen depleted conditions.

The results from the project have led to the question whether it is the microbial diversity as such that is important or if there are other parameters, such as amount of active biomass, that are decisive for the removal rate. Granules is a type of thick biofilm with a large diffusion resistance which makes it hard to estimate the active fraction of the biomass. Activated sludge flocs are smaller and has a larger specific surface area in relation to its volume and might have a smaller inactive fraction of the biomass. The two parallel treatment steps were operated at different hydraulic retention times. The activated sludge system had 50 percent longer hydraulic retention time which gave a longer contact time between biomass and wastewater and hence longer time for the removal of organic micropollutants.

1 Inledning

Den här rapporten sammanfattar mätningar av organiska mikroföroreningar (OMF), i huvudsak läkemedel, på Österröds avloppsreningsverk (ARV) i Strömstad under hösten och vintern 2020/2021. På Österröds ARV finns Nordens första anläggning med aerobt granulärt slam (AGS) vars processlösning går under namnet Nereda® (Royal HaskoningDHV BV, Nederländerna), som startades sommaren 2018. Under tiden byggdes aktivslamprocessen om och sedan sommaren 2019 drivs AGS-processen parallellt med aktivslamprocessen. För att öka kunskapen om granuler genomfördes projektet Aerobic Granular sludge - Nutrient removal and recovery Efficiency in Sweden (AGNES I) där en kunskapssammanställning skrevs (Bengtsson et al. 2017). Uppstarten och driften har följts inom projektet Implementering av aerobt granulärt slam – en fullskalestudie (AGNES II), finansierat av bland andra Svenskt Vatten Utveckling, Sweden Water Research och Chalmers. Som ett led i att ytterligare öka kunskapen om AGS har avskiljningen av OMF studerats inom det här projektet. I Sverige och även internationellt har mycket forskning gjorts inom området avskiljning av OMF, främst läkemedel, eftersom det förväntas bli utsläppskrav på dessa i framtiden (Loos et al.2013). De studerade metoderna är oftast kemisk-fysikaliska metoder såsom adsorption till aktivt kol och oxidation med ozon, vilka har visat sig vara mycket effektiva i jämförelse med de biologiska reningsprocesser som vi utnyttjar för att avskilja organiskt material samt kväve och fosfor. Dock är det fortfarande även intressant att undersöka hur och i vilken omfattning olika typer av biologiska reningsprocesser kan avskilja OMF. Det finns relativt många studier rapporterade av rening från OMF i biologiska processer, såsom aktivt slam och olika typer av biofilmsprocesser. Biofilmprocesser har i flera tidigare studier visat sig vara effektivare på att avskilja organiska mikroföroreningar jämfört med aktivt slam.

AGS är en relativt ny typ av biofilmsprocess och mycket sparsamt med information finns än så länge publicerad angående rening från OMF, speciellt i fullskaleanläggningar. Eftersom AGS drivs parallellt med en konventionell aktivslamprocess (CAS) på Österröds ARV gav detta unika möjligheter att studera skillnaden i avskiljning för två olika processer som tar emot samma avloppsvatten (med viss skillnad i förbehandlingen, se avsnitt 5.1.). I det här projektet gjordes mätningar under vintern 2020/2021 i kombination med laboratorieförsök för att studera avskiljningen av OMF. Mätningarna utfördes som en del av Cecilia Burzios och Jennifer Ekholms doktorandstudier.

2 Projektets mål och genomförande

Målet med det här projektet var att öka kunskapen om hur organiska mikroföroreningar, främst läkemedel, renas från avloppsvatten i den biologiska processen på avloppsreningsverk. Mer specifikt var syftet att

- få kunskap om hur läkemedelsrester reduceras i en AGS-process i fullskala.
- utvärdera skillnaden i reduktion av läkemedelsrester med AGS och aktivt slam.
- utvärdera reduktionen av läkemedelsrester vid olika cykeltider i AGS-processen.

Förhoppningen är att resultaten ger Svenskt Vattens medlemmar en bättre förståelse för och en djupare kunskap om avskiljningen av organiska mikroföroreningar i AGS som drivs vid nordiska förhållanden jämfört med aktivt slam.

Studien genomfördes genom en provtagningskampanj vid Österröds avloppsreningsverk i Strömstad. Flödesproportionella provtagningar togs in och ut från AGS-tankarna och aktivslamanläggningen under två veckor vid stabila processförhållanden. För att utvärdera avskiljningshastigheten gjordes kompletterande mätningar på laboratoriet där det till slam från AGS och CAS blandat med utgående avloppsvatten tillsattes ett antal utvalda OMF vid aeroba och anoxiska förhållanden.

3 Problemet med organiska mikroföroreningar

Ett stort antal OMF har påträffats i vattenmiljön genom utökade övervakningsprogram och förbättrade analysmetoder. Läkemedel är en grupp OMF som till största delen förekommer i avloppsvatten på grund av att de utsöndras från människokroppen som vattenlösliga substanser.

3.1 Organiska mikroföroreningar i miljön

Det är sedan länge känt att OMF såsom läkemedel, hormonstörande ämnen, hygienprodukter, polycykliska aromatiska kolväten (PAH), biocider, droger, pesticider, herbicider och ytaktiva ämnen, orsakar skada på den akvatiska miljön (Halling-Sørensen et al., 1998; Schwarzenbach et al., 2006). Hundratals olika OMF, både naturliga och antropogena, har detekterats i vattenmiljöer i koncentrationer från ng/l till µg/l där vissa har toxiska effekter och är bioackumulerbara även vid mycket låga halter (Munz et al., 2018; Ågerstrand et al., 2015). Många av dessa ämnen är svårnedbrytbara och stannar i miljön under lång tid (Tijani et al., 2013). Även om halterna är lägre än vad som kan påvisas vara akut toxiska var för sig kan s.k. cocktail-effekter uppstå vid exponering av en blandning av ämnen (Backhaus, 2014). Förekomst av läkemedel i vattenmiljöer är ett globalt problem där mer än 600 läkemedel har detekterats i över 70 länder representerade på alla jordens kontinenter (aus der Beek et al., 2016). Läkemedel är ämnen som är ämnade att i låga koncentrationer bota och lindra sjukdomar hos människa och djur. Problemen uppkommer dock då de kommer ut i miljön, där de kan reagera vidare samt är biologiskt aktiva, och kan därmed påverka vattenlevande organismer (Desbiolles et al., 2018). Ett exempel är diklofenak vilket är ett läkemedel som är vanligt förekommande och som har den högst akuta toxiciteten av alla icke-steroida antiinflammatoriska ämnen och som kan ge bestående skador på lever, njure hos människa och på gälar hos fiskar (Vieno and Sillanpää, 2014). Östrogena ämnen och antibiotika kan leda till störningar i fortplantningsorganen (Jobling et al., 1998) hos vattenlevande organismer samt antibiotikaresistens (Alexander et al., 2020; Calderón-Franco et al., 2021; Hutinel et al., 2021).

Endast ett fåtal länder i världen har reglering för mätning av OMF som t.ex. USA, stater inom EU, samt Australien. Schweiz är det enda landet som har reglering för utsläpp från avloppsreningsverk. Inom det europeiska vattendirektivet utarbetades en lista med 33 prioriterade ämnen som t.ex. steroidhormoner, läkemedel, antibiotika och pesticider (2008/105/EU) som måste mätas i alla medlemsländers ytvatten vid viss detektionsgräns. Senare lades ytterligare 12 ämnen till listan (2013/39/EU, Annex X) varav tre läkemedel (diklofenak, det syntetiska hormonet 17α-ethinylestradiol (EE2) och det naturliga hormonet 17 β -estradiol (E2)). I ett beslut i mars 2015 (beslut 2015/495/ EU) implementerades en "watchlist" där tre makrolida antibiotika (azithromycin, clarithromycin samt erythromycin), det naturliga hormonet estron (E1) samt ett antal pesticider och andra organiska ämnen lades till listan (2015/495/EU och 2018/840/ EU). Dessa ämnen hamnar i ytvatten, hav och grundvatten genom utsläpp från industriella avlopp, avrinning från jordbruk och akvakultur, deponier, och avloppsvatten från hushåll och sjukhus (Barbosa et al., 2016). I Sverige har 17β -estradiol, 17α -etinylestradiol och diklofenak tagits upp på listan med särskilt förorenande ämnen (SFÄ) enligt Havs- och vattenmyndighetens föreskrifter om klassificering och miljökvalitetsnormer för ytvatten (HVMFS 2019:25). På senare år har ett ökat fokus lagts på spridning av

antibiotika via "*European Health Action Plan*" som är till för att minska spridningen av antibiotikaresistens där även antibiotika också lagts till den inom EU *watchlist*.

När det gäller läkemedel, antibiotika och hormoner, har mest fokus lagts på den tillförsel som sker till den akvatiska miljön genom utsläpp från ARV, industriellt avlopp från läkemedelsindustrin samt från akvakultur (Larsson, 2014; Luo et al., 2014). I Sverige har stora satsningar gjorts på speciellt läkemedelsområdet för att minska utsläppen till miljön via avloppsvatten som tex Stockholm Vattens stora projekt om läkemedel i vattenmiljön (Wahlberg et al., 2009), MistraPharma (www.mistrapharma.se), och Havsmyndighetens stora satsning för utveckling av avancerad reningsteknik för läkemedel (Naturvårdsverket, 2017). Inom ramen för Region Stockholms miljöprogram (2017-2021) har en lista med särskilt miljöbelastande läkemedel tagits fram med åtgärdsförslag för att minska utsläpp till recipient (https://www.regionstockholm.se/om-regionstockholm/hallbarhet/miljo/) (Tabell 3.1).

Tabell 3.1

Lista med miljöbelastande läkemedel framtagna inom ramen för Region Stockholms miljöprogram (2017-2021). Ämnen markerade i fetstil undersöktes i den här studien (samt ytterligare ett antal, Tabell A1).

Substans	Beskrivning	Motivering
Amoxicillin	Penicillin	Risk för selektion av antibiotikaresistenta bakterier.
Azitromycin	Makrolid antibiotika	Risk för selektion av antibiotikaresistenta bakterier, kan samverka med andra makrolida antibiotika (erytromycin, klaritromycin, roxitromycin).
Ciprofloxacin	Fluorkonolog antibiotika	Risk för selektion av antibiotikaresistenta bakterier.
Citalopram, Escitalopram	Antidepressiva	Risk för påverkan på vattenlevande organismer.
Diazepam	Ångestdämpande	Låga halter i avloppsvatten men kan metaboliseras till oxa- zepam som kan påverka vattenlevande organismer.
Diklofenak	lcke steroid anti-inflammatorisk	Negativa effekter på fisk.
Erytromycin	Makrolid antibiotika	Risk för selektion av antibiotikaresistenta bakterier, kan samverka med andra makrolida antibiotika (azitromycin, klaritromycin, roxitromycin).
Estradiol (17-beta-estradiol, E2)	Steroidhormon (kvinnligt könshormon)	Risk för påverkan av fortplantning och könsutveckling hos fisk.
Etinylestradiol (17 - etynylestradiol, EE2)	Halvsyntetiskt östrogen	Risk för påverkan av fortplantning och könsutveckling hos fisk.
Felodipin	Betablockerare	Kan påverka akvatiska miljön pga dess fettlöslighet.
Fluoxetin	Antidepressiva	Risk för påverkan på vattenlevande organismer, särskilt ryggradslösa djur.
Flupentixol	Psykofarmaka	Risk för ansamling i fisk.
Glibenklamin	Antidiabetes (typ2)	Kan påverka akvatiska miljön pga dess fettlöslighet.
Haloperidol	Psykofarmaka	Kan påverka akvatiska miljön pga dess fettlöslighet.
Irbesartan	Blodtryckssänkande	Kan ansamlas i fisk.
Klaritromycin	Antibiotika	Risk för selektion av antibiotikaresistenta bakterier, kan samverka med andra makrolida antibiotika (azitromycin, erytromycin, roxitromycin).
Levonorgestriol	Syntetiskt hormonämne	Risk för påverkan av fortplantning och könsutveckling hos fisk.
Meklozin	Antihistamin	Skulle kunna ansamlas i fisk.
Oxazepam	Ångestdämpande	Kan störa beteendet hos fisk.
Risperiodon	Psykofarmaka	Kan ansamlas i fisk pga dess fettlöslighet.
Roxitromycin	Semi-syntetisk makrolid antibiotika	Risk för selektion av antibiotikaresistenta bakterier, kan samverka med andra makrolida antibiotika (azitromycin, erytromycin, klaritromycin).
Sertralin	Antidepressiva	Risk för påverkan på vattenlevande organismer, särskilt ryggradslösa djur.

Substans	Beskrivning	Motivering
Tetracyklin	Antibiotika	Risk för selektion av antibiotikaresistenta bakterier.
Trimetoprim	Antibiotika	Risk för selektion av antibiotikaresistenta bakterier.
Venlafaxin	Antidepressiva	Risk för påverkan på vattenlevande organismer, särskilt ryggradslösa djur.

3.2 Organiska mikroföroreningar i avloppsvatten

Utsläpp av renat avloppsvatten från ARV är en viktig källa till spridning av OMF, till stor del läkemedelsrester och hormonstörande ämnen, till ytvatten (Adeleye et al., 2022; Brown and Wong, 2018; Luo et al., 2014). En del läkemedel omvandlas i kroppen medan andra utsöndras med urin och avföring och hamnar på så sätt i avloppsvattnet. Vissa läkemedel konjugeras vilket innebär att de metaboliseras i kroppen för att lättare kunna utsöndras. Dessa ämnen kan sedan omvandlas i reningsprocessen till moderföreningen, vilket kan öka halterna i utgående vatten från reningsverk. Andra ämnen bryts ner genom en total mineralisering till koldioxid och vatten medan andra bryts ner till diverse metaboliter som i sig kan vara lika toxiska som moderföreningarna. I dagsläget är kunskapen begränsad angående vilka metaboliter som bildas utan oftast mäts enbart reningen av moderföreningen.

4 Reduktion av organiska mikroföroreningar i avloppsreningsverk

Även om ARV är den största tillförselvägen för spridning av mikroföroreningar såsom läkemedel och hormonstörande ämnen till ytvatten kan de även fungera som en barriär för spridning till miljön (Stalter et al., 2013). Schweiz är det första landet i Europa med krav på rening från läkemedel och andra mikroföroreningar i större ARV (Cimbritz et al., 2016; Eggen et al., 2014). Reningsmetoder såsom adsorption till aktivt kol, oxidation med ozon, nanofiltrering och omvänd osmos har visat sig vara mycket effektiva om ett brett spektrum av mikroföroreningar (>80 %) skall avskiljas (Boehler et al., 2012; Eggen et al., 2014; Hollender et al., 2009; Rizzo et al., 2019b). Dessa metoder kräver dock relativt mycket energi i förhållande till behovet hos dagens befintliga rening, som främst syftar till hygienisering och att förhindra övergödning, och därmed genereras även en ökad miljöbelastning. Ozon kan även ge oönskade bi- och transformationsprodukter med till stor del okända effekter på miljön (von Gunten, 2018). I en livscykelanalysstudie har ozon visat sig ha större koldioxidavtryck än aktivt kol och nanofiltrering (Pesqueira et al., 2020). Aktivt kol ger inga bi- eller transformationsprodukter men mikroföroreningarna blir inte mineraliserade. Kolet kräver efterbehandling, men kan regenereras. Vid användande av granulerat aktivt kol (GAK), kan dock adsorption kombineras med biologisk nedbrytning (Betsholtz et al., 2021). En uppgradering för att inkludera rening från OMF kommer antagligen inte bli ekonomiskt möjligt för alla ARV och därför är det intressant att ta reda på hur mycket biologin i reningsprocesser såsom AGS kan avskilja OMF genom att välja den mest effektiva processen (Johnson and Sumpter, 2015).

4.1 Fysikaliska och kemiska reningsmetoder

För att på ett effektivt sätt avskilja OMF kan reningsmetoder tillämpas som fullständigt mineraliserar mikroföroreningar, eller åtminstone omvandlar dem till mindre farliga transformationsprodukter eller fysikaliskt avskiljer dem. Mycket forskning har gjorts inom detta område, såväl internationellt (Guillossou et al., 2019; Nürenberg et al., 2019; Pesqueira et al., 2020; Rizzo et al., 2019b) som i Sverige (Cimbritz and Mattsson, 2017; Cimbritz et al., 2016; Naturvårdsverket, 2017). I den här rapporten sammanfattas de olika teknikerna endast kortfattat.

Olika tekniker avskiljer eller omvandlar OMF olika effektivt, beroende på molekylernas egenskaper, och därför är det svårt att hitta en metod som fungerar för alla ämnen. Troligtvis är en kombination av olika metoder en möjlighet (Rizzo et al., 2019b; Rodriguez-Narvaez et al., 2017). En kombination av fysikaliska, kemiska och biologiska metoder har även visat sig vara en effektiv barriär mot utsläpp, som t.ex. ozonering efterföljt av en MBBR-process (Edefell et al., 2021).

Avancerade oxidationsprocesser (AOP) består i korta drag av att man producerar högreaktiva icke-selektiva hydroxylradikaler (OH·) som kan attackera och förstöra OMF. Dessa metoder (förutom ozonbehandling) är dock än så länge mindre vanliga. Hydroxylradikaler produceras vanligen genom en reaktion mellan väteperoxid (H_2O_2), ozon (O_3) eller syre (O_2). Andra oxidationsprocesser är UV-fotolys, oxidation med väteperoxid, ozon, UV-strålning, titaniumdioxid-fotokatalys, och sono-kemisk katalys (ultraljud). Mer information om dessa metoder finns t.ex. i (Rizzo et al., 2019a; Rizzo et al., 2019b).

Ozonering av vatten har använts inom dricksvattenrening för att ta bort organiskt material och andra OMF under många årtionden, och är en beprövad teknik. Vid ozonering oxideras organiska molekyler direkt, eller indirekt genom bildandet av hydroxylradikaler. I många studier har denna metod använts för att oxidera OMF (Völker et al., 2019). Från början var endast målet att minska mängden moderförening men sedan upptäcktes att oönskade, till stor del okända, transformationsprodukter kunde bildas (Gulde et al., 2021; von Gunten, 2018). I andra studier har det emellertid observerats att biprodukternas toxicitet minskade efter ozoneringen (Margot et al., 2013). Vissa biprodukter är dock toxiska och mer forskning behövs för att ta reda på vilka ämnen som kan bildas under vilka förhållanden (Magdeburg et al., 2014). Även om det inte är helt klarlagt hur farliga biprodukterna är kan många, men inte alla, OMF, avskiljas i en efterföljande biologisk process (de Wilt et al., 2018; Edefell et al., 2021; Hollender et al., 2009). Ozon omvandlar organiska ämnen och näringsämnen till mindre molekyler vilket är gynnsamt för efterföljande reningssteg baserade på biofilmer. Avloppsvatten som innehåller brom bör dock inte ozoneras då det föreligger risk för bildande av biprodukter i form av cancerogent bromat och där även dosen av ozon och koncentrationen av brom är avgörande (Hollender et al., 2009).

