

# QUECKSILBER IM SCHWEIZER ABWASSER

## KONZENTRATIONEN, MASSENFLÜSSE, SPEZIIERUNG UND RÜCKHALT

In einer landesweiten Studie wurde Quecksilber in Abwässern und Klärschlämmen analysiert, jährliche Gesamtmengen des abwasserbürtigen Quecksilbers ermittelt und die Einhaltung der gesetzlichen Vorgaben überprüft. Ebenso wurde die durchschnittliche Fracht pro Einwohner und der Beitrag der Abwasserreinigungsanlagen zur Quecksilberbelastung der Oberflächengewässer ermittelt. Auf nationaler Ebene waren diese Kennzahlen bisher nicht bekannt.

Michael Berg\*; Elke Suess; Lara Cayo, Eawag

Sylvain Bouchet, Eawag und ETH Zürich

Stephan J. Hug; Ralf Kaegi; Andreas Voegelin, Eawag

Lenny H.E. Winkel, Eawag und ETH Zürich

Andreas M. Buser, Bundesamt für Umwelt BAFU

### RÉSUMÉ

#### MERCURE DANS LES EAUX USÉES SUISSES – CONCENTRATIONS, DÉBITS MASSIQUES, SPÉCIATION CHIMIQUE ET RETENUE

En Suisse, la commercialisation du mercure (Hg) est régie par l'Ordonnance sur la réduction des risques liés aux produits chimiques. En raison de son cycle mondial complexe, les connaissances concernant les sources spécifiques, les voies d'émission et les débits massiques restent lacunaires. Les STEP jouent un rôle clé dans la limitation de rejet du Hg dans les eaux de surface. Elles peuvent également aider à identifier les sources d'émission. Nous avons étudié les concentrations, les charges, la spéciation chimique ainsi que l'élimination du Hg dans 64 (étude préliminaire) et 28 STEP (étude principale) communales en Suisse. De plus, le comportement du Hg a été analysé tout au long des différentes étapes de traitement au sein d'une STEP ultramoderne. Les résultats sont représentatifs pour la Suisse et fournissent une vue d'ensemble sur i) les plages de concentration actuelles du Hg dans les eaux usées et les boues d'épuration, ii) la charge moyenne par personne de Hg dans les eaux usées, et iii) les apports en Hg favorisés par les eaux usées dans les eaux de surface. La charge en Hg total (THg) estimée à partir de ces résultats dans les eaux usées brutes de l'ensemble de la Suisse s'élève à  $130 \pm 30$  kg/an (15,7 mg/

### HINTERGRUND

Quecksilber (Hg) ist weltweit als prioritärer Schadstoff eingestuft. Die maximale Hg-Gesamtkonzentration (THg) in Oberflächengewässern ist in der Schweiz gesetzlich auf 30 ng/l [1] und in den USA auf 50 ng/l [2] festgelegt. In der EU betragen die Umweltqualitätsnormen 70 ng/l für kurzfristige Belastungen in Oberflächengewässern und 20 mg/kg in der Biota für langfristige Belastungen [3]. Um die menschliche Gesundheit und die Umwelt vor anthropogenen Emissionen und Freisetzungen von Quecksilber und Quecksilberverbindungen zu schützen, wurde 2013 das globale *Minamata*-Übereinkommen formuliert [4]. Zu den Hauptzielen der Konvention gehören die Identifizierung, Quantifizierung, Kontrolle und Reduktion der Hg-Emissionen sowie ein besseres Verständnis relevanter Transport- und Transformationsprozesse [4].

Abwasserreinigungsanlagen (ARA) spielen eine Schlüsselrolle bei der Begrenzung der Einleitung von Hg in die aquatische Umwelt, sie können aber auch bei der Identifizierung von Emissionsquellen helfen. Neben direkten industriellen (global 168 t/Jahr, geschätzt für 2010) und häuslichen Abwassereinleitungen

\* Kontakt: michael.berg@eawag.ch

(©Photosampler/123RF.com)

(global 48 t/Jahr, geschätzt für 2010) waren ARA in der Vergangenheit relevante Hg-Emissionsquellen für Oberflächengewässer [5]. Zusätzlich wurden Emissionen aus der Landwirtschaft, von Spitälern, Zahnarztbetrieben, Forschungsinstituten, aus Hausmüll, von Deponiesickerwasser, aus der Strassenentwässerung sowie aus der Chemie-, Zement- und Metallindustrie als Quellen identifiziert [6]. In den letzten 20 Jahren wurden die meisten dieser Quellen aufgrund strengerer Vorschriften deutlich reduziert.

In Studien aus Schweden, Grossbritannien, der Schweiz, Österreich, Deutschland und Brasilien wurden im Klärschlamm (Faulschlamm) THg-Konzentrationen zwischen 0,4 und 7 mg/kg gemessen [7–9]. Die Hg-Gehalte im Klärschlamm sind relevant, da in vielen Ländern immer noch ein grosser Teil des Klärschlammes zur landwirtschaftlichen Düngung verwendet wird, beispielsweise ~60% in den USA oder ~47% in der EU [7]. In der Schweiz darf Klärschlamm seit 2006 nicht mehr als Dünger genutzt werden (Fig. 1). Stattdessen wird er in Klärschlammverbrennungsanlagen, Zementwerken und Kehrrichtverbrennungsanlagen verbrannt, und die Rückstände aus der Rauchgasreinigung werden fachgerecht entsorgt [10, 11].

Die Spezierung von Hg ist für die Toxizität von Bedeutung. Bereits geringe Mengen an Methyl-Hg (MeHg) können durch Bioakkumulation ökotoxikologische Effekte herbeiführen und über die Nahrungskette auch den Menschen gefährden [12]. Daher wird den methylierten Hg-Verbindungen spezielle Aufmerksamkeit gewidmet. In früheren Studien konnte MeHg im Abwasser nachgewiesen werden mit Konzentrationen von 0,4 bis 7,5 ng/l im Rohabwasser und bis zu 2 ng/l im gereinigten Abwasser [13].

