

Microplastics in wastewater

Analysis of wastewater treatment plants along the Hungarian stretch of the Danube River

The analysis has been carried out by WESSLING Hungary Ltd., in the frame of the EU SDR PA4 „Water Quality” activities in the commission of the Ministry of Foreign Affairs and Trade of Hungary (contract number: KKM/18565/2021/Adm).

Authors

Zoltán Palotai
Bence Prikler

Gábor Bordós, PhD
Áron Mári



25th November, 2021

Table of content

1. Introduction and aim of the study	3
2. State of knowledge on microplastics in wastewater treatment plants.....	3
3. Analysis methods	7
3.1. Sampling sites	7
3.2. Sampling and sample preparation.....	8
3.3. Analysis of microplastics.....	9
4. Results.....	10
4.1. Particle numbers.....	10
4.2. Identified polymer types	13
5. Conclusions, suggestions	13
List of references.....	15
List of annexes.....	17

1. Introduction and aim of the study

The objectives of the EU Strategy for the Danube Region (EUSDR) launched in 2011 with the participation of 14 countries include contribution to the preservation of the quality of waters through preventing and reducing water pollution, and thereby to the maintenance of human health and adequate status of freshwater ecosystems in the Danube Region. The current tasks of the EUSDR “Water Quality” Priority Area (PA4), operating under the coordination of Hungary and Slovakia include “Encouraging the monitoring, prevention and reduction of water pollution caused by hazardous and emerging substances”. This group of materials includes microplastics (MPs) as well, therefore the Ministry of Foreign Affairs and Trade as the governmental body in charge of the Hungarian national coordination of the EUSDR commissioned WESSLING Hungary Ltd. to assess the effectiveness of the removal of microplastics at wastewater treatment plants (WWTPs) in Hungary. In the course of the program, samples were taken from the raw wastewater received by the plants, the treated wastewater discharged into the Danube River and, in some cases, the sewage sludge as well. Microplastic content (polymer type and particle numbers) have been characterised by FTIR microscopy (imaging).

The importance of the project is high both on national and international level. There is currently no single European law that covers microplastics in a comprehensive manner, however the EU aims to address the growing volume of microplastics in the environment. Until now in Hungary, MPs have not been investigated in WWTPs with regard to their chemical composition (polymer type) and particle number. The study will not only serve as a baseline for Hungary, but can be utilised in EU policy making through the participation of EUSDR PA4 in the public consultation of the microplastic initiative.

2. State of knowledge on microplastics in wastewater treatment plants

In the past years a common understanding has been formed, that WWTPs are a source of microplastics in the aquatic environment. Still, unified methodology of sample collection from wastewater treatment plants, sample preparation and analysis are lacking, which means, results of different studies are hardly comparable.

In Europe, WWTPs have been investigated in several countries. The results of different studies are varying not only because of the specific conditions of the sampling site, but the different methods as well. The collected sample amount is influencing the representativity of the sampling, and in most cases only a low volume is collected. Density separation is a main sample processing step, but many times only low-density solutions are used to separate MPs, which might result an underestimation of more dense polymers. Reported particle numbers in influent samples are varying between 1 900 and 130 000 000 particles per cubic meter, and in effluents between 10 and 5 800 000 particles per cubic meter. If these numbers are originating only from a small volume sample (1-10 L) that has not been generated representatively, the projection to particle per cubic meter dimension will lead to an overestimation. In all studies listed in **Table 1**, microplastic concentration was reduced in the effluents compared to the influents. MPs in the sludge also shows different concentration, as highlighted in **Table 2**. It is also common, that only a small mass of sludge sample is prepared for analysis, that can also lead to the above-mentioned bias in projection.

Current data on microplastics in Hungarian wastewater treatment plants are not reliable. In the past years two studies (NÉMETH, 2018; PARRAG & KÁTAI, 2020) have investigated these components in WWTPs, but several methodological issues arose. Most importantly, in both cases the observation was conducted only by visual selection, which is an operator dependent technique and thus the bias occurring through non-identifications (exclusion) or misidentifications (false positives) are high. To highlight this, **Figure 1** shows a sample with suspected microplastics and other particles that are barely distinguishable. Further to identification, the issue of very low sample volume is appearing. This methodological variability is also represented in the results, while the emission of the plants is estimated between 0-7.5 particles/m³ (NÉMETH, 2018), effluent concentration of 442 000 particles/m³ is also reported.

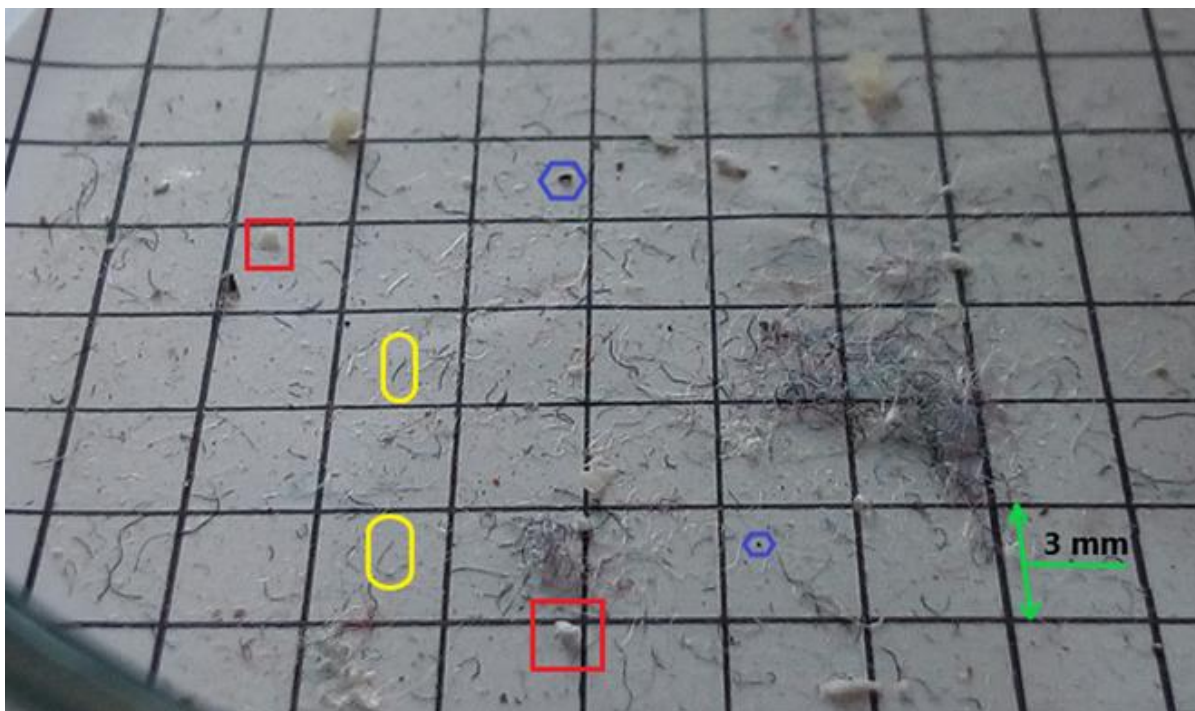


Figure 1: Marked particles identified as microplastics, but these are not distinguishable in WWTP sample when only visual observation is conducted (image: PARRAG & KÁTAI, 2020).

Danube river and other freshwater samples are analysed more frequently in Hungary. After cascade filtration of high sample volumes and proper FTIR analysis of the particles, fish ponds and natural surface waters showed 3.52-32.05 particles/m³, most dominantly polypropylene and polyethylene (BORDÓS ET AL., 2019). Danube River samples showed 45 particles/m³ upstream Budapest and 55 particles/m³ downstream Budapest, dominantly PE and PP was detected (HTTP 1). The elevated result of the downstream sample might indicate an emission of the large city wastewater treatment plants and surface runoff contamination as well. It is important to mention that these samples were collected only once so further conclusions could not be made.

Table 1: Parameters and results of microplastic analysis in European wastewater treatment plants (influent and effluent wastewater samples).

