

Tartu Ülikool
Loodus- ja täppisteaduste valdkond
Keemia instituut
Kolloid- ja keskkonnakeemia õppetool

Magistritöö keskkonnatehnoloogias (30 EAP)

**Fütoremediatsiooni mõju reoveesete raskmetallide
kontsentratsioonidele Türi reoveepuhasti näitel**

Marite Blankin

Juhendaja: MSc Markus Raudkivi

Kaitsmisele lubatud:

Tartu 2020

Kokkuvõte

Fütoremediatsiooni mõju reoveesette raskmetallide kontsentratsioonidele Türi reoveepuhasti näitel

Käesoleva töö eesmärkideks oli analüüsida humifitseerimise mõju olmereoveesette üldparameetritele ning hinnata fütoremediatsiooni kasutamise võimalust raskmetallide (kaadmium, plii, vask, kroom, tsink ja nikkel) eemaldamiseks reoveesetest. Analüüsiks vajalikud proovid võeti Türi reoveepuhasti humifitseerimisväljakutelt, kus humifitseerimise ja fütoremediatsiooni läbiviimiseks kasutati taimeliiki karjamaa-raihein (*Lolium perenne*). Raskmetalle määrati induktiivsidestatud plasma massispektromeetriaga (ICP-MS). Töö tulemustest järeldus, et karjamaa-raihein ei akumulööri endasse fütoremediatsiooni teel olulisel määral raskmetalle ning taime niitmine raskmetallide eemaldamiseks reoveesetest ei ole praktikas õigustatud. Humifitseerimisväljakutel toimus reoveesette stabiliseerumine ajas orgaanilise aine vähenemise ja kuivainesisalduse suurenemise teel.

Märksõnad: humifikatsioon, fütoremediatsioon, reoveesete, raskmetallid, ICP-MS

CERCS: P305 – Keskkonnakeemia

Abstract

The effect of phytoremediation on the heavy metal content of sewage sludge from Türi wastewater treatment plant

The aims of this study were to examine the humification effect on the general parameters of domestic sewage sludge and to evaluate the efficiency of phytoremediation in removing heavy metals (cadmium, lead, copper, chromium, zinc and nickel) from sewage sludge. To carry out humification and phytoremediation processes ryegrass (*Lolium perenne*) was used. Sludge and ryegrass samples were taken from the humification fields of the Türi wastewater treatment plant and heavy metals were determined from the samples by using inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS). The results showed sewage sludge stabilization in the humification fields

by decreased organic matter and increased dry matter content. It was concluded that ryegrass does not accumulate enough heavy metals from sewage sludge to be mowed from huminification fields.

Keywords: humification, phytoremediation, sewage sludge, heavy metals, ICP-MS

CERCS: P305 – Environmental chemistry

Sisukord

1.	Sissejuhatus.....	5
2.	Kirjanduse ülevaade	7
2.1	Reoveesette teke ja koostis.....	7
2.2	Raskmetallide definitsioon.....	9
2.3	Raskmetallid reovees ja reoveesettes	10
2.4	Raskmetallide eemaldamine reoveest ja reoveesetest.	11
2.5	Humifitseerimisväljakud.....	13
2.6	Fütoremediatsioon	15
2.7	Ülevaade reoveesette töötlemisest ja kasutamisest Eestis	17
2.8	Eesti seadusandlus	18
3.	Materjal ja meetodika.....	22
3.1	Proovivõtu koht ja meetod	22
3.1.1	Türi linna reoveepuhasti ja ühiskanalisatsioonisüsteemi iseloomustus	24
3.1.2	Karjamaa-raihein (<i>Lolium perenne</i>)	24
3.2	Andmete analüüs	25
3.2.1	Proovide üldparameetrite analüüs	25
3.2.2	Raskmetallide määramine	27
4.	Tulemused ja arutelu	28
4.1	Kuivaine ja orgaanika	28
4.1.1	Karjamaa-raihein	35
4.2	Üldlämmastik ja -fosfor	36
4.3	Raskmetallid	40
5.	Kokkuvõte.....	47
6.	Summary.....	49
7.	Kirjanduse loetelu	51

1. Sissejuhatus

Inimeste tähtsamad eluvaldkonnad on tugevalt seotud vee kasutamisega. Inimkonna arvukuse kasvuga ning elukvaliteedi tõusuga kaasneb paratamatult vee tarbimise suurenemine, mis omakorda tähendab järjest suuremat reoveesette puhastamise vajadust. Reovee puhastamise kõrvalsaadus on reoveesete. Reoveesete sisaldab suures koguses orgaanilist ainet ning toitaineid (sealhulgas lämmastikku ja fosforit), mistõttu saab seda kasutada mulla parandajana või väetisena (UNESCO 2017). Reoveesete kui potentsiaalse toitaine allika ringlusesse võtmist survestab kergesti juurdepääsetavate fosforiidimaardlate vähenemine. Kuigi praeguste hinnangute kohaselt ei muutu fosforiidi varude ammendumine probleemiks vähemalt järgmise paari sajandi jooksul, on oluline otsida alternatiivseid fosforiallikaid. Populatsiooni kasvu ning toitumisharjumuste muutuste tõttu suureneb põllumajanduses nõudlus fosfori järele pidevalt (Desmidt *et al.* 2015; Van Vuuren *et al.* 2010). Lisaks on vajalik leida reoveesetele kasutust, et vältida selle kuhjumist keskkonda või ladestamist jäätmejaama.

Reoveesete kasutamisevõimalust põllumajanduses, haljastuses ja rekultiveerimisel piiravad selles sisalduvad patogeenid, raskmetallid ning muud saasteained. Reoveesete hügieniseerimine ja stabiliseerimine on võimalik olemasolevate settekäitlusmeetoditega. Keerukam on teatud saasteainete, näiteks raskmetallide või orgaaniliste mikrosasteainete eemaldamine reoveesetest. Ükski tavapärane settekäitlusprotsess (kompostimine, anaeroobne settekäitlus ja kuivatus) ei eemalda raskmetalle settest. Käesolevas töös keskendutakse raskmetallide eemaldamisele humifitseerimisväljakutel füto-remediatsiooni teel. Humifikatsioon on reoveesete stabiliseerimise meetod, kus õhukesele reoveesete kihile pannakse peale kasvama taimed. Humifitseerimisväljakutel toimub samaaegselt, taimede abil, sette stabiliseerumine ja füto-remediatsioon ehk saasteainete eemaldamine (Etim 2012; OÜ aqua consult baltic 2015b).

Magistritöö eesmärkideks oli analüüsida humifitseerimise mõju olmereoveesete üldparameetritele ning hinnata humifitseerimisväljakutel kõrvalprotsessina toimuva füto-remediatsiooni kasutamise võimalust raskmetallide eemaldamiseks reoveesetest. Töö esimeses osas antakse ülevaade reoveesete tekkest ja koostisest, raskmetallide eemaldamisest reoveesetest, humifitseerimisväljakutest ning füto-remediatsioonist, reoveesete käitlemisest ja kasutamisest Eestis ning Eesti seadusandlusest seoses reoveesete kasutamisega. Töö eksperimentaalses osas analüüsitakse Türi reoveepuhasti humifitseerimisväljakute näitel

humifitseerimise ja fütoremediatsiooni mõju reoveesete üldparameetritele ning raskmetallide kontsentratsioonidele. Humifitseerimise ja fütoremediatsiooni läbiviimiseks kasutati Türi humifitseerimisväljakutel taimeliiki karjamaa-raihein (*Lolium perenne*). Töö tulemusena vastatakse küsimusele, kas karjamaa-raiheina niitmine Türi humifitseerimisväljakutelt raskmetallide eemaldamise eesmärgil on põhjendatud või mitte.

2. Kirjanduse ülevaade

2.1 Reoveesette teke ja koostis

Reoveesete on kõrvalsaadus, mis tekib reoveepuhastamise protsessi käigus erinevates etappides. Peamiselt võib reovee puhastamise protsessis tekkivat reoveesetet jaotada kaheks: toormuda ja liigmuda. Toormuda saadakse reovee esimeses puhastusetapis, kus reoveest eemaldatakse heljum ja sellega koos muud mittelahustunud orgaanilised ained. Tavaliselt tehakse seda gravitatsioonilise setitamise teel eelsetitis. Toormuda koosneb peamiselt veest (ca 97 kuni 99%) ning kergesti lagunevatest orgaanilistest ainetest (Nazari *et al.* 2018). Liigmuda tekib reovee sekundaarses puhastusetapis (milleks on bioloogiline puhastamine), kus reovee puhastamiseks kasutatakse mikroorganisme, et eemaldada reoveest lahustunud ühendid. Protsess põhineb reovees lahustunud orgaanilise aine oksüdeerimisel mikroorganismide abil süsihappegaasiks ja orgaanilisteks produktideks, mida organismid kasutavad energia saamiseks. Kogu protsess toimub aeratsiooni mahutites. Liigmuda saadakse, kui mikroorganismide mass osaliselt eemaldatakse mahutitest, et tagada protsessi jätkusuutlikkus. Üheks lahenduseks on reovee suunamine aeratsiooni mahutist edasi järelsetitisse, kus biomass settib gravitatsiooni jõul ning eemaldatakse liigmudana (Grobelak *et al.* 2019; Canziani ja Spinosa 2019). Seega koosneb liigmuda peamiselt mikroorganismide agregaatidest ehk flokkidest, millesse on seotud palju vett (Guangyin ja Youcai 2017).

Reovee puhastamise käigus tekkinud reoveesette kogus ja koostis sõltub mitmetest erinevatest teguritest nagu näiteks aastaajast, reovee puhastamise tehnoloogiast, reoveekogumisala piirkonna eripärast (keskkonnavalused nõuded ja piirangud, inimeste tarbimisharjumused) ja kanalisatsioonisüsteemist (näiteks kas vihmavett puhastatakse koos reoveega või mitte). Üldiselt iseloomustab reoveesetet kõrge orgaanilise aine ning erinevate toitainete, eriti fosfori ja lämmastiku, sisaldus (Grobelak *et al.* 2019; Rorat *et al.* 2019; Fijalkowski *et al.* 2017). Aastatel 2008–2010 analüüsis OÜ Eesti Keskkonnauuringute Keskus Keila, Kohtla-Järve, Kuressaare, Pärnu, Rakvere, Tartu ja Viljandi reoveepuhastite reoveesetet. Reoveesette analüüsimiseks võeti proovid veetustatud settest enne kompostimist või ladustamist. Tabelis 1 on toodud valitud reoveepuhastite reoveesette üldparameetrite keskmised sisaldused ning varieerumisvahemikud,

mis ilmestavad reoveesette kõrget toitainete sisaldust (Kõrgmaa 2010). Võrdluseks on toodud tabelis 2 Eestis toodetava erinevate sõnnikute toiteelementide sisaldused (Tamm *et al.* 2016).

Tabel 1. Keila, Kohtla-Järve, Kuressaare, Pärnu, Rakvere, Tartu ja Viljandi reoveepuhastite reoveesette orgaanilise aine, üldlämmastiku ja üldfosfori keskmised, minimaalsed ja maksimaalsed sisaldused. Andmed pärinevad aastatest 2008–2010 (Kõrgmaa 2010).

Parameeter	Keskmine sisaldus	Minimaalne sisaldus	Maksimaalne sisaldus
Orgaaniline aine	72%	25%	92%
Üldlämmastik	59302 mg/kg	11500 mg/kg	83300 mg/kg
Üldfosfor	18584 mg/kg	4435 mg/kg	37820 mg/kg

Tabel 2. Põllumajandusuuringute Keskuses aastatel 2009–2015 analüüsitud sõnnikuproovide üldlämmastiku ja üldfosfori sisaldused (Tamm *et al.* 2016).

Sõnniku liik	Proovide arv	Üldlämmastik (mg/kg)	Üldfosfor (mg/kg)
Veise vedelsõnnik	252	2800	500
Veise poolvedel sõnnik	482	4200	900
Veise tahesõnnik	140	5400	1200
Veise sügavallapanusõnnik	76	5900	1400
Sea vedelsõnnik	146	3800	800
Sea poolvedel sõnnik	37	6800	2300
Sea tahesõnnik	8	7600	3400
Sea sügavallapanusõnnik	13	7700	2800
Kana vedelsõnnik	2	4500	1500
Kana poolvedel sõnnik	4	9000	3300
Kana tahesõnnik	2	10200	1900
Kana sügavallapanusõnnik	36	21400	74001
Lamba tahesõnnik	6	6800	1500
Lamba sügavallapanusõnnik	11	8200	1800

Vaatamata reoveesette positiivsetele omadustele, tuleb selle kasutamisel olla ettevaatlik, sest reoveesete sisaldab ka erinevaid orgaanilisi (näiteks polütsüklilised aromaatsed süsivesinikud (PAH), polüklooritud bifenüülid (PCB), adsorbeeruvad orgaanilised halogeenid (AOX), pestitsiidid, pindaktiivsed ained ja ravimijäägid) ja anorgaanilisi (raskmetallid ja nende

nanoosakesed) saasteained ning patogeene (erinevad haigust tekitavad bakterid, viirused, seened, algloomad ja helmintid) (Grobelak *et al.* 2019; Rorat *et al.* 2019; Fijalkowski *et al.* 2017).

2.2 Raskmetallide definitsioon

Mõistet “raskmetall” pole kunagi määratletud ühegi autoriteetse organi poolt, mistõttu on selle kasutamisega seoses palju segadust ning seda on defineeritud kirjanduses läbi aegade väga erinevalt (Duffus 2002). Üheks levinud viisiks on mõiste mõtestamine elemendi tiheduse kaudu, kuid selline lähenemisviis on problemaatiline. Esiteks erinevates allikates tiheduse väärtus, millest alates element loetakse raskmetalliks, varieerub. Mõiste “raskmetall” defineerimiseks on kasutatud kirjanduses erinevaid tiheduse väärtusi alates 3,5 kuni 7 g/cm³. Kõige rohkem kasutatakse, aga väärtusi 4,5 või 5 g/cm³. Teiseks ei arvesta selline definitsioon elemendi keemilisi omadusi, mis on olulised keskkonna, eluslooduse ja inimeste ohutuse seisukohast (Appenroth 2010).

Botaanikas on soovitatud mõistet „raskmetall“ defineerida lähtudes elemendi asukohast perioodilises tabelis, mitte elemendi tihedusest. See, kui efektiivselt taim suudab omastada raskmetalle, oleneb selle kättesaadavusest vees. Selleks, et raskmetallid oleksid taimedele kättesaadavad, peavad nad reageerima teiste elementidega ja moodustama keemilisi ühendeid. Kui selline keemiline ühend, nagu näiteks sool on moodustunud, siis ei mängi metalli tihedus enam olulist faktorit. Seega tuleks botaanikas raskmetallide defineerimisel lähtuda elementide asukohast perioodilises tabelis, kuna see iseloomustab elemendi keemilisi omadusi, mis on taimede seisukohast palju tähtsamad (Appenroth 2010; Tangahu *et al.* 2011). Rahvusvaheline Puhta Keemia ja Rakenduskeemia Liit (inglise keeles International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC) on samuti arvamusel, et metallide defineerimisel peaks lähtuma nende bioloogilisest kättesaadavusest, mis sõltub elementide aatomstruktuurist. Võetud on seisukoht, et kõik teaduslikult põhjendatud metalliliste elementide klassifikatsioonid peavad põhinema perioodilisel tabelil või selle alajaotusel (Duffus 2002). Eelnevast lähtudes on Appenroth (2010) soovitanud botaanikas raskmetallidena vaadelda kolme rühma perioodilises tabelis: (1) siirdemetallid (d-ploki elemendid); (2) f-ploki elemendid, mis jagunevad lantinoideks ja aktinoideks; (3) osad p-ploki elemendid (Al, Ga, In, Tl, Sn, Pb, Sb, Bi ja Po), mis on kas metallid

või metalloideid. Lisaks on soovitatud raskmetallide hulka lisada ka germaanium (Ge), arseen (As) ja telluur (Te), kuid mitte boor (B) ja räni (Si) (Appenroth 2010).