Basierend auf den verfügbaren Studien ist anzunehmen, dass ARA dank ihrer hohen Rückhalteeffizienz keine wichtige Hg-Quelle für Oberflächengewässer darstellen. Es fehlen aber umfassende nationale Studien, um diese Annahme solide zu untermauern. Die geografische Beschaffenheit der Schweiz ist jedoch bestens geeignet, um den Beitrag von ARA zur Hg-Belastung von Oberflächengewässern zu quantifizieren, da fast die gesamte Schweiz (~98%) an ARA angeschlossen ist und alle grossen Flüsse ihren Ursprung innerhalb der Landesgrenzen haben [14].

In der vorliegenden Studie wurden 28 repräsentative ARA der Schweiz untersucht und die THg-Konzentrationen im Rohabwasser und im gereinigten Abwasser sowie die THg-Konzentrationen und die Hg-Spezierung in Klärschlamm bestimmt. Darüber hinaus wurde in der grössten ARA der Schweiz, der ARA Zürich-Werdhölzli, eine detailliertere Studie durchgeführt, um die Hg-Konzentrationen und -Frachten innerhalb der ARA entlang der Reinigungsstufen zu bestimmen. Mit diesem umfassenden Datensatz wurden schliesslich

- die Gesamt- und Pro-Kopf-Frachten von THg ermittelt,
- die Hg-Rückhalteeffizienz bestimmt und
- der abwasserbürtige THg-Eintrag in die Oberflächengewässer abgeschätzt.

## UNTERSUCHUNGSMETHODEN

### PROBENNAHME

Die Standorte und Einzugsgebiete der untersuchten ARA sind in Figur 2 ersichtlich. 2016 wurden THg-Konzentrationen im Klärschlamm von 64 ARA voruntersucht [15]. Darauf aufbauend wurden 28 ARA aufgrund ihrer unterschiedlichen Grösse

sowie unterschiedlicher Einzugsgebiete (städtisch, ländlich, industriell) für die vorliegende Studie ausgewählt (Fig. 2). Die charakteristischen Eigenschaften dieser ARA sind im Annex von Suess *et al.* [9] aufgeführt. Diese 28 ARA reinigen das Abwasser von 2,6 Mio. Einwohnern, was rund 31% der Schweizer Bevölkerung (2017: 8,4 Mio.) entspricht. Im Juni 2017 wurde in allen Anlagen Rohabwasser, Klärschlamm und gereinigtes Abwasser beprobt. Die rohen Abwässer (Zulauf) wurden nach Grobrechen und Sandfang als 24-h-Sammelprobe entnommen, die gereinigten Abwässer nach dem letzten Filtrationsschritt (Ablauf). Der Klärschlamm wurde im zweiten Faulungsprozess beprobt und hatte ein durchschnittliches Alter von  $26 \pm 11$  Tagen [9]. Die präsentierten Hg-Konzentrationen im Klärschlamm beziehen sich immer auf die Trockenmasse.

Eine detaillierte Studie wurde im August 2017 in der ARA Zürich-Werdhölzli durchgeführt, um die Konzentrationen, Spezierung und Rückhaltung von Hg entlang der Reinigungsstufen zu bestimmen. Zusätzlich wurden die Tagesschwankungen der Hg-Konzentrationen anhand einer einwöchigen Probenahme-kampagne ermittelt. Dazu wurden täglich 24-h-Sammelproben von rohem und gereinigtem Abwasser gesammelt und am letzten Tag mehrere Stichproben entlang der Reinigungsstufen entnommen.

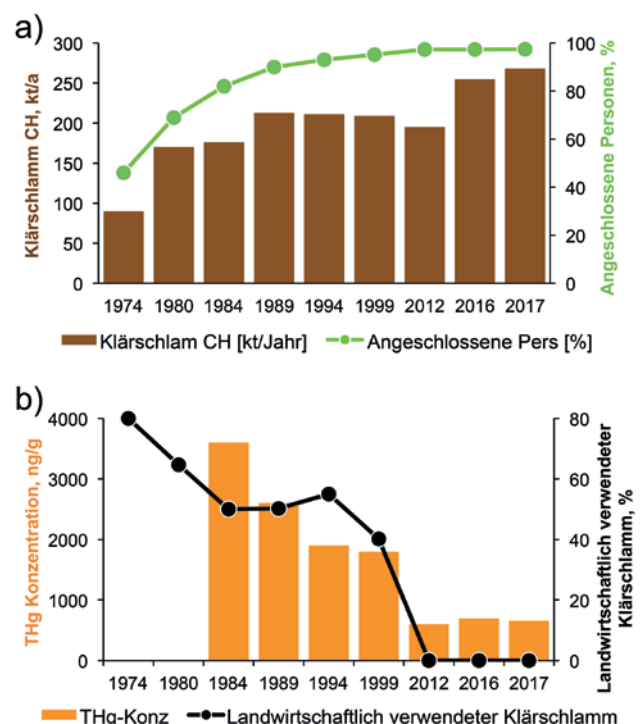


Fig. 1 a) Entwicklung der gesamtschweizerischen Klärschlammmenge seit 1974 sowie der prozentuale Anteil der an ARA angeschlossenen Bevölkerung (grüne Linie) [8]. b) Durchschnittliche THg-Konzentration in Klärschlamm der Schweizer ARA und dessen Verwendung als landwirtschaftlicher Dünger (schwarze Linie) [8]. Seit 2006 darf Klärschlamm in der Schweiz nicht mehr als Dünger ausgebracht werden. Die THg-Werte für 2016 und 2017 wurden in der vorliegenden Studie ermittelt. Für die Jahre vor 1984 sind keine gesamtschweizerischen THg-Daten verfügbar.