Country	Sampling method	Sampled particles size (µm)	Sample volume (L)	Sample treatment	Analysis method	Type of detected microplastics	Material type of detected microplastics	Influent MP concentration (MP per m ³)	Effluent MP concentration (MP per m ³)	Reference
Denmark	Filtration device; glass bottle	20-500	INF: 1 EFF: 4.1-81.5	ED, O, separation (ZnCl ₂ ; 1.7 g/cm ³)	FTIR microscopy	n.d.	PA/nylon; PE; PP; PVC	130 000 000	5 800 000	Vollertsen et al., 2017
Sweden	Filtration	>300	n.d.	n.d.	VIS, FTIR spectroscopy	Fibres, fragments	n.d.	15 000	8 300	Wagner et al., 2014
France	Autosampler (24h)	100-1000	n.d.	filtration (1,6 µm)	Visual observation	Fibres	n.d.	260 000 – 320 000	1 400 – 5 000	Dris et al., 2015
Finland	Filtration device	20–200	INF: 0,3 EFF: 30-285	n.d.	Visual observation	Synthetic particle, textile fibres	n.d.	610 000	14 000	Talvitie et al., 2015
Netherlands	Glass bottle	10–5000	2	filtration; separation (NaCl 1.2 g/cm ³)	VIS, FTIR spectroscopy	Fibres	n.d.	6 800 – 910 000	5 200	Leslie et al., 2017
Germany	Filtration device	50–100	390-1000	ED, O, separation (ZnCl ₂ 1.7 g/cm ³)	VIS, FTIR microscopy	Fibres	PE, PP, PS, PA, SAN, PEST, PVC, PUR, PET, ABS, PLA	n.d.	10 - 9 000	Mintenig et al., 2017
Finland	Filtration device	-	2-140	n.d.	VIS, FTIR spectroscopy	Fibres	polyester, PE, PP, PS, PU, PVC, PA, EVA	7 000	10	Talvitie et al., 2017
Poland	Plastic canisters	109→300	n.d.	n.d.	VIS	Fibres	n.d.	1 900 – 552 000	28-960	Iyare et al., 2020
Italy	Steel bucket and sieve	10–5000	30	separation (NaCl 1.2 g/cm ³); O	VIS, FTIR microscopy	Fibres	polyesters, polyamide	3 000	400	Magni et al., 2018
Hungary (Pécs)	Bucket	0,45-5000	1	separation (NaCl); O	VIS	Fibres, fragments, spheres	n.d.	3 588 000	442 000	Parrag & Kátai, 2020
Hungary (South-West)	Fractionated filtration	25-77	8-1970	n.d.	VIS, hot needle test	n.d.	n.d.	n.d.	0-7,5	Németh, 2018

Abbreviations: n.d.: no data; ED: enzymatic digestion; O: oxidation, VIS: visual observation

Table 2: Parameters and results of microplastic analysis in European wastewater treatment plants (sludge samples).

Country	Sample treatment	Sampled particles size range (µm)	Analysis method	Type of detected microplastics	Material type of detected microplastics	Analysed sample mass	Concentration (particle per kg)	Reference
Sweden	n.d.	300–5000	VIS, FTIR spectroscopy	Fibres, fragments	n.d.	n.d.	16 700	Wagner et al., 2014
Netherlands	separation (NaCl 1.2 g/cm ³)	10–5000	VIS, FTIR spectroscopy	Fibres	n.d.	20 g	510–760	Leslie et al., 2017
Germany	alkaline treatment; separation (NaCl 1.14 g/cm ³)	<500	VIS; ATR-FT-IR; FTIR microscopy	Fibres	PE, PS, PP; PA	125 g	1 000 – 24 000	Mintinig et al., 2017
Finland	dry	250–1000	FTIR microscopy and Raman spectroscopy	Fibres	PA, PE, PES, PET, PP	0.1 g	23 000	Lares et al., 2018
Poland	n.d.	109–5000	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	6 700 – 62 600	Iyare et al., 2020
Italy	separation (NaCl 1.2 g/cm ³); O	10–5000	VIS; FTIR spectroscopy	Fibres, fragments	silicone; PU; PS; PP; PE; PA; PTFE; polyacrylates	n.d.	113 000	Magni et al., 2018
Denmark	ED, O; separation (1.7 g/cm ³)	11-95	FTIR microscopy	n.d.	PE-co-polymer, PP, PA/Nylon	0,1 g	169 000	Vollertsen et al., 2017
Hungary (Pécs)	separation (NaCl); O	0,45-5000	VIS	Fibres, fragments, spheres	n.d.	400	5490	Parrag & Kátai, 2020

Abbreviations: n.d.: no data; ED: enzymatic digestion; O: oxidation, VIS: visual observation

3. Analysis methods

3.1. Sampling sites

During the project between June 2021 and August 2021, samples were collected in 5 WWTPs: 2 large, 2 medium and 1 small municipal facility was chosen. Not only the capacity, but the geographical distribution was considered. These sites were designated along the Hungarian stretch of the Danube River in a way to cover a wide distance (330 river kilometres) from the whole national stretch (417 river kilometres). All plants were sampled twice (both influent and effluent) to obtain more reliable data on microplastic concentration. Between two sampling at least 14 days were kept. Further to wastewater, sludge samples were collected when facilities with large capacity were sampled. Sampling sites are detailed in **Table 3**.

As it was described in the literature several times, WWTP effluents are a source of microplastics. To obtain data on the relation of MP concentration in wastewater and surface water, the Danube River was also sampled on those days, when one of the large plants was sampled. Samples were collected both upstream and downstream of the WWTP. These locations not only representing the upstream and downstream locations of the WWTP, but the capital of Hungary (Budapest, ca. 2 billion inhabitant) as well. WWTP and surface water sampling locations are shown in **Figure 2**.

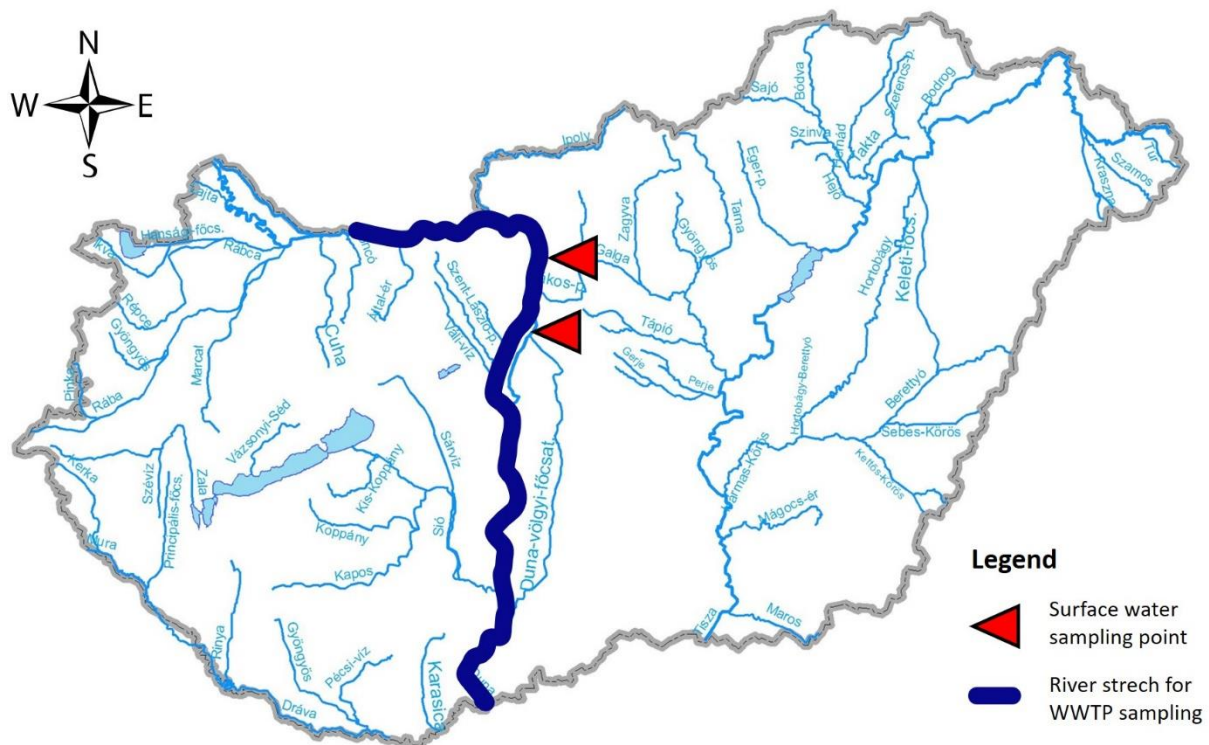


Figure 2: River stretch covered for wastewater treatment plant sampling and surface water sampling locations.

Table 3: Details of the sampled wastewater treatment plants.

Sampling site	WWTP capacity		Size category	Collected samples		
	m ³ /day	EP		influent	effluent	sludge
L1	200 000	1 333 333	large	yes	yes	yes
L2	8 000	57 000	large	yes	yes	yes
M1	5 620	41 573	medium	yes	yes	no
M2	5 000*	20 000	medium	yes	yes	no
S1	1 400	8 048	small	yes	yes	no

*Running with 50% of the capacity.