Käesolevas töös keskendutakse raskmetallidele plii (Pb), kaadmium (Cd), kroom (Cr), vask (Cu), nikkel (Ni) ja tsink (Zn) tulenevalt Eesti Vabariigi seadusandlusest, mis reguleerib reoveesette ning reoveesetest valmistatud toote kasutust põllumajanduses, haljastuses ja rekultiveerimisel (täpsemalt ptk-s 2.8).

2.3 Raskmetallid reovees ja reoveesettes

Olmereovette sattuvad raskmetallid läbi erinevate allikate. Neid allikaid võib üldjoontes jaotada kolmeks: (1) suured lokaliseeritud punktallikad (siia alla kuuluvad näiteks suured tootmisettevõtted, haiglad ja tööstusrajoonid); (2) väiksed hajutatud punktallikad (näiteks majapidamised ja autopesulad); (3) hajureostusallikad (pinnavool katustelt, tänavatelt ning põllumajandusega tegelevatelt aladelt) (Cantinho *et al.* 2016). Olmereovees sisalduvate raskmetallide hulk ja mitmekesisus oleneb olulisel määral sellest, missuguse tegevusalaga ettevõtete reovett juhitakse ühiskanalisatsiooni (osade ettevõtete reovesi võib sõltuvalt tegevusalast sisaldada kõrgeid raskmetallide kontsentratsioone) ning kas ühiskanalisatsiooni juhitakse vihmavee äravoolu (Fijalkowski *et al.* 2017; Karvelas *et al.* 2003). Enamikus Euroopa linnades on kombineeritud kanalisatsioon, kus kõvakattega pindadelt kogutud sademevesi juhitakse kanalisatsiooni kokku olmereoveega (Cantinho *et al.* 2016). Vihmavee äravool võib arvestataval määral sisaldada raskmetalle, kuna sademevesi haarab kõvakattega pindadelt kaasa liiklusest tingitud (täpsemalt sõidukite heitgaasidest, pidurite, rehvide, asfaldi kulumisest jne) ning atmosfäärist maha sadenenud raskmetalle (Karvelas *et al.* 2003). Majapidamiste reovette sattuvad raskmetallid inimeste fekaalide ja uriini kaudu. Suurem osa väljaheidetes sisalduvad raskmetallid pärinevad põllumajandustoodetest (leiva- ja teraviljad, puu- ja köögiviljad, liha ja piimatooted) (Tervahauta *et al.* 2014). Samuti sisaldavad osad ravimid ja puhastusvahendid raskmetalle. Lisaks võivad raskmetallid sattuda reovette veel kanalisatsioonisüsteemi siseselt, korrodeerunud torustike tõttu (Tytła 2019). Üldjuhul pärinevad enamik raskmetalle olmereovees väikestest hajutatud punktallikatest ning hajureostusallikatest, kuna suurtemate

tootmisettevõtete tegevused (sh heitmete käitlemine ja suunamine keskkonda) on rangelt seadusandlusega reguleeritud (Cantinho *et al.* 2016).

Raskmetallid on reovees seotud erinevate faasidega. Faaside vaheline jaotus on metalli spetsiifiline. Näiteks on nikkel (Ni) ja mangaan (Mn) liikuvad raskmetallid ja esinevad reovees peamiselt vedelas faasis. Vastupidiselt vask (Cu), kroom (Cr), plii (Pb), kaadmium (Cd) ja tsink (Zn) on peamiselt seotud tahkete osakestega. Enamus (80–90%) raskmetalle reovees seotakse reoveesettesse, kus nad moodustavad tugevad sidemed orgaanilise ainega (Karvelas *et al.* 2003; Tytła 2019). Raskmetallid sattuvad reoveest reoveesettesse reoveepuhastussüsteemis peamiselt kahe protsessi käigus. Kõige rohkem seotakse reovees sisalduvad raskmetallid reoveesettesse eelsetitis, kus raskmetallid, mille osakesed on suuremad kui 0,45 µm, eemaldatakse füüsiliselt koos teiste tahkete osakestega gravitatsioonilise settimise teel. Osa raskmetalle seotakse settesse reovee bioloogilise puhastuse käigus (Hargreaves *et al.* 2018). Bioloogilisest puhastusprotsessist võtavad osa mikroorganismid, mis akumulatsioonilise teel endasse raskmetalle. Esimesel juhul raskmetallid seotakse passiivselt mikroorganismi pinnale raskmetalliooni ning mikroorganismi pinna erinevate laengute tõttu. Teisel juhul mikroorganismid omastavad endasse raskmetalle spetsiaalsete omastamissüsteemide kaudu (Ledin 2000).

2.4 Raskmetallide eemaldamine reoveest ja reoveesetest.

Reoveesette kasutamiseks põllumajanduses, haljastuses või rekultiveerimisel on vaja, et selles sisalduvate raskmetallide kontsentratsioon oleks ohutu. Üheks võimaluseks oleks ennetavalt raskmetalle eemaldada juba reoveest reoveepuhastamisel. Reoveest on raskmetallide eemaldamiseks mitmeid erinevaid meetodeid. Paljude meetodite puhul aga, nagu näiteks keemiline sadestamine, flotatsioon ning koagulatsioon ja flokulatsioon, on probleemiks see, et reovees sisalduvad raskmetallid seotakse protsessi käigus reoveesettesse ehk algne probleem säilib (Fu ja Wang 2011; Gunatilake 2015; Bisht *et al.* 2017). Seega ei saa neid meetodeid vaadelda lahendusena käesolevas magistritöös käsitletud probleemile. Teised reoveest raskmetallide eemaldamise tehnoloogiad, mida on uuritud, põhinevad ioonvahetusel, adsorptsioonil ning membraan-filtratsioonil (Fu ja Wang 2011; Nalenthiran *et al.* 2016). Nende kasutust praktikas piirab eelkõige kallis hind, ebatäiuslik tehnoloogia ning ebapiisav

tulemuslikkus (Blais *et al.* 1992a). Järgnevalt antakse ülevaade antud meetodite eelistest ja puudustest.

Reoveesettest raskmetallide ärastamiseks saab kasutada adsorbente. Adsorbentide kasutamine pakub paindlikkust puhasti projekteerimisel ja opereerimisel. Kõige laialdasemalt kasutatav adsorbent on aktiivsüsi. Aktiivsöel on väga head adsorptsiooni omadused tulenevalt selle suurest eripinnast (Fu ja Wang 2011). Negatiivsed küljed, mis kaasnevad aktiivsöe kasutamisel adsorbendina on kallis hind ning tõhususe sõltuvus lähtuvalt süsiniku tüübist. Aktiivsöe üheks miinuseks on ka veel see, et ajas aktiivsüsi ammendub ja ei suuda enam raskmetalle veest eemaldada. Raskmetallide kontsentratsiooni tõusuga reovees langeb aktiivsöe adsorptsiooni efektiivsus (Nalenthiran *et al.* 2016).

Olenevalt membraani tüübist saab reoveest raskmetallide eemaldamiseks kasutada erinevaid membraanfiltrimise tehnikaid. Membraantehnoloogiad, mida kasutatakse metallide eemaldamiseks reoveest on: ultrafiltrimine, pöördosmoos, nanofiltrimine ja elektrodialüüs (Fu ja Wang 2011). Membraanfiltrimise tehnikad ei ole väga laialt levinud ebaküpse tehnoloogia ning suure energiakulu tõttu (Nalenthiran *et al.* 2016). Protsesside eelisteks on kõrge efektiivsus, kerge opereerimine ning ruumi kokkuhoid (Fu ja Wang 2011).

Ionivahetusprotsessil on palju eeliseid raskmetallide eemaldamiseks reoveest: suur läbilaskevõime, kõrge efektiivsus ja kiire kineetika (Fu ja Wang 2011). Siiski on väga kõrge raskmetallide kontsentratsiooniga roveepuhastamisel antud tehnoloogial raskusi. Samuti ei ole kõigi raskmetallide ionide jaoks sobivad ionivahetusvaigud saadaval ning meetodi kapitali- ja operatsioonikulud on suured (Nalenthiran *et al.* 2016).

Raskmetallide eemaldamiseks reoveesettest on uuritud erinevaid meetodeid. Tuntumad neist on elektrokineetikal põhinevad meetodid ning keemiline ekstraheerimine ja bioleostumine. Kuigi nimetatud meetodeid on palju uuritud, ei ole need laialt kasutuses, mis viitab selle, et meetodite lahendustes on arenguruumi. Keemiline ekstraheerimine on meetod, kus reoveesettele lisatakse kemikaale, mille tulemusena raskmetallid leostuvad reoveesettest välja. Ekstraheerimiseks kasutatakse anorgaanilisi ja orgaanilisi happeid, kelaativaid aineid ning anorgaanilisi kemikaale. Protsess põhineb reoveesettes sisalduvate raskmetallide ja lisatud kemikaalist pärit prootonite vahetusel. Anorgaanilised happed, mida raskmetallide ekstraheerimiseks kasutatakse, on näiteks vesinikkloriid (HCl), väävelhape (H_2SO_4) ja lämmastikhape (HNO_3). Kelaat ühenditest

kasutatakse etüleendiamiintetraetaanhapet ja nitrilotriäädikhapet ning orgaanilistest happetest sidrun- ja oksaalhapet. Anorgaanilistest kemikaalidest on kõige tavalisem raud(III)kloriid (Babel ja del Mundo Dacera 2006). Sette pH reguleerimiseks kasutatav suur kogus hapet ning lõpus sette neutraliseerimiseks kasutatav suur kogus leelist muudab selle meetodi ebapraktiliseks. Samuti on meetodi läbiviimiseks kasutatavad kemikaalid väga kallid (Blais *et al.* 1992a).

Bioloogilises ärastamises kasutatakse raskmetallide välja leostamiseks mikroorganisme. Kõige tuntum bakteri liik, mida kasutatakse protsessi läbiviimiseks on *Thiobacillus ferrooxidans*. *T. ferrooxidans* saab eluks vajaliku energia elementaarse väävli või redutseeritud anorgaanilise väävliühendi oksüdeerimise kaudu. Seega toimub raskmetalli leostumine settest kahel viisil. Esimesel juhul lisatakse reoveesetele juurde väävliit, mille oksüdeerimise tulemusena väheneb sette pH ning raskmetallid muutuvad settes liikuvamaks. Teise juhul oksüdeeritakse redutseeritud anorgaanilised väävliühendid settes metallsulfaadiks (MSO_4), mis on tavaliselt vees lahustuv. Antud meetodi kasutamine eeldab lõpus settes väävli kontsentratsiooni minimeerimist, et vältida mulla liigset hapestumist (Blais *et al.* 1992b; Babel ja del Mundo Dacera 2006).

Elektrokineetikal põhinevad meetodid kasutavad orgaaniliste ühendite mineraliseerimiseks ning settest metallide eemaldamiseks elektrivoolu. Reoveesetele rakendatakse elektroodide abil madalapingeline alalisvool. Raskmetallid eemaldatakse elektrivälja rakendamise tulemusena elektroforeesi, elektroosmoosi või/ja elektrolüüsi teel (Babel ja del Mundo Dacera 2006). Meetodi eeliseks on minimaalne oht toksiliste heitmete tekkeks. Samuti ei ole vaja meetodi rakendamiseks lisada reoveesetele juurde kemikaale (Elicker *et al.* 2014).

2.5 Humifitseerimisväljakud

Euroopas on humifitseerimisväljakuid reoveesete mineraliseerumiseks ja veetustamiseks kasutatud alates kaheksakümnendate lõpust (Nielsen ja Larsen 2016; Brix 2017). Meetodit on kasutatud reoveesete stabiliseerimiseks erinevates Euroopa riikides nagu näiteks Itaalias, Hispaanias, Taanis, Poolas, Saksamaal ja Prantsusmaal (Kołęcka *et al.* 2018; Masciandaro *et al.* 2017). Humifitseerimisväljakud võivad erineda oma täpse lahenduse poolest, kuid üldjoontes on nende põhimõtte sama: reoveesete laotatakse väljakule õhukese kihina (*ca* 20 cm) ning selle peale pannakse kasvama taimed (tavaliselt pilliroog või raihein), mis aitavad kaasa reoveesete

veetustamisele ja humifitseerimisele. Lõpp-produktiks saadakse stabiliseeritud sette, mille omadused on sarnased huumusele (Barjenbruch ja Kopplow 2001; OÜ aqua consult baltic 2015b; Pandey ja Jenssen 2015). Klassikalise lahenduse järgi kavandatakse väljak negatiivse maapinnavormina, mille põhjas on olemas filtratsiooni-kiht ja drenaažisüsteem. Väljakusse laotatakse pikema perioodi jooksul reoveesetet õhukeste kihtidena, kuni väljaku täitumiseni. Seejärel jäetakse reoveesete väljakule seisma ca 5–10 aastaks, mille jooksul reoveesete täielikult stabiliseerub. Sette stabiliseerumisel väljak tühjendatakse ning protsessi saab uuesti algatada (Brix 2017; Larsen *et al.* 2017; Barjenbruch ja Kopplow 2001). Väljakule istutatud taimed aitavad kaasa reoveesete orgaanilise aine lagundamisele luues juurte ümber sobiva keskkonna mikrobioloogilisteks protsessideks (Brix 2017). Samuti eemaldavad taimed reoveesetest raskmetalle ja teisi saasteaineid füto-remediatsiooni teel (vt täpsemalt ptk-i 2.6) (Etim 2012).

Võrreldes teiste settekäitlustehnoloogiatega on sette humifitseerimise meetod palju odavam. Olenevalt humifitseerimisväljaku ehitusest võib ainukeseks energiakuluks olla reoveesete transportimine väljakule ning nõrgvee ringlusesse suunamine. Samuti ei nõua väljakud suurt hooldust ega järelvalvet (Boruszko *et al.* 2017). Meetod on keskkonnasõbralik, kuna saasteainete eemaldamiseks kasutatakse taimi mitte kemikaale (Brix 2017; Etim 2012). Reoveesetele ei lisata lisaaineid, mistõttu on seda võimalik kasutada pärast põllumajanduses või aianduses (Barjenbruch ja Kopplow 2001). Humifitseerimisväljakute rajamiseks on vaja ruumi ning sette stabiliseerumine toimub pika aja vältel (ca 5–10 aastat), mistõttu sobib antud meetod pigem väiksematele reoveepuhastitele, mille reostuskoormus on alla 5000 inimekvivalendi (edaspidi ie). Meetodi kasutamisel peab arvestama võimaliku haisu levikuga lähisümbruskonda (OÜ aqua consult baltic 2015b). Tabelis 3 on esitatud kokkuvõtte humifitseerimisväljakute eelistest ja puudustest.

Tabel 3. Humifitseerimisväljakute eelised ja puudused (OÜ aqua consult baltic 2015b; Barjenbruch ja Kopplow 2001; Boruszko *et al.* 2017; Etim 2012; Brix 2017).