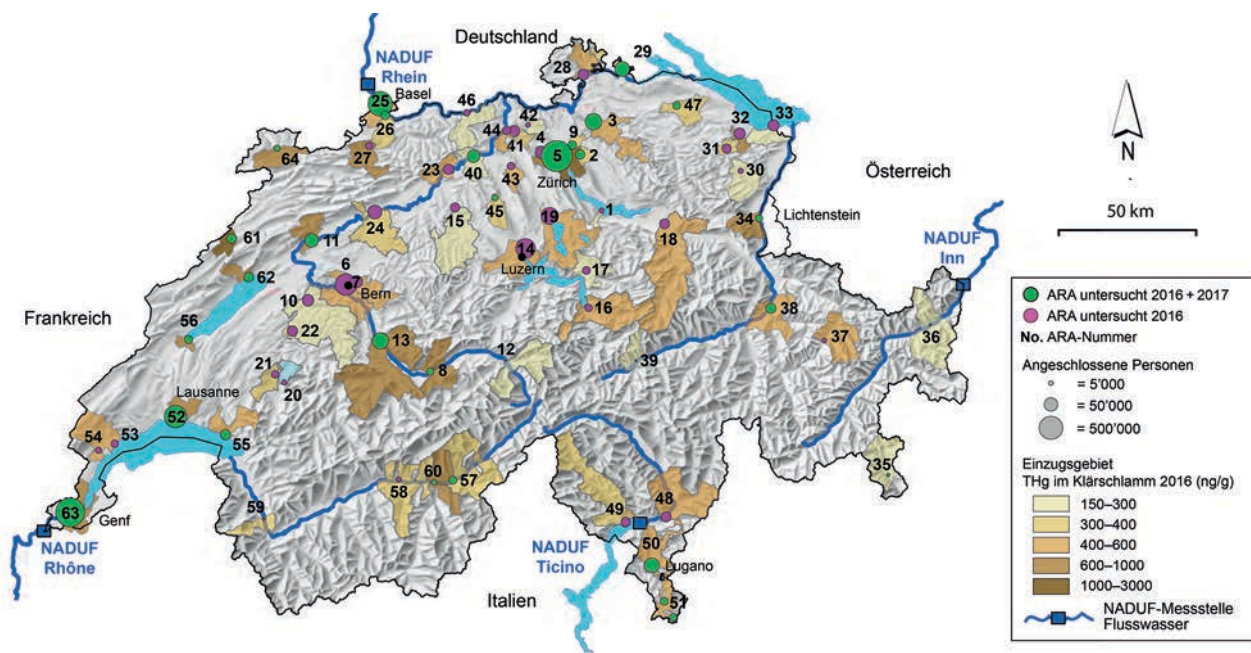


Fig. 2 Karte der Schweiz mit den untersuchten ARA, den entsprechenden Einzugsgebieten sowie den nationalen Messstellen (NADUF) an der Schweizer Grenze der Flüsse Rhein, Rhone, Inn und Ticino. Die Grösse der Punkte stellt die Anzahl der angeschlossenen Einwohner dar, die beige bis braun eingefärbten Einzugsgebiete zeigen die THg-Konzentration im Klärschlamm an. Die Namen und ausgewählte Merkmale der ARA sind im Annex von Suess et al. [9] aufgeführt.

## PROBENAUFBEREITUNG

Gelöste Hg-Konzentrationen wurden nach Filtration (0,22 µm, Nylon, BGB) und Ansäuerung mit 1% HCl analysiert. Die Gesamtkonzentrationen im (trüben) Abwasser wurden nach einem mikrowellenunterstützten Aufschluss mit *Aqua regia* und Wasserstoffperoxid bestimmt. Die maximale Aufschluss Temperatur wurde auf 110 °C begrenzt, um Hg-Verluste durch Verflüchtigung zu vermeiden [9]. Die gereinigten (klaren) Abwässer wurden ungefiltert direkt angesäuert. Die Klärschlammproben wurden gefriergetrocknet, homogenisiert und ähnlich wie die Abwässer (aber ohne H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> wegen exzessivem Schäumen) im Mikrowellenofen aufgeschlossen. Die Effizienz der Mikrowellenextraktion lag im Schnitt bei 94±8 Prozent.

## ANALYTIK

THg im rohen und gereinigten Abwasser sowie im aufgeschlossenen Klärschlamm wurde mittels ICP-MS (ICP-QQQ, Agilent 8900) bestimmt. Zur Messung wurden die Hg-Isotope <sup>201</sup>Hg und <sup>202</sup>Hg im Kollisions- und im Reak-

tionsmodus aufgezeichnet, mit Helium oder Sauerstoff zur Beseitigung von Interferenzen. Die Nachweisgrenzen lagen bei 0,3 ng/l in gereinigtem Abwasser und bei 0,11 ng/g im Klärschlamm. Die Spezifizierung von Monomethylquecksilber (MMHg) erfolgte mittels Isotopenverdünnungs-Gaschromatographie-ICP-MS (LOD 0,1 ng/g). Die Wiederfindungen von THg und MMHg betrugen 92–112%. Die vollständigen Angaben zur Analytik sowie deren Leistungsmerkmale und Qualitätssicherung sind in Referenz [9] beschrieben.

## ERGEBNISSE

### KONZENTRATIONEN UND FRACHTEN

#### Rohabwasser

Die THg-Konzentrationen in den Rohwasserzuläufen der 28 ARA (Wasser und Schwebstoffe) deckten mit Konzentrationen von 9 bis 750 ng/l zwei Grössenordnungen ab, der Durchschnitt lag bei 110 ng/l (Tab. 1, Fig. 3a). Die in der Wasserphase effektiv gelösten Anteile waren 0,6 bis 59 ng/l und machten 1 bis 27% des

THg aus (durchschnittlich 7%). Die in den Zuläufen der ARA ermittelten Gesamtfrachten von THg beliefen sich auf <0,05 bis 39,5 g/Tag (Durchschnitt 4,8±7,7 g/Tag), bei Gesamtschwebstoff-Frachten von 150 bis 52 100 kg/Tag.

Die Schweizer ARA mit den höchsten Hg-Konzentrationen haben einen hohen Anteil an Industrieabwasser (z.B. La Chaux-de-Fonds [ChdF], Visp, Vernier [VERN], Vevey [VEV], Chur) und entsprechend höhere Pro-Kopf-Frachten (Fig. 3a und c). Es bedarf weiterer Untersuchungen, ob diese Werte mit Emissionen aus der chemischen Industrie, der Uhren- und Schmuckindustrie oder mit anderen Quellen zusammenhängen.