Aktivt kol kan adsorbera ett brett spektrum av mikroföroreningar genom dess höga porositet, specifika yta och förmåga till ytinteraktion (Snyder et al., 2007). Det aktiva kolet kan doseras som pulvriserat aktivt kol (PAK) i en slurry alternativt som ett polerande filter med granulerat aktivt kol (GAK). Adsorptionsförmågan varierar beroende på typen av aktivt kol och hur den har framställts (Zietzschmann et al., 2014). Det finns olika typer av kol med varierande innehåll av de definierade porstorlekarna; makroporöst (≥50 nm), mesoporöst (2-50 nm), och sekundärt mikroporöst (0,8-2 nm), och primärt mikroporöst (≤0,8 nm). Principen är att mikroföroreningarna transporteras från vattenfasen till ytan på det aktiva kolet. Vid adsorptionen sker en direkt konkurrens om adsorptionssäten mellan olika OMF men även med andra organiska molekyler i avloppsvattnet som kan leda till en tilltäppning av porerna på det aktiva kolet. Diverse olika faktorer påverkar denna konkurrens om adsorptionssäten såsom det aktiva kolets ytegenskaper, partikelstorlek, ytladdning samt egenskaperna hos mikroföroreningarna (Ruhl et al., 2014). Andra faktorer som temperatur och pH har också en påverkan på adsorptionseffektiviteten (Luo et al., 2014). I Sverige har mycket forskning gjorts inom området där både användandet av PAK och GAK utvärderats. Vid användande av PAK hamnar det aktiva kolet i slammet och ett mer effektivt sätt att använda kolet maximalt är att recirkulera det i processen (Kårelid et al., 2017a). Vid jämförelse av PAK och GAK visade sig PAK vara mer effektivt men fördelen med GAK är att det aktiva kolet kan regenereras och återanvändas i ett filter (Kårelid et al., 2017b). Fördelen med PAKdosering är att den kan kombineras med rening av avloppsvatten från organiska ämnen och närsalter. Studier har även gjorts för att se om PAK-dosering har en negativ effekt på reningen av avloppsvatten i ett MBBR system och ingen inverkan på nitrifikationen kunde påvisas (Cimbritz et al., 2019). Aktivt kol är relativt dyrt att framställa och det kan bli svårt få fram tillräckligt mycket om många större ARV vill tillämpa tekniken. Andra adsorptionsmaterial såsom biokol har därför även undersökts för att tex avskilja hormonämnen (Peiris et al., 2020).

4.2 Biologiska reningsprocesser

De biologiska processerna i ett ARV kan avskilja en del OMF, såsom läkemedel och hormonämnen, även om de är konstruerade för att ta bort organiskt material, kväve och fosfor. Dock är kunskapen om avskiljningsmekanismerna inte fullständigt kända och det är därför svårt att förutse hur olika OMF kommer att avskiljas (oxideras eller adsorberas till slammet) beroende på processkonfiguration och drift (Alvarino et al., 2018a; Oberoi et al., 2019; Tadkaew et al., 2011). Avskiljningsgraden har visat sig vara mycket varierande (10-100 %) beroende på ämnesspecifika egenskaper och processutformning och miljöbetingelserna på ARV (Eggen et al., 2014; Luo et al., 2014; Nguyen et al., 2021). Många olika faktorer påverkar hur de olika ämnena avskiljs (Loos et al., 2013). OMF i form av läkemedel är typiskt små till medelstora organiska molekyler med varierande grad av hydrofobicitet och funktionella grupper med sura, basiska och neutrala egenskaper (Barron et al., 2008). Läkemedel med katjoniska och hydrofoba egenskaper adsorberas lätt till organiskt material såsom slam (Svahn and Björklund, 2015). Molekylstrukturen är också mycket viktig där ämnen som t.ex. ibuprofen är lättnedbrytbart medan diklofenak, som är ett klorerat aromatiskt ämne, är mer svårnedbrytbart. Aromatisk ringstruktur och sidokedjor påverkar den biologiska nedbrytbarheten (Tadkaew et al., 2011).

I den biologiska reningsprocessen är det flera faktorer som påverkar avskiljningen av OMF såsom slamålder, hydraulisk uppehållstid, mikrobiell aktivitet hos autotrofer och heterotrofer, pH, redoxförhållanden och om huruvida biomassan växer suspenderat eller i form av en biofilm. Processutformning och mikrobiell sammansättning är dock de faktorer som är mest avgörande för potentialen för biologisk nedbrytning av mikroföroreningar (Wolff et al., 2018). Studier har visat att aktivslam- och biofilmprocesser med lång slamålder, vilket tros främja hög biodiversitet, ökar chansen för att det finns mikroorganismer som kan bryta ner mikroföroreningar (Falås et al., 2018; Jewell et al., 2016b; Torresi et al., 2016; Wolff et al., 2021). Högst varierande resultat har dock rapporterats, troligen beroende på många samverkande faktorer. I en studie med membranbioreaktorer var nedbrytningseffektiviteten högre då processen drevs med längre slamålder (Boonnorat et al., 2014) medan studier av aktivslamprocesser visade att en slamålder mellan 25 och 80 dagar inte påverkade avskiljningsgraden nämnvärt (Falås et al., 2016). Biofilmer har mikronischer med aeroba, anoxiska och anaeroba förhållanden vilket leder till en högre mikrobiell diversitet där mikroorganismerna kan uppehålla sig under lång tid (Wolff et al., 2021). Det har även visat sig att tjocka biofilmer på rörliga bärare (MBBR) är effektiva på att avskilja OMF (Torresi et al., 2016). En korrelation mellan taxonomisk (vilka de är) och funktionell (vad de gör) biodiversitet och omvandling av OMF har observerats i ett flertal studier (Gao et al., 2019; Johnson et al., 2015; Stadler et al., 2018). En hypotes är därför att sammansättningen på det mikrobiella samhället kan vara den viktigaste drivkraften för avskiljning av OMF och genom att öka den mikrobiella diversiteten ökar avskiljningseffektiviteten. I nedanstående avsnitt beskrivs de biologiska mekanismerna.

4.3 Mekanismer bakom biologisk rening

Avskiljningen från avloppsvattnet sker dels genom mikrobiella omvandlingsprocesser där de mikroorganismerna som finns i biomassan bryter ner vissa OMF, och dels genom adsorption till biomassan (Luo et al., 2014; Verlicchi et al., 2012) (Figur 4.1). Detta gör att vissa icke-nedbrytningsbara OMF hamnar i slammet och kan på det sättet transporteras till miljön (Radjenović et al., 2009). Adsorberade molekyler kan, om de får sitta tillräckligt länge i kontakt med mikroorganismerna, dock brytas ned. Vissa OMF kan avskiljas genom volatilisering (avdrivning av lättflyktiga ämnen) och kemisk nedbrytning men dessa processer spelar en mindre roll i avskiljningen (Margot et al., 2015).

Stora skillnader i avskiljning vid biologisk rening mellan olika OMF har rapporterats från fullständig för vissa ämnen, t.ex. ibuprofen, till nästan ingen avskiljning för t.ex. carbamazepin och diklofenak. Detta har att göra med strukturen hos molekylen som kan ha olika benägenhet till nedbrytning eller sorption (Loos et al., 2013; Tadkaew et al., 2011). Den kemiska strukturen kan variera avsevärt för olika OMF (Rivera-Utrilla et al., 2013). De biologiskt nedbrytbara kan delas in i lätt-, måttligt, och svårnedbrytbara (Joss et al., 2006). Molekyler som innehåller halogener och kvävearomatiska grupper samt är högt förgrenade är t.ex. svårnedbrytbara medan molekyler med raka alifatiska estrar, syror och som innehåller hydroxylgrupper är mer lättnedbrytbara (Howard and Muir, 2010). Andra egenskaper såsom polaritet och hydrofobicitet påverkar adsorptionsförmågan (Goss and Schwarzenbach, 2003). Många OMF är elektrolyter och består av syror, baser, amfolyter, och salter vilket kan påverkas av elektriska laddningar och pH och därmed också deras avskiljningsegenskaper (Trapp et al., 2010).



Figur 4.1

Schematisk bild av avskiljningsmekanismer för organiska mikroföroreningar från vattenfasen i biologisk avloppsvattenrening (anpassad bild från (Burzio, 2020)).

Vid biologisk nedbrytning kan modermolekylen antingen brytas ner till olika metaboliter, även kallat transformationsprodukter, (Oberoi et al., 2019) eller helt mineraliseras till koldioxid och vatten. Nedbrytningsprocesserna kan ske antingen intracellulärt eller extracellulärt (Fischer and Majewsky, 2014; Stadlmair et al., 2018). Avskiljning genom biologisk omvandling eller fullständig mineralisering anses vara viktigare än sorption men det är inte helt känt vilka omvandlingsprocesser som ingår. Vissa metaboliter kan vara farligare för miljön än moderföreningen (Magdeburg et al., 2014; Petrie et al., 2015). Det finns flera litteratursammanställningar angående biologisk nedbrytning av OMF (e.g. (Alvarino et al., 2018a; Grandclément et al., 2017) och mer specifikt om läkemedel (Chopra and Kumar, 2020; Nguyen et al., 2021).

Den biologiska nedbrytningen kan ske genom direkt metabolism där den OMF används som substrat alternativt genom co-metabolism där ett annat ämne används som primärt substrat (Stadlmair et al., 2018). Eftersom de flesta OMF förekommer i mycket låga halter kan de antagligen inte ensamma upprätthålla en aktiv metabolism hos mikroorganismerna och därför anses co-metabolism vara viktigare. Det primära substratet kan generera ospecifika enzym som kan bryta ner även OMF (Fischer and Majewsky, 2014; Su et al., 2015). Enzymet AMO som ingår i oxidationen av ammonium hos ammoniakoxiderande mikroorganismer har ansetts samtidigt bryta ner vissa OMF (Men et al., 2017; Su et al., 2021; Wu et al., 2021; Xing et al., 2018; Yu et al., 2018).

Nedbrytningen av OMF i de biologiska reningsprocesserna på ett ARV påverkas av många faktorer såsom slamålder, hydraulisk uppehållstid, mikrobiell aktivitet hos såväl autotrofer som heterotrofer, pH, och om biomassan är suspenderad eller i form av biofilm. I olika studier har man funnit att biofilmsbaserade reningsprocesser är effektivare på att avskilja OMF jämfört med suspenderade processer (Falås et al., 2018; Falås et al., 2013; Torresi et al., 2016; Torresi et al., 2019; Wolff et al., 2021). Biofilmprocesser gör att mikroorganismer kan stanna längre i systemet och på så sätt kan en högre biodiversitet uppnås. Dessutom kan olika redoxförhållanden bildas inuti biofilmen som också leder till en ökad biodiversitet. Med en högre biodiversitet antas det kunna finnas fler olika grupper av mikroorganismer och sannolikheten borde vara större för att några även kan bryta ner OMF. I en studie med membranbiofilmreaktorer fann man att bättre avskiljning av OMF kunde uppnås på grund av den längre slamåldern (Boonnorat et al., 2014). I en annan studie kunde ingen skillnad i graden av avskiljning uppnås vid slamåldrar >25 dagar (Falås et al., 2016). Betydelsen av slamålder är dock inte helt klarlagd (Grandclément et al., 2017; Pomiès et al., 2014).

Redoxförhållandet kan påverka nedbrytningen av vissa OMF. Vissa ämnen har visat sig endast kunna brytas ner vid aeroba förhållanden medan andra endast vid anaeroba (Alvarino et al., 2018b; Arias et al., 2018; Falås et al., 2016). Det är dock vanligast att OMF bryts ner vid aeroba förhållanden (Alvarino et al., 2014; de Graaff et al., 2011). Andra faktorer som påverkar den biologiska nedbrytningen är koncentrationen av biomassa (Park et al., 2017; Radjenović et al., 2009). Den hydrauliska uppehållstiden har också visat sig vara viktig. Vid hydrauliska uppehållstider under 12 timmar försämrades avskiljningen av en rad OMF avsevärt (Boonnorat et al., 2019). Väldigt långa hydrauliska uppehållstider är dock inte praktiskt eftersom det leder till stora arealbehov. Vid biologisk kväveavskiljning är slamåldern lång och i ett antal studier har dessa processer visat sig kunna bryta ner OMF men att olika föreningar avskiljs olika bra (Men et al., 2016; Wang et al., 2020b; Xu et al., 2016). Det är dock inte helt klarlagt om ammoniakoxiderande mikroorganismer är den grupp mikroorganismer som är viktigast för transformation av OMF (Fenner and Men, 2021). I biomassa på ett ARV finns mest heterotrofa mikroorganismer och dessa anses också vara mycket viktiga för den biologiska nedbrytningen av OMF (Fenner and Men, 2021; Kennes-Veiga et al., 2021).

4.4 Sorption

Sorption till biomassan är en komplex fysikalisk-kemisk process som kan vara en betydande avskiljningsmekanism, speciellt för svårnedbrytbara ämnen som är hydrofoba eller positivt laddade. Med absorption menas en process där ett ämne i vätska tas upp av ett annat media genom fysikaliska eller kemiska processer, till skillnad från adsorption som är en process där interaktionen endast är på ytnivå. Med sorption menas en kombination av absorption och adsorption. I den här rapporten använder vi adsorption när vi syftar på att ett ämne avskiljs genom en fysikalisk-kemisk interaktion mellan en OMF och en yta. Fördelningen av ett ämne mellan vattenfasen och den fasta fasen beror av graden av interaktion mellan molekylen och ytan på biomassan. Interaktionerna utgörs av t.ex. van der Waalsinteraktioner, vätebindningar och elektrostatiska bindningar (Oberoi et al., 2019; Rybacka and Andersson, 2016). Ofta mäts OMF:s oktanol-vattenfördelningen, LogD, vilket är ett mått på hydrofobiciteten. Ett annat sätt att mäta sorption är att beräkna sorptionskoefficienten, K_d. Ju högre värde K_d har, desto högre är adsorptionskapaciteten (Oberoi et al., 2019). Även det omgivande vattnets egenskaper påverkar adsorptionen såsom pH och jonstyrka (Trapp et al., 2010).

Egenskaperna såsom sammansättning på de extracellulära polymererna (EPS) och ytladdning hos biomassan/slammet påverkar adsorptionen (Alvarino et al., 2018b; Zhang et al., 2018). Vid neutralt pH är de flesta sådana ytor negativt laddade, vilket gör att positivt laddade OMF har högst tendens till adsorption (Franco & Trapp, 2008). Lipofila cellmembran kan antas attrahera hydrofila molekyler (Verlicchi et al., 2012). Avloppsvatten innehåller många kolloidala partiklar till vilka också adsorption kan ske (Barret et al., 2010). I en studie av adsorption av läkemedel till sediment i sjöar och floder samt avloppsslam visade det sig att om molekyler var protonerade eller inte så påverkade det adsorptionen av ett antal testade läkemedel (Svahn & Björklund, 2015). Atenolol som har katjoniska egenskaper adsorberade mest till alla testade matriser. Diklofenak och furosemid som båda är syror, hade minst tendens att adsorberas. För de neutrala molekylerna bendroflumethiazid, carbamazipin och oxazepam, var interaktionerna svagare

och beroende av van der Waals-krafter, aromatiska elektrongivare-tagare-krafter och vätebindningar. Resultaten från deras studie visade adsorption i följande ordning: atenolol> bendroflumethiazid> oxazepam> carbamazipin> diklofenak> furosemid.

Adsorptionen antags vara omedelbar och inkluderar två mekanismer; adsorption från vätskefasen till den fasta fasen och en desorption från den fasta fasen till vätskefasen och jämvikt har uppnåtts då hastigheten åt båda håll är lika (Joss et al., 2006; Pomiès et al., 2014).

4.5 Aerobt granulärt slam (AGS)

AGS är en reningsteknik som utvecklades redan för mer än 20 år sedan och är idag ett alternativ till aktivslamprocessen, speciellt när ytan är begränsad (Giesen et al., 2013). I dagsläget finns det ca 80 fullskaleanläggningar runtom i världen som går under namnet Nereda® (Royal HaskoningDHV).

Granulerna bildar fritt flytande runda biofilmer utan bärarmaterial (Figur 4.2). Genom dess kompakta struktur och stora diameter (>0,2 till flera mm), skapas diffusionsgradienter inuti granulen vilket leder till zoner med aeroba, anoxiska och anaeroba förhållanden. Detta möjliggör en simultan nitrifikation och denitrifikation samt biologisk fosforavskiljning (de Kreuk et al., 2005). Granulerna bildas under särskilda miljöbetingelser, nämligen s.k. feast-famine-förhållanden (fest-svält) som skapas genom att AGS-anläggningar drivs som satsvisa reaktorer (SBR), kort sedimenteringstid och selektivt uttag av långsamt sedimenterande flockulärt slam (de Kreuk et al., 2005). Den huvudsakliga skillnaden mellan konventionell SBR-drift med aktivt slam (som också vanligtvis leder till mycket goda sedimenteringsegenskaper), sker inpumpning och utpumpning samtidigt vid SBR-drift för AGS. För att detta skall fungera måste flödet genom reaktorn vara jämnt fördelat över tvärsnittsarean (plugg-flöde). Detta medför att mindre partiklar såsom små granulfragment och aktivslamflockar spolas ut ur systemet medan tyngre och större granuler hålls kvar. På så sätt selekterar processen för granuler, även om det alltid finns en viss andel flockulärt slam i reaktorn. Dessutom är sedimenteringstiden kortare än vid konventionell SBR-drift, vanligtvis < 30 minuter. Detta medför mycket kompakta reningsanläggningar som jämfört med aktivt slam förbrukar mindre energi. Jämfört med konventionellt aktivt slam, har AGS 40-50% mindre ytbehov och 20-50% lägre energibehov (Bengtsson et al., 2019; Pronk et al., 2015). Relativt få undersökningar gällande fullskaleanläggningar är rapporterade i litteraturen (Giesen et al., 2013; Pronk et al., 2017; Świątczak and Cydzik-Kwiatkowska, 2018). Det finns många labbskalestudier rapporterade där syntetiskt avloppsvatten använts men ganska få där riktigt avloppsvatten använts (Bengtsson et al., 2018).

Genom att avloppsvattnet matas in i AGS-reaktorer under anaeroba förhållanden, gynnar detta de mikroorganismer som kan ta upp organiskt material och bilda polymerer inuti sina celler som polyhydroxyalkanoater (PHA) som sedan kan användas under de efterföljande aeroba och anoxiska faserna (Weissbrodt et al., 2017). Dessa mikroorganismer är långsamväxande och består av framför allt av fosfatackumulerande mikroorganismer (PAO) och glykogenackumulerande mikroorganismer (GAO) vilka är viktiga för granulernas funktion och kompakta struktur, vilket i sin tur ger en snabb sedimentering för processen (Winkler et al., 2013). Mekanismerna för granulbildning är inte helt kartlagda men granuler som bildas i fullskala är något annorlunda jämfört med i labbskalereaktorer som förses med syntetiskt avloppsvatten. Riktigt avloppsvatten är mer komplext och innehåller organiskt material i form av kolloider och suspenderat material som måste hydrolyseras innan mikroorganismerna kan ta upp det i sina celler. Detta har visat sig påverka granulstrukturen och den gradvisa hydrolysen förser snabbväxande heterotrofa bakterier med organiskt material vilket leder till utväxter på granulerna yta och sänker därmed sjunkhastigheten (Layer et al., 2019) (Figur 4.2). I andra studier har den partikulära fraktionens påverkan på granulstorleken varit mindre (Toja Ortega et al., 2021a; b). I fullskalereaktorer utgör den flockulära fraktionen en relativt stor andel och detta kan delvis bero på fraktionen partikulärt material i avloppsvattnet men än så länge finns för få studier för att några definitiva slutsatser skall kunna dras. Den flockulära fraktionen av slammet har visat sig vara viktig eftersom den hydrolytiska aktiviteten där är större än i granulfraktionen (Toja Ortega et al., 2021a).