Eelised	Puudused
<ul style="list-style-type: none"> • Lihtne tehnoloogiline lahendus • Ei vaja suurt hooldust • Ei nõua energiat või nõuab väga vähe energiat (odav) • Lisaainete vaba • Keskkonnasõbralik 	<ul style="list-style-type: none"> • Ruumimahukas • Talveperioodidel on väljakute talitus problemaatilisem • Sette stabiliseerumine võtab kaua aega • Sobilik pigem väiksematele reoveepuhastitele (<5000 ie) • Haisu levik ümbruskonda

2.6 Fütoremediatsioon

Humifitseerimisväljakutel toimub kõrvalprotsessina fütoremediatsioon. Fütoremediatsioon on meetod kus taimede abil vähendatakse saasteainete kogust, liikuvust või toksilisust saastunud keskkonnas. Taimed on võimelised eemaldama keskkonnast erinevaid saasteaineid, nagu näiteks metalle, pestitsiide, lõhkeaineid ja õli (Etim 2012). Fütoremediatsiooni kasutusala on väga laialdased, näiteks võib meetodit kasutada pinnase puhastamiseks, mis on saastunud naftaga või raskmetallidega (näiteks vana kaevandusala) (Rajaei ja Seyedi 2018; Lorestani *et al.* 2012). Käesolevas magistritöös keskendutakse fütoremediatsiooni rakendamisele raskmetallide eemaldamiseks reoveesetest.

On erinevaid fütoremediatsiooni mehhanisme, kuidas taimed suudavad eemaldada keskkonnast saasteaineid või neid ohutuks teha. Kohati toimuvad osad protsessid samaaegselt. Viis peamist fütoremediatsiooni mehhanismi on: fütoekstraktsioon (nimetatakse ka fütoakumulatsiooniks), fütofiltratsioon, fütostabilisatsioon, fütodegradatsioon ja fütolendumine (Lee 2013). See, kui efektiivselt taim on võimeline saasteaineid pinnasest või veest eemaldama, sõltub saasteaine keemilistest omadustest (näiteks lahustuvusest vees, aururõhust ja molekulmassist), keskkonna omadustest (näiteks temperatuurist ja pH-st) ja taime tüübist (näiteks taime juure ja ensüümi tüübist) (Susarla *et al.* 2002; Etim 2012).

Fütofiltratsioon on mehhanism, kus taim absorbeerib lahusest saadud saasteained endasse (peamiselt juurtesse). Samuti võidakse saasteained adsorbeerida juurte pinnale. Mehhanismi saab kasutada eelkõige põhjavee, pinnavee või reovee puhastamiseks ning selleks sobivad peamiselt taimed, mille juured kasvavad kiiresti (Etim 2012; Lee 2013). Fütofiltratsiooni jaoks kasutatavad taimed kasvatatakse tavaliselt eelnevalt vees ette. Kui taimede juured on piisavalt välja arenenud asendatakse taimede kasvuvesi reostunud veega. Mehhanism teel saab keskkonnast eemaldada metalle või teisi mitteorgaanilisi ühendeid. Fütofiltratsioon on sarnane fütoekstraktsiooniga. Kahte mehhanismi tuuakse eraldi välja eelkõige seetõttu, et eristada taimede kasutusala. Fütoekstratsiooni kasutatakse peaaesjalikult pinnase või sette puhastamiseks (Etim 2012).

Fütostabilisatsioon põhineb taime võimel muuta ümbritseva pinnase omadusi ning seeläbi piirata saasteainete liikumist. Näiteks on taime juured võimelised muutma mulla pH-d ja niiskuse sisaldust ning seeläbi mõjutama saasteainete liikuvust mullas. Samuti on teada, et osade taimede

juureeritised põhjustavad metallide sadestumist (Susarla *et al.* 2002). Kui taim muudab saasteainete liikuvust näiteks filtratsiooni abil, on tegemist füüsikalise protsessiga, kui liikuvust muudetakse näiteks mulla pH muutmisega või juureeritise toimel (saasteaine sadestatakse), siis on tegemist keemilise protsessiga. Lisaks füüsikalistele ja keemilistele protsessidele on olemas ka bioloogilised protsessid. Taime juureeritised soodustavad mikroorganismide kasvu juure ümbruses. Mikroorganismid aitavad omakorda lagundada orgaanilisi saasteaineid taime juure ümbruses (Siciliano ja Germida 2011). Fütostabilisatsiooniga tagatakse, et saasteained ei levi keskkonnas edasi näiteks sügavamale pinnasesse (Lee 2013).

Fütodegradatsioon on mehhanism, kus taim lagundab saasteaineid endas, mullas või vees ensüümide abil. Taimed toodavad ensüüme nagu näiteks peroksidaas, nitroreduktaas, laktaas ja nitrilaas, mille abil lagundatakse keerulise ehitusega orgaaniline molekul lihtsama struktuuriga molekuliks. Nii fütоекstraktsiooni, fütolendumise ja fütodegradatsiooni puhul on saasteainete üles võtmine taimede poolt võimalik vaid siis, kui saasteainete lahustuvus ja hüdrofoobsus langeb kindlasse vahemikku (Etim 2012). Fütodegradatsioon sobib eelkõige mõõdukalt hüdrofoobsete orgaaniliste kemikaalide eemaldamiseks, mille oktanool-vesi jaotuskoeffitsent ($\log K_{ow}$) jääb vahemikku 0,5–3,0. Kui orgaaniline kemikaal on liiga hüdrofiilne ($\log K_{ow} < 0,5$), ei saa molekul liikuda läbi taime membraani. Kui tegemist on aga liiga hüdrofoobsete ($\log K_{ow} > 3,0$) orgaaniliste kemikaalidega, on molekulid liiga tugevalt kinni taime juure pinnal (Lee 2013). Peamiselt eemaldatakse fütodegradatsiooni teel orgaanilisi saasteaineid. Sellisteks orgaanilisteks saasteaineteks on näiteks klooritud lahustid ja herbitsiidid (Etim 2012).

Fütolendumine on protsess, kus taim võtab saasteaineid pinnasest või veest ülesse ning muundab need lenduvateks vormideks, mis seejärel hajutatakse atmosfääri läbi lehtede (Etim 2012; Lee 2013). Peamiselt on seda mehhanismi kasutatud elavhõbeda eemaldamiseks. Fütolendumise teel saab eemaldada lenduvaid orgaanilisi ühendeid aga ka mitteorgaanilisi ühendeid, millel on olemas lenduv vorm (Etim 2012). Näiteks on taimed võimelised muutma keemilise elemendi seleeni dimetüül-seleniidiks, mis on seleeni lenduv vorm ning mis ei ole nii mürgine (Susarla *et al.* 2002). Mehhanismi negatiivne pool on see, et pärast hajutamist atmosfääri võivad saasteained jääda püsima õhku õhusaastena või uuesti sadestuda ja sattuda tagasi keskkonda (Etim 2012; Lee 2013).

Raskmetallide eemaldamise puhul on kõige olulisem fütoremediatsiooni mehhanism fütоекstraktsioon. **Fütоекstraktsioon** (teatud ka kui fütооkumulatsioon) on mehhanism, kus taim

eemaldab saasteaineid mullast või veest kontsentreerides need taime juurtesse või maapealsetesse võrsetesse (Lee 2013; Etim 2012). Eelkõige on oluline siiski saasteainete ümberpaigutamine maapealsesse biomassi, et need oleks võimalik süsteemist lõplikult eemaldada. Kui taimed on piisavalt kaua endasse saasteaineid kontsentreerunud, niidetakse ja korjatakse taimed kokku. Kui saasteained kogunevad taime juure süsteemi, ei ole võimalik eemaldada saasteaineid keskkonnast lõplikult, kuna juurte ülesvõtmine on väga keeruline ja tavaliselt mitte teostatav (Ali *et al.* 2013).

Fütoekstraktsioon põhineb saasteaine akumulatsioonil ehk saasteaineid ei lagundata taime poolt ära. Raskmetallide hüperakumulatsiooniga on tegu juhul kui raskmetalli kogus taimes moodustab rohkem kui 0,1% kuivaine massist. Levinumate raskmetallide puhul (näiteks raud ja mangaan) on hüperakumulatsioon defineeritud kui raskmetallide kogus taimes, mis moodustab rohkem kui 1% taime kuivaine massist. Mõned taimed surevad hüperakumulatsiooni tulemusena, sest ei kannata suuri raskmetallide kontsentratsioone (Susarla *et al.* 2002). Fütoekstraktsiooniks sobivad hästi taimeliigid, kellel on kiire kasvuvõime, kõrge biomassi tootlikus ning kõrge vastupanuvõime raskmetallidele (Lee 2013).

2.7 Ülevaade reoveesette töötlemisest ja kasutamisest Eestis

Ülevaade Eestis reoveesette koguste tekke, töötlemise ja kasutamise kohta on maakondade kaupa antud Keskkonnaministeeriumi tellimusel koostatud töös „Regionaalsete reoveesette käitlemise lahenduste väljatöötamine ja jäätmete lakkamise kriteeriumite väljatöötamine reoveesette kohta“ (OÜ aqua consult baltic 2015a). Töö eesmärgiks oli jagada Eesti reoveesette käitlemise regioonideks, kaardistada regiooniti sette kasutamise võimalused, leida sobivad settekäitlusviisid ning töötada välja jäätmete lakkamise kriteeriumid. Töö oli aluseks Keskkonnaministri määruse „Reoveesetest toote valmistamise nõuded“ väljatöötamiseks. Määrus võeti vastu Keskkonnaministeeriumi poolt 19.07.2017. Tähelepanu tuleb pöörata sellele, et töös esitatud andmed kehtivad enne 2017. aasta Eesti omavalitsuste haldusreformi kehtestatud omavalitsusüksuste kohta.

Kõige levinum olmereovee settekäitlus tehnoloogia Eestis on aunkompostimine välitingimustes (arvestatud on olmereoveepuhasteid >2000 ie). Samuti kasutatakse ka anaeroobset käitlust (12% reoveepuhastitest) ning reaktorkompostimist (12% reoveepuhastitest). Enamuste reoveepuhastite

(arvestatud on reoveepuhasteid >2000 ie) reoveesette leiab kasutust haljastuses. Vaid 16% reoveepuhastitest suunavad oma reoveesette põllumajandusse ning 13% reoveepuhastitest suunavad oma reoveesette rekultiveerimisele. Eestis on väikepuhasteid (<2000 ie) palju, kuid enamasti väikepuhastite reoveesette käitluse kohta andmed puuduvad või siis reoveesete viiakse käitlemisele suurematesse reoveepuhastitesse (OÜ aqua consult baltic 2015a).

Kuigi Eestis on reoveesette kasutamine põllumajanduses madal, jõuti Keskkonnaministeeriumi poolt tellitud töös järeldusele, et Eesti piirkonnades on olemas suur potentsiaal reoveesette kasutamiseks põllumajanduses. Reoveesette kasutamise potentsiaal on väike vaid Põhja-Eestis Harjumaal ning Ida-Virumaal. Reoveesette kasutust piiravad eelkõige tehnoloogilised ja majanduslikud aspektid ning selle ohutus ja kvaliteedi sobivus (OÜ aqua consult baltic 2015b). Hetkel pärineb põllumajandusse suunatud reoveesete peamiselt spetsiifilistest toiduainetetööstuste reovee eelpuhastitest. Näiteks AS E-Piim Järva-Jaani meierei tööstusreoveest pärit reoveesete suunatakse peale anaeroobset töötlust 100% põllumajandusse (OÜ aqua consult baltic 2015a).

Üldiselt on Eesti reoveesetetes raskmetallide kontsentratsioonid madalad. Osadel reoveepuhastitel on probleeme töödeldud reoveesettes kaadmiumi ning elavhõbeda kontsentratsiooniga, et saavutada Keskkonnaministri 31.07.2019 määrusega nr 29 sätestatud piirväärtused. Töötlemata reoveesette puhul on olnud probleeme kroomiga (OÜ aqua consult baltic 2015c).

2.8 Eesti seadusandlus

Eestis reguleerib reoveesette kasutust peamiselt kaks õigusakti:

- Keskkonnaministri 31.07.2019 määrus nr 29 „Haljastuses, rekultiveerimisel ja põllumajanduses kasutatava reoveesette kvaliteedi piirväärtused ning kasutamise nõuded“;
- Keskkonnaministri 19.07.2017 määrus nr 24 „Reoveesetest toote valmistamise nõuded“.

Keskkonnaministri 31.07.2019 määrus nr 29 kehtestab haljastuses, rekultiveerimisel ja põllumajanduses kasutatava reoveesette kvaliteedi piirväärtused ning kasutamise nõuded. Määrus

defineerib reoveesetet jäätmeseaduse (vastu võetud 28.01.2004) alusel, mille kohaselt on reoveesete jääde. Keskkonnaministri 19.07.2017 määrus nr 24 kehtestab nõuded olmereoveesete käitlemise kohta ning ohutusnäitajad ja kvaliteedi piirväärtused, mille täitmise korral olmereoveesete lakkab olemast jääde. Nimetatud määrus annab võimaluse valmistada reoveesetest toodet. Määruse § 8 sätestab, et reoveesetest või reoveesetest ja biolagunevatest jäätmetest valmistatud toode on kompost, kääritusjääk või muu saadus, nagu biosüsi, kuivatussaadus või tuhk. Sama määruse § 10 lõige 4 kehtestab, et reoveesetest valmistatud toote saamiseks võib reoveesetet töödelda bioloogiliselt, keemiliselt, termiliselt või muu asjakohase protsessi abil, mille tulemusel toode vastab määruses esitatud ohutusnõuetele ja kvaliteedi piirväärtustele.

Sette stabiilsuse näitajate (hapnikutarve, orgaaniline aine (OA), põletuskao ja kuivaine suhe (OA/KA), lenduvate rasvhapete kontsentratsioon ning biogaasi jääkpotentsiaal) nõuded on mõlemas määruses samad. Reoveesetest valmistatud tootele kehtivad karmimad hügieniseerimise nõuded. Kui reoveesetet soovitakse kasutada haljastuses, põllumajanduses või rekultiveerimisel, siis peab reoveesettes *Escherichia coli* bakterite sisaldus jääma alla 1000 PMÜ (Pesa Moodustav Ühik) ühe grammi töödeldud sette märgkaalu kohta. Reoveesetest valmistatud tootes peab bakterite sisaldus jääma alla 10 PMÜ ühe grammi töödeldud sette märgkaalu kohta. Helmintide munade sisalduse piirväärtus erineb samuti kahe määruse vahel. Kui keskkonnaministri 31.07.2019 määrus nr 29 kehtestab, et reoveesettes ei tohi olla üle ühe helmintide muna 10 grammi töödeldud sette märgkaalu kohta, siis reoveesetest valmistatud tootes ei või olla mitte ühtegi muna. Lisaks on keskkonnaministri 19.07.2017 määruses nr 24 reguleeritud Salmonellabakteri sisaldus reoveesettes (25 g ei tohi esineda ühtegi Salmonellabakterit). Keskkonnaministri 31.07.2019 määrus nr 29 Salmonellabakterile piirväärtusi ei kehtesta. Keskkonnaministri 31.07.2019 määrusega nr 29 reoveesetele põllumajanduses, haljastuses ja rekultiveerimisel kasutamiseks kehtestatud raskmetallide piirväärtused on oluliselt suuremad, kui Keskkonnaministri 19.07.2017 määrusega nr 24 reoveesetest valmistatud tootele haljastuses ja rekultiveerimisel kasutamiseks sätestatud raskmetallide piirväärtused (tabel 4). Eriti ranged on raskmetallide piirväärtused, mis on kehtestatud reoveesetest valmistatud tootele põllumajanduses ja aianduses kasutamiseks (tabel 5).