3.2. Sampling and sample preparation

During sampling and sample preparation internationally recognized and published methods have been used (BORDÓS ET AL., 2021; MÁRI ET AL., 2021). For sampling, a fractionated filtration device was used to concentrate water and wastewater samples on a 50 µm pore size filter. The study aimed to investigate small microplastics (according to size ranges described in GESAMP, 2016; HORTON ET AL., 2017) so a 1 mm prefilter was used. This means that **MPs are reported between 1 mm and 50 µm**. Microplastic analysis results are usually expressed as particles/m³ because of the relatively low particle numbers (few 10 particles/m³). To obtain a representative sample in this dimension and to eliminate the sample volume dependent bias that is mentioned in **Section 2**, at least 1 m³ sample should be collected, calculations from a few 10 litres might be misleading. Previous Hungarian surface water sampling experiences show, that sampling 2000 L water provides sufficient number of microplastics, so this volume was targeted. Nevertheless, sample volume is highly influenced by the suspended solid content of the matrix, that is highly variable in case of river water due to the natural changes of the flow.

All together four samples were collected from the Danube River, in average 1725 L/sample (range 994-2118 L). Treated wastewaters (effluents) have a more stable suspended solid content, so thus the average sample volume was 2016 L (range 1781-2105 L). Raw wastewaters (influent) are very dense samples, so the average sample volume was 87 L (range 26-150). The low volume of the influent samples contradicts with the above-mentioned necessary sample volume, but it is general in the scientific literature, that only 1-30 L is collected (BRETAS ALVIM ET AL., 2020). Further to wastewater, 1 kg sludge sample was collected on the large WWTPs. Sample amount was also chosen to match the expected reporting dimension.

Wastewater samples were prepared with flotation in 1.6 g/cm³ ZnCl₂ solution with the use of the small volume glass separator (SVGS), introduced by MÁRI ET AL. (2021). Sludge samples were floated in the microplastic sediment separator (MPSS), that is commercially available and was designed by IMHOF ET AL. (2012). As this has a large volume, samples with larger volumes can be processed to obtain better representativity, but because of environmental and economic reasons instead of ZnCl₂ solution CaCl₂ solution (1.3 g/cm³) was used to fill up the device. After separation samples were oxidised with H₂O₂ and then filtered on aluminium-oxide filters.

3.3. Analysis of microplastics

To obtain proper chemical information on the composition of the concentrated particles, final filters have been analysed with a Thermo Fischer Nicolet iN10 MX FTIR microscope. The linear array detector of the instrument enables to scan the whole area of the filter by 25 µm pixel size. This means, that

- a.) whole filter area has been chemically analysed (determination of the polymer types), particles are not only characterised based on their optical properties (as during visual selection), and
- b.) identification of particles is not operator dependent, as the whole filter area is investigated, not only picked particles.

After identification, FTIR spectra are correlated with polymer spectra database with the use of the siMPle software. Each pixel that shows a correlation over 70% are considered as microplastics. Data (polymer type, number of particles, particle diameter) are reported in a database and also visualised in the form of an MP map, that is shown in **Figure 3**.

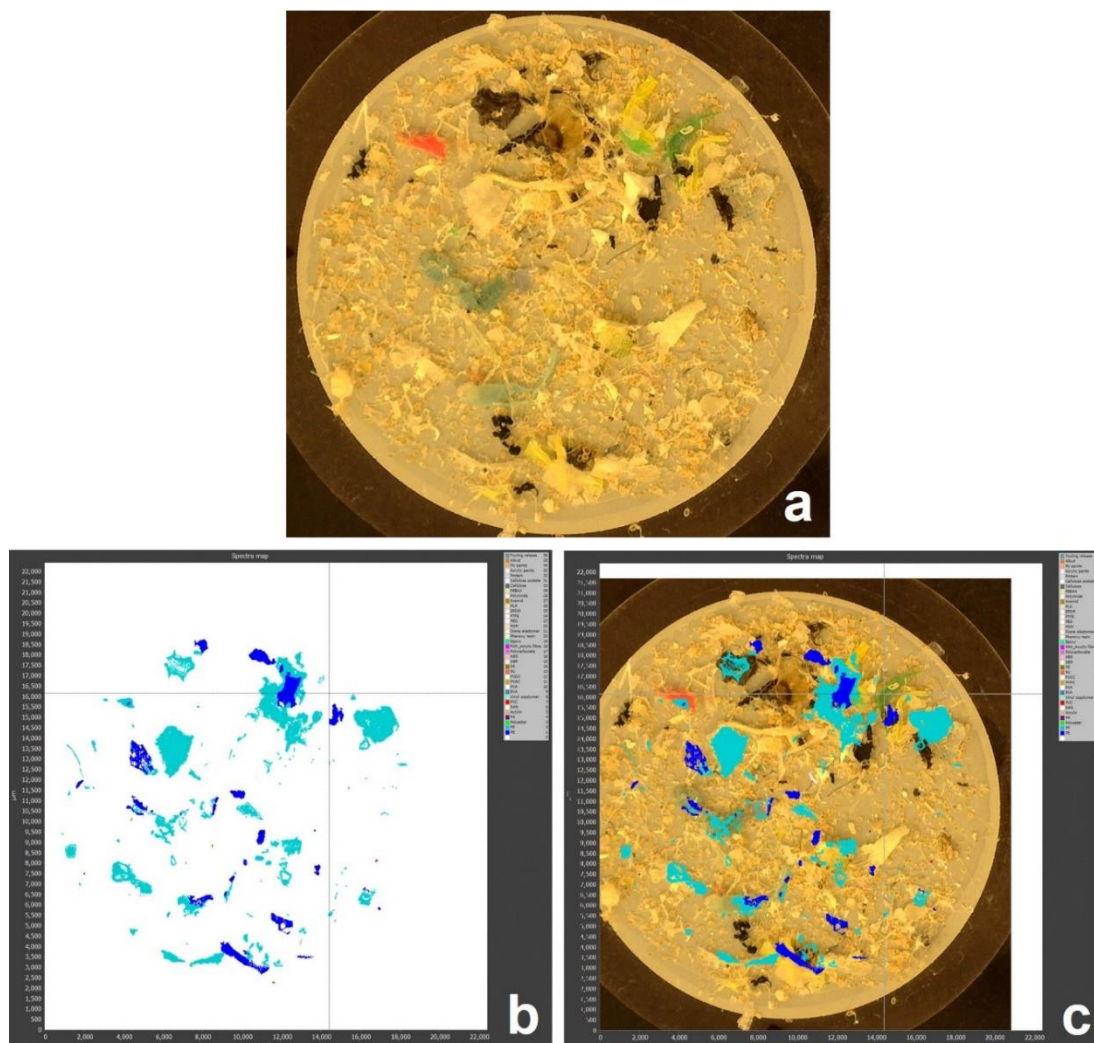


Figure 3: Visual image of the prepared sample (L2, effluent) taken with an optical microscope (a), microplastic map after analysis with FTIR microscope (b) and the merged images (c).

4. Results

4.1. Particle numbers

The analysis of 10 WWTP influent samples showed an average concentration of microplastics of 1800 particles/m³, ranging from 800 to 4400 particles/m³ in the individual samples. Average results of the wastewater influent samples are presented in **Figure 4** per each site.

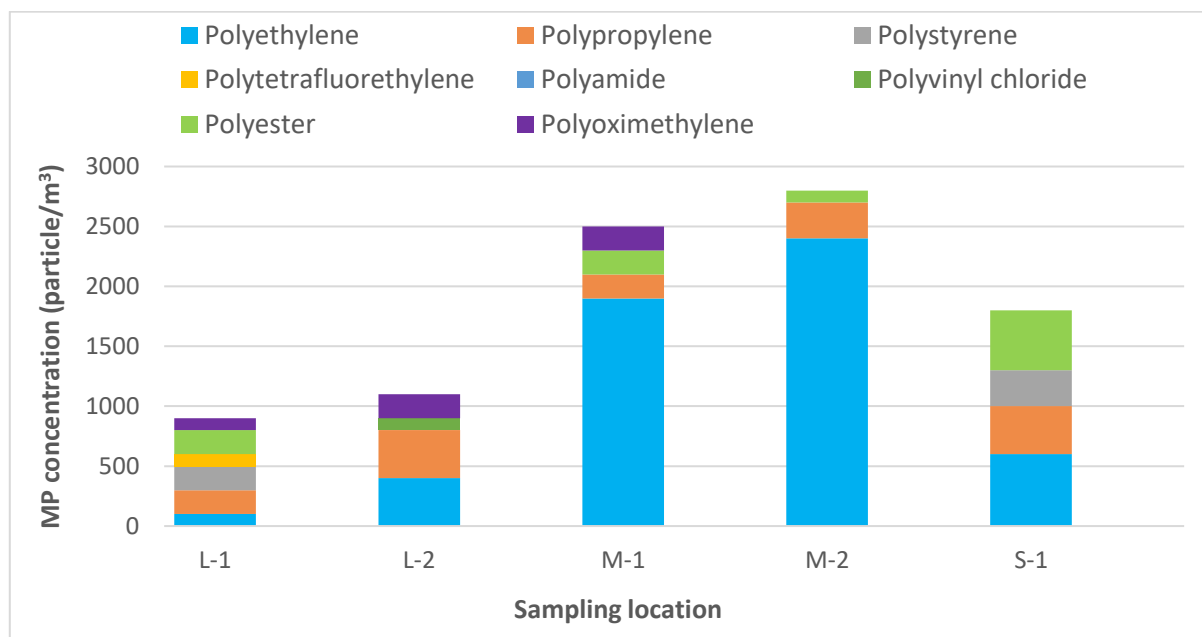


Figure 4: Average MP concentration in WWTP influent samples.