Figur 4.2

Aeroba granuler, (A) sedimenterande granuler; (B) mikroskopibild på granul; (C) schematisk bild på granul med aeroba, anoxiska och anaeroba zoner och dess huvudsakliga reaktioner; och (D) utväxter på ytan på granul från fullskaleanläggning.

4.6 Avskiljning av organiska mikroföroreningar i aerobt granulärt slam

Aeroba granuler är en typ av biofilmprocess, och därmed befinner sig biomassan i systemet under en lång tid vilket medför att processen selekterar för långsamväxande mikroorganismer. Detta borde i sin tur främja nedbrytningen av t.ex. läkemedel. Genom det selektiva uttaget av biomassa i en AGS-process är det svårt att uppskatta en slamålder men ofta rör det sig om från cirka 15 dagar upp till 70-80 dagar, där en alltför lång slamålder kan leda till en försämrad reningsgrad, av främst fosfor men även kväve, och sämre granulstabilitet (Castellanos et al., 2021b). Biomassan i en AGS-reaktor är ofta en blandning av granulärt och flockulärt slam och slamåldern kan därför regleras genom ett selektivt slamuttag (Winkler et al., 2011). Jämfört med aktivt slam är det mer komplicerat att beräkna slamåldern eftersom de tyngre granulerna kan befinna sig längre än mindre och lättare i systemet. Dessutom kan slamåldern vara lägre i de yttre delarna av granulen jämfört med den inre (Winkler et al., 2012).

Avskiljning av OMF i AGS-reaktorer har det rapporterats mycket lite om i litteraturen. De flesta studier är gjorda i labbskala med syntetiskt avloppsvatten och avskiljning av OMF vid olika koncentrationer har rapporterats (Kang et al., 2018; Kent and Tay, 2019; Mery-Araya et al., 2019; Wang et al., 2020a; Yu et al., 2020). Förhållandena i labbskalereaktorer är dock ganska olika förhållandena i jämförelse med fullskala vilket kan påverka slutsatser från studier med syntetiskt avloppsvatten (Adler and Holliger, 2020). I en studie visade sig aeroba granuler vara något effektivare än aktivt slam på att avskiljning av den vanligt förekommande antibiotikan sulfametoazol (Kang et al., 2018). Avskiljningen visade sig vara främst genom aerob omvandling, och till en obetydlig grad genom adsorption, med en avskiljningsgrad på 84% för granuler och 73% för aktivt slam vid en kontakttid på 12 timmar. Biomassa anrikad med ammoniakoxiderande mikroorganismer har visat sig bryta ner sulfametoazol (Kassotaki et al., 2016). Både antibiotikan trimetoprim och sulfametoxazol avskildes mer effektivt i en AGS vid luftade förhållanden jämfört med anaeroba förhållanden eller i en aktivslamreaktor (Mendes Barros et al., 2021). I deras studie visade sig sulfametoxazol adsorberas initialt till biomassan för att sedan biotransformeras, medan trimetoprim inte adsorberades nämnvärt.

AGS har även visat sig kunna avskilja hormonämnena 17 β -estradiol (E2) och 17 α -ethinylestradiol (E2) till 99 respektive 93% samtidigt med organiskt material, kväve och fosfor (Castellanos et al., 2021a). Dessa ämnen antogs adsorberas snabbt varefter de bröts ner under aeroba förhållanden. I en annan studie avskildes EE2 mer effektivt i AGS jämfört med aktivt slam (Wang et al., 2021). Förklaringen föreslogs vara att EE2 transformeras genom co-metabolism av ammoniakoxiderare tillsammans med heterotrofa mikroorganismer och att nitrit ackumuleras i AGS vilket även kan bryta ner EE2 abiotiskt.

Diklofenak är svårnedbrytbart och i ett försök att tillsätta en bakteriekultur med förmågan att bryta ner detta ämne till AGS för att uppnå en nedbrytning såg man ingen ökad avskiljning (Bessa et al., 2021). Trots att en mycket hög dos diklofenak tillsatte (9,54 g/l) påverkade detta inte granulstabiliteten eller avskiljningen av organiskt material, kväve och fosfor. Detta tyder på att genom sin kompakta struktur, kan granuler stå emot toxiska chocker av t.ex. OMF bättre än flockulärt slam. Det har dock visat sig att dosering av en rad läkemedel (alprenolol, bisoprolol, metoprolol, propranolol, venlafaxine, salbutamol, fluoxetin and norfluoxetin) vid en koncentration av 1,3 µg/l gav viss påverkan på granulstabilitet och försämrad rening av organiskt material, kväve och fosfor (Amorim et al., 2016).

5 Rening från mikroföroreningar vid Österröds avloppsreningsverk

5.1 Processbeskrivning

Österröds ARV är Nordens första och hitintills enda AGS-baserade reningsverk, den s.k. Nereda®-processen som ägs av det nederländska företaget Royal HasKoningDHV (www.global.royalhaskoningdhv.com). Österröds ARV uppgraderades under 2017 och 2018. I ett forskningsprojekt finansierat av bland andra Svenskt Vatten Utveckling (SVU) och Sweden Water Research (www.swedenwaterresearch.se) har uppstarten och driften av reningsverket studerats i projektet AGNES II. En SVU-rapport är under bearbetning där processen och dess driftsdata beskrivs i detalj. Den här studien är en del av uppföljningen av reningsprocessen med avseende på avskiljning av OMF och reningsverket beskrivs därför kortfattat i den här rapporten.

Österröd ARV är dimensionerat för 30 000 p.e. (för högsommaren och 15 000 p.e. under resten av året) och tar i huvudsak emot kommunalt avloppsvatten. Processen består av två parallella reningsprocesser: 1) en konventionell aktivslamprocess (CAS) med en totalvolym på 1300 m³ uppdelat i en anoxisk volym på 470 m³ för fördenitrifikation, en aerob volym på 520 m³ för nitrifikation och reduktion av organiskt material, följt av ytterligare en anoxisk volym på 310 m3 för efterdenitrifikation, och 2) en AGSprocess bestående av två parallella AGS-reaktorer om 758 m3 vardera, dimensionerade för reduktion av organiskt material samt biologisk kväve- och fosforavskiljning (Figur 5.1). Inkommande avloppsvatten passerar galler och ett luftat sandfång för avskiljning av fett och sand innan vattnet passerar försedimenteringsbassänger. Före försedimenteringen finns även flockningsbassänger för möjlighet att dosera fällningskemikalie (aluminiumklorid). Sistnämnda bassänger var dock inte i bruk under denna studie. Försedimenteringen är uppdelad i tre parallella sedimenteringsbassänger; en förser endast AGS, en förser både AGS och CAS, och en används endast vid höga flöden. Flödet in till reningsverket variera mellan 2000 – 4000 m3d-1 vid torrvädersförhållanden. Vid regn kan flödet uppgå till 13 300 m3d-1. AGS tar normalt emot ca 60% av flödet (distribueras lika mellan de två reaktorerna). Efter försedimenteringen förs avloppsvattnet till CAS samt till en bufferttank innan inpumpning till de två AGS-reaktorerna. AGS-processen drivs semikontinuerligt som satsvisa reaktorer (SBR) med en samtidig inmatning av nytt avloppsvatten och utpumpning av renat avloppsvatten, en reaktionsfas och en sedimenteringsfas. CAS drivs som en kontinuerlig process med fördenitrifikation (tre första zonerna), luftning i den fjärde zonen, och möjlighet till efterdenitrifikation i zonerna 5-7 (inte i drift under denna studie). Detta medförde att belastningen på de sista zonerna var mycket låg. I försedimenteringen, som förser AGS med vatten, rundpumpas en del av det avskilda slammet tillbaka till inkommande vatten då slamnivån är förhöjd för att öka hydrolysering och fermentering av primärslammet och tvätta ur det för att öka koncentrationen av flyktiga fettsyror (VFA). En fraktion av det inkommande avloppsvattnet pumpas direkt till AGS utan försedimentering. Vid perioden för den här studien motsvarade det ca 23 % av inkommande flöde till AGS. Inpumpningen av avloppsvatten från buffert-tanken sker sekventiellt till de båda AGS-tankarna. Skillnaden i avloppskvalitet mellan de olika sekvenserna ansågs försumbar. CAS-processen försågs med försedimenterat avloppsvatten som inte erhållit rundpumpat primärslam.

Processbetingelserna och reningsresultateten under perioden för provtagningen är sammanställt i Tabell 6.1.



Figur 5.1

Schematisk bild över Österröds ARV med provtagningspunkter (.) angivna.

5.2 Provtagningsstrategi

Provtagningskampanjen utfördes mellan 15 och 26 november 2020 (två separata veckor). Prover togs som flödesproportionella dygnsprover från inflödet och utflödet till de biologiska reningsstegen CAS och AGS. Proverna hölls i provtagarna vid 4°C tills transport till laboratoriet och frystes omedelbart in i väntan på analys. Provtagningen gjordes i följande prover: inkommande till CAS (efter försedimenteringen utan hydrolys), inkommande till AGS (efter försedimentering med hydrolys och visst flöde som förbileds försedimenteringen, utgående från AGS reaktor 1 (AGS1) och AGS reaktor 2 (AGS2), utgående från CAS (efter eftersedimenteringen) (Figur 3). Proverna från AGS1 och AGS2 kombinerades vid beräkningar av avskiljningsgrad. Totalt analyserades 34 OMF varav 27 var läkemedel, ett naturligt hormon samt 6 andra ämnen (mjukgörare, insekticider, fluorerade kolväten) (Bilaga, Tabell B1). Valet av vilka ämnen som skulle analyseras baserades på Naturvårdsverkets lista över ämnen som föreslås för utvärdering av avancerad rening, och på litteraturstudien samt ytterligare några ämnen som ingår i MoLabs analyser.

5.3 Nedbrytningskinetik

Satsvisa experiment gjordes två månader efter fullskalemätningarna (februari 2021) på färsk biomassa (från både CAS och AGS) från Österröds ARV för att bestämma nedbrytningshastigheten för 16 läkemedel (Appendix, Tabell A3) under både aeroba och anoxiska förhållanden. De satsvisa experimenten utfördes i kolonnreaktorer i glas med en volym på 4 l under både aeroba och anoxiska förhållanden vid pH 7 ± 0.2 , rumstemperatur (21,1°C \pm 0,7°C), och en syrekoncentration på 1,7 \pm 0,9 mg O₂/l. Experimentet utfördes i mörker med undantag för provtagningstillfällena. Koncentrationen av biomassa hölls vid 3 g l⁻¹. Till filtrerat (1,2 µm GF/C) utgående avloppsvatten från eftersedimenteringsbassängerna på Österröds ARV tillsattes OMF till en koncentration av 10 µg L⁻¹. Experimenten vid aeroba förhållanden gjordes genom att kontinuerligt tillsätta en blandning av tryckluft och kvävgas vid konstant gasflöde (för att erhålla samma turbulens under försöket). De anoxiska experimenten utfördes genom att bubbla med kvävgas varje 10 minuter under en minut. Nitrat (15 mg NO, -N l-1, i form av KNO,) tillsattes vid experimentets början och sedan efter 1, 2, 4, 6, 9, 12, 24, 30 och 48 timmar för att förse de denitrifierande mikroorganismerna med en elektron-mottagare. Ett kontrollexperiment utfördes utan biomassa för att bestämma abiotisk avskiljning av OMF. Kontrollexperimentet utfördes i en 2-liters bägare som hölls luftad genom att placera den på ett skakbord (100 rpm). Prover togs efter 1, 6, 24 and 48 timmar. Bägare hölls i mörker genom att vira in den i aluminiumfolie (för att undvika fotosyntetisk nedbrytning).

5.4 Transformationskonstanter

Transformationskonstanter för de olika OMF beräknades med antagandet att pseudo-första ordningens nedbrytningskinetik råder (Joss et al., 2006):

$$\frac{dC}{dt} = k_{bio} \cdot X_{SS} \cdot C \tag{1}$$

Där C är koncentrationen av ämnet (µg l⁻¹), t är tiden (d), k_{bio} är den biologiska transformationshastighetskonstanten (l g SS⁻¹ d⁻¹), X_{ss} är koncentrationen av suspenderat material (g SS l⁻¹). Transformationshastighetskonstanten (k_{bio}) bestämdes genom exponentiell regression av uppmätta koncentrationer av lösta OMF normaliserade med avseende på biomassakoncentrationen. Reaktionshastighetskonstanten innefattar sorption, desorption, samt biologisk transformation. Alla passningar gjordes med minsta kvadratmetoden. De uppskattade parametrarna och transformationshastighetskonstanterna (k_{bio}) antogs följa första ordningens kinetik.

Den kvarvarande fraktionen av varje OMF beräknades genom att jämföra koncentrationen i inkommande (C_{in}) avloppsvatten med den i utgående (C_{in}) avloppsvatten:

 $Kvarvarande\% = \frac{c_{ut}}{c_{in}} \cdot 100 \tag{2}$

5.5 Analytiska metoder

Koncentrationen av totalkväve och kvävefraktioner (NH_4^+ -N, NO_3^- -N, NO_2^- -N), organiska ämnen (COD), totalfosfor och fosfat (PO_4^3 -P) analyserades av Eurofins ackrediterade lab (samtidigt i samma provpunkter som mikroföroreningarna) enligt standardmetoder (ISO 15705:2002, ISO 15923-1:2013, ISO 29441:2010, ISO 15923-1:2013, SS-EN ISO5815-1:2019/5815-2:2003, ISO 17289:2014). Suspenderat material (SS) mättes enligt standardmetoder (APHA, 1998). På reningsverket mättes koncentrationen av suspenderat material med ett filter som filtrerade bort alla partiklar (typ Melittafilter) och som sedan läts torka över natten i en torkugn vid 105°C.

För att analysera läkemedel i vattenprover, vilka dessutom ofta förekommer i låga till mycket låga koncentrationer, krävs särskild provupparbetnings- och analysteknik. Vid provupparbetningen separeras och koncentreras mikroföroreningarna. Vidare avskiljs analysstörande bakgrundsämnen, som t.ex humus, från provet. OMF analyserades i ofiltrerade vattenprover (enligt rekommendation på EUs Watchlist) med hjälp av en innovativ SPE-teknik (Solid Phase Extraction) utvecklad av Ola Svahn (Svahn & Björklund 2019). Inom organisk spåranalys av polära till semipolära mikroföroreningar har det närmast blivit standard att använda SPE. Den slutliga analysen av OMF gjordes genom s.k. UPLC-ESI-MS/MS, *Ultra-Performance Liquid Chromatography och electrospray ionization tandem mass spectrometry*, (Svahn & Björklund, 2016; 2019). Proven från de satsvisa försöken centrifugerades (4500 rpm i 5 minuter) följt av dekantering och förvarades vid -20°C innan analys med UPLC-ESI-MS/MS.

5.6 Mikrobiell analys

Prover på biomassa från fullskaleanläggningen togs både från AGS och CAS vid fyra tillfällen och förvarades vid -20°C i väntan på analys. DNA extraherades med FastDNA® SPIN Kit for Soil enligt protokoll från tillverkaren (MP Biomedicals, Santa Ana, CA). Proverna skickades för Illumina-sekvensering med NovaSeq 6000-system (s.k. paired-end-sekvensering, 2x150 baspar, Eurofins Genomics). Rådatan kvalitetsfiltrerades med programvaran fastp v0.20.0 (Chen et al., 2018). Täckningen av varje prov

normaliserades till ett djup av 70 med ett minimum på 2 genom att använda BBNorm (v38.93, https://sourceforge.net/projects/bbmap/). Längre sekvenser (s.k. contigs) konstruerades med Megahit v1.2.9 med inställningen --min-contig-len 1000 and --presets meta-large (Li et al., 2015). Mappning av de kvalitetsfiltrerade sekvenser till contigs längre än 2000 bp utfördes med programvaran Bowtie2 v2.4.2 (Langmead and Salzberg, 2012). Vidare analyser gjordes inom programvaran Anvio v7 (Eren et al., 2021) där gener identifierades med Prodigal v2.6.3 (Hyatt et al., 2010). Analysen av diversitet hos det mikrobiella samhället baserades på gen-kluster genom att använda Diamond v2.0.11 (Buchfink et al., 2015) och MCL v14.137 (van Dongen, 2000). Den relativa förekomsten av varje genkluster bestämdes och användes för diversitetsberäkningar. Den taxonomiska sammansättningen i de olika proverna analyserades genom att klassificera generna med hjälp av *Kaiju* och *NCBI* nr_euk databasen (version 2021-02-24) (Menzel *et*. al., 2016).

Alfa-diversiteten är mångfalden av mikroorganismer eller gener i ett prov. Den beräknades med hjälp av Hill-nummer med diversitetsordningen 1 (¹D) (Jost, 2006). Detta diversitetsindex tar hänsyn till den relativa mängden i provet och kan tolkas som antalet "vanliga" genkluster. Beta-diversitet (dvs skillnaden i sammansättning mellan prover) beräknades också med en metod baserad på Hill-nummer med diversitetsordningen 1. Detta kan tolkas som andelen "vanliga" genkluster som inte delas mellan prover vid parvis jämförelse (Modin et al., 2020).

Statistisk analys gjordes för att jämföra alfa-diversiteten mellan reaktorer med ANOVA med Tukey's HSD som s.k. post-hoc-test. De fyra proverna tagna vid olika tidpunkter i en reaktor behandlades som replikat. Statistisk analys av betadiversiteten mellan reaktorer gjordes med Permanova med 999 permutationer (Anderson, 2001). ANOVA gjordes med programmet Scipy (Virtanen et al., 2020). Tukey's HSD gjordes med Statsmodel (Seabold och Perktold, 2010), och permanova gjordes med qdiv (Modin et al., 2020).