Tabel 4. Keskkonnaministri 31.07.2019 määrusega nr 29 reoveesetele põllumajanduses, haljastuses ja rekultiveerimisel kasutamiseks ning Keskkonnaministri 19.07.2017 määrusega nr 24 reoveesetest valmistatud tootele haljastuses ja rekultiveerimisel kasutamiseks sätestatud raskmetallide piirväärtuste võrdlus.

Määrus	Raskmetalli piirväärtus (mg/kg KA)						
	Plii (Pb)	Kaadmium (Cd)	Kroom (Cr)	Vask (Cu)	Nikkel (Ni)	Elavhõbe (Hg)	Tsink (Zn)
Keskkonnaministri 31.07.2019 määrus nr 29 (piirmäärad põllumajanduses, haljastuses ja rekultiveerimisel kasutamiseks)	750	20	1000	1000	300	16	2500
Keskkonnaministri 19.07.2017 määrus nr 24 (piirmäärad haljastuses ja rekultiveerimisel kasutamiseks)	130	2	60	200	40	1	2500

Tabel 5. Keskkonnaministri 19.07.2017 määrusega nr 24 kehtestatud raskmetallide piirmäärad reoveesetest valmistatud tootele põllumajanduses ja aianduses kasutamiseks.

Määrus	Fosforisisalduse suhestatud raskmetalli piirmäär (g/kg P)						
	Plii (Pb)	Kaadmium (Cd)	Kroom (Cr)	Vask (Cu)	Nikkel (Ni)	Elavhõbe (Hg)	Tsink (Zn)
Piirmäärad põllumajanduses ja aianduses kasutamiseks	7,5	0,15	15	45	4	0,11	125

Kuigi Keskkonnaministri 19.07.2017 määrus nr 24 sätestab rangemad tingimused reoveesetele (täpsemalt reoveesetest valmistatud toote) kvaliteedile, loob määrus suuremad eeldused selle kasutamiseks põllumajanduses. Reoveesetet, mis vastab Keskkonnaministri 31.07.2019 määrus nr 29 nõuetele, tohib kasutada vaid viljapõldudel. Reoveesetest valmistatud toodet tohib kasutada igasugusel põllumajandusmaal, arvestama peab vaid, et aasta jooksul pärast laotamist ei tohi maalal kasvatada köögivilja- või marjakultuure ning ravim- või maitsetaimi ning kahe kuu jooksul

pärast laotamist ei tohi karjatada loomi või varuda loomasööta. Lisaks puudub reoveesetest valmistatud toote kasutajal kohustus pidada arvestust sette kasutamise üle.

3. Materjal ja meetodika

3.1 Proovivõtu koht ja meetod

Magistritöö koostamise raames uuriti Türi linna reoveepuhasti humifitseerimisväljakuid. Reoveepuhasti territooriumil on humifitseerimismeetodit uuritud pilootplatsil (fotol 1 markeeritud tähisega A) väikses mahus mitmeid aastaid, kus humifitseerimisprotsessi läbiviimiseks on kasutatud taimeliiki karjamaa-raihein (*Lolium perenne*). Katseplatsil on humifitseerimisväljakutelt setteproove ja karjamaa-raiheina proove kogutud alates 2017. aastast (kaks korda aastas – kevadel ja sügisel). Humifitseerimisväljakud on rajatud drenaažikindlale puulehtedega kaetud pinnale. Reoveesetest välja eralduv vesi suunatakse pilootväljakut piiravatesse kraavidesse, kust see pumbatakse tagasi puhastisse.

Aastal 2019 valmis Euroopa Liidu IWAMA (Interactive Water Management) projekti käigus uus plats (fotol 1 markeeritud tähisega B), kus loodi paremad tingimused humifitseerimismeetodi läbiviimiseks. Projektiga rajati kaldega asfalteeritud plats, kus humifitseerimise käigus reoveesetest eralduv reovesi kogutakse suletud kraavi ning suunatakse tagasi reoveepuhastisse.

Kummalgi platsil humifitseerimisväljakutelt karjamaa-raiheina ei niidetud.



Foto 1. Türi linna reoveepuhasti humifitseerimisväljakute platsid. Plats A - esialgne katseplats. Plats B - 2019. aastal Euroopa Liidu projekti käigus valminud plats (Maa-ameti geoportaal).

Käesoleva töö jaoks koguti 02.10.2018 platsilt A setteproove ja karjamaa-raiheina proove 4, 16, 28 ja 52 kuu vanustelt humifitseerimisväljakutelt. Neljanda suve ehk 40 kuu vanust humifitseerimisväljakut ei suudetud tuvastada. Humifitseerimisväljakute paksus varieerus 20–50 cm vahel. Karjamaa-raihein ei kasvanud väljakutel ühtlaselt (foto 2). Eriti silmapaistev oli see 16 kuu vanusel humifitseerimisväljakul. Kõikidelt humifitseerimisväljakutelt võeti viie punktproovi keskmistatud setteproov, kindla ruumala setteproov ning karjamaa-raiheina proov. Viie punktproovi keskmistatud setteproovi jaoks võeti väljakult viiest erinevast kohast (võimalikult sarnases koguses ja sügavuses) setteproov, mis segati kokku üheks prooviks. Karjamaa-raiheina proovi ja kindla ruumala setteproovi jaoks valiti väljakult 50 x 50 cm suurune ala, kus karjamaa-raihein kasvas tihedalt. Esmalt koguti käsitsi 50 x 50 cm suuruselt alalt karjamaa-raihein pealt ära (ilma juurteta). Seejärel võeti samalt pindalalt viiest erinevast kohast 15 cm sügavune setteproov, mis segati kokku üheks keskmistatud prooviks. Lisaks võeti 02.10.2018 setteproov väljakule laotatud tahendatud reoveesetest, kus humifitseerimisprotsessi veel ei toimunud (vanus 0 kuud).



Foto 2. Ebahühtlaselt kasvav karjamaa-raihein Türi humifitseerimisväljakul (20.06.2018).

Platsilt B koguti proove ühelt humifitseerimisväljakult. Viie punktproovi keskmistatud setteproov võeti platsile laotatud tahendatud settest 14.06.2019. Umbes neli kuud hiljem 08.10.2019 võeti väljakult viie punktproovi keskmistatud ja kindla ruumala setteproov ning karjamaa-raiheina proov.

3.1.1 Türi linna reoveepuhasti ja ühiskanalisatsioonisüsteemi iseloomustus

Türi linna reoveepuhasti asub linna lõunaosas Pärnu jõe kaldal. Reoveepuhasti rekonstrueeriti aastatel 2008–2009. Puhastisse suunatud reovesi läbib esmalt prügi eemaldamiseks võre ning seejärel eelpuhastuse aereeritavas liivapüünises. Reovesi liigub edasi aktiivmudapuhastisse, kus fosfor eraldatakse reoveest keemiliselt raudsulfaadi lisamisega. Puhastusprotsessi käigus tekivad reoveesete tahendatakse tsentrifuugis. Reoveepuhastisse juhitakse reovesi Türi linnast, Säravere alevikust, Türi-Alliku külast ning Lokuta külast. Reoveepuhasti reostuskoormus on 8375 ie (OÜ Europolis 2015).

Türi linna ühiskanalisatsioonitorustikud on heas seisundis. Enamus torustikest on rajatud või rekonstrueeritud aastatel 2002–2004 ning 2010–2014. Türi linnas on kasutusel mitu kohtpuhastusseadet. Näiteks on bensiini tanklate ja autopesulate juures olemas õli- või muda-õlipüüdjad. Sademevesi juhitakse osaliselt ühisveekanaliseerimisele (OÜ Europolis 2015).

3.1.2 Karjamaa-raihein (*Lolium perenne*)

Karjamaa-raihein (*Lolium perenne*) (edaspidi ka raihein) on mitmeaastane taim (kasvuaeg 4 kuni 5 aastat), mida kasvatatakse tavaliselt karjamaadel loomadele söödaks või silo tegemiseks (Eesti Taimekasvatuse Instituut). Tegemist on taimega, mis on kiire kasvuga ning suure biomassiga, mistõttu on ta sobilik humifikatsiooniks ja füto-remediatsiooniks (Hannaway *et al.* 1999; Emorsgate Seeds). Taim kasvab ca 40–60 cm kõrguseks (Eesti Taimekasvatuse Instituut). Tema juurestik on madal, kiudne ja hargnenud (Hannaway *et al.* 1999). Pärast esimest kahte talvitumist säilib 70–90% taimedest. Karjamaa-raihein vajab kasvamiseks palju lämmastiku, seega on tema kasv oluliselt mõjutatud pinnase lämmastiku sisaldusest (Eesti Taimekasvatuse Instituut).

3.2 Andmete analüüs

Käesoleva magistritöö raames kogutud proove kasutati humifitseerimis- ja fütoemediatsiooniprotsessi analüüsimiseks ja võrdlemiseks erinevas vanuses humifitseerimisväljakute vahel. Koos antud töö raames kogutud andmetega kasutati ka varasemalt (pilotplatsilt) kogutuid andmeid, et iseloomustada samu protsesse ühe väljaku piires. Andmete analüüsiks kasutati tabelarvutustarkvara Microsoft Excel.

Selleks, et välja arvutada raskmetallide protsendiline sisaldus karjamaa-raiheinas võrreldes settega (ptk 4.3 joonis 14) võeti, tuginedes Sperling ja Gonçalves (2007) töös välja toodud andmetele, neljanda ja kuueteistkümnenda kuu vanuse sette tiheduseks 1050 kg/m^3 ning viiekümne kahe kuu vanuse humifitseerimisväljaku sette tiheduseks 1100 kg/m^3 .

3.2.1 Proovide üldparameetrite analüüs

Kõikidel setteproovidel määrati põletusjääk, kuivaine (lühend KA), üldfosfor (tähis $P_{\text{üld}}$), Kjeldahi lämmastik (edaspidi ka üldlämmastik (tähis $N_{\text{üld}}$)) ning keemiline hapnikutarve (lühend KHT). Raiheinaproovidel määrati kuivaine, üldfosfori ning Kjeldahi lämmastik. Nimetatud parameetrite määramiseks kasutatud meetodikad ja nende kirjeldused on antud tabelis 6. Kõiki parameetreid määrati kolmes korduses. Saadud tulemustest arvutati keskmine.

Tabel 6. Üldparameetrite määramiseks kasutatud meetodikad ja meetodikate kirjeldused.

Parameeter	Kasutatud meetodika	Metoodika kirjeldus
Kuivaine	EVS-EN 12880 (2001) SFS 3008 (1990)	Eelnevalt kaalutud proovid pannakse 24 tunniks kuivatuskappi, kus temperatuur on 105 °C. Pärast kuivatamist kaalutakse proovid uuesti. Proovide kuivaine sisaldus arvutatakse massi erinevuse alusel enne ja pärast kuivatamist. Karjamaa-raiheina proovidel arvutati kuivainesisaldus massi erinevuse ja proovi ruumala kaudu. Selleks oli vajalik enne kuivatamist määrata proovi ruumala (ml).
Põletusjääk		Eelnevalt kuivatatud ja kaalutud proovid pannakse neljaks tunniks põletusahju 550 °C juurde. Peale seda kaalutakse proovid uuesti ning massierinevuse kaudu arvutatakse proovide põletusjääk ehk mineraalse osa sisaldus.
Üldfosfor	EVS-EN ISO 6878 (2004).	Üldfosfori määramiseks on vajalik esmalt anorgaanilise fosfaadi kompleksühendid ja orgaaniliselt seotud fosfor muuta ortofosfaadiks. Selleks lisatakse proovidele oksüdeerijat kaaliumperoksodisulfaati ning autoklaavitakse proovid 30 min 115–120 °C juures. Pärast autoklaavimist tehakse proovidest vajalikud lahjendused. Lahjendustele lisatakse askorbiinhappe ja molübdaadi lahust. Molübdaadi ja Sb(III)tartraadi segu reageerib fosfaatiooni ja askorbiinhappega, mille tulemusena moodustub sinise värvusega kompleksühend. Fosfaatioonide kontsentratsioon määratakse spektrofotomeeriliselt lainepikkusel 880 nm.
Kjeldahi lämmastik	Hach Lange meetod 8075 (1985)	Kjeldahi lämmastiku määramiseks muudetakse algselt proovis olev orgaaniline lämmastik ammoniumsoola vormiks. Selleks keedetakse proov kontsentreeritud väävelhappes kuhu lisatakse juurde vesinikperoksiidi. Proovi ammoniaagi kontsentratsioon määratakse modifitseeritud Nessleri meetodiga. Mõõtmistel kasutati Hach Lange DR 2800 spektrofotomeetrit lainepikkusel 460 nm.
Keemiline hapnikutarve	EVS-ISO 15705 (2004)	Keemilise hapnikutarbe määramiseks kasutatakse dikromaadi meetodit, mille põhimõte seisneb kogu oksüdeeritava aine reageerimises väävelhappe ja kaaliumdikromaadi lahusega, mis sisaldab ka katalüsaatorina toimivat hõbesulfaati ning kloriidiooni mõju vähendavat elavhõbesulfaati. Keemilise hapnikutarbe kontsentratsioon määratakse spektrofotomeetriselt lainepikkusel 448 nm (15–150 mg O ₂ /l) või 605 nm (100–2000 mg O ₂ /l).

3.2.2 Raskmetallide määramine

Kõikidel karjamaa-raiheina proovidel ja setteproovidel määrati raskmetallide sisaldused.