#### Gereinigtes Abwasser

Die THg-Konzentrationen im gereinigten Abwasser lagen zwischen <0,3 ng/l und 92 ng/l (Mittelwert 8±20 ng/l) (Tab. 1, Fig. 3a). Dieser Konzentrationsbereich ist vergleichbar mit ausländischen Studien von ARA mit hoher Rückhalteeffizienz [9]. Die THg-Frachten in gereinigtem Abwasser reichten von 3 bis 950 mg/Tag. Für den Eintrag von Hg aus ARA in Ober-

| Gemessene Konzentrationen          | Rohes Abwasser | Klärschlamm    |                    | Gereinigtes Abwasser |
|------------------------------------|----------------|----------------|--------------------|----------------------|
|                                    | THg            | THg            | MMHg               | THg                  |
| Bereich                            | 9–750 ng/l     | 320–1400 ng/g  | <DL [0,1]–8,6 ng/g | <DL [0,3]–92 ng/l    |
| Mittelwert                         | 110 ± 150 ng/l | 720 ± 280 ng/g | 1,6 ± 2,1 ng/g     | 8 ± 20 ng/l          |
| Median                             | 57 ng/l        | 674 ng/g       | 0,7 ng/g           | 0,9 ng/l             |
| <b>Gesamtschweizerische Fracht</b> |                |                |                    |                      |
| CH Tagesfracht (g/Tag)             | 350 ± 90       | 530 ± 90       | 1,2 ± 0,2          | 13 ± 1,3             |
| CH Jahresfracht (kg/Jahr)          | 130 ± 30       | 190 ± 30       | 0,5 ± 0,1          | 4,7 ± 0,5            |
| CH Pro-Kopf-Fracht (µg/Kopf/Tag)   | 42 ± 11        | 64 ± 11        | 0,15 ± 0,03        | 1,6 ± 0,16           |

Tab. 1 Hg-Konzentrationsbereiche und Frachten in Rohabwasser, gereinigtem Abwasser und in Klärschlamm der untersuchten ARA.

flächengewässer lässt sich daraus für die Schweiz eine Gesamtfracht von  $13 \pm 1,3$  g THg/Tag und eine Pro-Kopf-Fracht von  $1,6 \pm 0,16$  µg THg/Kopf/Tag ableiten (Tab. 1). Die Hg-Rückhalteffizienz der beprobten ARA reichte von 85 bis 99,7% und lag im Durchschnitt bei  $96 \pm 4\%$ , was auf eine insgesamt effektive Hg-Entfernung aus dem Abwasser hinweist.

#### KONZENTRATIONEN UND SPEZIIERUNG IM KLÄRSCHLAMM

Die 28 Klärschlämme von 2017 wiesen THg-Konzentrationen zwischen 320 und 1400 ng/g (Median 674 ng/g, Mittelwert  $720 \pm 280$  ng/g) auf (Fig. 3c) [9]. Für die 64 im Jahr 2016 untersuchten ARA lagen die THg-Werte zwischen 160 und 2600 ng/g (Median 445 ng/g, Mittelwert  $520 \pm 380$  ng/g) (Fig. 2). Bei den sowohl 2016 als auch 2017 beprobten ARA war die Differenz der beiden THg-Konzentrationen durchschnittlich ~20%, wobei sich bei 16 der 28 ARA die Konzentrationen weniger als 10% unterschieden. Dies zeigt, dass die Hg-Einträge in die ARA in der Regel relativ konstant sind, was von *Vriens et al.* auch für viele andere Spurenelemente gezeigt wurde [15]. Darüber hinaus stimmt der gemessene Bereich von THg gut überein mit Klärschlamm-Langzeit-Messreihen der Schweizer Kantone sowie mit Literaturdaten aus europäischen Ländern (~100–3000 ng/g) [9, 16–18]. Die MMHg-Konzentrationen reichten von <0,1 ng/g (DL) bis 8,6 ng/g (Median 0,7 ng/g, Mittelwert  $1,6 \pm 2,2$  ng/g), was bis zu 0,8% des THg entspricht und mit internationalen Studien vergleichbar ist [9, 13].

#### VARIABILITÄT ÜBER DIE STUFEN DER ABWASSERBEHANDLUNG

Im Rohabwasser der ausführlich untersuchten ARA Zürich-Werdhölzli variierte THg innerhalb einer Woche zwischen

29 und 73 ng/l, mit den höchsten Konzentrationen an Arbeitstagen. Entlang der Reinigungsstufen nahm THg kontinuierlich ab von anfänglich  $52 \pm 16$  ng/l im Rohwasserzulauf,  $22 \pm 2$  ng/l nach der

Vorklärung,  $9 \pm 2$  ng/l nach dem Nachklärbecken, zu schliesslich <0,3 ng/l (DL) im gereinigten Abwasser (Fig. 4). Die höchsten THg-Konzentrationen ( $203 \pm 56$  ng/l) wurden im Rücklaufschlamm gemes-