6 Resultat och diskussion

6.1 Driftsförhållanden och driftsprestanda

Driftsförhållanden och driftsprestanda under försöksperioden (november 2020) är summerade i Tabell 6.1 och 6.2. Koncentrationen av de olika parametrarna i inkommande avloppsvatten till CAS och AGS var likvärdiga, med undantag för total-BOD₇ och totalfosfor som var något högre in till AGS. De två systemen hade liknande koncentrationer av organiskt material i utgående avloppsvatten. Dock hade CAS något högre koncentrationer av löst totalkväve och totalfosfor i utgående vatten. Den största skillnaden mellan AGS och CAS var koncentrationen av slam (biomassa) som var ca tre gånger högre i AGS än i CAS (Tabell 6.2). Detta medförde att den hydrauliska uppehållstiden kunde hållas mycket kortare i AGS, 11,4 timmar, jämfört med 16,2 timmar för CAS. Om volymen för mellansedimenteringen tas med blir den hydrauliska uppehållstiden ännu längre för CAS, 32,2 timmar. Vilken hydraulisk uppehållstid som skall jämföras är inte självklar eftersom det är oklart i vilken utsträckning en reduktion sker i mellansedimenteringen. En annan skillnad var att AGS drevs med biologisk fosforavskiljning vilket inte CAS gjorde. Det är oklart om hydrolysen i försedimenteringen fungerade eftersom koncentrationen av löst COD och BOD₇ i inflödet till CAS och AGS var likvärdiga.

Tabell 6.1

Avloppsvattensammansättning i inflöde och utflöde till CAS och AGS. Resultaten är från provtagningsperioden i november 2020 (n = 3, utom för CAS n = 2). Parametrarna är uttryckta som medelvärde samt min- och max-värden inom parentes.

Parameter	In	flöde [mg L ⁻¹]	^{·1}] Utflöde [mg L ^{·1}]		
	Bufferttank	CAS	AGS SBR1	AGS SBR2	CAS
SS	102 (92-120)	94 (88-100)	12 (5-17)	11 (9-12)	12 (5-20)
COD	230 (200-250)	205 (200-210)	44 (43-45)	42 (39-44)	36 (36-37)
COD löst ^₀	53 (47-58)	63 (62-64)	32 (30-35)	34 (31-37)	30 (29-32)
BOD ₇	81 (64-91)	63 (52-73)	6 (6-7)	6 (5-6)	5 (3-6)
BOD ₇ löst ^b	17 (12-24)	26 (25-27)	< 3	< 3	< 3
Totalfosfor löst	2,1(1,7-4)	0,5 (0,2-0,8)	0,06 (0,05-0,08)	0,11 (0,07-0,16)	0,23 (0,02-0,52)
PO ₄ ³ -P	0,74 (0,55-0,89)	0,70 (0,67-0,72)	0,03 (0,02-0,05)	0,03 (0,02-0,05)	0,21 (0,06-0,43)
Totalkväve Löst ^ь	17,7 (15,0-21,0)	18,5 (17,0-20,0)	5,4 (4,1-7,7)	5,3 (4,0-6,8)	9,6 (4,8-14,0)
NH4 ⁺ -N	16 (13-19)	22,6ª	0,75 (0,36-0,98)	0,47 (0,25-0,76)	0,32 (0,15-0,55)
NO ₃ ⁻ -N	n.a.	n.a.	3,7 (2,4-6,2)	3,9 (2,8-5,3)	8,9 (3,8-13,0)
NO ₂ ⁻ -N	n.a.	n.a.	0,20 (0,18-0,22)	0,19 (0,18-0,2)	0,16 (0,05-0,32)

ªMätt med HACH (n=1).

^bFiltrerat genom 0,45 μm (Millipore).

Parameter	Unit	AGS SBR1	AGS SBR2	CAS
Slamålder	d	>30 ^f	>30 ^f	~ 30
Slamkoncentration ^a	kg TSS (m ³⁾⁻¹	9,3 ± 0,9	8,5 ± 0,7	3,5 ± 0,1
SVI ₁₀ /SVI ₃₀ ^a	m/gTSS	51/49	50/46	350/166
Temperatur	°C	13,1±0,2	13,1±0,2	13,1±0,2
рН	-	6,4 ± 0,0	6,2 ± 0,1	-
BOD/N-kvot		0.98	0.98	
F/M-kvot [⊳]	kg BOD ₇ (kg TSS d) ⁻¹	0,020	0,022	0,023
Slambelastning ^b	kg COD (kg TSS d) ⁻¹	0,057	0,0,062	0,077
Kvävebelastning ^b	kg N _{tot} (kg TSS d) ⁻¹	0,005	0,005	0,008
Volymetrisk belastning °	m³(m³d)-1	2,1±0,1 ^d	2,1±0,1 ^d	
Inkommande flöde Returslamflöde	m ³ h ⁻¹ m ³ h ⁻¹	132,2±7,7 -		80,7±5,4 155,2
Hydraulisk uppehållstid °	h-1	11,4±0,7 ^d		16,2 ± 1,1 (32,2 ± 2,2) ^e

^a Mätning från enstaka prov (n =3).

^b Baserat på kg BOD7, COD and N erhållet per dag dividerat med totala mängden slam i reaktorn.

 $^{\circ}$ Medelvärde för perioden för dagar med provtagning av mikroföroreningar (n =4).

^dVärden beräknade baserat på summan av volymerna för AGS1 och AGS2 och det totala flödet in till AGS1 och AGS2. ^eVärdet inom parentes inkluderar volymen av CAS och eftersedimentering

^fBeräknat baserat på COD-belastning och antagen biomassaproduktion till 0,4-0,6 gCOD(gCOD avskilt)⁻¹.

6.2 Avskiljning av mikroföroreningar i anläggningen

Alla 34 OMF som analyserades kunde detekteras i inkommande avloppsvatten till både AGS och CAS (Bilaga, Tabell A2). De högsta halterna i utgående avloppsvatten (>1 µg/l) uppmättes för paracetamol, följt av ibuprofen, naproxen och losartan. Den genomsnittliga mängden avskilt ämne av dessa var även störst (Bilaga, Figur A1). De resterande OMF var i lägre halter (<1µg/l). Koncentrationerna var på samma nivå som tidigare uppmätts i utgående avloppsvatten från aktivslamsystem (Falås et al., 2013; Verlicchi et al., 2012). I utgående vatten var halterna <1 µg/l förutom för metoprolol.

Avskiljningen, angett som kvarvarande fraktion efter reningssteget, av de olika individuella mikroföroreningarna i CAS och AGS visas i Figur 6.1. Med undantag för bisfenol A, beräknades kvarvarande fraktion endast för läkemedlen. Med avskiljning menas här alla de mekanismer som kan bidra till att ämnen minskar i koncentration; adsorption till slammet, biologisk nedbrytning, biologisk och abiotisk transformation, och avdrivning. Avskiljningsgraden varierade stort mellan de olika ämnena. De ämnen som förekom i högst koncentration, paracetamol, ibuprofen, och naproxen, avskildes till hög grad i både AGS och CAS. Dessa ämnen har visat sig vara lättnedbrytbara (Verlicchi et al., 2012). Låga kvarvarande fraktioner (<30% av inkommande koncentration) i utflödet fanns även av estron, ketoconazole, och bisphenol A. CAS avskilde även losartan, methotrexate, sertraline, sulfamethoxazole och atenolol till låga kvarvarande fraktioner (≤30% av inkommande koncentration), medan för AGS var de kvarvarande fraktionerna av dessa ämnen medelhög (30-70% av inkommande koncentration). På samma sätt hade flera ämnen medelhög kvarvarande fraktion i CAS jämfört med AGS där fler ämnen återfanns i högre koncentrationer i utgående vatten och dessa ämnen kan därför betraktas som mer svåravskiljbara eller inte alls (>75% kvarvarande fraktion). Dessutom var några ämnen (tramadol, clarithromycin, carbamazepine, propraolol och fluconazole) svåravskiljbara i både CAS och AGS. Låg eller negativ avskiljning för dessa ämnen har rapporterats i tidigare studier, vilket tyder på att de är persistenta i den biologiska processen (Ashfaq et al., 2017; Falås et al., 2012; Leiviskä and Risteelä, 2022; Peng et al., 2012). För vissa ämnen var koncentrationerna högre i utgående avloppsvatten jämfört med ingående. Negativ avskiljning kan bero på desorption av mikroföroreningarna från

Tabell 6.2

Driftsparametrar och slamegenskaper. Data erhållen under den experimentella perioden (november 2020); ± representerar standardavvikelsen. slammet, transformering till läkemedelskonjugat (dvs återgång till moderföreningen efter transformation), och osäkerheter i analyser och i provtagningen. Koncentrationen av fluconazole ändrades inte under reningsprocessen vilket är i linje med tidigare studier (Lindberg et al., 2010; Peng et al., 2012).

De låga kvarvarande halterna av ciprofloxacin, ketoconazole och sertraline kan förklaras med att de adsorberas lätt till slammet (Lajeunesse et al., 2012; Lindberg et al., 2010; Lindberg et al., 2006; Peng et al., 2012).

Ett hormonämne detekterades i denna studie, det naturliga hormonet estron (E1, på svenska östron eller östrogen). Kvarvarande fraktion av estron var avsevärt högre i AGS än i CAS. Estron och estradiol (E2, östradiol), som också är ett naturligt hormon, bryts ner relativt snabbt i avloppsreningsverk (Ternes et al., 1999). I satsvisa experiment har man sett att estradiol oxideras till estron inom loppet av några timmar, varefter estron bryts ner under flera timmar. Det syntetiska hormonämnet 17 α -ethinylestradiol (E2) bryts däremot långsammare och det kan ta flera dagar. Både E2 och EE2 analyserades i den här studien men kunde inte detekteras och togs därför inte med i analysen. Tidigare studier har visat på >90% avskiljning av estron i aktivt slam och något lägre reduktion in biofilmsystem (ca 70-80%) (Joss et al., 2004). Även i konstruerade våtmarker har man sett en reduktion, om än varierande, av estron (Vymazal et al., 2015). I en sydafrikansk studie, visade det sig att fastän estron och estradiol avskildes till högre grad än 17 α -ethinylestradiol, så bidrog de mer till utsläpp av hormonstörande ämnen eftersom koncentrationen i inkommande avloppsvatten var ca fyra gånger högre (Manickum and John, 2014).

För alla OMF utom bisfenol A var den kvarvarande fraktionen högre för AGS jämfört med CAS. Den lägre avskiljningsgraden i AGS kan bero på flera saker. Eftersom de båda anläggningarna drevs parallellt och tog emot samma sammansättning på avloppsvattnet (med den skillnaden att avloppsvattnet in till AGS för-hydrolyserades men ingen förhöjd koncentration av löst COD kunde uppmätas), torde det i sig inte vara en förklaring. De två parallella processerna hade dock skillnader i driftparametrar som kan förklara skillnaden i avskiljning av OMF mellan CAS och AGS. Skillnader i mikrobiell sammansättning och metabolisk aktivitet har visat sig påverka nedbrytningen av OMF (Johnson et al., 2015). En hög koncentration av aktiv biomassa borde därför gynna nedbrytningen av OMF. I AGS-reaktorerna var biomassakoncentrationen avsevärt högre än i CAS, vilket borde ha gynnat avskiljningen av OMF, vilket inte var fallet. Eftersom granulerna är en typ av tjock biofilm, vilket leder till stort diffusionsmotstånd, är det svårt att avgöra andelen aktiv biomassa. Aktivslamflockar är mindre och har dessutom större specifik yta i relation till volymen och kan därför ha en mindre andel inaktiv biomassa. Mikroskoperingen av biomassan visade att det flockulära slammet i AGS bestod av små flockar av enhetlig storlek medan granulerna varierade i storlek, från 0,2 µm till >4 mm i diameter.

Dessutom drevs de två systemen med olika hydraulisk uppehållstid (Tabell 6.2). CAS hade ca 50 % längre HRT vilket gjorde att kontakttiden mellan avloppsvatten och biomassa blev längre vilket gav mer tid för avskiljning av mikroföroreningar. Om den hydrauliska uppehållstiden för mellansedimenteringen dessutom tas med blir den hydrauliska uppehållstiden mer än dubbelt så lång. Detta kan bidra till avskiljningen om det finns kinetiska begränsningar. Den s.k. food-to-microorganism ratio (F/M) var likvärdig för CAS (0,023 kg BOD₇ (kg TSS d)⁻¹) jämfört med AGS (0,020-0,022 kg BOD₇ (kg TSS d)⁻¹). Enligt tidigare tidigare studier skulle en låg F/M-kvot kunna leda till en förbättrad nedbrytning av OMF (Gallardo-Altamirano et al., 2018; Petrie et al., 2014). En lägre organisk belastning betyder substratbegränsning, vilket skulle kunna gynna nedbrytningen av mindre assimilerbara kolkällor. I detta fall var F/M ganska lika i de båda systemen men troligtvis är det brist på kolkälla i CAS eftersom det finns en stor anoxisk volym efter den luftade zonen. I AGS har biomassan en större andel lagrat kol som mikroorganismerna kan använda på slutet av den luftade fasen. Detta kopplat

till den längre hydrauliska uppehållstiden kan förklara den högre avskiljningen i CAS. Generellt sett var dock F/M mycket låg för både CAS och AGS. AGS-processen drivs som en SBR med en samtidig fyllnad och dekantering, medan CAS-processen drivs som en kontinuerlig process med både för- och efterdenitrifikation. Alternerande aeroba/anoxiska förhållanden i reaktorn kan påverka avskiljningen av OMF positivt (Falås et al., 2016).



Adsorption är en process som styrs av massöverföringen från vätskan till ytan av biomassan och därför är den tillgängliga ytan viktig. Den specifika ytan är större för en mindre volym om man antar en sfärisk partikel med homogen densitet. För aktivt slam har en specifik yta på 40-140 m² g⁻¹ VSS rapporterats (Smith and Coackley, 1983) vilket kan jämföras med 10 m² g⁻¹ VSS för granuler (Zheng et al., 2005). Eftersom koncentrationen av biomassa var ca 2,5 gånger högre i AGS-reaktorerna jämfört med CAS kan det till viss del kompensera för den mindre ytan. För de OMF som adsorberas lätt till slammet (dvs ciprofloxacin, ketoconazol och sertralin) (Svahn och Björklund, 2019) var skillnaden i avskiljningsgrad liten mellan AGS och CAS. Uppskattningar av den specifika ytan är dock svårt eftersom ytan på mikrobiella aggregat har en mikro- och makrostruktur som kan beskrivas med en fraktalgeometri (Wilén et al., 2003). Koncentrationen av OMF var låg i avloppsvattnet, varför ytan av biomassan kanske inte är avgörande för avskiljningen.

6.3 Transformationshastigheter

För att uppskatta andelen biologisk avskiljning av OMF gjordes satsvisa experiment där biomassa från AGS och CAS exponerades för 16 av de OMF som uppmätts i fullskala. Försöken gjordes under aeroba och anoxiska förhållanden och pågick i 48 timmar. Första ordningens nedbrytningskinetik anpassades till nedbrytningskurvorna och en transformationshastighetskonstant, k_{bio} , antogs gälla under hela försöket. För två av ämnena, ketoconazol och sertralin, följde inte nedbrytningen första ordningens kinetik och deras koncentrationer föll avsevärt redan efter 10 minuters inkubering vilket antyder att dessa ämnen adsorberades till biomassan (Bilaga, Tabell A3). Sorption av OMF till aktivt slam har visat sig vara en snabb process, med en jämvikt som ställt in sig inom 30 minuter (Ternes et al., 2004). För alla andra substanser som testades förväntades en begränsad adsorption till slammet ($\leq 25\%$). Den observerade avskiljningen antogs därför vara i huvudsak genom biologiska nedbrytningsprocesser. Nedbrytningshastigheterna var generellt större för CAS än för AGS. De framtagna transformationskonstanterna (k_{bio}) normerade med biomassakoncentrationen är sammanställda i Tabell 6.3. OMF med låga k_{bio} (<0,1

Figur 6.1

Kvarvarande fraktioner av OMF efter aktivt slam (CAS) och granulärt aktivt slam (AGS). Alla kvarvarande fraktioner är relativt inkommande koncentrationer till respektive process. Standardavvikelser anges for replikata mätningar (n=4). Alla koncentrationer med värden under kvantifieringsgräns (LOQ, limit of quantification) rapporteras som halva värdet för LOQ.

L g TSS⁻¹d⁻¹) antas vara långsamt nedbrytbara. Av de 16 testade OMF, var några svårnedbrytbara: carbamazepin, fluconazol, oxazepam, tramadol och venlafaxin. Liknande resultat har rapporterats i andra studier (Verlicchi et al., 2012; Wolff et al., 2021). OMF med låga transformationshastighetskonstanter ($k_{bio} \leq 0,04 L \text{ gTSS}^{-1}d^{-1}$) förväntas spolas ut ur reningsverket innan transformationen har ägt rum och därmed hamna i utgående vatten.

	k _{ы₀} [IgTSS¹d¹]						
Substans	CAS aerob	CAS anoxisk	AGS aerob	AGS anoxisk			
Naproxen	11,16*±1,55	0,37 ± 0,09	2,55*±0,64	0,08 ± 0,05			
Sulfametoxazol	1,68±0,91	1,21±0,48	0,72±0,21	0,52±0,12			
Losartan	0,77 ± 0,24	0,07 ± 0,05	0,18±0,03	0,07 ± 0,04			
Atenolol	0,51 ± 0,03	0,62 ± 0,13	$0,19 \pm 0,05$	$0,56 \pm 0,11$			
Metoprolol	0,15±0,02	0,09 ± 0,05	≤0,04	0,13 ± 0,05			
Zolpidem	0,10±0,08	≤0,04	0,11±0,08	≤ 0,04			
Citalopram	0,07 ± 0,09	0,09±0,11	0,09±0,09	0,13±0,14			
Trimetoprim	≤ 0,04	0,81±0,26	0,08±0,05	0,43±0,10			
Diklofenak	≤ 0,04	≤0,04	0,10±0.03	≤ 0,04			
Carbamazepin	≤0,04	≤0,04	≤0,04	≤ 0,04			
Fluconazol	≤ 0,04	≤0,04	≤ 0,04	≤ 0,04			
Oxazepam	≤ 0,04	≤ 0,04	≤ 0,04	≤ 0,04			
Tramadol	≤ 0,04	≤ 0,04	≤ 0,04	≤ 0,04			
Venlafaxin	≤ 0,04	≤ 0,04	≤ 0,04	≤ 0,04			
Ketoconazol	-	-	-	-			
Sertraline	-	-	-	-			

Tabell 6.3

Biologiska transformationshastigheter (k_{bio}) normerade med biomassakoncentrationen under aeroba och anoxiska förhållanden. Det 95-%iga konfidensintervallet anges med ±. Hastighetskonstanter på ≤0,041g TSS⁻¹d⁻¹ motsvarar detektionsgräns i den här studien.

* Avskilt till en koncentration lägre än LOQ innan slutet av experimentet. Transformationshastigheten bestämd med färre datapunkter. Vid avsaknad av värde (-) följer inte resultaten en första ordningens kinetik.