Raskmetallide määramise protseduur oli järgmine:

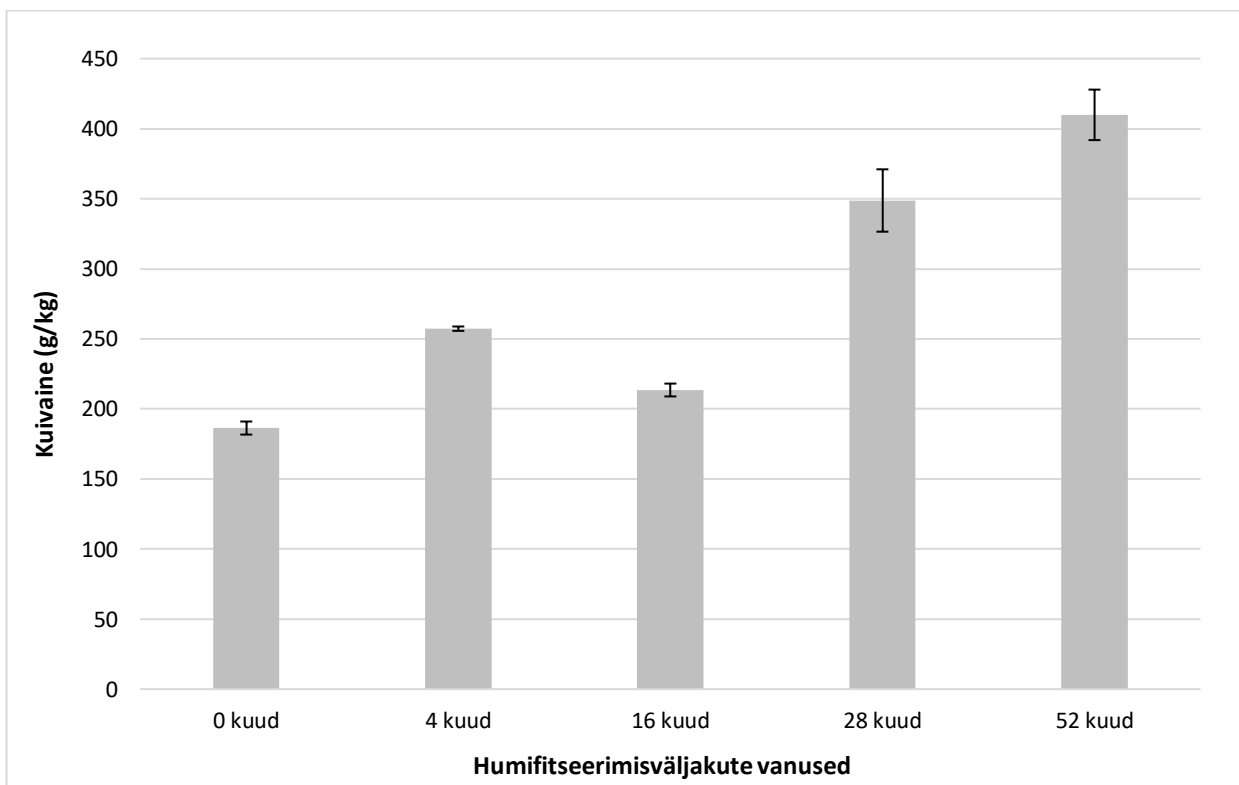
- 1) standardi EVS-EN 12880 (2001) järgi kuivatatud proovid peenestati Retch PM100 planetaarveskis kasutades 80 ml ahaatuhmrit, mis oli täidetud 25 ahaatkuuliga (diameetriga 10 mm). Seejärel kaaluti proovid mikrolainemineralisaatori lahustusanumatesse HVT50. Setteproovide koguseks võeti 0,5 g ning karjamaa-raiheina koguseks 0,25 g. Kõiki proove valmistati ette kolmes korduses;
- 2) kaalutud proovidele lisati 8 ml lämmastikhapet ja 1 ml H₂O₂;
- 3) proovid mineraliseeriti Anton Par Multiwave Pro mikrolaineahjus 24HVT50 rootoris, kasutades eelseadistatud EPA 3051A meetodile vastavat lahustusprogrammi;
- 4) lahustatud proovidest valmistati 2% lämmastikhappe lahusega 100x lahjendused ja määrati Agilent 8800 QQQ ICP-MS induktiivsidestatud plasma massispektromeetriaga raskemetallide sisaldused.

Analüüsi õigsuse valideerimiseks kasutati referentsproovidena karjamaa-raiheina puhul Euroopa Komisjoni poolt sertifitseeritud materjali ERM-CD281 (proovi nr: 0547) ning reoveesette puhul materjali ERM-CC144 (proovi nr: 0053), mida lahustati koos tundmatute proovidega. ¹¹¹Cd ja ²⁰⁸Pb kvantifitseeriti NoGas analüütilisel režiimil ning ⁵²Cr, ⁶³Cu, ⁶⁶Zn ja ⁶⁰Ni kasutades kolisioonirakus 6 ml/min He gaasi.

4. Tulemused ja arutelu

4.1 Kuivaine ja orgaanika

Joonisel 1 on esitatud humifitseerimisväljakute sette kuivainesisaldused viie punktproovi keskmistatud setteproovi tulemuste järgi. Tahendatud reoveesette ehk 0 kuu vanuse humifitseerimisväljaku sette kuivainesisaldus oli 186 g/kg. Teiste humifitseerimisväljakute kuivainesisaldused olid vastavalt vanusele (nooremast vanemani) 257, 214, 349 ning 410 g/kg. Kui välja arvata 16 kuu vanune humifitseerimisväljak, on tulemustest näha, et mida vanem on humifitseerimisväljak, seda suurem on sette kuivainesisaldus. Setteproovid on võetud samal kuupäeval, seega tulemused ei ole mõjutatud ilmastikust. Vanuselt kolmanda humifitseerimisväljaku väiksem kuivainesisaldus (võrreldes nelja kuu vanuse humifitseerimisväljakuga) võib olla põhjustatud puudulikust humifitseerimisprotsessist. Vaadeldaval humifitseerimisväljakul oli kohti, kus karjamaa-raiheina ei kasvanud ning korrektse tulemuse saamiseks võeti punktproove nii karjamaa-raiheinaga kaetud kui katmata kohtadest.

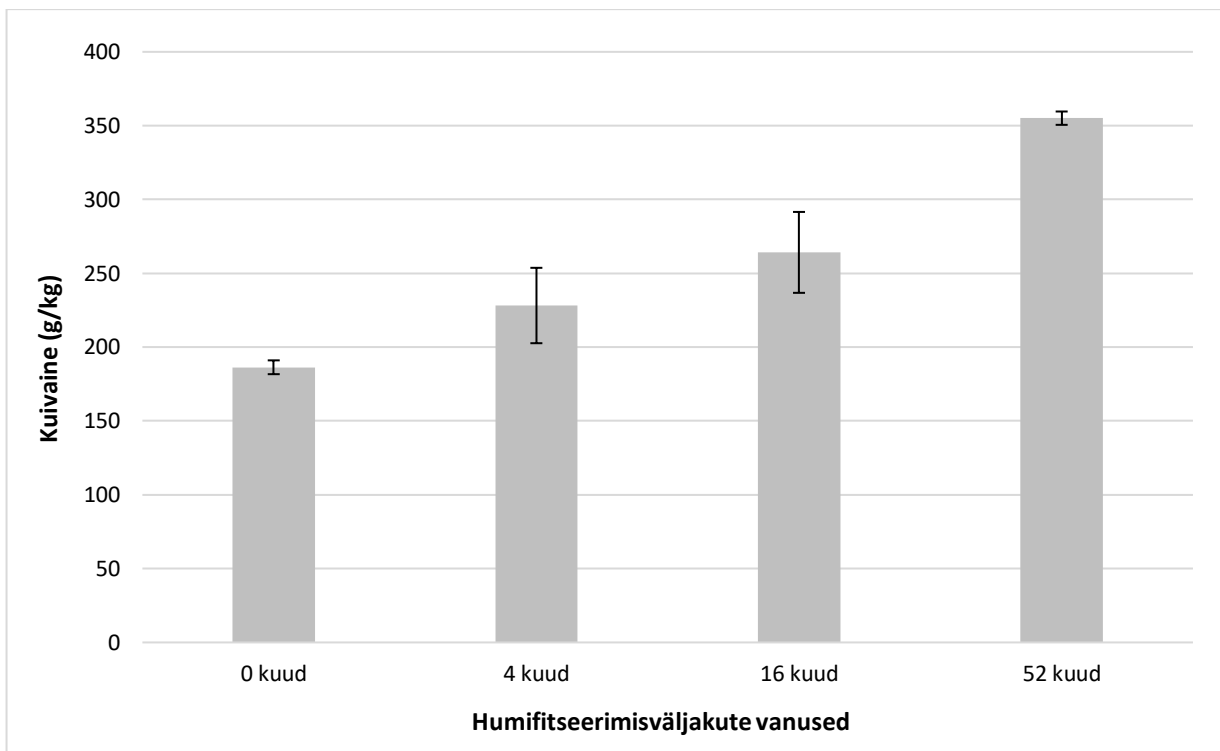


Joonis 1. Türi humifitseerimisväljakute sette kuivainesisaldused viie punktproovi keskmistatud setteproovide tulemuste põhjal (proovivõtu aeg 02.10.2018).

Kindla ruumala setteproovide kuivainesisalduse tulemused on välja toodud joonisel 2. Andmete analüüsi käigus selgus, et 28 kuu vanuse humifitseerimisväljaku kindla ruumala setteproov ei olnud esinduslik, kuna proov sisaldas savi, kivitükke ja muid võõriseid, mis mõjutasid oluliselt analüüsi tulemusi. Selleks, et tulemusi selgemini demonstreerida ei kajastata 28 kuu vanuse väljaku kindla ruumala setteproovi andmeid.

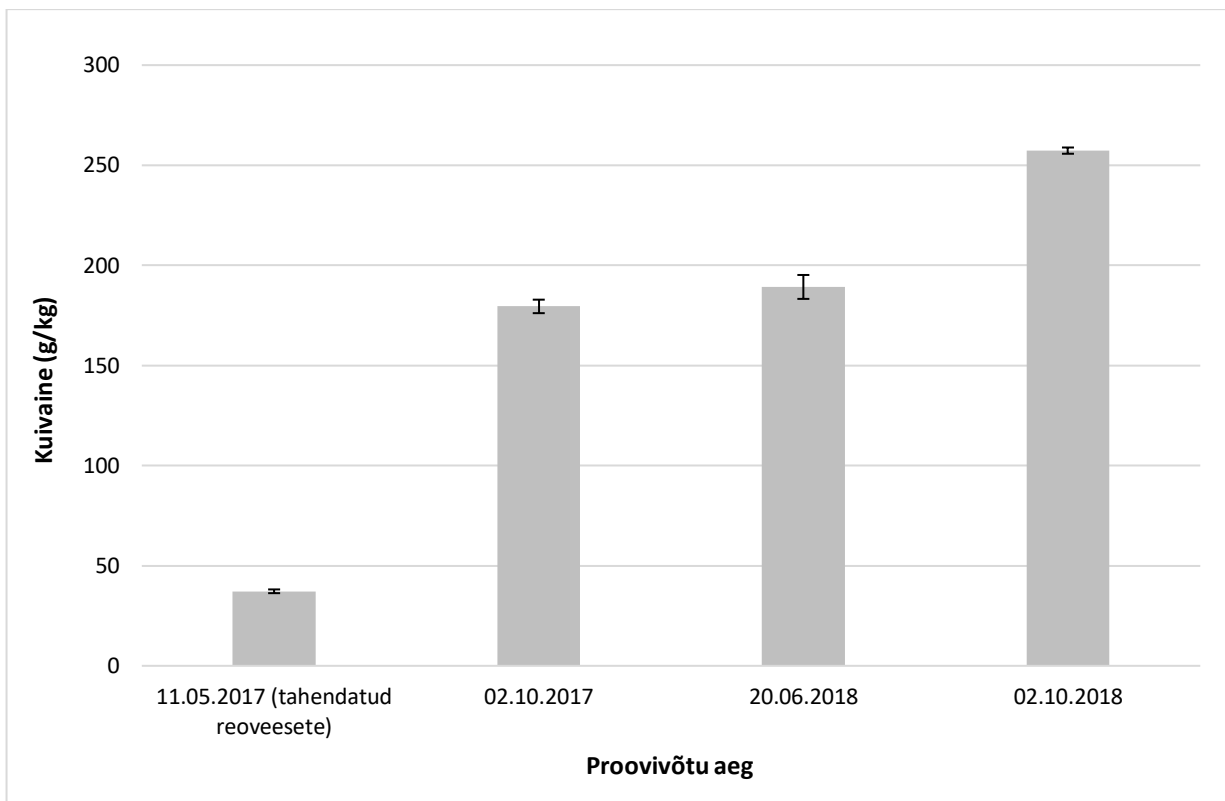
Kindla ruumala setteproovide tulemused näitavad samuti, et mida vanem on humifitseerimisväljak, seda suurem on sette kuivainesisaldus. Nulli, nelja, kuuteistkümne ja viiekümne kahe kuu vanuse humifitseerimisväljakute setete kuivaine sisaldused olid kindla ruumala setteproovide järgi vastavalt 186, 228, 264 ja 355 g/kg.

Viie punktproovi keskmistatud ning kindla ruumala setteproovide kuivainesisalduste tulemused erinevad samade väljakute puhul märgataval määral, mis viitab sellele, et humifitseerimisprotsess ei toimu väljakul ühtlaselt. Kindla ruumala setteproovid on võetud väljakutelt kindlast kohast, kus karjamaa-raihein kasvas tihedalt ning seetõttu iseloomustab täpsemalt humifikatsiooni ja fütoremediatsiooni protsessi settes. Viie punktproovi keskmistatud setteproovid iseloomustavad samade protsesside toimumist väljakul tervikuna. Selleks, et tulemusi ühtlustada ja vaadeldavaid protsesse paremini läbi viia tuleks reoveesetel laotada väljakule võimalikult õhukeselt (mitte üle 20 cm) ning karjamaa-raihein peale külvata võimalikult tihedalt.



Joonis 2. Türi humifitseerimisväljakute sette kuivainesisaldused kindla ruumala setteproovide tulemuste põhjal (proovivõtu aeg 02.10.2018).

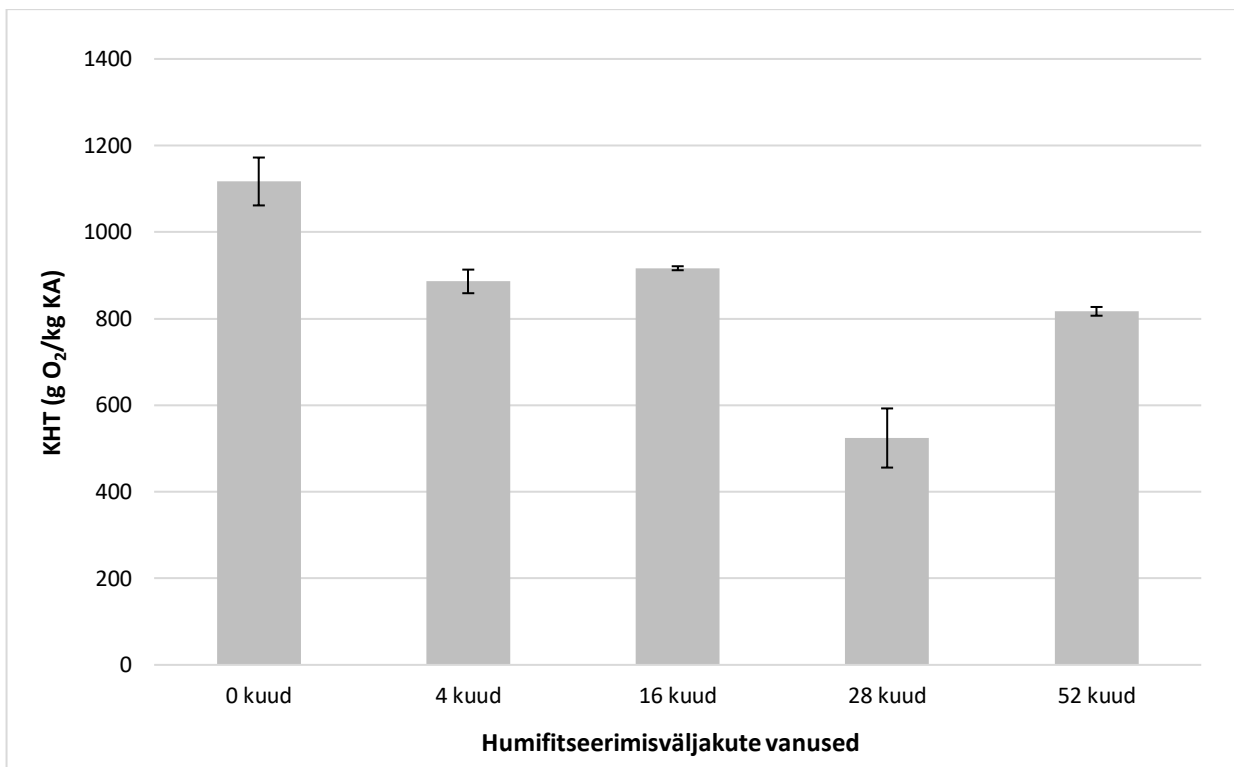
Reoveepuhasti reoveesette kuivaine sisaldus aastatepikkuselt on enam vähem sama kõikides väga vähe. Sellele tuginedes saab joonisel 1 ja 2 kajastatud tulemuste põhjal järeldada, et humifitseerimise käigus väheneb reoveesette veesisaldus. Sama järeldust kinnitavad pilootplatsilt väljaspool antud magistritööd eelnevalt kogutud setteproovide andmed. Joonisel 3 on välja toodud varasemalt (11.05.2017, 02.10.2017 ja 20.06.2018) korjatud setteproovide tulemused ühelt humifitseerimisväljakult. Vaadeldav joonis kirjeldab väljaku kuivainesisalduse muutust pooleteise aasta jooksul. Reoveesette algne kuivainesisaldus oli 37 g/kg. Umbes viie kuu pärast suurenes sette kuivainesisaldus 80% (180 g/kg) ning pooleteise aasta pärast oli humifitseerimisväljakul sette kuivainesisaldus 257 g/kg. Suurt kuivainesisalduse muutust ei ole näha 2017. aasta sügisel ja 2018. aasta kevadel kogutud proovides, kuna nende proovide vahepealsele ajale jääb külmem periood (talv), kus humifitseerimisväljakul toimuvad protsessid on aeglustatud.