Regarding the wastewater effluent samples, average concentration of microplastics of 52.2 particles/m³, ranging from 11.7 to 84.6 particles/m³ in the individual samples. Average results of the two samplings of the different plants are shown in **Figure 5**. No clear correlation occurs in MP release and the size of the facility, as the emission of large plants (in average 55 and 70 particles/m³) seems to be higher than that of the medium sized plants (in average 26 and 47 particles/m³), but the investigated small facility showed an average value (61 particles/m³) in the range of the large plants' emission.

Based on the current study, the surface water samples contain less microplastics than the wastewater samples as shown in **Figure 5**. This means, that the treated effluent wastewater is a source of microplastic load in the Danube. The effect of the city of Budapest is indicated in the results of the river water samples, as the concentration is elevated downstream (in average 23.5 particles/m³) compared to the upstream sample (in average 16.35 particles/m³). One reason for this might be the WWTP effluent, however there might be other considerable sources, such as road runoff, as well.

It is shown that concentration of microplastics in influents is higher than that of in effluent samples. This correlation has been also observed in other studies, as presented in **Table 2**. This means, that concentration of microplastics is decreasing from source to the environment: concentration in influent > concentration in effluent > concentration in surface water. This decreasing series of concentration

means, that potential sinks may occur in the environment or in the WWTP processes. One of these could be the wastewater sludge, so two large plants has been examined. In three of the four samples results are ranging between 3 and 11 particles/kg, but one of the samples showed an elevated result of 94 particles/kg. Results are presented in **Figure 6**. Detailed results of each sample for all matrix are highlighted in **Annex 1**.

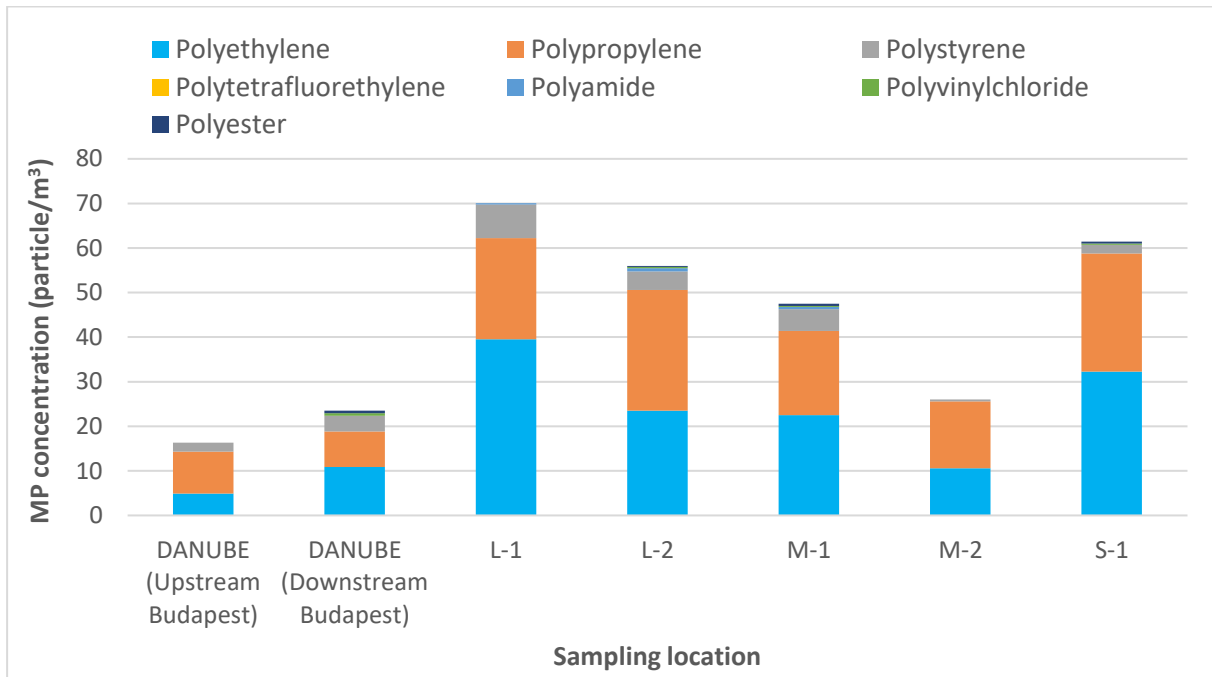


Figure 5: Average MP concentration in WWTP effluent and Danube River samples.

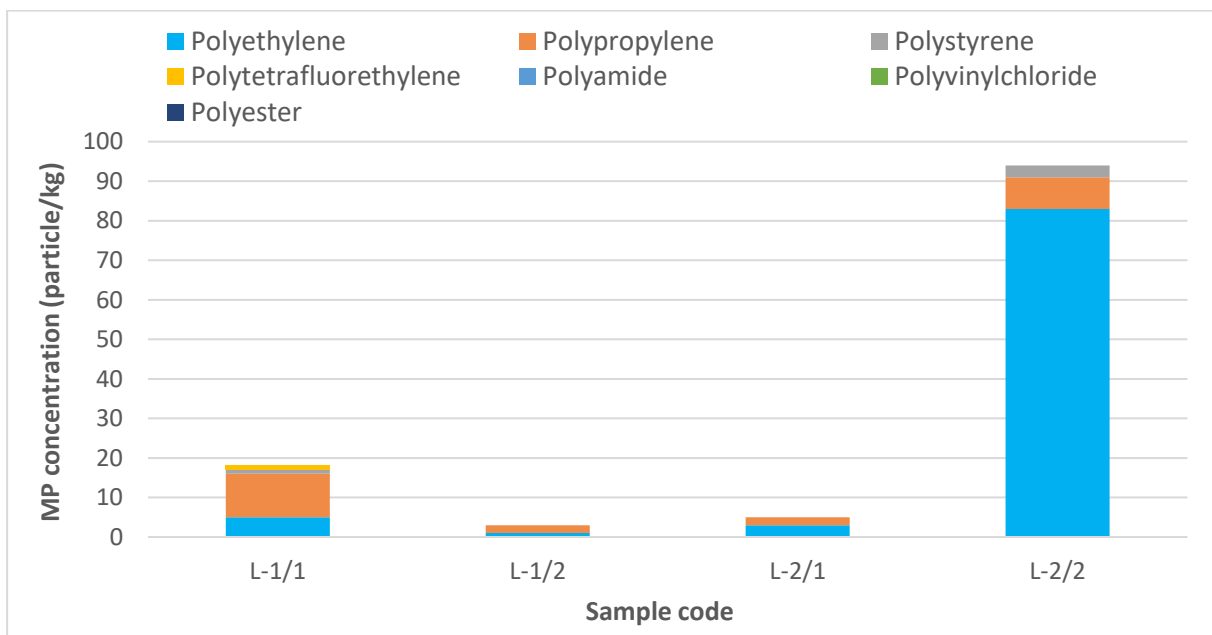


Figure 6: MP concentration in WWTP sludge samples.

Due to the lack of standardised methods, possibility of comparison of these results to the literature is limited. In this study, influents represented a 10^3 order of magnitude while effluents represented a 10^2 order of magnitude. There are some studies, where results are also in this range (TALVITIE ET AL., 2017; MAGNE ET AL., 2018; IVARE ET AL., 2020), but many times higher values are reported. Similarly, in case of sludge samples other studies detected more particles. This effect can occur due to several reason, but it cannot be concluded that it is because of the different efficiency of the different plants, but most probably because of the difference in the sampling and analysis process. A huge bias can occur, when only a smaller piece of sample (e.g., a few 10 litres of wastewater or a few grams of sludge) is analysed, and the results are multiplied to get the values projected on 1000 L or 1000 g of sample. In this study, sludge and effluent wastewater samples were collected in that range, where results are reported, so multiplication did not cause bias. Unfortunately, this was not possible in the case of influent wastewater due to the high load of suspended solids (as illustrated on **Figure 7**), so aliquot samples have been processed. This is also common in the literature, until now there is no study that has been investigated more than ca. 100 L of water.