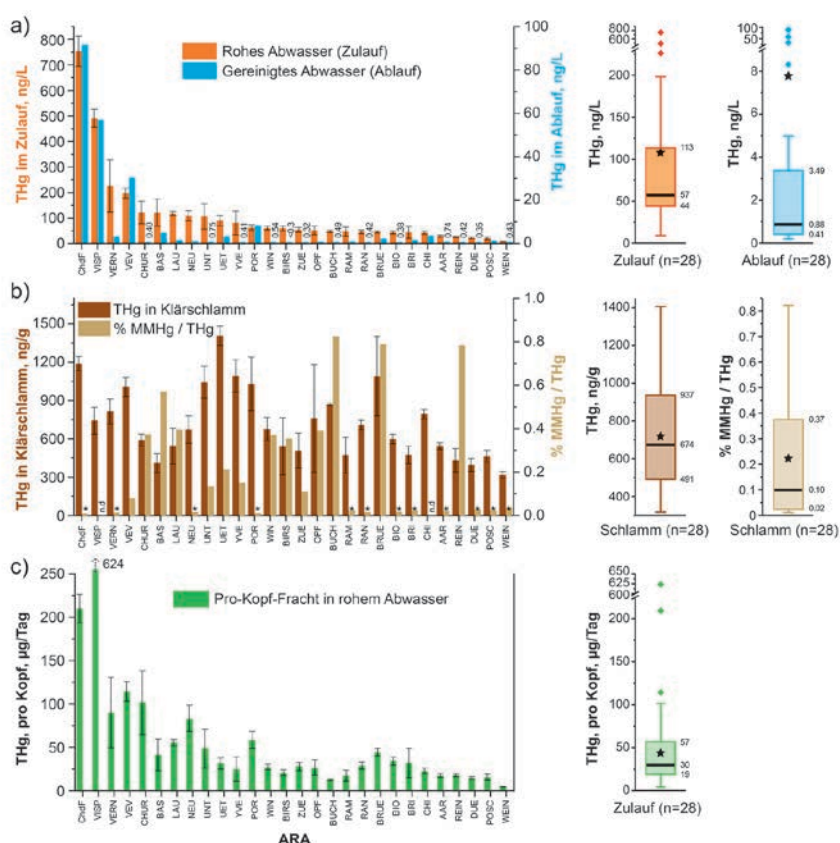


Fig. 3 a) THg-Konzentrationen in Rohabwasser und in gereinigtem Abwasser von 28 Schweizer ARA im Jahr 2017. Die Box-Plots zeigen die Mediane, Mittelwerte (\*), Quartile (25%, 75%), Whisker und die Ausreisser. b) THg-Konzentrationen in Klärschlamm und prozentuale Anteile von Monomethylquecksilber (MMHg). In zwölf Klärschlammproben lagen die MMHg-Konzentrationen unter der Detektionslimite von 0,1 ng/g (gekennzeichnet durch Stern). c) THg-Pro-Kopf-Frachten, berechnet aus der Konzentration im Rohabwasserzulauf und der Anzahl der angeschlossenen Personen. Die vollständigen Namen der untersuchten ARA sind im Annex von Suess et al. [9] aufgeführt.

sen. Wie in *Figur 4* ersichtlich, bewirkt dieser Kreislauf eine ungefähr 5-fache THg-Anreicherung in der biologischen Reinigungsstufe (Bioreaktor) gegenüber der Vorklärung.

Von den untersuchten Feststoffen waren die Schwebstoffe der Vorklärung am stärksten mit THg belastet ( $416 \pm 28$  ng/g). Diese im Vorklärbecken abgesetzten Schwebstoffe machen den grössten Anteil der THg-Konzentration im entwässerten Klärschlamm aus ( $465 \pm 40$  ng/g). In der biologischen Reinigungsstufe, bei der Nitratreduktion (Denitrifikation) und der Phosphorreduktion durch Eisenfällung, sanken die THg-Konzentrationen der Schwebstoffphase auf ein Drittel ( $163 \pm 3$  ng/g). Die niedrigsten THg-Konzentrationen unter den Feststoffen wurden im Fett ( $72 \pm 11$  ng/g) gemessen. Die MMHg-Konzentrationen lagen bei  $0,2$ – $1,6$  ng/g ( $0,1$ – $0,8\%$  des THg) (*Fig. 4*), was im selben Bereich wie bei den anderen untersuchten ARA liegt.

Die Verbrennungsanlage der ARA Zürich-Werdhölzli verbrennt sowohl den eigenen Klärschlamm als auch Klärschlamm aus anderen ARA. Für die Jahre 2016–2018 lag die berichtete THg-Konzentration in der Verbrennungssasche im Bereich von  $100$ – $430$  ng/g, während die Rückstände aus der Rauchgasbehandlung eine 100-mal höhere THg-Konzentration von  $11$ – $41$  µg/g aufwiesen (*Fig. 4*) [19]. In

der Schweiz liegt der gesetzliche Grenzwert für Hg-Emissionen aus Verbrennungsanlagen bei  $0,05$  mg/m<sup>3</sup> [20]. Die ARA Zürich-Werdhölzli meldete 2017 eine durchschnittliche tägliche THg-Konzentration im Abgas von  $0,016$  mg/m<sup>3</sup> [21]. Dies deutet insbesondere auf eine effektive Rauchgasbehandlung hin, wobei der grösste Teil des THg in den Rückständen abgeschieden wird. Der Gesamtrückhaltegrad der Klärschlammverbrennung betrug  $\sim 95\%$ . Zusammen mit  $99,5\%$  Entfernung durch die Abwasserbehandlung wurden somit insgesamt  $95\%$  des Hg von der ARA zurückgehalten.

### PRO-KOPF-FRACHTEN

Der gewichtete Mittelwert der THg-Konzentration der untersuchten Rohabwässer ( $104 \pm 28$  ng/l) extrapoliert auf die gesamte Abwassermenge der Schweiz ergibt einen geschätzten jährlichen Hg-Eintrag in ARA von  $130 \pm 30$  kg/Jahr (*Tab. 1*). Für die Schweiz mit  $8,29$  Mio. an ARA angeschlossenen Personen ( $98\%$  der Bevölkerung im Jahr 2017 [22]) entspricht dies einer Pro-Kopf-Belastung von  $43 \pm 11$  µg/Kopf/Tag (*Fig. 3b*). Damit ist der Schweizer Durchschnitt vergleichbar mit Schätzungen von Österreich ( $55$  µg/Kopf/Tag), der Stadt Frankfurt ( $59$  µg/Kopf/Tag) oder Schweden ( $67$  µg/Kopf/Tag) [9]. Die ARA Visp ( $620$  µg THg/Kopf/Tag) und La Chaux-de-Fonds ( $210$  µg THg/Kopf/Tag),