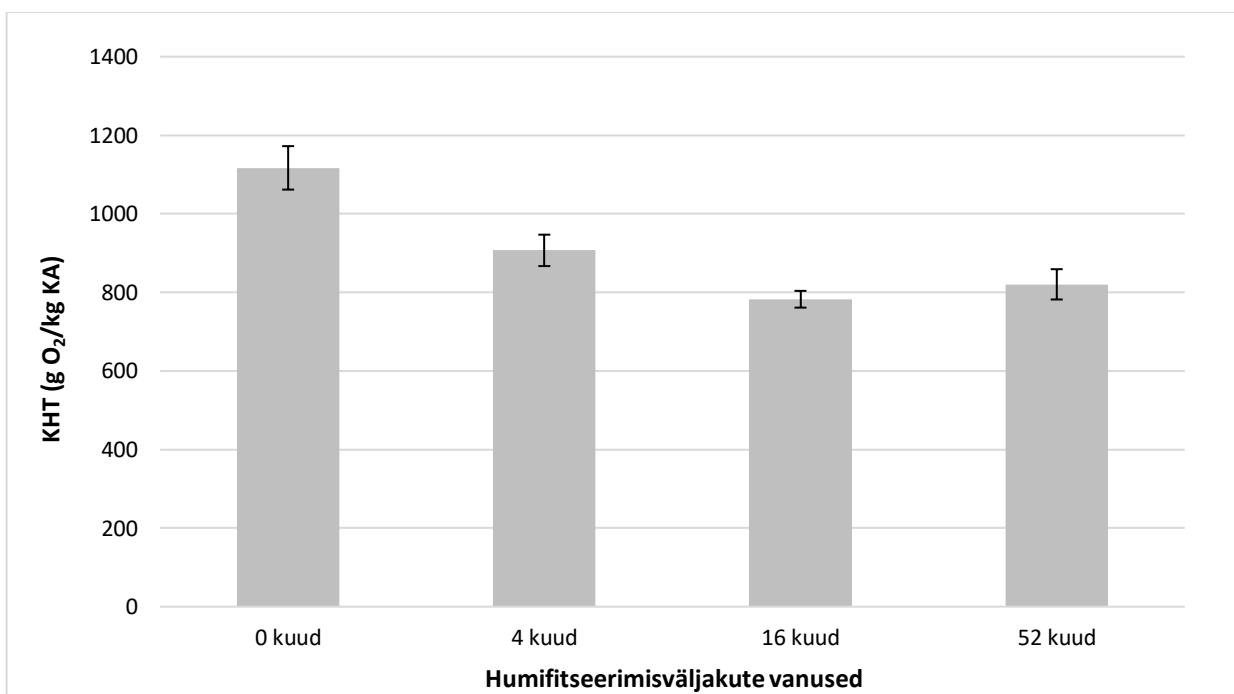
Joonis 3. Kuivaine sisalduse muutus humifitseerimisväljaku settes pooleteise aasta jooksul (varasemate andmete põhjal).

Joonisel 4 ja 5 on iseloomustatud Türi humifitseerimisväljakute sette orgaanilise aine sisaldust keemilise hapnikutarbe kaudu. Tulemused kinnitavad, et humifitseerimisprotsessi käigus toimub reoveesete orgaanilise aine vähenemine. Orgaanilise aine sisalduse vähenemine põhjendab kuivainesisalduse suurenemist Türi humifitseerimisväljakutel, vaatamata sellele, et humifitseerimisväljakud asuvad välisõhus ning on ilmastiku poolt mõjutatud. Kuivaine koosneb orgaanilisest ja mineraalsest osast. Orgaaniline aine seob vett paremini kui mineraalne aine. Aja jooksul orgaaniline aine humifitseerimisväljakutel mineraliseeritakse ehk kuivaines orgaaniline osa väheneb ja mineraalne osa suureneb. Selle tulemusena väheneb sette võime siduda vett ning suureneb stabilisatsioon.

Viie punktproovi keskmistatud setteproovide keemilise hapnikutarbe tulemused olid vastavalt väljakute vanusele (nooremast vanemani) 1117, 886, 917, 524 ning 817 g O₂/kg KA (joonis 4). Kindla ruumala setteproovide keemilise hapnikutarbe tulemused olid 0, 4, 16 ja 52 kuu vanustel humifitseerimisväljakutel vastavalt 1117, 907, 783 ning 820 g O₂/ kg KA (joonis 5).



Joonis 4. Türi humifitserimisväljakute viie punktproovi keskmistatud setteproovide keemilise hapnikutarbe tulemused (proovivõtu aeg 02.10.2018).



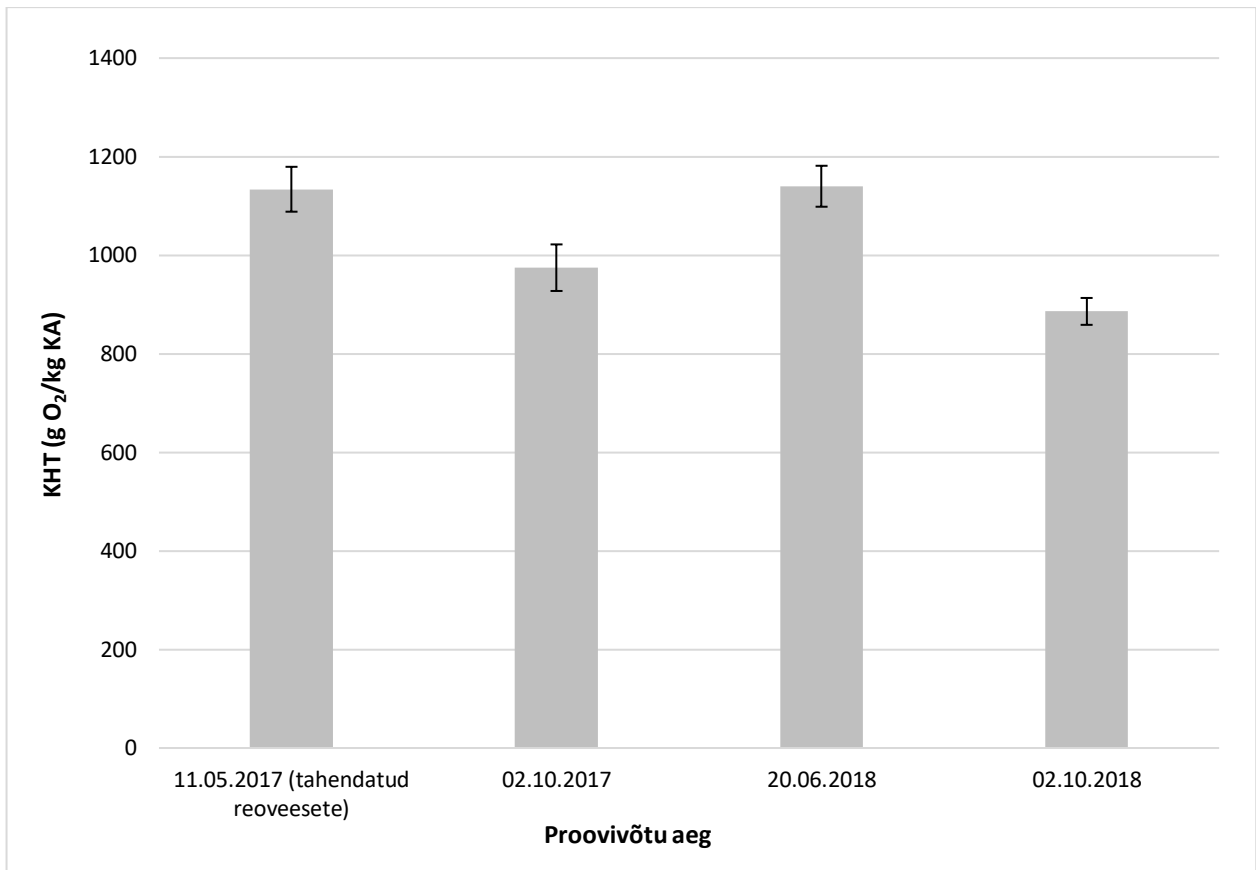
Joonis 5. Türi humifitserimisväljakute kindla ruumala setteproovide keemilise hapnikutarbe tulemused (proovivõtu aeg 02.10.2018).

Viiekümne kahe kuu vanuse humifitseerimisväljaku suurem orgaanilise aine sisaldus, mis tuleb välja mõlema setteproovi puhul, võib olla tingitud sellest, et neljandaks aastaks on osa karjamaa-raiheinast väljakul ära surnud (karjamaa-raiheina eluiga on 4 kuni 5 aastat) ning surnud taime massi lagunemisel kantakse orgaaniline aine tagasi settesse.

Viie punktproovi keskmistatud setteproovi KHT tulemustest ei ole nii kontrastselt näha orgaanilise aine sisalduse vähenemist väljakutes, kui kindla ruumala setteproovide tulemustest. Põhjuseks võib olla taas 16 kuu vanuse humifitseerimisväljaku puudulik humifitseerimisprotsess. Kindla ruumala setteproov näitab oluliselt väiksemat orgaanilise aine sisaldust 16 kuu vanuse väljaku settes kui viie punktproovi keskmistatud setteproov, kuna kindla ruumala setteproov oli võetud kohast, kus karjamaa-raihein kasvas tihedalt. Teiste väljakute setteproovide tulemused langevad hästi kokku. Seda tõenäoliselt seetõttu, et teistel väljakutel kasvas karjamaa-raihein palju ühtlasemalt. Antud tulemuste põhjal võib järeldada, et raihein aitab arvestataval määral kaasa orgaanilise aine lagundamisele settes.

Platsi B humifitseerimisväljaku setteproovide tulemused näitavad samuti, et orgaanika sisaldus langeb settes juba esimese nelja kuu jooksul. Sette algne KHT oli 1169 g O₂/kg KA. Nelja kuu pärast oli viie punktproovi keskmistatud setteproovide järgi sette KHT 1082 g O₂/kg KA ning kindla ruumala setteproovi järgi 977 g O₂/kg KA. Platsi B humifitseerimisväljaku tulemused näitavad taas, et lühiajalises perspektiivis humifitseerub raiheina alla jääv sete oluliselt kiiremini, kui väljakul keskmiselt.

Joonisel 6 on näidatud varasemate andmete põhjal orgaanika sisalduse muutust ühe väljaku piires. Andmetest on näha, et orgaanilise aine sisaldus settes kõigub olenevalt aastaajast. Sügiseti orgaanilise aine sisaldus settes langeb, kuna karjamaa-raihein on saanud kasvada terve suve ja seeläbi mõjutada orgaanilise aine lagunemist settes. Samuti aitab suvel orgaanilise aine lagundamisele kaasa kõrgem temperatuur, mis on soodsam settes olevate mikroorganismide elutegevuseks. Orgaanilise aine sisalduse tõus teisel kevadel (20.06.2018) tuleneb tõenäoliselt sellest, et vahepealsel talveperioodil on osa raiheina ära surnud ning lagunema hakanud.



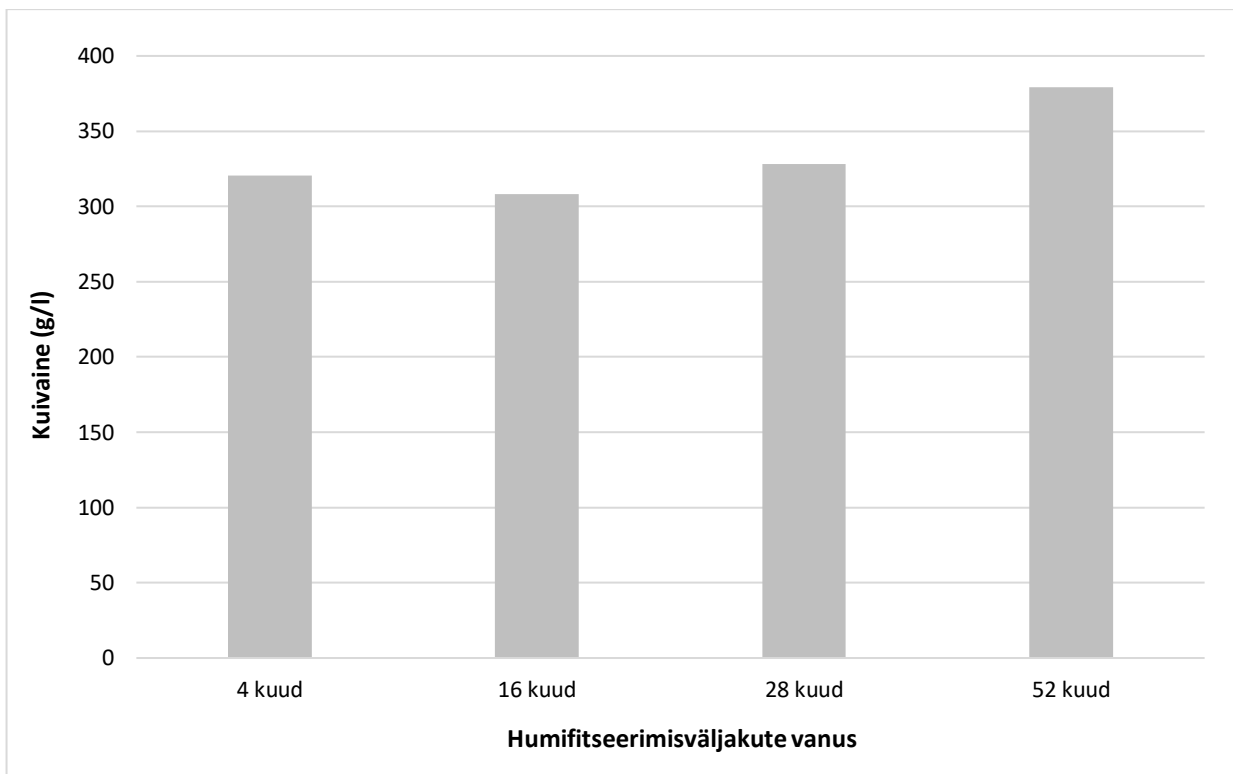
Joonis 6. Keemilise hapnikutarbe muutus humifitseerimisväljaku settes pooleteise aasta jooksul (varasemate andmete põhjal).