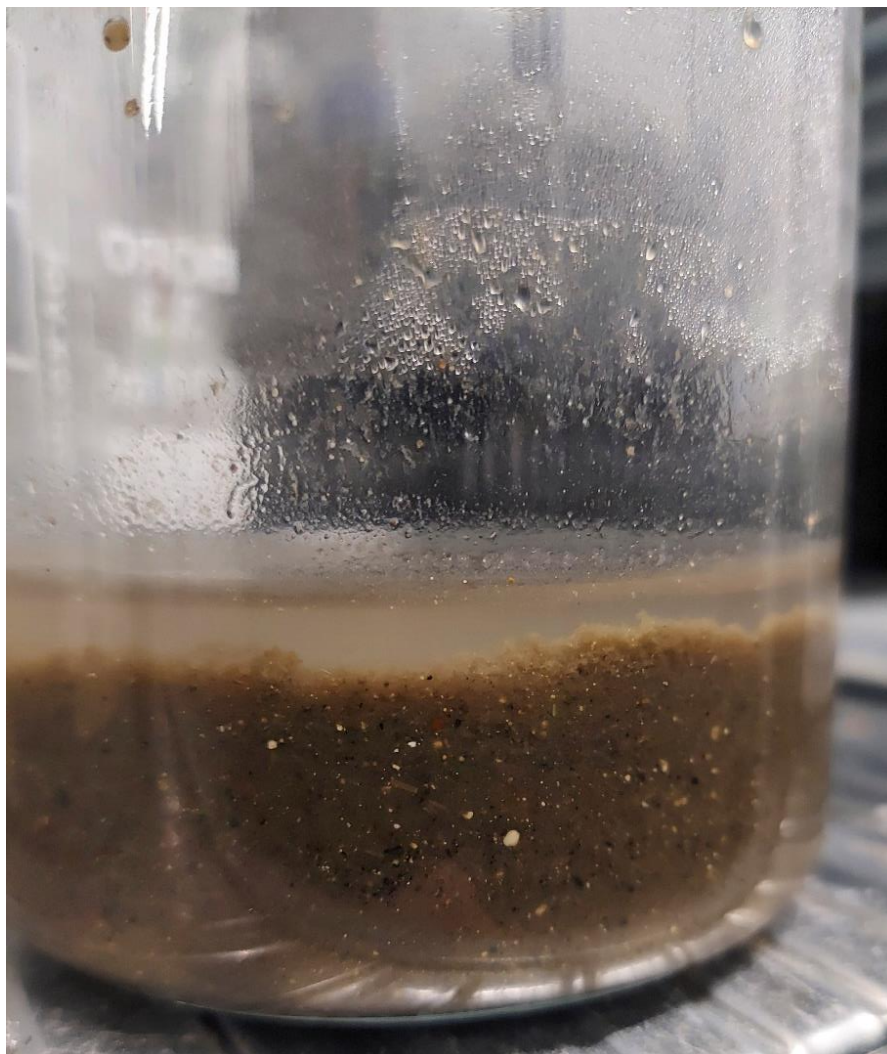


Figure 7: Concentrated influent samples show high load of suspended solids.

4.2. Identified polymer types

In the samples all particles have been characterised by FTIR microscopy and those that had at least 70% match with a polymer of the reference library were considered as microplastics. In WWTP influent samples the share of different polymer types is quite diverse. Polyethylene (PE) is the most dominant, but further to this, polypropylene (PP), polyester (PES, including polyethylene terephthalate [PET] particles and fibres) and polyoxymethylene (POM) is detected in many samples.

It is clearly shown, that in the effluent and surface water samples microplastics are most commonly made of PE and PP. Polystyrene (PS) has also been identified in all of the samples. Polyamide (PA), polyvinyl chloride (PVC), and PES occurred in some of the samples but their load was low compared to more commercial polymers (PE, PP, PS).

As PES and POM are not common in the effluent samples but they are detected in more influent samples, it is suspected, that these might be removed during the treatment process. However, interestingly, during this study these were not detected in the sludge samples, only PE and PP is dominant there. One of the reasons could be the CaCl_2 solution density, that has been used during sludge sample preparation.

5. Conclusions, suggestions

In this study, wastewater, wastewater sludge and surface water samples have been analysed for microplastics with FTIR microscopy (imaging). Samplings have been conducted along the Danube River. These results are the first in Hungary, that are not only analysing particle numbers from wastewater, but characterising polymer types of the particles to define MP content precisely.

Similarly to previous studies, it has been concluded, that **wastewater treatment plants reduce the microplastic content of the influent raw wastewater, but the treated effluent wastewater that is released to the environment is still containing more microplastics, than the receiver river water**. This means, that WWTPs are a source of environmentally occurring microplastics. MPs in influents were ranging from 800 to 4400 particles/ m^3 , while in effluents from 11.7 to 84.6 particles/ m^3 and in the Danube River samples from 9.4 to 27.9 particles/ m^3 . Sewage sludge as a potential sink has been analysed too: 3 to 94 particles/kg have been detected. **In the future potential MP retention capability of WWTPs should be further investigated** to better understand their removal, that is indicated in the influent and effluent results. In all samples polyethylene was the most abundant polymer type, followed by polypropylene and in effluents and surface water by polystyrene. The influents showed more diverse MPs in terms of polymer type: polyoxymethylene and polyester was detected in several samples.

Further to the novel numerical data, the study revealed several **methodological issues, that need to be overcome in the future, not only on national, but on international level**. An appropriate sample volume (water phase) or mass (sludge) should be defined to eliminate bias occurring during multiplication (e.g., analysis of 10 L water and reporting particles in 1000 L water). Unfortunately, it is

not possible during influent wastewater sampling as its suspended solid content is high. The increase of filter mesh size is not a solution, because with this change, small and on toxicological level probably more important particles would be excluded from the analysis. As a compromise, small volume sample could be accepted, but this should be collected during a longer period (e.g., 12-24 hours) for example with the use of autosampler devices. This could be considered also when effluent is sampled. The fractionated filtration device can be operated in every hour for a several minutes, thus collecting at least 1000 L water sample during 4-12 hours.

Similar to effluent wastewater and surface water, sewage sludge was sampled in the range (kg) as the data is reported. Large mass of solid samples could be prepared for analysis only with a large volume separator. To operate this separator, high volume of brine solution is needed. Due to environmental and economic reasons, CaCl_2 has been chosen instead of ZnCl_2 . This means a compromise in density, 1.3 g/cm^3 instead of 1.6 g/cm^3 respectively. This might result in the loss of more dense particles. This could be a potential reason, that polyoxymethylene and polyester was not detected in the sludge samples. These polymers were common in influent samples but rare in effluent samples, which could be an indication of accumulation in the sludge. To further investigate this issue, sample preparation process with the use of more dense brine solution could be tested, but in this case the sample amount should be lowered as a compromise. In this case a well-homogenised pool of subsamples should be used.

The study aimed to give not only a snapshot on the status of MPs, thus all facilities and natural sites have been sampled twice. Still, heterogeneity and variability of the sampled matrix might be high, so during further investigations the use of the sample pooling strategy (sample collection in a longer timeframe) can lead to more robust data. **Further monitoring of WWTPs and surface waters are strongly recommended**, thus well-designed sampling programs can help to define not only the current environmental status, but to better understand the sources and sinks of the microplastics. This will help to overcome methodological issues and will **support harmonisation, standardisation, policy-making and legal regulation**.