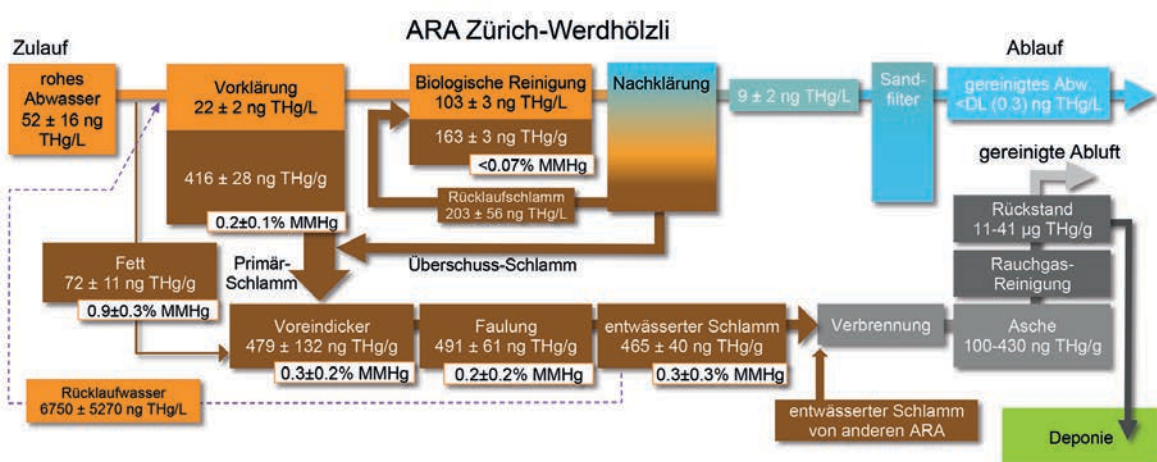
wiesen höhere Pro-Kopf-Belastungen auf. Diese ARA befinden sich in Einzugsgebieten, die stark von der chemischen Industrie und der Uhrenindustrie beeinflusst sind. Für die ARA Zürich-Werdhölzli hingegen, die einen viel geringeren Anteil an Industrieabwässern aufweist, betrug die THg-Fracht im Rohabwasser  $8 \pm 3$  g THg/Tag, mit einer entsprechenden Pro-Kopf-Fracht von  $19 \pm 6$  µg THg/Kopf/Tag.

Aus der gewichteten mittleren THg-Konzentration im Klärschlamm und der jährlichen Schweizer Schlammproduktion wurde eine THg-Fracht von  $190 \pm 30$  kg/Jahr berechnet (*Tab. 1*). Diese schlamm-basierte Schätzung liegt etwa  $50\%$  höher als die aus THg im Rohabwasser berechnete THg-Fracht. Da die Schlammproben die Hg-Frachten über längere Zeiträume integrieren als die Zuflussproben, dürfte diese Abschätzung realistischer sein.

### UMWELTAUSWIRKUNGEN

#### RELEVANZ DES Hg-EINTRAGS AUS ARA IN OBERFLÄCHENGEWÄSSER

Im Jahr 2017 betrug die Abflussmenge der Hauptflüsse der Schweiz gesamthaft  $194$  Mio. m<sup>3</sup>/Tag [14], wobei der überwiegende Anteil über den Rhein ( $71\%$ ) und die Rhone ( $23\%$ ) abfloss (*Fig. 2*). Für die gesamte Schweiz ( $8,29$  Mio. angeschlossene Einwohner im Jahr 2017) wird eine Abwassermenge von  $\approx 4,1$  Mio. m<sup>3</sup>/Tag



*Fig. 4 THg und MMHg in Abwasser (orange und blau) und Klärschlamm (braun) entlang der Behandlungsstufen der ARA Zürich-Werdhölzli. Durch Sorption an Partikel folgt Hg mehrheitlich der festen Phase. Der entwässerte Klärschlamm wird der betriebsinternen Verbrennungsanlage zugeführt. Die THg-Rückhalteeffizienz der ARA Zürich-Werdhölzli beträgt  $\geq 99,5\%$  für die Wasseraufbereitung und etwa  $95\%$  für die Schlammverbrennung.*



geschätzt, was  $\approx 2,1\%$  der gesamtschweizerischen Flusswasserfracht entspricht [22]. Neuere THg-Messungen in Schweizer Oberflächengewässern sind rar, und die Konzentrationen liegen oft unter der Detektionslimite [6]. Die Rheinüberwachungsstation an der Schweizer Grenze zu Deutschland misst seit 1994 regelmässig THg in Schwebstoffen und im Wasser [9]. Für den Zeitraum von 1994 bis 2017 lagen die über jeweils fünf Jahre gemittelten THg-Konzentrationen im Bereich von  $2,7\text{--}4,5\text{ ng/l}$ , mit einem Mittelwert von  $3,3 \pm 0,8\text{ ng/l}$  in den Schwebstoffen, und  $<5\text{ ng/l}$  (DL) für das tatsächlich im Wasser gelöste THg [23]. Die einzelnen Jahresfrachten reichten von 30 bis 378 kg/Jahr (Mittelwert  $137 \pm 90\text{ kg/Jahr}$ ). Basierend auf diesen Langzeitdaten für den Rhein, der 71% des gesamten Oberflächenwasserabflusses der Schweiz führt, lässt sich folgern, dass die durchschnittlichen THg-Konzentrationen in Schweizer Flüssen zwischen  $3,8$  und  $6,3\text{ ng/l}$  liegen, was einem geschätzten Hg-Abfluss aus der Schweiz von etwa  $160\text{--}290\text{ kg/Jahr}$  (Mittelwert  $197\text{ kg/Jahr}$ ) entspricht [9]. Schliesslich wurde die gesamte THg-Fracht des gereinigten Abwassers der 28 untersuchten ARA berechnet und auf die gesamte Schweiz extrapoliert. Die geschätzte THg-Gesamtfracht aus allen ARA der Schweiz beträgt  $13 \pm 1,3\text{ g/Tag}$  ( $4,7\text{ kg/Jahr}$ ), was einem abwasserbürtigen Beitrag von rund  $1,5\text{--}3\%$  (Mittelwert  $2,4\%$ ) der THg-Frachten der Schweizer Flüsse entspricht (Fig. 5, Tab. 1).

Der schweizerische Grenzwert für Hg in Oberflächengewässern ist definiert als  $30\text{ ng/l}$  THg und  $10\text{ ng/l}$  gelöstes Hg nach Durchmischung im Vorfluter (EU,  $50\text{ ng/l}$  als Jahresmittelwert) [3, 12]. Die THg-Beiträge der ARA an die Vorfluter wurden anhand der Abflussmengen  $Q_{347}$  berechnet [9]. Die resultierenden THg-Konzentrationen von  $<0,01$  bis  $8,5\text{ ng/l}$  (THg) entsprechen den gesetzlichen Anforderungen, liegen teilweise jedoch nahe an der numerischen Anforderung von  $10\text{ ng/l}$  [1, 12].