Setteproovide KHT andmetest saab järeldada, et kuigi ühe väljaku piires orgaanilise aine sisaldus kõigub, siis summaarselt ajas humifitseerimisväljakul sette orgaanilise aine sisaldus väheneb kuni umbes kolmanda aastani. Pärast kolmandat aastat hakkab settes orgaanilise aine sisaldus uuesti tõusma surnud taimemassi lagunemise arvelt. Eeva Vahtramäe 2017. aasta magistritöö tulemused näitasid, et ilma taimestiku niitmata saavutasid erinevate reoveepuhastite humifitseerimisväljakud 2–3 aastaga stabiliseerituse, kuid kohati jäid setteväljakute saavutatud stabiliseerituse tulemused napilt alla kehtestatud nõuete. Seega kui setet soovitakse humifitseerida kauem kui kolm aastat võib vajalikuks osutuda karjamaa-raiheina niitmine kas igal sügisel või peale kolmandat aastat.

4.1.1 Karjamaa-raihein

Erineva vanusega humifitseerimisväljakutelt kogutud karjamaa-raiheina proovide kogused erinesid vähe. Nelja, kuueteistkümne ja viiekümne kahe kuu vanuselt humifitseerimisväljakult (pindalalt 50 x 50 cm) kogutud karjamaa-raiheina proovide kogused olid vastavalt 2,4, 2,6 ning 2,9 liitrit. Ruumala erinevus võib tingitud olla karjamaa-raiheina proovi mõõtmise ebatäpsusest või/ja sellest, et taim ei kasvanud väljakutel ühtlaselt.

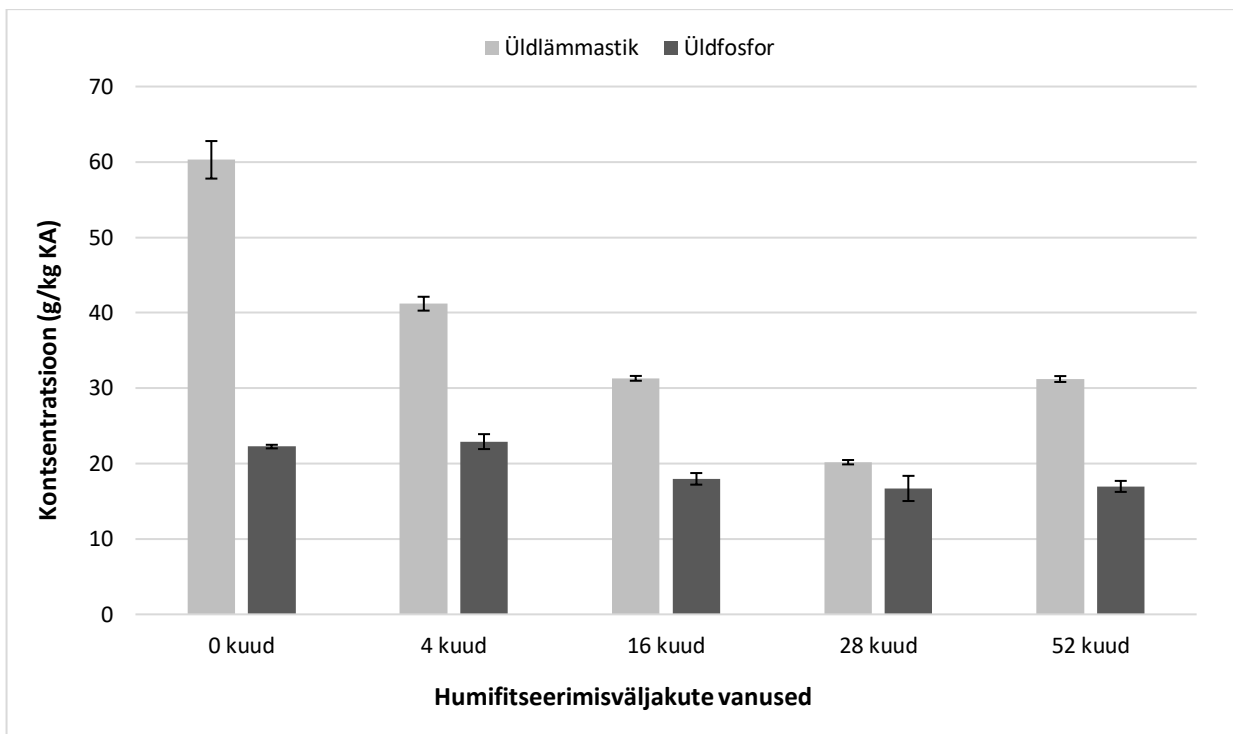
Joonisel 7 on esitatud humifitseerimisväljakutelt korjatud karjamaa-raiheina kuivainesisaldused. Karjamaa-raiheina kuivainesisaldused ei erine oluliselt 4, 16 ja 28 kuu vanuste humifitseerimisväljakute vahel. Tulemused on vastavalt 320, 308 ja 328 g/l. Oluliselt suurem on karjamaa-raiheina kuivaine sisaldus 52 kuu vanusel humifitseerimisväljakul (379 g/l). Suurem kuivainesisaldus on tõenäoliselt tingitud taime vanusest. Kuna karjamaa-raiheina maksimaalseks vanuseks peetakse neli kuni viis aastat, võib neljanda aasta taim vanimal humifitseerimisväljakul olla vähem elujõuline ning seetõttu omastada vähem vett kasvamiseks. See tähendab, et sellisel juhul omastatakse vee kaudu ka vähem toitaineid ja raskmetalle. Vanima humifitseerimisväljaku karjamaa-raiheina väiksem veesisaldus ei ole seotud sette kuivainesisaldusega (või täpsemalt selle kasvuga). Sette veesisaldus 52 kuu vanusel humifitseerimisväljakul ei olnud nii madal (veesisaldus kindla ruumala setteproovi järgi oli settes 65%), et see oleks mõjutanud taimel vee kättesaadavust.



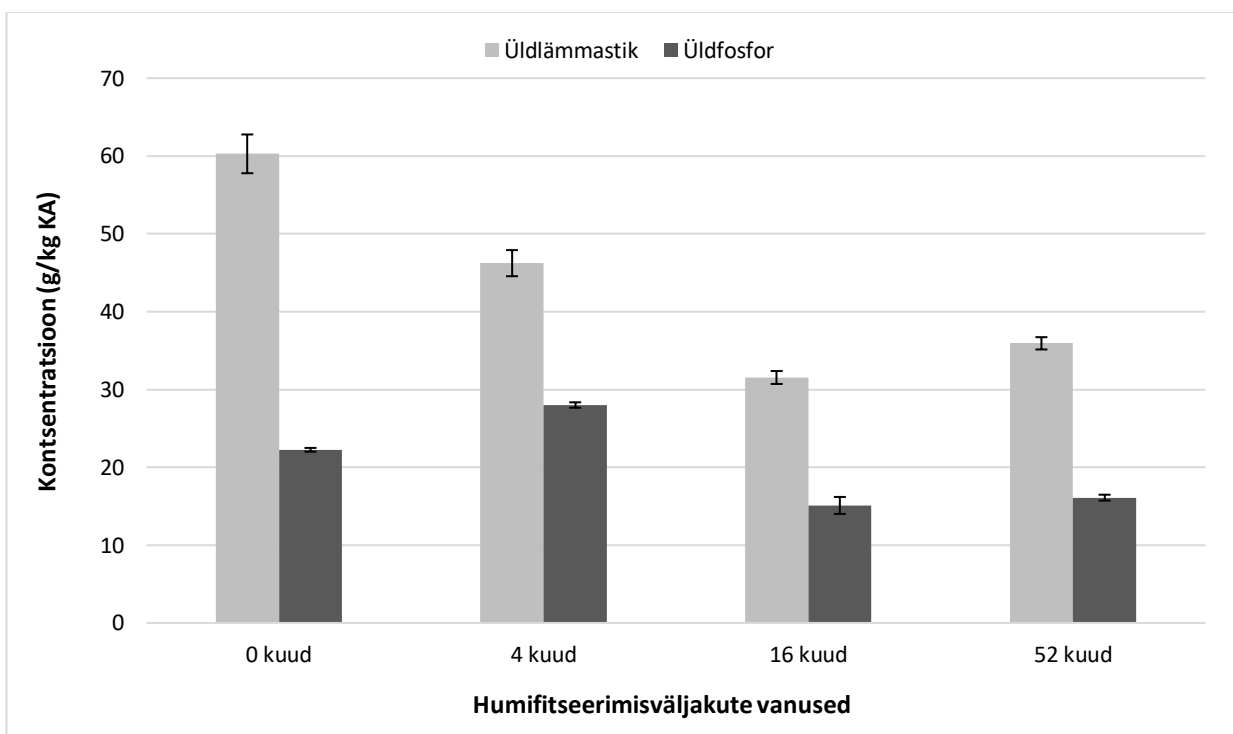
Joonis 7. Erinevas vanuses humifitseerimisväljakutelt korjatud karjamaa-raiheina kuivaine sisaldused (proovivõtu aeg 02.10.2018).

4.2 Üldlämmastik ja -fosfor

Humifitseerimisväljakutelt võetud setteproovide tulemustest selgus, et mida vanem on humifitseerimisväljak, seda väiksem on üldlämmastiku sisaldus settes (joonis 8 ja 9). Erandiks on 52 kuu vanune humifitseerimisväljak, kus võib taas näha karjamaa-raiheina lagunemisest tingitud lämmastiku tagasileostumist. Viie punktproovi keskmistatud setteproovi järgi oli üldlämmastiku sisaldus humifitseerimisväljakutel vastavalt vanusele (nooremast vanemani) 60, 41, 31, 20 ja 31 g/kg KA (joonis 8). Kindla ruumala setteproovide üldlämmastiku tulemused olid 4, 16 ja 52 kuu vanuse humifitseerimisväljaku puhul 46, 32 ning 36 g/kg KA (joonis 9).

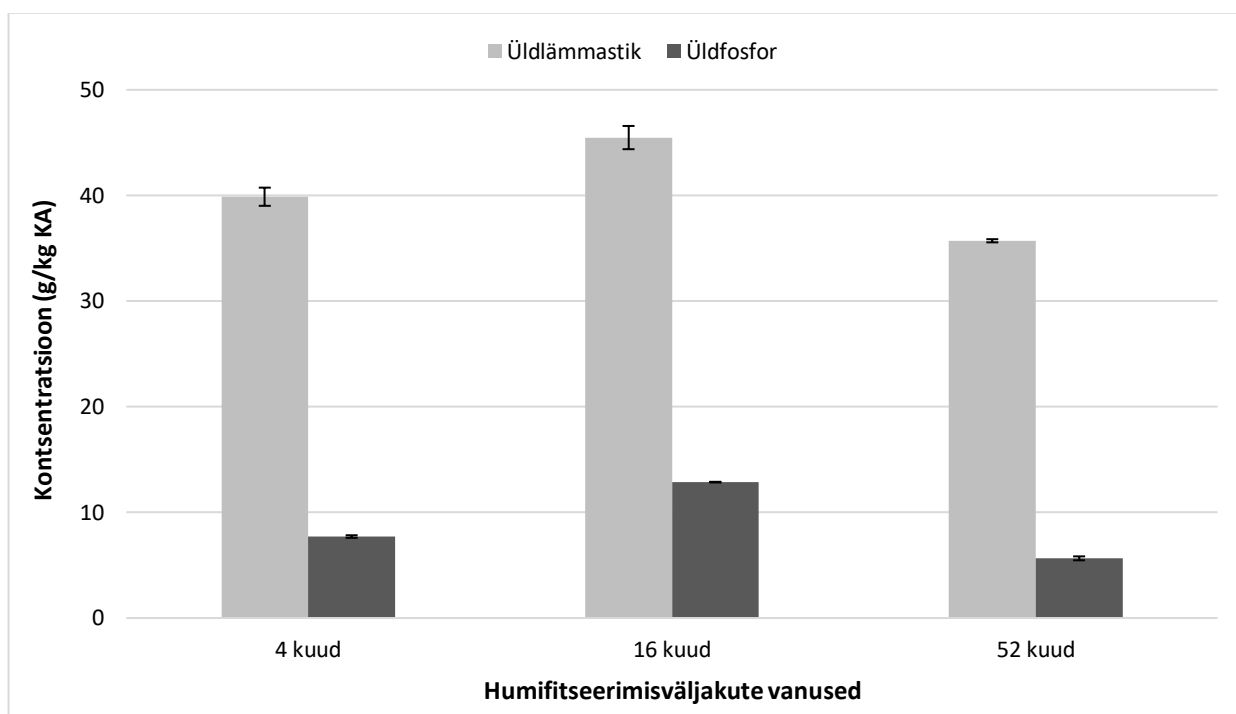


Joonis 8. Humifitseerimisväljakute üldlämmastiku ja -fosfori sisaldused vastavalt viie punktproovi keskmistatud setteproovidele (proovivõtu aeg 02.10.2018).



Joonis 9. Humifitseerimisväljakute üldlämmastiku ja -fosfori sisaldused vastavalt kindla ruumala setteproovidele (proovivõtu aeg 02.10.2018).

Üldlämmastiku sisalduse vähenemine humifitseerimisväljakute setetes on osaliselt seotud karjamaa-raiheina elutegevusega. Karjamaa-raihein vajab kasvamiseks palju lämmastiku, mistõttu omastab ta seda aastate jooksul settest olulisel määral (Eesti Taimekasvatuse Instituut). Seda kinnitavad ka väljakutelt korjatud karjamaa-raiheina proovide üldlämmastiku tulemused (joonis 10). Kuueteistkümnenda kuu vanuse humifitseerimisväljaku karjamaa-raiheina üldlämmastiku sisaldus oli $40 \pm 0,86$ g/kg KA. See on ca 6 g/kg KA suurem, kui nelja kuu vanuse väljaku karjamaa-raiheina üldlämmastiku sisaldus. Lisaks võib osaline lämmastikukadu settes olla seotud ka leostumise või lendumisega, kuid nende protsesside osakaalu on keeruline hinnata.



Joonis 10. Humifitseerimisväljakutelt kogutud karjamaa-raiheina üldlämmastiku ja -fosfori sisaldused (proovivõtu aeg 02.10.2018).