De underliggande mekanismerna för skillnaden i avskiljning av OMF mellan CAS och AGS är inte kända men det kan ha med den mikrobiella sammansättningen och massöverföringsbegränsningar att göra. Mikroorganismerna är inte jämnt fördelade i granuler och vissa sitter mer på ytan än i de inre delarna (Wilén et al., 2018). Det finns inga studier som visar var i biomassan som transformationen av OMF äger rum, i de yttre delarna av biofilmer eller flockar, i de inre delarna eller i vattenfasen (Joss et al., 2004). Eftersom granuler har en mycket kompakt struktur kan diffusionen av ämnen från vattenfasen in till biofilmen vara långsam jämfört med den volymetriska reaktionshastigheten (van den Berg et al., 2020). Som ett resultat av detta har det visat sig att tjockleken på biofilmen har en viktig påverkan på sammansättningen av det mikrobiella samhället och därmed även på avskiljningen av OMF (Torresi et al., 2016). Storleken på granulerna har visat sig påverka avskiljningen av närsalter på grund av massöverföringskapaciteten (Li et al., 2019). Dock behövs det mer forskning för att kunna avgöra om det är diffusionshastigheten eller enzymaktiviteten som är det hastighetsbestämmande steget vid transformationen av OMF (Wei et al., 2019).

Ett kontrollexperiment utan aktiv biomassa (endast filtrerat utgående avloppsvatten från fullskaleanläggningen) bekräftade att reduktionen av OMF i Tabell 6.3 var genom biologisk nedbrytning eller transformation och inte genom abiotisk nedbrytning. Proverna spikades med de olika OMF och för de flesta ämnen var halten i vattenfasen >90% av den ursprungliga, med undantag för atenolol där endast 73% återfanns i vattenfasen efter försökets slut (Tabell 6.4). För diklofenak och naproxen var koncentrationerna högre vid försökets slut jämfört med den initiala koncentrationen.

	Retention i filtrerat utgående avloppsvatten [%]					
Substans	1h	6 h	12 h	24 h	48 h	
Atenolol	96	92	48	82	73	
Carbamazepin	100	100	90	106	103	
Citalopram	100	103	103	104	105	
Diclofenac*	91	92	121	133	179	
Fluconazol	101	103	86	104	103	
Losartan	99	101	102	106	103	
Metoprolol	99	100	91	107	106	
Naproxen*	101	108	106	103	120	
Oxazepam	97	100	97	102	100	
Sertralin	97	100	97	102	100	
Sulfamethoxazol	101	103	80	106	104	
Tramadol	100	103	91	107	104	
Trimethoprim	100	102	92	104	101	
Venlafaxin	101	109	96	111	108	

Tabell 6.4

Återstående fraktion av läkemedel erhållna i kontrollexperiment. Med * menas kvarvarande fraktion uppmätt i vatten.

6.4 Inverkan av aeroba och anoxiska förhållanden

Transformationspotentialen testades vid olika redoxförhållanden. Resultaten visar att närvaro av olika elektronmottagare, dvs syre och nitrat, påverkade nedbrytningshastigheten av de olika läkemedlen (Tabell 6.3). Nedbrytningshastigheten för losartan, naproxen, sulfamethoxazole och zolpidem och var högre för både biomassa från CAS och AGS vid aeroba förhållanden jämfört med anoxiska vilket är i linje med tidigare observationer (Edefell et al., 2021; Falås et al., 2013; Suarez et al., 2010). Ett ämne, diklofenak, hade en snabbare avskiljning med biomassa från AGS medan knappt någon avskiljning skedde med biomassa från CAS. Biofilm från MBBR-system har tidigare visat sig avskilja diklofenak med högre hastighet jämfört med aktivt slam (Falås et al., 2013; Jewell et al., 2016b; Wolff et al., 2021). Vid anoxiska förhållanden avskildes atenolol, och trimetoprim snabbare jämfört med i närvaro av syre med biomassa från både CAS och AGS (skillnad i k_{bio} >0,04 L gTSS⁻¹d⁻¹) (Figur 6.2). I tidigare studier har trimetoprim visat sig brytas ner snabbare vid anoxiska förhållanden och då denitrifikation sker jämfört med aeroba förhållanden (Falås et al., 2013). I en annan studie bröts dock trimetoprim ner snabbare vid aeroba förhållanden (Stadler et al., 2015). För återstående OMF var de beräknade k_{bie} likvärdiga. Metoprolol bröts ner snabbare under anoxiska förhållanden endast med slam från AGS, men nedbrytningen var snabbare för CAS vid aeroba förhållanden. Betablockerarna atenolol och metoprolol visade varierande känslighet för redoxförhållandena. Metoprolol har en liknande kemisk struktur som atenolol men uppvisade olika nedbrytningsegenskaper. Metoprolol innehåller en eter-grupp samt en alkohol (tvåelektrondonerande grupper) medan atenolol endast innehåller en alkohol (elektrondonerande grupp) samt en amid (elektrontagande grupp). Denna egenskap gör atenolol känslig för transformation genom en reducerande mekanism (Rattier et al., 2014). För detta ämne var det liten skillnad mellan avskiljning vid aeroba och anoxiska förhållanden för CAS men där avskiljningshastigheten per g slam var något lägre för AGS vid oxiska förhållanden. Atenolol har i labbstudier visat sig brytas ner under aeroba förhållanden (Helbling et al., 2012).

Trimetoprim har tidigare visat sig kunna brytas ner vid alla redoxförhållanden men olika resultat har observerats angående transformationshastigheter. Högre transformationshastigheter har observerats för trimtoprim under anoxiska förhållanden jämfört med aeroba (Falås et al., 2013), medan andra studier har visat att högre nedbrytningshastighet uppmätts vid aeroba förhållanden (Stadler et al., 2015). En positiv effekt av nitrifikation har också observerats (Fernandez-Fontaina et al., 2012). Olika resultat kan uppnås eftersom olika koncentration av ämnet använts (Jewell et al., 2016a). Sulfametoxazol transformerades under både aeroba och anoxiska förhållanden vilket stämmer överens med tidigare studier (Stadler et al., 2015).

De beräknade transformationshastighetskonstanterna visade sig att de beror av både närvaron av syre eller nitrat men även av typen av biomassa som använts vid försöken, i detta fall från CAS och AGS.



Figur 6.2

Avskiljningen av atenolol, naproxen och trimethoprim vid aeroba (oxiska) och anoxiska förhållanden. Den logaritmerade koncentrationen (K) är plottad som funktion av tiden.

6.5 Mikrobiell analys

Prover för den mikrobiella kartläggningen togs både innan (september) och efter (januari och februari) den aktuella provtagningsperioden för att få en bild av variationen i sammansättning mellan proverna över tid. I biomassan från AGS var diversiteten (dvs artrikedomen) på genklustren större (9±6%) än i CAS (p<0.05, ANOVA and Tukey's HSD, n=4), men det var ingen statistisk skillnad mellan proverna från de två AGS-reaktorerna (Figur 6.3a). Skillnaden i mikrobiell sammansättning mellan proverna illustreras med multidimensionell skalning i Figur 6.3b. Punkter som ligger nära varandra i figuren har liknande sammansättning av genkluster. Det fanns en signifikant skillnad i mikrobiell sammansättning AGS och CAS (p<0.01, Permanova). En årstidseffekt kan också ses då prover tagna i november och september grupperar sig både i AGS och CAS skilt från proverna tagna i januari och februari. Det förekom en tydlig separering utefter den första principal-koordinaten för prover från AGS och CAS. Biomassatyp förklarade hela 75,6% av olikheterna mellan proven (Figur 6.3b, separeringen i x-led). Detta kan förklaras av skillnader i processbetingelser samt strukturen (storlek, mikro-nischer med olika redoxförhållanden) hos de biologiska aggregaten mellan CAS och AGS. Det fanns

även en skillnad mellan prover tagna i september och november jämfört med januari och februari (utgjorde 7,9% av variansen, Figur 6.3b, separeringen i y-led), vilket tyder på en omvandling av biomassan (sett som skillnader i genklustersammansättning) när årstiden går från höst till en kallare vinter.

De mest vanligt förekommande taxonomiska tillhörigheter till de identifierade generna visas i Figur 6.4. *Actinobacteria, Proteobacteria, Nitrospirae* och *Bacteroidetes* var de fyla som dominerade i både CAS och AGS. I CAS var *Chloroflexi* den vanligast förekommande. Vid denna högre taxonomiska nivå har liknande resultat rapporterats från studier av diverse avloppsreningsverk (Cydzik-Kwiatkowska and Zielińska, 2016; Yu and Zhang, 2012).

De vanligast förekommande släktena av mikroorganismer i biomassan var bakterier som ansvarar för fosforavskiljningen i processen, t.ex. *Candidatus* Microthrix, *Dechloromonas, Candidatus* Accumulibacter, samt för kväveavskiljningen, t.ex. *Nitrospira, Rhodoferax, Candidatus* Nitrotoga, *Sulfuritalea*, och COD-nedbrytningen, *t.ex Rubrivivax* (Albertsen et al., 2016; Cydzik-Kwiatkowska and Zielińska, 2016; Li et al., 2020; Yu and Zhang, 2012). Glykogenackumulerande mikroorganismer (GAO), tex *Propionivibrio* var också vanliga i både CAS och AGS med en vikande trend under de kalla månaderna. En annan GAO, *Candidatus* Competibacter var vanligast i AGS. Släktet *Flavobacterium*, som visat sig främja granulbildning genom att den producerar extracellulära polymerer (EPS) (Simonsen Dueholm et al. 2021) fanns i både CAS och AGS, men något större mängd i AGS.



Figur 6.3

Genklusterdiversitet i prover från den två AGS-reaktorerna (AGS1 & AGS2) och CAS (a) och principalkoordinatanalys (PCoA) för dissimilaritet (olikhet) av genklustersammansättning mellan de olika proverna.

Figur 6.4

Relativ förekomst (%) av de vanligaste taxonomiska klassificeringar (fylum och släkte) av gener detekterade i de olika proverna. Jämfört med AGS, innehöll CAS en större andel filamentiösa mikroorganismer, som t.ex. *Candidatus* Microthrix, vilken är känd för att skapa s.k. bulkslam eller slamsvällning (Simonsen Dueholm et al., 2021). En annan vanligt förekommande mikroorganism i CAS var *Candidatus* Promineofilum (Speirs et al., 2019). *Nitrospira*, en nitritoxiderande bakterie var vanligt förekommande i CAS och utgjorde 5,1-9,1% av den totala mängden mikroorganismer (Spasov et al., 2020). Förekomsten var betydligt lägre i AGS (0,7-2,2%). I en studie har en positiv koppling mellan förekomsten av *Nitrospira* och avskiljning av vissa OMF påvisats (Wolff et al., 2021). En annan vanligt förekommande nitritoxiderande mikroorganism i kallare klimat, *Candidatus* Nitrotoga (Spieck et al., 2021) fanns i AGS-biomassan men knappast i CAS. Mikroorganismer som lagar kol i sina celler såsom *Dechloromonas, Candidatus* Accumulibacter, *Propioivibrio*, och *Candidatus* Competibacter var mer förekommande i AGS än i CAS.

Hur effektivt OMF kan avskiljas i den biologiska reningsprocessen tros bero både på processbetingelserna samt sammansättningen på det mikrobiella samhället (Helbling et al., 2015; Wolff et al., 2018). Mycket forskning krävs dock för att öka förståelsen för hur olika grupper av mikroorganismer inverkar på nedbrytningen av OMF. För vissa släkten såsom *Acidobacter, Nitrospira*, och *Rhizomicrobium* har en koppling mellan förekomst och nedbrytningshastighet av vissa OMF rapporterats (Wolff et al., 2021). Även låga förekomster av vissa grupper av mikroorganismer tros kunna påverka nedbrytningen av vissa OMF (Escolà Casas et al., 2017).

Den här studien visar att den mikrobiella sammansättningen mellan AGS och CAS är olika. Mikroorganismer som kan lagra organiskt kol var mer vanligt förekommande i AGS än i CAS, medan CAS å andra sidan innehöll mer filamentiösa mikroorganismer (*Candidatus* Microthrix) samt kväveomsättande mikroorganismer (*Nitrospira*). Resultaten visade även att den mikrobiella artrikedomen (diversitet) var högre i AGS än i CAS. Taxonomisk och funktionella diversitet har i flera studier visat sig vara relaterat till förmågan att omvandla vissa OMF på biologisk väg (Johnson et al., 2015; Stadler and Love, 2016; Stadler et al., 2018; Torresi et al., 2016). Hypotesen är att ett artrikt mikrobiellt samhälle har större sannolikhet att innehålla arter som kan bryta ner OMF via olika enzymatiska reaktioner (Stadler et al., 2018; Wolff et al., 2018). I den här studien kunde vi inte se detta mönster och det leder till frågan om det verkligen är den mikrobiella diversiteten som är viktig eller om andra parametrar såsom biomassakoncentration eller massöverföringsbegränsningar som avgör nedbrytningshastigheten.

7 Slutsatser

Resultaten från den här studien visar att avskiljningen av organiska mikroföroreningar (OMF) i biologiska system beror på egenskaperna hos ämnena, redoxförhållandena och typen av biomassa. Följande observationer från studien gjordes:

- I en anläggning med parallell rening med aktivt slam och AGS var avskiljningen av OMF högre för CAS.
- Högre avskiljningshastigheter av OMF uppnåddes i satsvisa labbförsök med biomassa från aktivt slam i jämförelse med biomassa från AGS. Ett undantag var dock diklofenak som avskildes bättre med granuler.
- Aeroba och anoxiska förhållanden påverkade avskiljningen av OMF. För de flesta ämnen skedde omvandlingen snabbare vid aeroba förhållanden jämfört med anoxiska.
- AGS och CAS hade olika mikrobiell sammansättning där AGS dominerades av mikroorganismer som kan lagra organiskt kol så som *Dechloromonas, Ca.* Accumulibacter, *Propionivibrio*, och *Ca* Competibacter, medan CAS dominerades av filamentiösa mikroorganismer så som Ca. Microthrix och kväveomsättande *Nitrospira*.
- Trots att AGS uppvisade en lägre avskiljning av OMF, hade biomassan en högre diversitet jämfört med CAS, vilket borde leda till en högre funktionell diversitet. Andra faktorer så som exponering av OMF för biomassan eller massöverföringsbegränsningar, kan ha spelat en större roll vid avskiljning av de undersökta ämnena.

I den här studien mättes avskiljningen av OMF endast under den kalla vinterperioden. Biomassans sammansättning och aktivitet är då annorlunda jämfört med på sommarhalvåret. För att kunna dra slutsatser om skillnader i avskiljningsförmåga hos CAS och AGS bör mätningar därför även göras under den varma årstiden och dessutom vid flera tidpunkter under året. Andra skillnader var att den hydrauliska uppehållstiden samt koncentrationen av biomassa var olika för de två systemen, något som troligen kan påverka resultaten. En annan parameter som kan ha påverkat resultatet är att det inkommande avloppsvattnet hade något olika karaktär där hydrolys skedde på en större del av det inkommande avloppsvattnet till AGS. En större andel lättnedbrytbart organiskt material kan ha påverkat avskiljningen av läkemedel.

Referenser

Adeleye, A.S., Xue, J., Zhao, Y., Taylor, A.A., Zenobio, J.E., Sun, Y., Han, Z., Salawu, O.A. och Zhu, Y. 2022. Abundance, fate, and effects of pharmaceuticals and personal care products in aquatic environments. Journal of Hazardous Materials 424, 127284.

Adler, A. och Holliger, C. 2020. Multistability and Reversibility of Aerobic Granular Sludge Microbial Communities Upon Changes From Simple to Complex Synthetic Wastewater and Back. Frontiers in Microbiology 11.

Albertsen, M., McIlroy, S.J., Stokholm-Bjerregaard, M., Karst, S.M. och Nielsen, P.H. 2016. "Candidatus Propionivibrio aalborgensis": A Novel Glycogen Accumulating Organism Abundant in Full-Scale Enhanced Biological Phosphorus Removal Plants. Frontiers in Microbiology 7.

Alexander, J., Hembach, N. och Schwartz, T. 2020. Evaluation of antibiotic resistance dissemination by wastewater treatment plant effluents with different catchment areas in Germany. Scientific Reports 10(1), 8952.

Alvarino, T., Lema, J., Omil, F. och Suárez, S. 2018a. Trends in organic micropollutants removal in secondary treatment of sewage. Reviews in Environmental Science och Biotechnology 17(3), 447-469.

Alvarino, T., Suarez, S., Lema, J. och Omil, F. 2018b. Understanding the sorption and biotransformation of organic micropollutants in innovative biological wastewater treatment technologies. Science of The Total Environment 615, 297-306.

Alvarino, T., Suarez, S., Lema, J.M. och Omil, F. 2014. Understanding the removal mechanisms of PPCPs and the influence of main technological parameters in anaerobic UASB and aerobic CAS reactors. Journal of Hazardous Materials 278, 506-513.

Amorim, C.L., Moreira, I.S., Ribeiro, A.R., Santos, L.H.M.L.M., Delerue-Matos, C., Tiritan, M.E. och Castro, P.M.L. 2016. Treatment of a simulated wastewater amended with a chiral pharmaceuticals mixture by an aerobic granular sludge sequencing batch reactor. International Biodeterioration & Biodegradation 115, 277-285.

Anderson, M.J. 2001. A new method for non-parametric multivariate analysis of variance. Austral Ecology 26(1), 32-46.

APHA (1998) Standard Methods for the examination of water and wastewater, American Public Health Association, Washington DC.

Arias, A., Alvarino, T., Allegue, T., Suárez, S., Garrido, J.M. och Omil, F. 2018. An innovative wastewater treatment technology based on UASB and IFAS for cost-efficient macro and micropollutant removal. Journal of Hazardous Materials 359, 113-120.

Ashfaq, M., Li, Y., Wang, Y., Chen, W., Wang, H., Chen, X., Wu, W., Huang, Z., Yu, C.-P. och Sun, Q. 2017. Occurrence, fate, and mass balance of different classes of pharmaceuticals and personal care products in an anaerobic-anoxic-oxic wastewater treatment plant in Xiamen, China. Water Research 123, 655-667.

aus der Beek, T., Weber, F.-A., Bergmann, A., Hickmann, S., Ebert, I., Hein, A. och Küster, A. 2016. Pharmaceuticals in the environment—Global occurrences and perspectives. Environmental Toxicology and Chemistry 35(4), 823-835.

Backhaus, T. 2014. Medicines, shaken and stirred: a critical review on the ecotoxicology of pharmaceutical mixtures. Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences 369(1656), 20130585. Barbosa, M.O., Moreira, N.F.F., Ribeiro, A.R., Pereira, M.F.R. och Silva, A.M.T. 2016. Occurrence and removal of organic micropollutants: An overview of the watch list of EU Decision 2015/495. Water Research 94, 257-279.

Barret, M., Patureau, D., Latrille, E. och Carrère, H. 2010. A three-compartment model for micropollutants sorption in sludge: Methodological approach and insights. Water Research 44(2), 616-624.

Barron, L., Tobin, J. och Paull, B. 2008. Multi-residue determination of pharmaceuticals in sludge and sludge enriched soils using pressurized liquid extraction, solid phase extraction and liquid chromatography with tandem mass spectrometry. Journal of Environmental Monitoring 10(3), 353-361.

Bengtsson, S., de Blois, M., Wilén, B.-M. och Gustavsson, D. 2018. Treatment of municipal wastewater with aerobic granular sludge. Critical Reviews in Environmental Science and Technology 48(2), 119-166.