## FAZIT

Die landesweite Erhebung zeigt, dass die THg-Konzentrationen in Klärschlämmen und behandelten Abwässern der Schweiz im selben Bereich liegen wie in anderen entwickelten Ländern. Die ermittelten THg-Frachten von  $\sim 16\text{ mg/Kopf/Jahr}$  in Rohabwasser und  $0,6\text{ mg/Kopf/Jahr}$  in gereinigtem Abwasser sind wertvoll zur

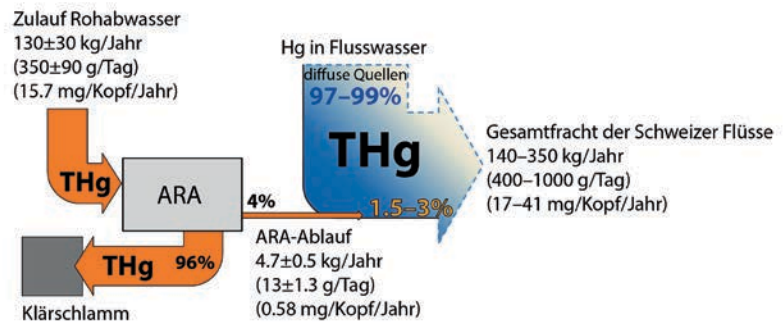


Fig. 5 Ermittelte THg-Frachten der Schweizer ARA und der Oberflächengewässer. Der Beitrag der ARA zur gesamtschweizerischen THg-Fracht der Oberflächengewässer ist mit ca.  $1,5\text{--}3\%$  relativ gering. Beispiele potenzieller diffuser Quellen sind atmosphärische Deposition, Bodenerosion und Abschwemmung oder historische Quellen wie z. B. Hg in Seesedimenten aus früheren Ablagerungen.

Abschätzung von Hg-Frachten an anderen Standorten [9].

Unter der Annahme einer ähnlichen Rückhalteeffizienz und eines ähnlichen Anschlussgrads wie in der Schweiz ergibt eine Extrapolation auf die Bevölkerung Europas (750 Mio. Menschen im Jahr 2018) eine THg-Gesamtmenge von  $12\,000\text{ kg/Jahr}$  im Rohabwasser, wobei  $450\text{ kg/Jahr}$  in Oberflächengewässer eingeleitet werden. Diese Studie trägt zu den Zielen des globalen Minamata-Übereinkommens bei, indem sie aktuelle Informationen zu Hg-Frachten im Schweizer Abwasser liefert, die auch für Interessenvertreter in den Bereichen Abwasserbehandlung, Umweltchemie, Ökologie, Toxikologie und Umweltsanierung wertvoll sind.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] Schweizerischer Bundesrat (1998): Gewässerschutzverordnung (GSchV) vom 28. Oktober 1998 (Stand am 1. April 2020). Bern. <http://www.admin.ch/opc/de/classified-compilation/19983281/>
- [2] Environmental Protection Agency (EPA) (1999): National recommended water quality criteria-correction. EPA-822-Z-99-001. PB99-149189; U.S. Environmental Protection Agency, Washington, DC
- [3] European Union (2013): Directive 2013/39/EU of the European Parliament and of the Council of 12 August 2013 amending Directives 2000/60/EC and 2008/105/EC as regards priority substances in the field of water policy. <http://eur-lex.europa.eu/eli/dir/2013/39/oj>
- [4] United Nations Environment Programme (2013): Minamata Convention on Mercury, Text and Annexes. United Nations Environment Programme, Nairobi, Kenya. <http://www.mercuryconvention.org/Portals/11/documents/Booklets/Minamata>

Convention on Mercury\_booklet\_English.pdf

- [5] Kocman, D. et al. (2017): Toward an Assessment of the Global Inventory of Present-Day Mercury Releases to Freshwater Environments. *International Journal of Environmental Research and Public Health* 14 (2), 138
- [6] Ritscher, A. et al. (2018): Verwendung, Entsorgung und Umwelteinträge von Quecksilber. Übersicht über die Situation in der Schweiz. Umwelt-Zustand Nr. UZ-1832-D. Bundesamt für Umwelt (BAFU), Bern, Schweiz. <http://www.bafu.admin.ch/uz-1832-d>
- [7] Olofsson, U. et al. (2012): Time-trends of metals and organic contaminants in sewage sludge. *Water Research* 46 (15), 4841–4851
- [8] Külling, D.R. et al. (2002): Nährstoffe und Schwermetalle im Klärschlamm 1975–1999. *Agrarforschung Schweiz* 9(5), 200–205
- [9] Suess, E. et al. (2020): Mercury loads and fluxes from wastewater: A nationwide survey in Switzerland. *Water Research* 175, 115708
- [10] Schweizerischer Bundesrat (2015): Verordnung

## DANKSAGUNG

Wir danken den ARA-Betreibern für die Probenahmen und Anlagekennndaten. Für Datenmaterial und wertvollen Informationsaustausch danken wir Edith Durisch, Daniel Rensch, Jelena Srejac (AWEL Zürich); Urs von Arx, Josef Tremp und Saskia Zimmermann-Steffens (BAFU); Christian Abegglen, Rey Eyer und Martin Schafflützel (Entsorgung + Recycling Zürich) sowie Jan Mazacek und Reto Dolf (Amt für Umwelt und Energie Basel-Stadt). Caroline Stengel und Numa Pfenniger (Eawag) werden für ihre Unterstützung bei der Analytik verdankt. Das Projekt erhielt finanzielle Unterstützung vom Bundesamt für Umwelt.