List of references

- Bretas Alvim, C., Mendoza-Roca, J.A., Bes-Piá, A. (2020): Wastewater treatment plant as microplastics release source – Quantification and identification techniques. *Journal of Environmental Management*. 255. 109739. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2019.109739>
- Bordós, G., Urbányi, B., Micsinai, A., Kriszt, B., Palotai, Z., Szabó, I., Hantosi, Zs., Szoboszlai, S. (2019): Identification of microplastics in fish ponds and natural freshwater environments of the Carpathian basin, Europe. *Chemosphere* 216 pp. 110-116. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.10.110>
- Bordós, G., Gergely, S., Háhn, J., Palotai, Z., Szabó, É., Besenyő, G., Salgó, A., Harkai, P., Kriszt, B., Szoboszlai, S. (2021): Validation of pressurized fractionated filtration microplastic sampling in controlled test environment. *Water Res.* 189. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2020.116572>
- Dris, R., Gasperi, J., Rocher, V., Saad, M., Renault, N., & Tassin, B. (2015): Microplastic contamination in an urban area: a case study in Greater Paris. *Environmental Chemistry*, 12 (5), 592. <https://doi.org/10.1071/en14167>
- GESAMP (2016): Sources, fate and effects of microplastics in the marine environment: part two of a global assessment (Kershaw, P.J., and Rochman, C.M., eds). (IMO/FAO/UNESCO-IOC/UNIDO/WMO/IAEA/UN/UNEP/UNDP Joint Group of Experts on the Scientific Aspects of Marine Environmental Protection). Rep. Stud. GESAMP No. 93, 220 p.
- Horton, A. A., Svendsen, C., Williams, R. J., Spurgeon, D. J., Lahive, E. (2017): Large microplastic particles in sediments of tributaries of the River Thames, UK – Abundance, sources and methods for effective quantification. *Marine Pollution Bulletin*, 114 (1), 218–226. p. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2016.09.004>
- Imhof, H., Johannes, S., Reinhard, N., Ivleva, N. P., Laforsch, C. (2012): A novel highly efficient method for the separation and quantification of plastic particles in sediments of aquatic environments. *Limnology and Oceanography: Methods*, 10. 524–537. p. <https://doi.org/10.4319/Lom.2012.10.524>
- Iyare, P. U., Ouki, S. K., & Bond, T. (2020). Microplastics removal in wastewater treatment plants: a critical review. *Environmental Science: Water Research & Technology*, 6 (10), 2664–2675. <https://doi.org/10.1039/d0ew00397b>
- Lares, M., Ncibi, M. C., Sillanpää, M., & Sillanpää, M. (2018): Occurrence, identification and removal of microplastic particles and fibers in conventional activated sludge process and advanced MBR technology. *Water Research*, 133, 236–246. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2018.01.049>
- Leslie, H. A., Brandsma, S. H., van Velzen, M. J. M., & Vethaak, A. D. (2017): Microplastics en route: Field measurements in the Dutch river delta and Amsterdam canals, wastewater treatment plants, North Sea sediments and biota. *Environment International*, 101, 133–142. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2017.01.018>
- Magni, S., Binelli, A., Pittura, L., Avio, C. G., Della Torre, C., Parenti, C. C., Regoli, F. (2018): The fate of microplastics in an Italian Wastewater Treatment Plant. *Science of The Total Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.10.2>
- Mári, Á., Bordós, G., Gergely, Sz., Büki, M., Háhn, J., Palotai, Z., Besenyő, G., Szabó, É., Salgó, A., Kriszt, B., Szoboszlai, S. (2021): Validation of microplastic sample preparation method for freshwater samples. *Water Res.* 202. 117409. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2021.117409>
- Mintenig, S. M., Int-Veen, I., Löder, M. G. J., Primpke, S., & Gerdtts, G. (2017): Identification of microplastic in effluents of waste water treatment plants using focal plane array-based micro-Fourier-transform infrared imaging. *Water Research*, 108, 365–372. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2016.11.015>
- Németh, Zs. (2018): Mikroműanyagok ahazai szennyvíztisztító telepek elfolyó vizeiben. *MaSzeSz Hírcsatorna*. 2018 (4). 40. p.
- Parrag, K.T., Kátai L. (2020): Szennyvizek mikroszennyező és mikroműanyag tartalma. Iparbiztonsági és hatósági napok. Conference paper. <https://www.researchgate.net/publication/341399488>

Talvitie, J., Heinonen, M., Pääkkönen, J.-P., Vahtera, E., Mikola, A., Setälä, O., & Vahala, R. (2015): Do wastewater treatment plants act as a potential point source of microplastics? Preliminary study in the coastal Gulf of Finland, Baltic Sea. *Water Science and Technology*, 72 (9), 1495–1504. <https://doi.org/10.2166/wst.2015.360>

Talvitie, J., Mikola, A., Koistinen, A., & Setälä, O. (2017): Solutions to microplastic pollution – Removal of microplastics from wastewater effluent with advanced wastewater treatment technologies. *Water Research*, 123, 401–407. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2017.07.005>

Vollertsen, J., Hansen A. A. (2017): Microplastic in Danish wastewater. Sources, occurrences and fate. The Danish Environmental Protection Agency.

Wagner, M., Scherer, C., Alvarez-Muñoz, D., Brennholt, N., Bourrain, X., Buchinger, S., Reifferscheid, G. (2014): Microplastics in freshwater ecosystems: what we know and what we need to know. *Environmental Sciences Europe*, 26 (1). <https://doi.org/10.1186/s12302-014-0012-7>

HTTP 1 – <https://mikromuanyag.hu/Duna-I>

List of annexes

Annex 1 – Detailed tables of the results

Annex 2 – Sampling reports (in Hungarian language)

Annex 3 – WWTP technology description (in Hungarian language)

Annex 1 – Detailed table of the results (WWTP effluent samples and surface water samples)

Sample code	EDUNA-1	EDUNA-2	DDUNA-1	DDUNA-2	L-1/1	L-1/2	L-2/1	L-2/2	M-1/1	M-1/2	M-2/1	M-2/2	S-1/1	S-1/2
Date of sampling	2021.06.28	2021.07.28	2021.06.28	2021.07.28	2021.06.28	2021.07.28	2021.07.13	2021.07.27	2021.06.30	2021.07.21	2021.06.29	2021.07.20	2021.06.23	2021.07.14
Sample volume (L)	2118	994	2005	1785	1781	2105	2079	1905	2066	2055	2010	2103	2008	2047
Processed sample volume (L)	2118	994	2005	1785	1781	2105	2079	1905	2066	2055	2010	2103	2008	2047
Detected microplastics/sample														
Polyethylene	8	6	30	12	52	105	65	30	80	13	8	36	57	74
Polypropylene	8	15	14	16	36	53	69	40	69	9	48	13	22	86
Polystyrene	4	2	12	2	10	20	14	3	19	1	0	2	4	4
Polytetrafluorethylene	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Polyamide	0	0	0	0	1	0	3	0	2	0	0	0	0	0
Polyvinylchloride	0	0	0	2	0	0	0	1	0	1	0	0	0	1
Polyester	0	0	0	2	0	0	1	0	2	0	0	0	0	2
Sum of MPs	20	23	56	34	99	178	152	74	172	24	56	51	83	167
Detected microplastics/sample/m³														
Polyethylene	3,78	6,04	14,96	6,72	29,2	49,88	31,27	15,75	38,72	6,33	3,98	17,12	28,39	36,15
Polypropylene	3,78	15,09	6,98	8,96	20,21	25,18	33,19	21	33,4	4,38	23,88	6,18	10,96	42,01
Polystyrene	1,89	2,01	5,99	1,12	5,61	9,5	6,73	1,57	9,2	0,49	0	0,95	1,99	1,95
Polytetrafluorethylene	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Polyamide	0	0	0	0	0,56	0	1,44	0	0,97	0	0	0	0	0
Polyvinylchloride	0	0	0	1,12	0	0	0	0,52	0	0,49	0	0	0	0,49
Polyester	0	0	0	1,12	0	0	0,48	0	0,97	0	0	0	0	0,98
Sum of MPs	9,44	23,14	27,93	19,05	55,59	84,56	73,11	38,85	83,25	11,68	27,86	24,25	41,33	81,58
Average detected microplastics/sample/m³														
Polyethylene	4,91		10,84		39,54		23,51		22,53		10,55		32,27	
Polypropylene	9,44		7,97		22,70		27,10		18,89		15,03		26,49	
Polystyrene	1,95		3,56		7,56		4,15		4,85		0,48		1,97	
Polytetrafluorethylene	0		0		0		0		0		0		0	
Polyamide	0		0		0,28		0,72		0,49		0		0	
Polyvinylchloride	0		0,56		0		0,26		0,25		0		0,25	
Polyester	0		0,56		0		0,24		0,49		0		0,49	
Sum of MPs	16,30		23,49		70,07		55,98		47,48		26,06		61,46	

Annex 1 – Detailed table of the results (WWTP influent samples)