Bengtsson, S., de Blois, M., Wilén, B.-M. och Gustavsson, D. 2019. A comparison of aerobic granular sludge with conventional and compact biological treatment technologies. Environmental Technology 40(21), 2769-2778.

Bessa, V.S., Moreira, I.S., Van Loosdrecht, M.C.M. och Castro, P.M.L. 2021. Biological removal processes in aerobic granular sludge exposed to diclofenac. Environmental Technology (United Kingdom).

Betshiltz, A., Karlsson, S., Svahn, O., Davidsson, Å., Cimbritz, M. och Falås, P. (2021) Tracking 14C-labeled organic micropollutants to differentiate between adsorption and degradation in GAC and biofilm processes. Environmental Science and Technology, 55(16), 11318-11327.

Boehler, M., Zwickenpflug, B., Hollender, J., Ternes, T., Joss, A. och Siegrist, H. 2012. Removal of micropollutants in municipal wastewater treatment plants by powder-activated carbon. Water Science and Technology 66(10), 2115-2121.

Boonnorat, J., Chiemchaisri, C., Chiemchaisri, W. och Yamamoto, K. 2014. Microbial adaptation to biodegrade toxic organic micro-pollutants in membrane bioreactor using different sludge sources. Bioresource Technology 165, 50-59.

Boonnorat, J., Kanyatrakul, A., Prakhongsak, A., Honda, R., Panichnumsin, P. och Boonapatcharoen, N. 2019. Effect of hydraulic retention time on micropollutant biodegradation in activated sludge system augmented with acclimatized sludge treating low-micropollutants wastewater. Chemosphere 230, 606-615.

Brown, A.K. and Wong, C.S. 2018. Distribution och fate of pharmaceuticals and their metabolite conjugates in a municipal wastewater treatment plant. Water Research 144, 774-783.

Buchfink, B., Xie, C. och Huson, D.H. 2015. Fast and sensitive protein alignment using DIAMOND. Nature Methods 12(1), 59-60.

Burzio, C. (2020) Removal of organic micropollutants from wastewater in biofilm systems. Licentiate thesis, Chalmers University of Technology.

Calderón-Franco, D., van Loosdrecht, M.C.M., Abeel, T. och Weissbrodt, D.G. 2021. Free-floating extracellular DNA: Systematic profiling of mobile genetic elements and antibiotic resistance from wastewater. Water Research 189, 116592.

Castellanos, R.M., Bassin, J.P., Bila, D.M. and Dezotti, M. 2021a. Biodegradation of natural and synthetic endocrine-disrupting chemicals by aerobic granular sludge reactor: Evaluating estrogenic activity och estrogens fate. Environmental Pollution 274, 116551.

Castellanos, R.M., Dias, J.M.R., Dias Bassin, I., Dezotti, M. and Bassin, J.P. 2021b. Effect of sludge age on aerobic granular sludge: Addressing nutrient removal performance and biomass stability. Process Safety and Environmental Protection 149, 212-222.

Chen, S., Zhou, Y., Chen, Y. och Gu, J. 2018. fastp: an ultra-fast all-in-one FASTQ preprocessor. Bioinformatics 34(17), i884-i890.

Chopra, S. och Kumar, D. 2020. Ibuprofen as an emerging organic contaminant in environment, distribution and remediation. Heliyon 6(6).

Cimbritz, M., Edefell, E., Thörnqvist, E., El-taliawy, H., Ekenberg, M., Burzio, C., Modin, O., Persson, F., Wilén, B.-M., Bester, K. och Falås, P. 2019. PAC dosing to an MBBR – Effects on adsorption of micropollutants, nitrification and microbial community. Science of The Total Environment 677, 571-579.

Cimbritz, M. och Mattsson, A. 2017 Reningstekniker för läkemedel och mikroföroreningar i avloppsvatten. vattenmyndigheten, Havs och Vattenmyndigheten.

Cimbritz, M., Tumlin, S., Hagman, M., Dimitrova, I., Hey, G., Mases, M., Åstrand, N. och Jansen la Cour, J. 2016 Rening från läkemedelsrester och andra mikroföroreningar-en kunskapssammanställning, 2016-04, Svenskt Vatten Utveckling.

Cydzik-Kwiatkowska, A. och Zielińska, M. 2016. Bacterial communities in full-scale wastewater treatment systems. World Journal of Microbiology and Biotechnology 32(4), 66.

de Graaff, M.S., Vieno, N.M., Kujawa-Roeleveld, K., Zeeman, G., Temmink, H. och Buisman, C.J.N. 2011. Fate of hormones and pharmaceuticals during combined anaerobic treatment and nitrogen removal by partial nitritation-anammox in vacuum collected black water. Water Research 45(1), 375-383.

de Kreuk, M.K., Heijnen, J.J. och van Loosdrecht, M.C.M. 2005. Simultaneous COD, nitrogen, and phosphate removal by aerobic granular sludge. Biotechnology and Bioengineering 90(6), 761-769.

de Wilt, A., van Gijn, K., Verhoek, T., Vergnes, A., Hoek, M., Rijnaarts, H. och Langenhoff, A. 2018. Enhanced pharmaceutical removal from water in a three step bio-ozone-bio process. Water Research 138, 97-105.

Desbiolles, F., Malleret, L., Tiliacos, C., Wong-Wah-Chung, P. och Laffont-Schwob, I. 2018. Occurrence and ecotoxicological assessment of pharmaceuticals: Is there a risk for the Mediterranean aquatic environment? Science of The Total Environment 639, 1334-1348.

Edefell, E., Falås, P., Kharel, S., Hagman, M., Christensson, M., Cimbritz, M. och Bester, K. 2021. MBBRs as post-treatment to ozonation: Degradation of transformation products and ozone-resistant micropollutants. Science of The Total Environment 754, 142103.

Eggen, R.I.L., Hollender, J., Joss, A., Schärer, M. och Stamm, C. 2014. Reducing the Discharge of Micropollutants in the Aquatic Environment: The Benefits of Upgrading Wastewater Treatment Plants. Environmental Science & Technology 48(14), 7683-7689.

Eren, A.M., Kiefl, E., Shaiber, A., Veseli, I., Miller, S.E., Schechter, M.S., Fink, I., Pan, J.N., Yousef, M., Fogarty, E.C., Trigodet, F., Watson, A.R., Esen, Ö.C., Moore, R.M., Clayssen, Q., Lee, M.D., Kivenson, V., Graham, E.D., Merrill, B.D., Karkman, A., Blankenberg, D., Eppley, J.M., Sjödin, A., Scott, J.J., Vázquez-Campos, X., McKay, L.J., McDaniel, E.A., Stevens, S.L.R., Anderson, R.E., Fuessel, J., Fernandez-Guerra, A., Maignien, L., Delmont, T.O. och Willis, A.D. 2021. Community-led, integrated, reproducible multi-omics with anvi'o. Nature Microbiology 6(1), 3-6.

Escolà Casas, M., Nielsen, T.K., Kot, W., Hansen, L.H., Johansen, A. och Bester, K. 2017. Degradation of mecoprop in polluted landfill leachate and waste water in a moving bed biofilm reactor. Water Research 121, 213-220.

Falås, P., Andersen, H.R., Ledin, A. och Jansen, J.l.C. 2012. Occurrence and reduction of pharmaceuticals in the water phase at Swedish wastewater treatment plants. Water Science and Technology 66(4), 783-791.

Falås, P., Jewell, K.S., Hermes, N., Wick, A., Ternes, T.A., Joss, A. och Nielsen, J.L. 2018. Transformation, CO2 formation and uptake of four organic micropollutants by carrier-attached microorganisms. Water Research 141, 405-416.

Falås, P., Longrée, P., la Cour Jansen, J., Siegrist, H., Hollender, J. och Joss, A. 2013. Micropollutant removal by attached and suspended growth in a hybrid biofilm-activated sludge process. Water Research 47(13), 4498-4506.

Falås, P., Wick, A., Castronovo, S., Habermacher, J., Ternes, T.A. och Joss, A. 2016. Tracing the limits of organic micropollutant removal in biological wastewater treatment. Water Research 95, 240-249.

Fenner, K. och Men, Y. 2021. Comment on "Role of Ammonia Oxidation in Organic Micropollutant Transformation during Wastewater Treatment": Overlooked Evidence to the Contrary. Environmental Science & Technology 55(17), 12128-12129.

Fernandez-Fontaina, E., Omil, F., Lema, J.M. och Carballa, M. 2012. Influence of nitrifying conditions on the biodegradation and sorption of emerging micropollutants. Water Research 46(16), 5434-5444.

Fischer, K. och Majewsky, M. 2014. Cometabolic degradation of organic wastewater micropollutants by activated sludge and sludge-inherent microorganisms. Applied Microbiology and Biotechnology 98(15), 6583-6597.

Franco, A. och Trapp, S. 2008. Estimation of the soil–water partition coefficient normalized to organic carbon for ionizable organic chemicals. Environmental Toxicology and Chemistry 27(10), 1995-2004.

Gallardo-Altamirano, M.J., Maza-Márquez, P., Peña-Herrera, J.M., Rodelas, B., Osorio, F. och Pozo, C. 2018. Removal of anti-inflammatory/analgesic pharmaceuticals from urban wastewater in a pilot-scale A2O system: Linking performance and microbial population dynamics to operating variables. Science of The Total Environment 643, 1481-1492.

Gao, H., LaVergne, Jeanne M., Carpenter, C.M.G., Desai, R., Zhang, X., Gray, K., Helbling, D.E. och Wells, G.F. 2019. Exploring co-occurrence patterns between organic micropollutants and bacterial community structure in a mixed-use watershed. Environmental Science: Processes & Impacts 21(5), 867-880.

Giesen, A., de Bruin, L.M.M., Niermans, R.P. och van der Roest, H.F. 2013. Advancements in the application of aerobic granular biomass technology for sustainable treatment of wastewater. Water Practice and Technology 8(1).

Goss, K.-U. och Schwarzenbach, R.P. 2003. Rules of Thumb for Assessing Equilibrium Partitioning of Organic Compounds: Successes and Pitfalls. Journal of Chemical Education 80(4), 450.

Grandclément, C., Seyssiecq, I., Piram, A., Wong-Wah-Chung, P., Vanot, G., Tiliacos, N., Roche, N. and Doumenq, P. 2017. From the conventional biological wastewater treatment to hybrid processes, the evaluation of organic micropollutant removal: A review. Water Research 111, 297-317.

Guillossou, R., Le Roux, J., Mailler, R., Vulliet, E., Morlay, C., Nauleau, F., Gasperi, J. och Rocher, V. 2019. Organic micropollutants in a large wastewater treatment plant: What are the benefits of an advanced treatment by activated carbon adsorption in comparison to conventional treatment? Chemosphere 218, 1050-1060.

Gulde, R., Rutsch, M., Clerc, B., Schollée, J.E., von Gunten, U. och McArdell, C.S. 2021. Formation of transformation products during ozonation of secondary wastewater effluent and their fate in post-treatment: From laboratory- to full-scale. Water Research 200, 117200.

Halling-Sørensen, B., Nors Nielsen, S., Lanzky, P.F., Ingerslev, F., Holten Lützhøft, H.C. och Jørgensen, S.E. 1998. Occurrence, fate and effects of pharmaceutical substances in the environment- A review. Chemosphere 36(2), 357-393.

Havs- och vattenmyndighetens författningssamling, HVMFS, 2009:25.

Helbling, D.E., Johnson, D.R., Honti, M. och Fenner, K. 2012. Micropollutant Biotransformation Kinetics Associate with WWTP Process Parameters and Microbial Community Characteristics. Environmental Science & Technology 46(19), 10579-10588.

Helbling, D.E., Johnson, D.R., Lee, T.K., Scheidegger, A. och Fenner, K. 2015. A framework for establishing predictive relationships between specific bacterial 16S rRNA sequence abundances and biotransformation rates. Water Research 70, 471-484.

Hollender, J., Zimmermann, S.G., Koepke, S., Krauss, M., McArdell, C.S., Ort, C., Singer, H., von Gunten, U. och Siegrist, H. 2009. Elimination of Organic Micropollutants in a Municipal Wastewater Treatment Plant Upgraded with a Full-Scale Post-Ozonation Followed by Sand Filtration. Environmental Science & Technology 43(20), 7862-7869.

Howard, P.H. och Muir, D.C.G. 2010. Identifying New Persistent and Bioaccumulative Organics Among Chemicals in Commerce. Environmental Science & Technology 44(7), 2277-2285.

Hutinel, M., Fick, J., Larsson, D.G.J. och Flach, C.-F. 2021. Investigating the effects of municipal and hospital wastewaters on horizontal gene transfer. Environmental Pollution 276, 116733.

Hyatt, D., Chen, G.-L., LoCascio, P.F., Land, M.L., Larimer, F.W. och Hauser, L.J. 2010. Prodigal: prokaryotic gene recognition and translation initiation site identification. BMC Bioinformatics 11(1), 119.

Jewell, K.S., Castronovo, S., Wick, A., Falås, P., Joss, A. och Ternes, T.A. 2016a. New insights into the transformation of trimethoprim during biological wastewater treatment. Water Research 88, 550-557.

Jewell, K.S., Falås, P., Wick, A., Joss, A. och Ternes, T.A. 2016b. Transformation of diclofenac in hybrid biofilm–activated sludge processes. Water Research 105, 559-567.

Jobling, S., Nolan, M., Tyler, C.R., Brighty, G. och Sumpter, J.P. 1998. Widespread Sexual Disruption in Wild Fish. Environmental Science & Technology 32(17), 2498-2506.

Johnson, A.C. och Sumpter, J.P. 2015. Improving the Quality of Wastewater To Tackle Trace Organic Contaminants: Think before You Act! Environmental Science & Technology 49(7), 3999-4000.

Johnson, D.R., Helbling, D.E., Lee, T.K., Park, J., Fenner, K., Kohler, H.-P.E., Ackermann, M. och Spormann, A.M. 2015. Association of Biodiversity with the Rates of Micropollutant Biotransformations among Full-Scale Wastewater Treatment Plant Communities. Applied and Environmental Microbiology 81(2), 666-675.

Joss, A., Andersen, H., Ternes, T., Richle, P.R. och Siegrist, H. 2004. Removal of Estrogens in Municipal Wastewater Treatment under Aerobic and Anaerobic Conditions: Consequences for Plant Optimization. Environmental Science & Technology 38(11), 3047-3055.

Joss, A., Zabczynski, S., Göbel, A., Hoffmann, B., Löffler, D., McArdell, C.S., Ternes, T.A., Thomsen, A. och Siegrist, H. 2006. Biological degradation of pharmaceuticals in municipal wastewater treatment: Proposing a classification scheme. Water Research 40(8), 1686-1696.

Jost, L. 2006. Entropy and diversity. Oikos 113(2), 363-375.

Kang, A.J., Brown, A.K., Wong, C.S. och Yuan, Q. 2018. Removal of antibiotic sulfamethoxazole by anoxic/anaerobic/oxic granular and suspended activated sludge processes. Bioresource Technology 251, 151-157.

Kassotaki, E., Buttiglieri, G., Ferrando-Climent, L., Rodriguez-Roda, I. och Pijuan, M. 2016. Enhanced sulfamethoxazole degradation through ammonia oxidizing bacteria co-metabolism and fate of transformation products. Water Research 94, 111-119.

Kennes-Veiga, D.M., Vogler, B., Fenner, K., Carballa, M. och Lema, J.M. 2021. Heterotrophic enzymatic biotransformations of organic micropollutants in activated sludge. Science of The Total Environment 780, 146564.

Kent, J. och Tay, J.H. 2019. Treatment of 17α -ethinylestradiol, 4-nonylphenol, and carbamazepine in wastewater using an aerobic granular sludge sequencing batch reactor. Science of The Total Environment 652, 1270-1278.

Kårelid, V., Larsson, G. och Björlenius, B. 2017a. Effects of recirculation in a threetank pilot-scale system for pharmaceutical removal with powdered activated carbon. Journal of Environmental Management 193, 163-171.

Kårelid, V., Larsson, G. och Björlenius, B. 2017b. Pilot-scale removal of pharmaceuticals in municipal wastewater: Comparison of granular and powdered activated carbon treatment at three wastewater treatment plants. Journal of Environmental Management 193, 491-502.

Lajeunesse, A., Smyth, S.A., Barclay, K., Sauvé, S. och Gagnon, C. 2012. Distribution of antidepressant residues in wastewater and biosolids following different treatment processes by municipal wastewater treatment plants in Canada. Water Research 46(17), 5600-5612.

Langmead, B. och Salzberg, S.L. 2012. Fast gapped-read alignment with Bowtie 2. Nature Methods 9(4), 357-359.

Larsson, D.G.J. 2014. Pollution from drug manufacturing: review and perspectives. Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences 369(1656), 20130571.

Layer, M., Adler, A., Reynaert, E., Hernandez, A., Pagni, M., Morgenroth, E., Holliger, C. och Derlon, N. 2019. Organic substrate diffusibility governs microbial community composition, nutrient removal performance and kinetics of granulation of aerobic granular sludge. Water Research X 4, 100033.

Leiviskä, T. och Risteelä, S. 2022. Analysis of pharmaceuticals, hormones and bacterial communities in a municipal wastewater treatment plant – Comparison of parallel full-scale membrane bioreactor and activated sludge systems. Environmental Pollution 292, 118433.

Li, D., Liu, C.-M., Luo, R., Sadakane, K. och Lam, T.-W. 2015. MEGAHIT: an ultra-fast single-node solution for large and complex metagenomics assembly via succinct de Bruijn graph. Bioinformatics 31(10), 1674-1676.

Li, Z.-H., Zhu, Y.-M., Zhang, Y.-L., Zhang, Y.-R., He, C.-B. och Yang, C.-J. 2019. Characterization of aerobic granular sludge of different sizes for nitrogen and phosphorus removal. Environmental Technology 40(27), 3622-3631. Li, Z., Yu, E., Zhang, K., Gong, W., Xia, Y., Tian, J., Wang, G. and Xie, J. 2020. Water Treatment Effect, Microbial Community Structure, and Metabolic Characteristics in a Field-Scale Aquaculture Wastewater Treatment System. Frontiers in Microbiology 11.

Lindberg, R.H., Fick, J. and Tysklind, M. 2010. Screening of antimycotics in Swedish sewage treatment plants – Waters and sludge. Water Research 44(2), 649-657.

Lindberg, R.H., Olofsson, U., Rendahl, P., Johansson, M.I., Tysklind, M. and Andersson, B.A.V. 2006. Behavior of Fluoroquinolones and Trimethoprim during Mechanical, Chemical, and Active Sludge Treatment of Sewage Water and Digestion of Sludge. Environmental Science & Technology 40(3), 1042-1048.

Loos, R., Carvalho, R., António, D.C., Comero, S., Locoro, G., Tavazzi, S., Paracchini, B., Ghiani, M., Lettieri, T., Blaha, L., Jarosova, B., Voorspoels, S., Servaes, K., Haglund, P., Fick, J., Lindberg, R.H., Schwesig, D. och Gawlik, B.M. 2013. EU-wide monitoring survey on emerging polar organic contaminants in wastewater treatment plant effluents. Water Research 47(17), 6475-6487.