über die Vermeidung und die Entsorgung von Abfällen (Abfallverordnung, VVEA). Bern, Schweiz, vom 4. Dezember 2015 (Stand am 1. April 2020). <http://www.admin.ch/opc/de/classified-compilation/20141858/>

- [11] Bundesamt für Umwelt BAFU (2012): Klärschlamm. Bern, Schweiz. <http://www.bafu.admin.ch/bafu/de/home/themen/abfall/abfallwegweiser-a-z/biogene-abfaelle/abfallarten/klaerschlamm.html>
- [12] Behra, R. et al. (1993): Festlegung der Qualitätsziele für Metalle und Metalloid in Fließgewässern: Wissenschaftliche Grundlagen. Gas Wasser Abwasser 73 (12), 942–951
- [13] Balogh, S.J. et al. (2008): Mercury mass balance at a wastewater treatment plant employing sludge incineration with offgas mercury control. Science of the Total Environment 389 (1), 125–131
- [14] Bundesamt für Umwelt BAFU (2017): NADUF – Nationale Daueruntersuchung Fließgewässer. Bern, Schweiz, 2017. <http://www.bafu.admin.ch/bafu/de/home/themen/wasser/zustand/wasser-messnetze/nationale-beobachtung-oberflaechengewaesserqualitaet--nawa--nationale-daue-runtersuchung-fliessgewaesser--naduf-.html>
- [15] Vriens, B. et al. (2018): Spurenelemente in Schweizer Abwasser: Aktuelle Konzentrationen und Frachten. Aqua & Gas 1/2018, 40–46

- [16] AWEL (2017): Quartalsweise Datenerhebung für Schwermetalle in Klärschlämmen des Kantons Zürich

- [17] Kanton Aargau (2015): Digitaler Datensatz zu den Klärschlammuntersuchungen 2015. Departement Bau, Verkehr und Umwelt, Abteilung für Umwelt, Aarau, Schweiz

- [18] Canton de Vaud. Canton de Vaud (2018): Bilans 2017 de l'épuration vaudoise. Canton de Vaud, Lausanne, Schweiz. <http://www.vd.ch/themes/environnement/eaux/protection-des-eaux/evacuation-et-epuration-des-eaux/stations-depuration-des-eaux-usees-step/>

- [19] Schafflützel, M. (Juni 2019): Entsorgung & Recycling der Stadt Zürich, persönliche Mitteilung

- [20] Schweizerischer Bundesrat (1985): Luftreinhalte-Verordnung (LRV). Bern, Schweiz, vom 16. Dezember 1985 (Stand am 1. April 2020). <http://www.admin.ch/opc/de/classified-compilation/19850321/>

- [21] Abegglen, C. (Dezember 2018): Entsorgung & Recycling der Stadt Zürich, persönliche Mitteilung

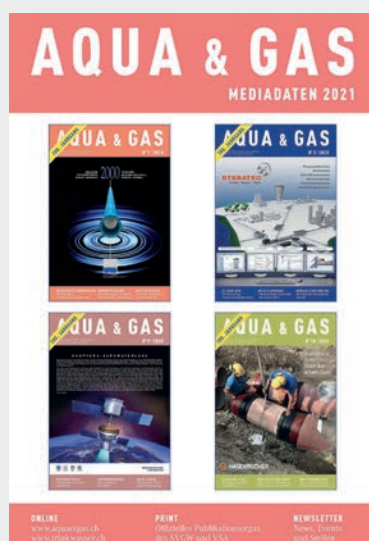
- [22] Bundesamt für Umwelt BAFU (2017): Kommunale Abwasserreinigung., Bern, Schweiz. <http://www.bafu.admin.ch/bafu/de/home/themen/wasser/fachinformationen/massnahmen-zum-schutz-der-gewaesser/abwasserreinigung/kommunale-abwasserreinigung.html>

[gung/kommunale-abwasserreinigung.html](http://www.bafu.admin.ch/bafu/de/home/themen/wasser/fachinformationen/massnahmen-zum-schutz-der-gewaesser/abwasserreinigung/kommunale-abwasserreinigung.html)

- [23] Mazacek, J. (Juni 2019): Amt für Umweltschutz und Energie, Kanton Basel-Landschaft, Liestal, Schweiz, persönliche Mitteilung

## > SUITE DU RÉSUMÉ

habitant/an), dont 96±4% sont retenus dans les STEP. Près de 4,7±0,5 kg/an (0,57 mg/habitant/an) sont acheminés dans les eaux de surface avec les eaux usées épurées. Grâce à la haute efficacité de retenue, cela correspond à seulement 1,5–3% de la charge THg qui est transporté par les grands fleuves suisses. Après mélange dans le cours d'eau récepteur, les concentrations en THg dans l'effluent des STEP étudiées respectent les exigences chiffrées de 30 ng/l de THg et 10 ng/l de Hg dissous pour les eaux de surface suisses.



## MEDIADATEN 2021

Die Mediadata 2021 von Aqua & Gas geben sowohl eine Übersicht über die Themen im kommenden Jahr als auch über unsere cross-medialen Werbemöglichkeiten.

[www.aquaetgas.ch](http://www.aquaetgas.ch) > service





## ABWASSER-AUFBEREITUNG

Produkte.  
Services.  
Lösungen.

- Pulveraktivkohlen
- Flockungshilfsmittel
- Formkohlen
- Reaktivierung
- Kornkohlen
- Mobile Filter

**Für Ihre Anwendung**  
das optimale Produkt.

Breitenstrasse 16b | 8500 Frauenfeld  
Tel. +41 52 235 24 24 | info@lehvoss.ch  
www.levhoss.ch



## MEHR ALS GUT DRUCKEN

**multicolor  
print**

Multicolor Print AG  
Sihlbruggstrasse 105a  
CH-6341 Baar  
www.multicolorprint.ch

DIE KÖNNEN DAS.



## Die sichere Lösung für Ihre Wasser- und Gasversorgung

Die Sicherheit und Zuverlässigkeit der Verteilungen und Verbindungen in der Wasser- und Gasversorgung ist unverzichtbare Basis für leistungsstarke Versorgungssysteme. Wir begegnen diesen Anforderungen mit sicheren, verlässlich gesteuerten und überwachten Systemen sowie materialunabhängigen Verbindungen: Hauptleitungen, Verteilungen oder Hausanschlüsse. Wir decken mit unseren Lösungen und modularen Produkten alle Anwendungen von der Quelle bis zum Endverbraucher ab.

**Georg Fischer Rohrleitungssysteme (Schweiz) AG**  
www.gfps.com/ch | +41 52 631 30 26  
| ch.ps@georgfischer.com