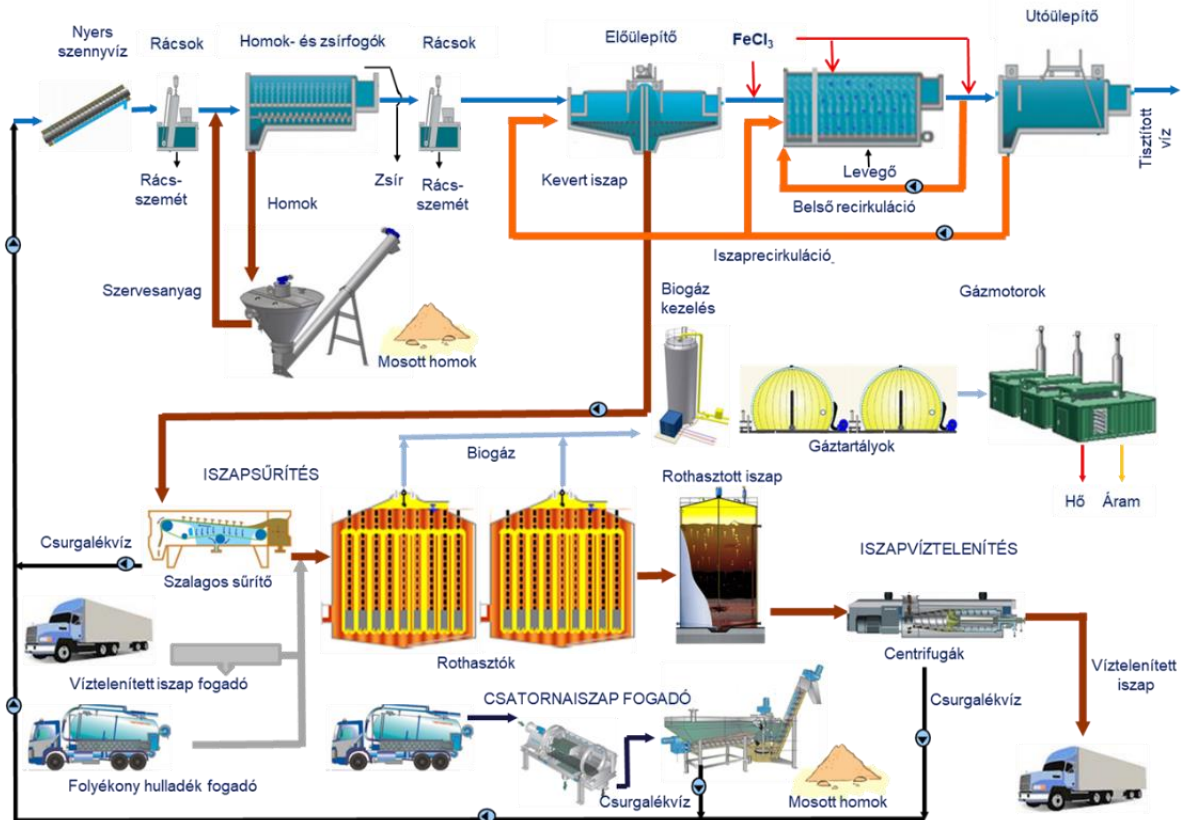
Sample code	L-1/1	L-1/2	L-2/1	L-2/2	M-1/1	M-1/2	M-2/1	M-2/2	S-1/1	S-1/2
Date of sampling	2021.06.28	2021.07.28	2021.07.13	2021.07.27	2021.06.30	2021.07.21	2021.06.29	2021.07.20	2021.06.23	2021.07.14
Sample volume (L)	60	95	96	84	26	150	69	103	75	110
Processed sample volume (L)	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
Detected microplastics/sample										
Polyethylene	0	1	2	2	19	0	20	4	4	2
Polypropylene	0	2	4	0	1	1	1	2	3	1
Polystyrene	0	1	0	0	0	0	0	0	1	2
Polytetrafluorethylene	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Polyamide	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Polyvinyl chloride	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0
Polyester	0	2	0	0	0	2	0	1	5	0
Polyoximethylene	1	0	2	0	2	0	0	0	0	0
Sum of MPs	2	6	9	2	22	3	21	7	13	5
Detected microplastics/m³										
Polyethylene	0	200	400	400	3800	0	4000	800	800	400
Polypropylene	0	400	800	0	200	200	200	400	600	200
Polystyrene	0	200	0	0	0	0	0	0	200	400
Polytetrafluorethylene	200	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Polyamide	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Polyvinyl chloride	0	0	200	0	0	0	0	0	0	0
Polyester	0	400	0	0	0	400	0	200	1000	0
Polyoximethylene	200	0	400	0	400	0	0	0	0	0
Sum of MPs	400	1200	1800	400	4400	600	4200	1400	2600	1000
Average detected microplastics/m³										
Polyethylene	100		400		1900		2400		600	
Polypropylene	200		400		200		300		400	
Polystyrene	200		0		0		0		300	
Polytetrafluorethylene	100		0		0		0		0	
Polyamide	0		0		0		0		0	
Polyvinyl chloride	0		100		0		0		0	
Polyester	200		0		200		100		500	
Polyoximethylene	100		200		200		0		0	
Sum of MPs	600		1100		2500		2800		1800	

Annex 1 – Detailed table of the results (WWTP sludge samples)

Sample code	L-1/1	L-1/2	L-2/1	L-2/2
Date of sampling	2021.06.28	2021.07.28	2021.07.13	2021.07.27
Processed sample mass (g)	1000	1000	1000	1000
Detected microplastics/kg sample				
Polyethylene	5	1	3	83
Polypropylene	11	2	2	8
Polystyrene	1	0	0	3
Polytetrafluorethylene	1	0	0	0
Polyamide	0	0	0	0
Polyvinylchloride	0	0	0	0
Polyester	0	0	0	0
Sum of MPs	11	3	5	94
Average detected microplastics/kg				
Polyethylene	3		43	
Polypropylene	6,5		5	
Polystyrene	0,5		1,5	
Polytetrafluorethylene	0,5		0	
Polyamide	0		0	
Polyvinylchloride	0		0	
Polyester	0		0	
Sum of MPs	7		47	

Annex 3 – WWTP technology description

WWTP L-1



A tisztítótelep szennyvíztisztító kapacitása 200 ezer m³/nap, átlagosan 140 ezer m³ szennyvizet tisztít meg naponta. A szennyvíz először mechanikai tisztításon megy keresztül 5 mm pálcaközü rácson, valamint kombinált zsír- és homokfogók segítségével. Az előmechanikailag tisztított szennyvíz az ún. SEDIPAC típusú előülelítő műtárgyba kerül. Az alkalmazott lamellás előülelítő védelme miatt itt még egy rácsszűrés történik, melyet 3 db automata gépi rács végez. Az előülelítőben a szennyvíz a műanyagból készült lamellákon kis sebességgel, egyenletesen áramlik át, miközben a kiülepedő iszap a medencék zompjaiba kerül a kotrók segítségével.

Az előülelítést követően a szennyvíz eleveniszapos medencékbe áramlik, ahol a biológiai tisztítás során a szervesanyag-tartalom csökkentése mellett a nitrogén-formák eltávolítása szakaszos levegőztetéssel kombinált elődenitrifikációs rendszerrel történik. A foszfor eltávolítása vas(III)-klorid adagolással valósul meg. Az eleveniszapos medencékből a tisztított szennyvíz és iszap keveréke a hosszanti átfolyású utőülelítőbe kerül, ahol a fázisszéttválasztás megvalósul, a tisztított szennyvíz pedig sodorvonalon bevezetéssel a Dunába jut.

Az utőülelítőből elvett fölösiszap az előülelítő elé kerül visszavezetésre, ahonnan kevert iszapként történik meg az elvétele. Az iszap sűrítés után 2 db mezofil rothasztóba jut, ahol a fermentációs folyamatok során biogáz keletkezik. A biogáz elégetésre kerül kazánok és gázmotorok segítségével, így villamos- és hőenergia állítható elő. A már kirothasztott, anaerob úton kezelt iszap centrifugák segítségével víztelenítésre, majd pedig elszállításra kerül a telepről.

WWTP L-2

A szennyvíztisztítás fő műveletei mechanikai előtisztítással: rácsszűréssel, homok- és zsír-uszadék fogással kezdődnek. A mechanikailag eltávolított hulladék lerakóhelyre kerül. A mechanikai szennyeződések eltávolítását követően a szennyvíz 2db kombinált biológiai műtárgyba folyik, mely 3 részre osztott aerob, anaerob és anoxikus tereket tartalmaz. Az aerob térrészben az oldott oxigénszintet oldott oxigén mérő méri és a számítógépes vezérlés ez alapján végzi a biológiai légfúvók frekvenciaszabályozását. Az aerob térrész végén található falnyíláson keresztül ez elegy egy része a nitrát recirkulációs vályúba áramlik, innét egy propellerszivattyúval áramoltatjuk át a nitrát recirkulációs áramot az anoxikus térbe.

Az aerob térrészből az elegy nagyobb része egy alsó kialakítású DN400 csővezetéken keresztül jut a medencénként 1-1db Dorr-rendszerű utóülepítőbe. Az utóülepítőben szivornyás kotró üzemel. Az utóülepítőben történik az iszapfázis szétválasztása és a tisztított víz elvezetése. Az utóülepítő alján leülepedő iszapot a központi iszapvályúba továbbítja a kotró szívóvezeték. Az iszapvályú aljáról történik a gravitációs iszapelvetel. A körkotrók uszadék terelő lapátjai egy uszadék tölcsérbe gyűjtik az utóülepítő műtárgy tetején felgyülemlett uszadékot, mely gravitációsan a két körműtárgy között található uszadékaknába folyik át. A fölösiszap az aerob stabilizálóba kerül, majd 2db pálcás sűrítőbe. A sűrítést követően iszapcentrifuga segítségével történik az iszap víztelenítése. A víztelenített iszap hulladéklerakó helyre kerül.

A biológiai tisztítás és utóülepítés után lehetőség van membránszűrő segítségével a tisztított szennyvíz további utótisztítására. A membrán technológiára a víz feladása a tisztított szennyvíz pufferből történik 3 db frekvenciaváltóval ellátott szivattyú segítségével. A szivattyúk egy közös gerincvezetékre dolgoznak, amik aztán a 4 db membránegységre juttatják a vizet. A membrán egységekre egyenként 51-128 m³/h vízmennyiség juttatható.

A technológiát vas-só és szénforrás adagoló rendszer egészíti ki. A tisztított szennyvizek fertőtlenítése külön műtárgyban történhet. A tisztítómű képes szennyezett csapadékos kevert szennyvíz elkülönítésére, a meglévő 560 m³ és az újonnan épített 570 m³ zápor tározókban, majd ennek a szennyvízmennyiségnek a főágon történő kezelésére.