Luo, Y., Guo, W., Ngo, H.H., Nghiem, L.D., Hai, F.I., Zhang, J., Liang, S. och Wang, X.C. 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 473-474, 619-641.

Magdeburg, A., Stalter, D., Schlüsener, M., Ternes, T. och Oehlmann, J. 2014. Evaluating the efficiency of advanced wastewater treatment: Target analysis of organic contaminants and (geno-)toxicity assessment tell a different story. Water Research 50, 35-47.

Manickum, T. och John, W. 2014. Occurrence, fate and environmental risk assessment of endocrine disrupting compounds at the wastewater treatment works in Pietermaritzburg (South Africa). Science of The Total Environment 468-469, 584-597.

Margot, J., Kienle, C., Magnet, A., Weil, M., Rossi, L., de Alencastro, L.F., Abegglen, C., Thonney, D., Chèvre, N., Schärer, M. och Barry, D.A. 2013. Treatment of micropollutants in municipal wastewater: Ozone or powdered activated carbon? Science of The Total Environment 461–462, 480-498.

Margot, J., Rossi, L., Barry, D.A. och Holliger, C. 2015. A review of the fate of micropollutants in wastewater treatment plants. Wiley Interdisciplinary Reviews-Water 2(5), 457-487.

Men, Y., Achermann, S., Helbling, D.E., Johnson, D.R. och Fenner, K. 2017. Relative contribution of ammonia oxidizing bacteria and other members of nitrifying activated sludge communities to micropollutant biotransformation. Water Research 109, 217-226.

Men, Y., Han, P., Helbling, D.E., Jehmlich, N., Herbold, C., Gulde, R., Onnis-Hayden, A., Gu, A.Z., Johnson, D.R., Wagner, M. och Fenner, K. 2016. Biotransformation of Two Pharmaceuticals by the Ammonia-Oxidizing Archaeon Nitrososphaera gargensis. Environmental Science & Technology 50(9), 4682-4692.

Mendes Barros, A.R., Argenta, T.S., de Amorim de Carvalho, C., da Silva Oliveira, F., Milen Firmino, P.I. och Bezerra dos Santos, A. 2021. Effects of the antibiotics trimethoprim (TMP) and sulfamethoxazole (SMX) on granulation, microbiology, and performance of aerobic granular sludge systems. Chemosphere 262.

Menzel, P., Ng, K. L., och Krogh A. 2016. Fast and sensitive taxonomic classification for metagenomics with Kaiju. Nature Communications 7(1): 11257.

Mery-Araya, C., Lear, G., Perez-Garcia, O., Astudillo-Garcia, C. och Singhal, N. 2019. Using carbon substrate as a selection pressure to enhance the potential of aerobic granular sludge microbial communities for removing contaminants of emerging concern. Bioresource Technology 290.

Modin, O., Liébana, R., Saheb-Alam, S., Wilén, B.-M., Suarez, C., Hermansson, M. och Persson, F. 2020. Hill-based dissimilarity indices and null models for analysis of microbial community assembly. Microbiome 8(1), 132.

Munz, N.A., Fu, Q., Stamm, C. och Hollender, J. 2018. Internal Concentrations in Gammarids Reveal Increased Risk of Organic Micropollutants in Wastewater-Impacted Streams. Environmental Science & Technology 52(18), 10347-10358.

Naturvårdsverket 2017 Avancerad rening av avloppsvatten för avskiljning av läkemedelsrester och andra oönskade ämnen, Behov, teknik och konsekvenser.

Nguyen, P.Y., Carvalho, G., Reis, M.A.M. och Oehmen, A. 2021. A review of the biotransformations of priority pharmaceuticals in biological wastewater treatment processes. Water Research 188, 116446.

Nürenberg, G., Kunkel, U., Wick, A., Falås, P., Joss, A. och Ternes, T.A. 2019. Nontarget analysis: A new tool for the evaluation of wastewater processes. Water Research 163, 114842.

Oberoi, A.S., Jia, Y., Zhang, H., Khanal, S.K. och Lu, H. 2019. Insights into the Fate and Removal of Antibiotics in Engineered Biological Treatment Systems: A Critical Review. Environmental Science & Technology 53(13), 7234-7264.

Park, J., Yamashita, N., Wu, G. och Tanaka, H. 2017. Removal of pharmaceuticals and personal care products by ammonia oxidizing bacteria acclimated in a membrane bioreactor: Contributions of cometabolism and endogenous respiration. Science of The Total Environment 605-606, 18-25.

Peiris, C., Nawalage, S., Wewalwela, J.J., Gunatilake, S.R. and Vithanage, M. 2020. Biochar based sorptive remediation of steroidal estrogen contaminated aqueous systems: A critical review. Environmental Research 191, 110183.

Peng, X., Huang, Q., Zhang, K., Yu, Y., Wang, Z. och Wang, C. 2012. Distribution, behavior and fate of azole antifungals during mechanical, biological, and chemical treatments in sewage treatment plants in China. Science of The Total Environment 426, 311-317.

Pesqueira, J.F.J.R., Pereira, M.F.R. och Silva, A.M.T. 2020. Environmental impact assessment of advanced urban wastewater treatment technologies for the removal of priority substances and contaminants of emerging concern: A review. Journal of Cleaner Production 261, 121078.

Petrie, B., Barden, R. och Kasprzyk-Hordern, B. 2015. A review on emerging contaminants in wastewaters and the environment: Current knowledge, understudied areas and recommendations for future monitoring. Water Research 72, 3-27.

Petrie, B., McAdam, E.J., Lester, J.N. och Cartmell, E. 2014. Assessing potential modifications to the activated sludge process to improve simultaneous removal of a diverse range of micropollutants. Water Research 62, 180-192.

Pomiès, M., Choubert, J.M., Wisniewski, C. och Coquery, M. 2014. Corrigendum to "Modelling of micropollutant removal in biological wastewater treatments: A review" [Sci. Total Environ. 443 (2013) 733–748]. Science of The Total Environment 466-467, 1115.

Pronk, M., de Kreuk, M.K., de Bruin, B., Kamminga, P., Kleerebezem, R. och van Loosdrecht, M.C.M. 2015. Full scale performance of the aerobic granular sludge process for sewage treatment. Water Research 84, 207-217.

Pronk, M., Giesen, A., Thompson, A., Robertson, S. och van Loosdrecht, M. 2017. Aerobic granular biomass technology: advancements in design, applications and further developments. Water Practice and Technology 12(4), 987-996.

Radjenović, J., Petrović, M. och Barceló, D. 2009. Fate and distribution of pharmaceuticals in wastewater and sewage sludge of the conventional activated sludge (CAS) and advanced membrane bioreactor (MBR) treatment. Water Research 43(3), 831-841.

Rattier, M., Reungoat, J., Keller, J. och Gernjak, W. 2014. Removal of micropollutants during tertiary wastewater treatment by biofiltration: Role of nitrifiers and removal mechanisms. Water Research 54, 89-99.

Rivera-Utrilla, J., Sánchez-Polo, M., Ferro-García, M.Á., Prados-Joya, G. och Ocampo-Pérez, R. 2013. Pharmaceuticals as emerging contaminants and their removal from water. A review. Chemosphere 93(7), 1268-1287.

Rizzo, L., Agovino, T., Nahim-Granados, S., Castro-Alférez, M., Fernández-Ibáñez, P. och Polo-López, M.I. 2019a. Tertiary treatment of urban wastewater by solar and UV-C driven advanced oxidation with peracetic acid: Effect on contaminants of emerging concern and antibiotic resistance. Water Research 149, 272-281.

Rizzo, L., Malato, S., Antakyali, D., Beretsou, V.G., Đolić, M.B., Gernjak, W., Heath, E., Ivancev-Tumbas, I., Karaolia, P., Lado Ribeiro, A.R., Mascolo, G., McArdell, C.S., Schaar, H., Silva, A.M.T. och Fatta-Kassinos, D. 2019b. 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.

Rodriguez-Narvaez, O.M., Peralta-Hernandez, J.M., Goonetilleke, A. och Bandala, E.R. 2017. Treatment technologies for emerging contaminants in water: A review. Chemical Engineering Journal 323, 361-380.

Ruhl, A.S., Zietzschmann, F., Hilbrandt, I., Meinel, F., Altmann, J., Sperlich, A. och Jekel, M. 2014. Targeted testing of activated carbons for advanced wastewater treatment. Chemical Engineering Journal 257, 184-190.

Rybacka, A. och Andersson, P.L. 2016. Considering ionic state in modeling sorption of pharmaceuticals to sewage sludge. Chemosphere 165, 284-293.

Schwarzenbach, R.P., Escher, B.I., Fenner, K., Hofstetter, T.B., Johnson, C.A., von Gunten, U. och Wehrli, B. 2006. The Challenge of Micropollutants in Aquatic Systems. Science 313(5790), 1072-1077.

Simonsen Dueholm, M., Nierychlo, M., Skytte Andersen, K., Rudkjøbing, V., Knutsson, SAlbertsen, M., och Halkjaer Nielsen, P., 2021. MiDAS 4: A global catalogue of full-length 16S rRNA gene sequences and taxonomy for studies of bacterial communities in wastewater treatment plants. bioRxiv 2021.07.06.451231. https:// doi.org/10.1101/2021.07.06.451231

Smith, P.G. och Coackley, P. 1983. A method for determining specific surface area of activated sludge by dye adsorption. Water Research 17(5), 595-598.

Snyder, S.A., Adham, S., Redding, A.M., Cannon, F.S., DeCarolis, J., Oppenheimer, J., Wert, E.C. och Yoon, Y. 2007. Role of membranes and activated carbon in the removal of endocrine disruptors and pharmaceuticals. Desalination 202(1–3), 156-181.

Spasov, E., Tsuji, J.M., Hug, L.A., Doxey, A.C., Sauder, L.A., Parker, W.J. och Neufeld, J.D. 2020. High functional diversity among Nitrospira populations that dominate rotating biological contactor microbial communities in a municipal wastewater treatment plant. The ISME Journal 14(7), 1857-1872.

Speirs, L.B.M., Rice, D.T.F., Petrovski, S. och Seviour, R.J. 2019. The Phylogeny, Biodiversity, and Ecology of the Chloroflexi in Activated Sludge. Frontiers in Microbiology 10.

Spieck, E., Wegen, S. och Keuter, S. 2021. Relevance of Candidatus Nitrotoga for nitrite oxidation in technical nitrogen removal systems. Applied Microbiology and Biotechnology 105(19), 7123-7139.

Stadler, L.B. och Love, N.G. 2016. Impact of microbial physiology and microbial community structure on pharmaceutical fate driven by dissolved oxygen concentration in nitrifying bioreactors. Water Research 104, 189-199.

Stadler, L.B., Su, L., Moline, C.J., Ernstoff, A.S., Aga, D.S. och Love, N.G. 2015. Effect of redox conditions on pharmaceutical loss during biological wastewater treatment using sequencing batch reactors. Journal of Hazardous Materials 282, 106-115.

Stadler, L.B., Vela, J.D., Jain, S., Dick, G.J. och Love, N.G. 2018. Elucidating the impact of microbial community biodiversity on pharmaceutical biotransformation during wastewater treatment. Microb. Biotechnol. 11(6), 995-1007.

Stadlmair, L.F., Letzel, T., Drewes, J.E. och Grassmann, J. 2018. Enzymes in removal of pharmaceuticals from wastewater: A critical review of challenges, applications and screening methods for their selection. Chemosphere 205, 649-661.

Stalter, D., Magdeburg, A., Quednow, K., Botzat, A. och Oehlmann, J. 2013. Do contaminants originating from state-of-the-art treated wastewater impact the ecological quality of surface waters? PloS one 8(4), e60616-e60616.

Su, L., Aga, D., Chandran, K. och Khunjar, W.O. 2015. Factors impacting biotransformation kinetics of trace organic compounds in lab-scale activated sludge systems performing nitrification and denitrification. Journal of Hazardous Materials 282, 116-124.

Su, Q., Schittich, A.-R., Jensen, M.M., Ng, H. och Smets, B.F. 2021. Role of Ammonia Oxidation in Organic Micropollutant Transformation during Wastewater Treatment: Insights from Molecular, Cellular, and Community Level Observations. Environmental Science & Technology 55(4), 2173-2188.

Suarez, S., Lema, J.M. och Omil, F. 2010. Removal of Pharmaceutical and Personal Care Products (PPCPs) under nitrifying and denitrifying conditions. Water Research 44(10), 3214-3224.

Svahn, O. och Björklund, E. 2015. Describing sorption of pharmaceuticals to lake and river sediments, and sewage sludge from UNESCO Biosphere Reserve Kristianstads Vattenrike by chromatographic asymmetry factors and recovery measurements. Journal of Chromatography A 1415, 73-82.

Svahn, O. och Björklund, E. 2016. Increased electrospray ionization intensities and expanded chromatographic possibilities for emerging contaminants using mobile phases of different pH. Journal of Chromatography B 1033-1034, 128-137.

Svahn, O. och Björklund, E. 2019. High Flow-Rate Sample Loading in Large Volume Whole Water Organic Trace Analysis Using Positive Pressure and Finely Ground Sand as a SPE-Column In-Line Filter. Molecules 24(7), 1426.

Svahn, O. och Björklund, E. 2019. Extraction Efficiency of a Commercial Espresso Machine Compared to a Stainless-Steel Column Pressurized Hot Water Extraction (PHWE) System for the Determination of 23 Pharmaceuticals, Antibiotics and Hormones in Sewage Sludge. Applied Sciences, 9(7), 1590.

Świątczak, P. och Cydzik-Kwiatkowska, A. 2018. Performance and microbial characteristics of biomass in a full-scale aerobic granular sludge wastewater treatment plant. Environmental Science and Pollution Research 25(2), 1655-1669. Tadkaew, N., Hai, F.I., McDonald, J.A., Khan, S.J. och Nghiem, L.D. 2011. Removal of trace organics by MBR treatment: The role of molecular properties. Water Research 45(8), 2439-2451.

Ternes, T.A., Herrmann, N., Bonerz, M., Knacker, T., Siegrist, H. och Joss, A. 2004. A rapid method to measure the solid–water distribution coefficient (Kd) for pharmaceuticals and musk fragrances in sewage sludge. Water Research 38(19), 4075-4084.

Ternes, T.A., Stumpf, M., Mueller, J., Haberer, K., Wilken, R.D. och Servos, M. 1999. Behavior and occurrence of estrogens in municipal sewage treatment plants — I. Investigations in Germany, Canada and Brazil. Science of The Total Environment 225(1–2), 81-90.

Tijani, J.O., Fatoba, O.O. och Petrik, L.F. 2013. A Review of Pharmaceuticals and Endocrine-Disrupting Compounds: Sources, Effects, Removal, and Detections. Water, Air, & Soil Pollution 224(11), 1770.

Toja Ortega, S., Pronk, M. och de Kreuk, M.K. 2021a. Anaerobic hydrolysis of complex substrates in full-scale aerobic granular sludge: enzymatic activity determined in different sludge fractions. Applied Microbiology and Biotechnology 105(14), 6073-6086.

Toja Ortega, S., Pronk, M. och de Kreuk, M.K. 2021b. Effect of an Increased Particulate COD Load on the Aerobic Granular Sludge Process: A Full Scale Study. Processes 9(8), 1472.

Torresi, E., Fowler, S.J., Polesel, F., Bester, K., Andersen, H.R., Smets, B.F., Plósz, B.G. och Christensson, M. 2016. Biofilm Thickness Influences Biodiversity in Nitrifying MBBRs—Implications on Micropollutant Removal. Environmental Science & Technology 50(17), 9279-9288.

Torresi, E., Tang, K., Deng, J., Sund, C., Smets, B.F., Christensson, M. och Andersen, H.R. 2019. Removal of micropollutants during biological phosphorus removal: Impact of redox conditions in MBBR. Science of The Total Environment 663, 496-506.

Trapp, S., Franco, A. och Mackay, D. 2010. Activity-Based Concept for Transport and Partitioning of Ionizing Organics. Environmental Science & Technology 44(16), 6123-6129.

van den Berg, L., Kirkland, C.M., Seymour, J.D., Codd, S.L., van Loosdrecht, M.C.M. och de Kreuk, M.K. 2020. Heterogeneous diffusion in aerobic granular sludge. Biotechnology and Bioengineering 117(12), 3809-3819.

van Dongen, S. (2000). Graph clustering by flow simulation, PhD thesis, University of Utrecht.

Verlicchi, P., Al Aukidy, M. och Zambello, E. 2012. Occurrence of pharmaceutical compounds in urban wastewater: Removal, mass load and environmental risk after a secondary treatment—A review. Science of The Total Environment 429, 123-155.

Vieno, N. och Sillanpää, M. 2014. Fate of diclofenac in municipal wastewater treatment plant — A review. Environment International 69, 28-39.

Virtanen, P., Gommers, R., Oliphant, T.E., Haberland, M., Reddy, T., Cournapeau, D., Burovski, E., Peterson, P., Weckesser, W., Bright, J., van der Walt, S.J., Brett, M., Wilson, J., Millman, K.J., Mayorov, N., Nelson, A.R.J., Jones, E., Kern, R., Larson, E., Carey, C.J., Polat, İ., Feng, Y., Moore, E.W., VanderPlas, J., Laxalde, D., Perktold, J., Cimrman, R., Henriksen, I., Quintero, E.A., Harris, C.R., Archibald, A.M., Ribeiro, A.H., Pedregosa, F., van Mulbregt, P., Vijaykumar, A., Bardelli, A.P., Rothberg, A., Hilboll, A., Kloeckner, A., Scopatz, A., Lee, A., Rokem, A., Woods, C.N., Fulton, C., Masson, C., Häggström, C., Fitzgerald, C., Nicholson, D.A., Hagen, D.R., Pasechnik, D.V., Olivetti, E., Martin, E., Wieser, E., Silva, F., Lenders, F., Wilhelm, F., Young, G., Price, G.A., Ingold, G.-L., Allen, G.E., Lee, G.R., Audren, H., Probst, I., Dietrich, J.P., Silterra, J., Webber, J.T., Slavič, J., Nothman, J., Buchner, J., Kulick, J., Schönberger, J.L., de Miranda Cardoso, J.V., Reimer, J., Harrington, J., Rodríguez, J.L.C., Nunez-Iglesias, J., Kuczynski, J., Tritz, K., Thoma, M., Newville, M., Kümmerer, M., Bolingbroke, M., Tartre, M., Pak, M., Smith, N.J., Nowaczyk, N., Shebanov, N., Pavlyk, O., Brodtkorb, P.A., Lee, P., McGibbon, R.T., Feldbauer, R., Lewis, S., Tygier, S., Sievert, S., Vigna, S., Peterson, S., More, S., Pudlik, T., Oshima, T., Pingel, T.J., Robitaille, T.P., Spura, T., Jones, T.R., Cera, T., Leslie, T., Zito, T., Krauss, T., Upadhyay, U., Halchenko, Y.O., Vázquez-Baeza, Y. och SciPy, C. 2020. SciPy 1.0: fundamental algorithms for scientific computing in Python. Nature Methods 17(3), 261-272.

von Gunten, U. 2018. Oxidation Processes in Water Treatment: Are We on Track? Environmental Science & Technology 52(9), 5062-5075.