A tisztított szennyvíz minőségének ellenőrzésére online mérőműszerek szolgálnak. A vízminőségi paraméterek (lebegőanyag, KOI, NH₄⁺, NO₃⁻, vezetőképesség, PO₄³⁻) mérési eredményei azonnal megjelennek a folyamatirányító központban. A tisztított szennyvíz fertőtlenítése külön behatási medencében történhet. A tisztított szennyvíz gravitációsan jut a Dunába. Árvíz esetén szivattyúk segítségével juttatható a befogadóba a tisztított szennyvíz.

WWTP M-1

A szennyvíztisztító telepen klasszikus eleveniszapos tisztító technológiával dolgoznak. A csatornaszennyvizek közvetlenül nyomócsöveken, vagy a telepi feladó átemelőből érkeznek a telep első egységére, az 5 mm-es rácsra, majd a homokfogóra. Ezeket követi önálló műtárgyként az előülepítő medence, majd ismét átemelő segítségével a biológiai tisztító egységre érkezik a mechanikailag kezelt szennyvíz. Az eleveniszapos technológia anaerob, anoxikus és oxikus medencékből áll, megfelelő nitrát recirkulációval. A szennyvíztisztítási folyamat ülepítővel, megfelelő iszaprecirkuláció zárul. A rendszerből eltávolításra kerülő fölösizap az előülepítő medencén keresztül már kevert iszapként kerül átmeneti tárolás és dekantálást követően víztelenítésre, végül komposztálásra.

WWTP M-2

A telepre tengelyen érkező szippantott szennyvíz a szippantott szennyvízfogadó műtárgyba kerül leürítésre. A leürítés egy pH méréssel vezérelt motoros tolózáron keresztül történik. Határértéket meghaladó szennyezés esetén a tolózár automatikusan lezár, és így lehetetlenné teszi a tartály leürítését. A behordott szennyvíz a műtárgyban a napközbeni, keverő általi homogenizálás után az éjszakai órákban kerül feladásra a rácsműtárgy felé.

A nyomócsövön érkező szennyvizeket gépi tisztítású AP-600/6 (AKVI-PATENT) típusú, gépi tisztítású finomrács fogadja, mely a kifogott rácsszemét eltávolításán kívül elvégzi annak tömörítését és víztelenítését. A gépi rács tartalékként kézi rács van beépítve a párhuzamos rácsfolyosóba. A rács a technológiai épület felső szintjén került elhelyezésre. A víztelenített rácsszemét surrantón keresztül jut a központi gépház földszintjén elhelyezett gyűjtőkonténerbe. A konténer gördíthető kocsin helyezkedik el. A tovább folyó szennyvizek a levegőztetett homokfogóba jutnak. A homokfogó fenekén összegyűlt homok kotróra szerelt szivattyús kiemeléssel jut a homokvíztelenítő berendezésbe. A víztelenített homok egy különálló zárt konténerbe kerül. A homokfogó osztott kamrájú. A tisztítás technológiája: közepes terhelésű eleveniszapos biológiai tisztítás nitrifikációval, ún. elébe kapcsolt denitrifikációval, igény esetén biológiai és vegyszeres foszforeltávolítási lehetőséggel.

A homokfogóból a szennyvizek az anaerob-szelektor medencékbe, majd onnan a PURDEN egyesített műtárgyak anoxikus terébe folynak. A szelektor medencékbe kerül visszavezetésre az iszap-, az anoxikus medencékbe a nitrátrecirkuláció. Az anaerob és anoxikus medencékben az elegy lebegésben tartását búvármotoros keverők biztosítják. Az anaerob-szelektor medence a biológiai foszforeltávolítás lehetőségének biztosításán kívül a fonalas baktériumok elszaporodását akadályozza, az anoxikus medence a denitrifikációs folyamat eredményeként jelentős oxigén megtakarítást biztosít.

Két PURDEN műtárgy épült. A PURDEN technológia a PURATOR cirkuler rendszerű technológiájának továbbfejlesztett változata, amely körgyűrűben történő előkapcsolt denitrifikálást, levegőztetést, továbbá a műtárgy közepén elhelyezkedő kör alaprajzú műtárgyban sugárirányú áramlású utóülepítést alkalmaz.

A levegőztető tér oxigénigényét mélylégbefúvós finombuborékos rendszer biztosítja, melynek fúvói a gépházban vannak. A levegőztető elemek Flygt-Sanitaire típusúak. Az utóülepítő lapos fenekű, folyamatos üzemű szivókotróval ellátott műtárgy. A recirkulációs iszap az utóülepítő iszapzsompjából a recirkulációs aknába jut, ahonnan csőszivattyú juttatja vissza az anaerob zónába. A nitrátrecirkulációt propellerszivattyú továbbítja az oxikus zónából az anoxikus részbe. A N03 és az iszaprecirkuláció együttesen meghaladja a 300 %-ot, mely biztosítja a levegőztetőben tervezett 4,5 kg/m³ iszapkoncentrációt, valamint a fokozott nitráteltávolítást.

Az utóülepítőben megtörténik a szennyvíz - iszap fázis szétválasztása. A fölös iszapok a recirkulációs iszapvezeték megcsapolásával az iszapsűrítőbe kerülnek elvezetésre. A foszforeltávolítás lehetősége biológiai, illetve vegyszeres kicsapatással biztosított. Az Ongroflokk (vas-szulfoklorid) vegyszer adagolása közvetlenül a levegőztetőbe történik. A tisztított szennyvizek fertőtlenítése külön behatási medencében történik 150 mg/l töménységű nátrium-hipoklorit oldat beadagolásával történik. Az adagolás 1 db SEKO-TEKNA gyártmányú vegszerszivattyúval van megoldva, melynek névleges teljesítménye 5 bar – 20 l/h, 1 bar- 54 l/h. A tömény hypo tárolására 6 db 200 l-es műanyag hordó van rendszeresítve. A fertőtlenítő anyag szállítását a Szkarabeusz Környezetvédelmi és Kereskedelmi Kft. végzi megrendelésünk alapján.

A PURDEN műtárgyakból automatikusan elvett fölősiszap az aerob stabilizálóba folyik, ahol bűzmentesen kb. 7 nap tartózkodási idő mellett az illékony szerves anyag csökkenés olyan mértéket ér el, hogy a későbbiekben a magára hagyott iszap már nem hajlamos rothadásra. Az aerob iszapstabilizálóból stabilizált iszap kerül ki. A gépi víztelenítést megelőzően az iszap a folyamatos működésű pálcás sűrítőbe kerül, ahol gravitációsan történik a sűrítés. Az iszap víztelenítésére polielektrolittal való kondicionálással 1 db HILLER DP 350-422 típusú centrifugát alkalmazunk. A víztelenítéssel elérhető iszap szárazanyag tartalom mintegy 21-25 %-os.

WWTP S-1

A szennyvíztisztító telep 6 település kommunális és részben ipari szennyvizeit fogadja 1400m³/d mennyiségben. Továbbá 150m³/d tengelyen beszállított szippantott szennyvizet fogadhat, ami kézi rács után kerül a műtárgyba, majd túlbukással jut a házi átemelőn át a telepi technológia elejére. Az érkező szennyvíz két irányból nyomott vezetéseken keresztül jut a technológiára, amin gravitációsan folyik keresztül, a tisztított szennyvíz a Duna sodorvonalába kerül bevezetésre. A külön épületben lévő előmechanikán (finomrács, majd homokfogó berendezésen) keresztül jutunk az osztóaknáig, ami két egyforma sorra kormányozza az érkező szennyvizet. A műtárgyak fedettek, a mélylevegőztető medencéket leszámítva egy tömbben helyezkednek el. Soronként a műtárgyak rendre: 2 anoxikus medence, 1 alternatív medence, 2 levegőztető medence, 1 anoxikus medence, majd külön egy 5m mély mélylevegőztető medence és 1 négyszögletű, vándorkotróval ellátott utóülepítő medence. A közös klórozó medence alkalmazása jelenleg nem előírás. Az alkalmazott totáloxidációs eljárás során az eleveniszapos, levegőztetett medencékben lévő baktériumok életfolyamataikhoz felhasználják az érkező szennyvízben lévő oldott szerves és szervesetlen anyagokat, ezáltal a víz szennyezőanyag tartalma csökken. A keletkezett eleveniszap egy része recirkuláltatásra kerül, így ugyan ez a folyamat játszódik le az anoxikus medencékben, ahol az oxigént a szennyvíz nitrát és nitrit tartamából nyerik a mikroorganizmusok. A biológiai foszforeltávolítás kiegészítése vas-klorid adagolással történik. A telepen a fölősiszap aerob stabilizálására is sor kerül, az elősűrített iszapot polielektrolittal keverve szalagprésszel víztelenítik.