Vymazal, J., Březinová, T. och Koželuh, M. 2015. Occurrence and removal of estrogens, progesterone and testosterone in three constructed wetlands treating municipal sewage in the Czech Republic. Science of The Total Environment 536, 625-631.

Völker, J., Stapf, M., Miehe, U. och Wagner, M. 2019. Systematic Review of Toxicity Removal by Advanced Wastewater Treatment Technologies via Ozonation and Activated Carbon. Environmental Science & Technology 53(13), 7215-7233.

Wahlberg, C., Björlenius, B. och Paxéus, N. 2009 Läkemedelsrester i Stockholms vattenmiljö, förekomst, förebyggande åtgärder och rening av avloppsvatten, Stockholm Vatten.

Wang, B., Ni, B.-J., Yuan, Z. och Guo, J. 2020a. Unravelling kinetic and microbial responses of enriched nitrifying sludge under long-term exposure of cephalexin and sulfadiazine. Water Research 173, 115592.

Wang, L., Liu, Z., Jiang, Xoch Li, A. 2021. Aerobic granulation of nitrifying activated sludge enhanced removal of 17α -ethinylestradiol. Science of The Total Environment 801, 149546.

Wang, Y., Fenner, K. och Helbling, D.E. 2020b. Clustering micropollutants based on initial biotransformations for improved prediction of micropollutant removal during conventional activated sludge treatment. Environmental Science: Water Research & Technology 6(3), 554-565.

Wei, Z.S., Li, W., Zhao, D.Y., Seo, Y., Spinney, R., Dionysiou, D.D., Wang, Y., Zeng, W.Z. och Xiao, R.Y. 2019. Electrophilicity index as a critical indicator for the biodegradation of the pharmaceuticals in aerobic activated sludge processes. Water Research 160, 10-17.

Weissbrodt, D.G., Holliger, C. och Morgenroth, E. 2017. Modeling hydraulic transport and anaerobic uptake by PAOs and GAOs during wastewater feeding in EBPR granular sludge reactors. Biotechnology and Bioengineering 114(8), 1688-1702.

Wilén, B.-M., Jin, B. och Lant, P. 2003. Impacts of structural characteristics on activated sludge floc stability. Water Research 37(15), 3632-3645.

Wilén, B.-M., Liébana, R., Persson, F., Modin, O. och Hermansson, M. 2018. The mechanisms of granulation of activated sludge in wastewater treatment, its optimization, and impact on effluent quality. Applied Microbiology and Biotechnology, 1-16.

Winkler, M.K., Kleerebezem, R., Strous, M., Chandran, K. och van Loosdrecht, M.C.M. 2013. Factors influencing the density of aerobic granular sludge. Applied Microbiology and Biotechnology 97(16), 7459-7468.

Winkler, M.K.H., Bassin, J.P., Kleerebezem, R., de Bruin, L.M.M., van den Brand, T.P.H. och van Loosdrecht, M.C.M. 2011. Selective sludge removal in a segregated aerobic granular biomass system as a strategy to control PAO-GAO competition at high temperatures. Water Research 45(11), 3291-3299.

Winkler, M.K.H., Kleerebezem, R., Khunjar, W.O., de Bruin, B. och van Loosdrecht, M.C.M. 2012. Evaluating the solid retention time of bacteria in flocculent and granular sludge. Water Research 46(16), 4973-4980.

Wolff, D., Helmholz, L., Castronovo, S., Ghattas, A.K., Ternes, T.A. och Wick, A. 2021. Micropollutant transformation and taxonomic composition in hybrid MBBR – A comparison of carrier-attached biofilm and suspended sludge. Water Research 202.

Wolff, D., Krah, D., Dötsch, A., Ghattas, A.-K., Wick, A. och Ternes, T.A. 2018. Insights into the variability of microbial community composition and micropollutant degradation in diverse biological wastewater treatment systems. Water Research 143, 313-324.

Wu, G., Geng, J., Xu, K. och Ren, H. 2021. Removal of pharmaceuticals by ammonia oxidizers during nitrification. Applied Microbiology and Biotechnology 105(3), 909-921.

Xing, Y., Yu, Y. och Men, Y. 2018. Emerging investigators series: occurrence and fate of emerging organic contaminants in wastewater treatment plants with an enhanced nitrification step. Environmental Science: Water Research & Technology 4(10), 1412-1426.

Xu, Y., Yuan, Z. och Ni, B.-J. 2016. Biotransformation of pharmaceuticals by ammonia oxidizing bacteria in wastewater treatment processes. Science of The Total Environment 566-567, 796-805.

Yu, K. och Zhang, T. 2012. Metagenomic and Metatranscriptomic Analysis of Microbial Community Structure and Gene Expression of Activated Sludge. PLOS ONE 7(5), e38183.

Yu, Y., Han, P., Zhou, L.-J., Li, Z., Wagner, M. och Men, Y. 2018. Ammonia Monooxygenase-Mediated Cometabolic Biotransformation and Hydroxylamine-Mediated Abiotic Transformation of Micropollutants in an AOB/NOB Coculture. Environmental Science & Technology 52(16), 9196-9205.

Yu, Z., Zhang, Y., Zhang, Z., Dong, J., Fu, J., Xu, X. och Zhu, L. 2020. Enhancement of PPCPs removal by shaped microbial community of aerobic granular sludge under condition of low C/N ratio influent. Journal of Hazardous Materials 394, 122583.

Zhang, H., Jia, Y., Khanal, S.K., Lu, H., Fang, H. och Zhao, Q. 2018. Understanding the Role of Extracellular Polymeric Substances on Ciprofloxacin Adsorption in Aerobic Sludge, Anaerobic Sludge, and Sulfate-Reducing Bacteria Sludge Systems. Environmental Science & Technology 52(11), 6476-6486.

Zheng, Y.-M., Yu, H.-Q. och Sheng, G.-P. 2005. Physical and chemical characteristics of granular activated sludge from a sequencing batch airlift reactor. Process Biochemistry 40(2), 645-650.

Zietzschmann, F., Altmann, J., Ruhl, A.S., Dünnbier, U., Dommisch, I., Sperlich, A., Meinel, F. ochJekel, M. 2014. Estimating organic micro-pollutant removal potential of activated carbons using UV absorption and carbon characteristics. Water Research 56, 48-55.

Ågerstrand, M., Berg, C., Björlenius, B., Breitholtz, M., Brunström, B., Fick, J., Gunnarsson, L., Larsson, D.G.J., Sumpter, J.P., Tysklind, M. och Rudén, C. 2015. Improving Environmental Risk Assessment of Human Pharmaceuticals. Environmental Science & Technology 49(9), 5336-5345.

Bilagor

Bilaga A Tabeller och figurer

Ämne	Beskrivning
Acetamiprid	Insekticid
Atenolol	Betablockerare
Azitromycin	Makrolid antibiotika
Benzotriazol	Korrosionshämmare
Bisphenol A	Plasticid
Carbamazepin	Antiepileptiskt
Ciprofloxacin	Fluorkonolog antibiotika
Citalopram	Antidepressivt
Claritromycin	Antibiotika
Diklofenak	lcke steroid anti-inflammatoriskt
Erytromycin	Antibiotika
Estron	Kvinnligt könshormon
Fluconazol	Antisvamp
Furosemid	Blodtryckssänkande
Hydrochlorotiazide	Vätskedrivande
Ibuprofen	lcke steroid anti-inflammatorisk
Imidacloprid	Insekticid
Irbesartan	Blodtryckssänkande
Ketoconazol	Antisvamp
Losartan	Blodtryckssänkande
Metotrexat	Cytostatika
Metoprolol	Betablockerare
Naproxen	lcke-steroid antiinflammatorisk
Oxazepam	Ångestdämpande
Paracetamol	Febernedsättande
Perfluoroktansufonsyra	Ytaktivt
Perfluoroktansyra	Ytaktivt
Propranolol	Betablockerare
Sertraline	Antidepressivt
Sulfameoxazol	Antibiotika
Tramadol	Smärtstillande
Trimetoprim	Antibiotika
Venlafaxine	Antidepressivt
Zolpidem	Sömnmedel

Tabell A1

Organiska mikroföroreningar (OMF) som analyserats i den här studien.

Inflöde [ng1 ¹] Utflöde [ng1 ¹]								
Ämne	CAS		AGS		CAS		AGS	
Acetamiprid	0.4	(0.4)	0.3	(0.3)	0.4	(0.3)	0.3	(0.4)
Atenolol	380.5	(122.8)	344.9	(70.7)	112.2	(34.4)	166.7	(26.0)
Azitromycin	338.0	(232.6)	249.4	(100.1)	110.4	(45.6)	148.8	(85.0)
Benzotriazol	174.8	(33.4)	150.4	(23.6)	79.9	(16.5)	140.7	(14.2)
Bisphenol A	213.9	(24.1)	233.5	(47.9)	44.0	(15.2)	10.1	(0.4)
Carbamazepin	223.9	(62.3)	165.4	(32.0)	184.4	(62.9)	196.4	(56.1)
Ciprofloxacin	296.2	(142.5)	250.2	(75.0)	73.6	(25.6)	76.8	(7.3)
Citalopram	194.8	(36.9)	174.6	(9.1)	132.9	(23.3)	164.2	(24.6)
Claritromycin	73.8	(45.2)	75.3	(51.1)	46.8	(19.6)	66.0	(39.6)
Diklofenak	628.4	(95.1)	501.8	(48.3)	477.1	(205.5)	454.8	(166.9)
Erytromycin	5.5	(7.1)	5.4	(5.9)	3.6	(4.0)	1.6	(1.9)
Estron	47.1	(6.1)	35.1	(3.1)	< LOQ = 0.2		10.4	(4.0)
Fluconazol	17.7	(4.7)	16.0	(8.1)	15.5	(2.6)	19.2	(5.3)
Furosemid	788.7	(181.4)	684.6	(87.7)	490.1	(141.6)	551.7	(85.0)
Hydrochlorotiazide	128.6	(34.2)	104.7	(11.4)	124.3	(39.2)	145.5	(33.4)
lbuprofen	5728.2	(979.7)	4829.1	(800.6)	< LOQ = 100)	53.9	(34.8)
Imidacloprid	1.3	(0.3)	1.7	(0.5)	1.5	(0.3)	1.8	(0.4)
Irbesartan	250.4	(41.4)	199.7	(7.6)	181.8	(53.7)	222.2	(27.8)
Ketoconazol	185.2	(79.1)	200.2	(47.1)	9.9	(4.5)	12.4	(3.9)
Losartan	1495.4	(243.3)	1253.3	(85.6)	240.8	(98.0)	540.4	(87.7)
Metotrexat	5.1	(2.7)	3.7	(1.4)	< LOQ = 2		< LOQ = 2	
Metoprolol	918.6	(182.9)	757.2	(83.4)	696.8	(222.6)	857.0	(168.6)
Naproxen	4685.9	(519.9)	4139.7	(351.0)	147.5	(13.6)	232.7	(65.1)
Oxazepam	174.9	(33.2)	146.3	(18.5)	132.4	(47.4)	158.9	(40.7)
Paracetamol	31697.7	(3524.6)	25196.2	(3014.7)	20.9	(9.7)	478.5	(272.1)
Perfluoroktansufonsyra	3.0	(0.1)	2.4	(0.9)	4.1	(0.7)	3.2	(0.2)
Perfluoroktansyra	7.1	(0.5)	5.9	(1.1)	3.3	(0.8)	1.8	(0.5)
Propranolol	28.0	(6.0)	24.4	(1.9)	23.1	(5.3)	26.3	(4.4)
Sertraline	122.0	(39.5)	113.5	(17.7)	31.0	(21.9)	36.3	(6.3)
Sulfameoxazol	74.0	(34.2)	53.0	(18.3)	21.5	(10.5)	21.3	(10.7)
Tramadol	461.5	(137.9)	350.6	(58.4)	366.8	(144.8)	446.9	(100.8)
Trimetoprim	72.3	(23.8)	42.5	(21.7)	61.7	(7.8)	52.6	(13.0)
Venlafaxine	372.0	(70.9)	275.3	(24.3)	313.2	(92.7)	337.9	(69.6)
Zolpidem	3.1	(0.9)	1.7	(1.0)	2.6	(0.3)	2.0	(0.5)

Tabell A2

Sammanställning av koncentrationer av undersökta OMF i inflöde och utflöde från AGS och CAS. Ämne som var icke detekterbara eller under detektionsgränsen är markerade som <LOQ. Värdena inom parentes är standardavvikelsen (n=4). Läkemedelssubstanser är markerade med fet stil.

Ämne	Användningsområde
Atenolol	Betablockerare
Carbamazepin	Antiepileptiskt
Citalopram	Antidepressivt
Diklofenak	Icke-steroid antiinflammatorisk
Fluconazol	Antisvamp
Ketoconazol	Antisvamp
Losartan	Blodtryckssänkande
Metoprolol	Betablockerare
Naproxen	Icke-steroid antiinflammatorisk
Oxazepam	Ångestdämpande
Sertralin	Antidepressivt
Sulfametoxazol	Antibiotika
Tramadol	Smärtstillande
Trimetoprim	Antibiotika
Venlafaxine	Antidepressivt
Zolpidem	Sömnmedel

Tabell A3

Lista med spikade OMF i de satsvisa experimenten samt beskrivning av dess användningsområde.

	k _a	Median k _d	Uppskattad avskiljninggenom sorption
Compound	[L kgSS ⁻¹]	[L kgSS ⁻¹]	[%]
Atenolol	$1.5^{a}, 1.6 \cdot 10^{3b}, 35^{d}, 64 \pm 88^{h}$	49.5	13
Carbamazepin	1.7-1.8ª, 36-50 ^d , 2.7 ^e , 1.2±0.5 ^f , 17±1 ^g , 135±39 ^h ,<2.7 ⁱ	2.7	1
Citalopram	2.1 · 10 ^{2b} , 3.2 ^e	106.6	24
Diklofenak	$3.1-3.2^{a}, <30^{d}, 16\pm3^{f}, 118\pm95^{h}, 32-78^{i}$	30	8
Fluconazol	1.3°	1.3	0
Ketoconazol	8.5 · 10 ^{3b} ,	8500	96
Losartan	2.4°	2.4	1
Metoprolol	<loq<sup>a, 2.1^e</loq<sup>	2.1	1
Naproxen	2.5-2.9ª, <30 ^d , 17-35 ⁱ	26	7
Oxazepam	$1.1 \cdot 10^{3b}, 2.1^{e}, 47 \pm 1^{g}$	47	12
Sertraline	1.7 · 10 ^{4b} , 4.4 ^e	8502.2	96
Sulfametoxazol	$2.3 - 2.5^{a}, 3.7 \cdot 10^{2b}, < 30^{d}, 77 \pm 60^{h}, 8 - 11^{i}$	30	8
Tramadol	1.9 · 10 ^{2b} , 2.2 ^e , 13±3 ^g	13	4
Trimethoprim	$2.3\text{-}2.4^{\text{a}}, 4.2\cdot10^{2\text{b}}, 1.6^{\text{e}}, 253\pm37^{\text{h}}, 25^{\text{i}}$	25	7
Venlafaxin	1.0 · 10 ^{2b}	100	23
Zolpidem	n.a.	0	0

Tabell A4

Sorptionskoefficienten, kd, rapporterad från litteraturvärden. Avskiljningen beräknas som medianvärdet av k_d och biomassakoncentrationen som använts i den här studien. Standardavvikelser visas som ±.

^a Park et al., 2017 ^d Stevens-Garmon et al., 2011 ^e Golovko et al., 2021 ^h Radjenović et al., 2009 ⁱ Fernandez-Fontaina et al., 2013

011 ^s Wick et al., 2009 ^c Polesel et al., 2015

9 ^b Hörsing et al., 2011 ^f Ternes et al., 2004



■CAS □AGS

Figur A1

Genomsnittlig avskild mängd OMF i CAS och AGS. Där ett värde saknas var avskiljningen antingen noll eller negativ.

Referenser

Fernandez-Fontaina, E., Pinho, I., Carballa, M., Omil, F., och Lema, J.M., 2013. Biodegradation kinetic constants and sorption coefficients of micropollutants in membrane bioreactors. Biodegradation 24, 165–177.

Golovko, O., Örn, S., Sörengård, M., Frieberg, K., Nassazzi, W., Lai, F.Y., och Ahrens, L., 2021. Occurrence and removal of chemicals of emerging concern in wastewater treatment plants and their impact on receiving water systems. Sci. Total Environ. 754, 142122.

Hörsing, M., Ledin, A., Grabic, R., Fick, J., Tysklind, M., Jansen, J. la C., och Andersen, H.R., 2011. Determination of sorption of seventy-five pharmaceuticals in sewage sludge. Water Res. 45, 4470–4482.

Lindberg, R.H., Fick, J., och Tysklind, M., 2010. Screening of antimycotics in Swedish sewage treatment plants – Waters and sludge. Water Res. 44, 649–657. https://doi.org/10.1016/J.WATRES.2009.10.034

Matsuo, H., Sakamoto, H., Arizono, K., och Shinohara, R., 2011. Behavior of pharmaceuticals in waste water treatment plant in Japan. Bull. Environ. Contam. Toxicol. 87, 31–35.

Park, J., Yamashita, N., Park, C., Shimono, T., Takeuchi, D.M., och Tanaka, H., 2017. Removal characteristics of pharmaceuticals and personal care products: Comparison between membrane bioreactor and various biological treatment processes. Chemosphere 179, 347–358.

Polesel, F., Lehnberg, K., Dott, W., Trapp, S., Thomas, K. V., och Plósz, B.G., 2015. Factors influencing sorption of ciprofloxacin onto activated sludge: Experimental assessment and modelling implications. Chemosphere 119, 105–111.

Radjenović, J., Petrović, M., och Barceló, D., 2009. Fate and distribution of pharmaceuticals in wastewater and sewage sludge of the conventional activated sludge (CAS) and advanced membrane bioreactor (MBR) treatment. Water Res. 43, 831–841.

Stevens-Garmon, J., Drewes, J.E., Khan, S.J., McDonald, J.A., och Dickenson, E.R.V., 2011. Sorption of emerging trace organic compounds onto wastewater sludge solids. Water Res. 45, 3417–3426.

Ternes, T.A., Herrmann, N., Bonerz, M., Knacker, T., Siegrist, H., och Joss, A., 2004. A rapid method to measure the solid–water distribution coefficient (Kd) for pharmaceuticals and musk fragrances in sewage sludge. Water Res. 38, 4075–4084.

Wick, A., Fink, G., Joss, A., Siegrist, H., och Ternes, T.A., 2009. Fate of beta blockers and psycho-active drugs in conventional wastewater treatment. Water Res. 43, 1060–1074.

Svenskt Vatten Utveckling Svenskt Vatten AB POSTADRESS BOX 14057, 16714 Bromma BESÖKSADRESS Gustavslundsvägen 12, 16751 Bromma

TELEFON 08-50600200

E-MAIL svensktvatten@svensktvatten.se

www.svensktvatten.se