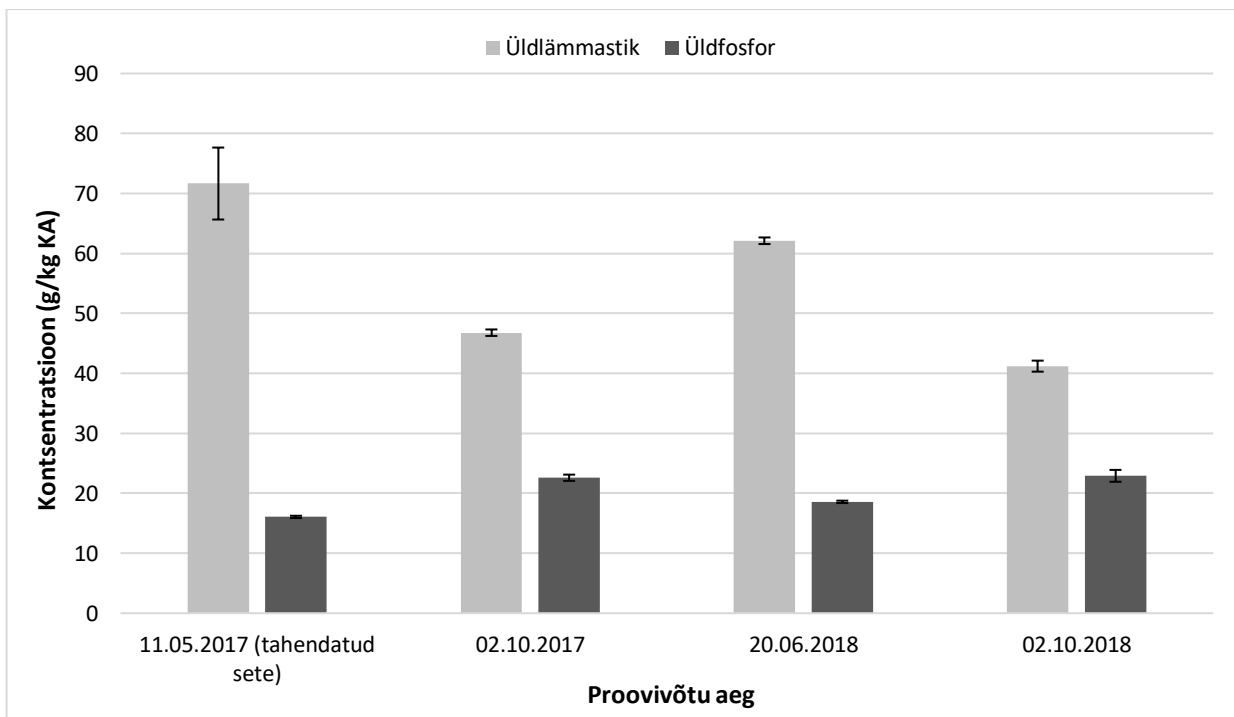
Kindla ruumala setteproovide üldfosfori tulemustest on näha, et nelja kuu vanuse humifitseerimisväljaku sette üldfosfori sisaldus on oluliselt kõrgem (28 g/kg KA), kui kuueteistkümnenda kuu vanuse sette puhul (15 g/kg KA) (joonis 9). Kuueteistkümnenda kuu vanuse sette üldfosfori sisaldus on madalam, kuna karjamaa-raihein on saanud väljakul kauem kasvada ning seega rohkem fosforit settest omastada. Seda kinnitavad ka karjamaa-raiheina üldfosfori tulemused (joonis 10). Setteproovide ja karjamaa-raiheina proovide üldfosfori tulemused

näitavad, et karjamaa-raihein omastab reoveesetest fosforit, kuid oluliselt vähem ning palju aeglasemalt, kui lämmastikku.

Põhjus, miks karjamaa-raihein omastab lämmastikku ja fosforit reoveesetest erinevalt võib olla seotud karjamaa-raiheina morfoloogiaga. Taimed kasutavad lämmastikku eelkõige lehtede ja varte arenguks ning fosforit juurte kasvuks (Säre ja Nooremäe 2014). Kuna karjamaa-raihein on suure maapealse biomassiga on tal vaja palju lämmastikku (Eesti Taimekasvatuse Instituut; Hannaway *et al.* 1999; Emorsgate Seeds). Samas fosforit vajab karjamaa-raihein palju vähem, kuna ta juurestik on peen ja lühike (Hannaway *et al.* 1999). See seletab ka miks setteproovide tulemustest on näha selgelt lämmastiku tagasi kandumist settesse, kuid fosfori puhul mitte. Iga talv sureb osa karjamaa-raiheina pealmisest biomassist ära, kuid juurestik säilib.

Kõige vanema väljaku karjamaa-raiheina väiksem üldlämmastiku ja -fosfori sisaldus kinnitab eelpooltoodut järeldust, et neljanda aasta taim ei olnud enam nii elujõuline ja seega omastas vähem toitaineid vee kaudu (joonis 10).

Kui vaadelda üldlämmastiku ja -fosfori sisalduse muutust ajas ühe humifitseerimisväljaku piires (joonis 11), siis on näha, et üldlämmastiku sisaldus settes kõigub vastavalt aastaajale sarnaselt orgaanilise ainega. Sette üldfosfori tulemustest võib näha mingit sempoonsset käiku, kuid täpsemate järelduste tegemiseks on vajalik koguda rohkem andmeid.



Joonis 11. Üldlämmastiku ja -fosfori sisalduse muutus humifitseerimisväljaku settes pooleteise aasta jooksul (varasemate andmete põhjal).

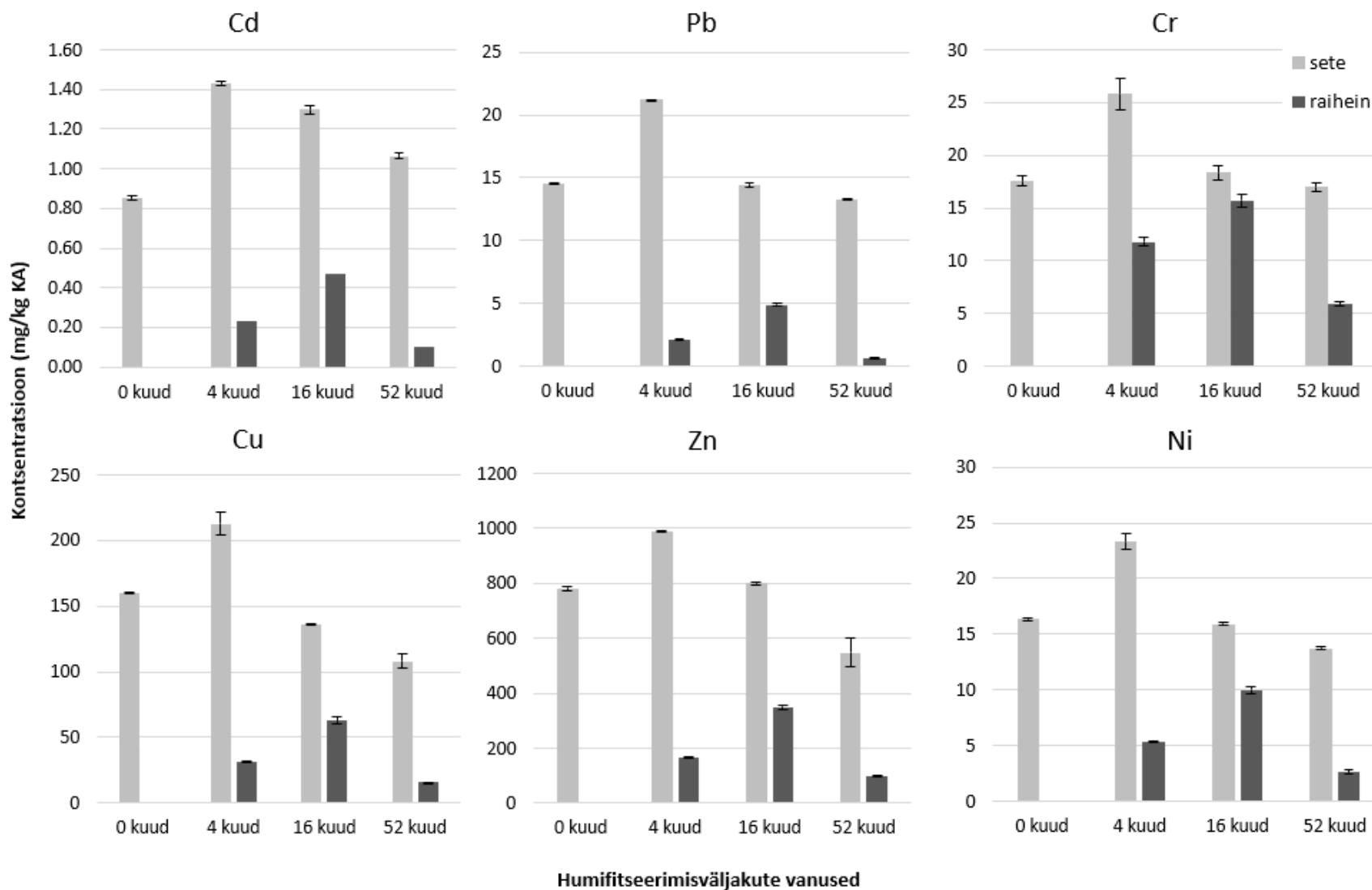
4.3 Raskmetallid

Raskmetallid on anorgaanilised ained, mis looduses ei lagune, mistõttu võivad nad keskkonnas akumulereuda ja siseneda toiduahelasse (Fijalkowski *et al.* 2017). Reoveesette turvaliseks kasutamiseks väetisena või mulla parandajana on selles vajalik tagada ohutu raskmetallide sisaldus. Hetkel ei ole olemas lihtsat ja odavat meetodit, millega saaks reoveesetest eemaldada raskmetalle. Järgnevalt analüüsitakse fütoremediatsiooni kasutamise võimalust raskmetallide eemaldamiseks reoveesetest.

Mõlema setteproovi puhul tuli välja, et nelja kuu vanuse humifitseerimisväljaku sette raskmetallide sisaldused olid teistest humifitseerimisväljakutest oluliselt suuremad (joonis 12). Raskmetallide suurem sisaldus nelja kuu vanusel väljakul ei seostu ühegi teise analüüsitud parameetriga, seega võib eeldada, et raskmetallide suurem sisaldus on iseloomulik antud väljakule. Ülejäänud humifitseerimisväljakute setete raskmetallide sisaldused olid väga sarnased, välja arvatud vase ja tsingi sisaldused 52 kuu vanuse humifitseerimisväljaku settes. Võrreldes 16

kuu vanuse humifitseerimisväljakuga on 52 kuu vanuse humifitseerimisväljaku vase sisaldus settes *ca* 28 mg väiksem ning tsingi sisaldus *ca* 253 mg väiksem. Kui orgaanilise aine ja üldlämmastiku puhul oli tulemustest näha, et karjamaa-raiheina eluea lõpus kantakse orgaaniline aine ja lämmastik settesse tagasi, siis raskmetallide tulemustest seda ei kajastu.

Kuueteistkümne kuu vanuselt humifitseerimisväljakult korjatud karjamaa-raiheina raskmetallide sisaldused on märgatavalt suuremad, kui nelja kuu vanuselt humifitseerimisväljakult korjatud karjamaa-raiheinal (joonis 12). Suurem raskmetallide kontsentratsioon vanemal humifitseerimisväljakul võib olla põhjendatud sellega, et karjamaa-raihein on saanud kauem väljakul kasvada ja seetõttu on jõudnud rohkem raskmetalle akumulierida maapealsetesse osadesse. Samas kõige vanema humifitseerimisväljaku karjamaa-raiheina raskmetallide kontsentratsioonid on väga väikesed (võrreldes nelja ja kuueteistkümne kuu vanuselt humifitseerimisväljakult korjatud karjamaa-raiheina proovidega), sest selleks hetkeks on juba karjamaa-raiheina elujõud hakanud vähenema.

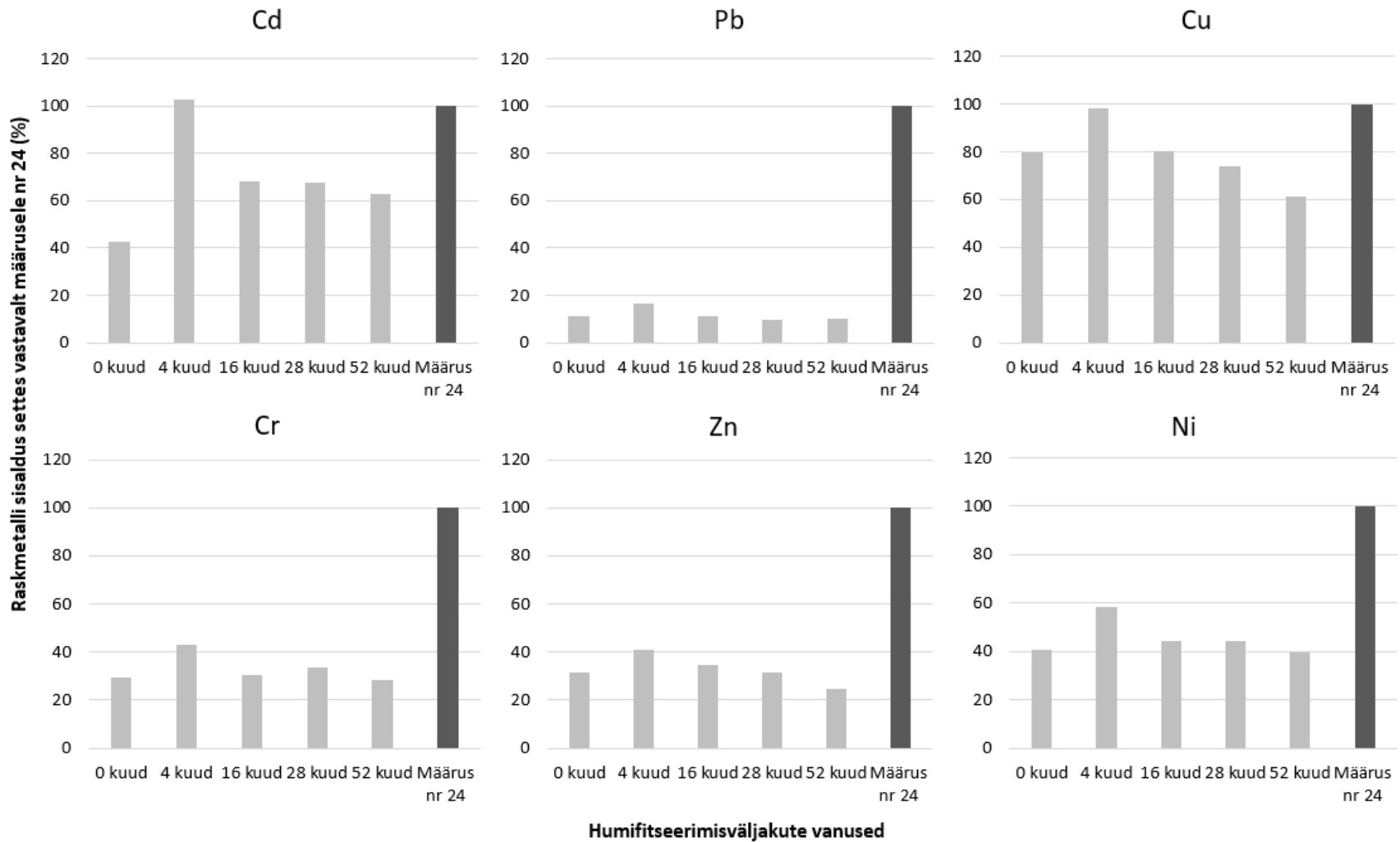


Joonis 12. Erinevas vanuses humifitseerimisväljakute kaadmiumi (Cd), plii (Pb), kroomi (Cr), vase (Cu), tsingi (Zn) ja nikli (Ni) sisaldused karjamaa-raiheinas ning settes (proovid võetud ruumalalt 50 x 50 x 15 cm).

Joonisel 13 on analüüsitud humifitseerimisväljakute setete raskmetallide sisalduste (viie punktproovi keskmistatud setteproovide järgi) vastavust Keskkonnaministri määrusega nr 24 kehtestatud piirväärtustele, mis reguleerivad settest valmistatud toote kasutust haljastuses ja rekultiveerimisel. Selleks, et paremini visualiseerida, milliste humifitseerimisväljakute setted on vastavuses määrusega ja millised mitte, on kehtestatud piirväärtus võetud 100%-ks. Enamus Türi humifitseerimisväljakute setete raskmetallide kontsentratsioonid jäävad allapoole kehtestatud piirväärtusi. Mittevastavus esineb vaid nelja kuu vanusel humifitseerimisväljakul kaadmiumiga. Määruse järgi võib haljastuses ja rekultiveerimisel kasutada reoveesettest valmistatud toodet, mille kaadmiumi sisaldus on alla 2 mg/kg KA. Viie punktproovi keskmistatud setteproovi järgi oli nelja kuu vanusel humifitseerimisväljaku sette kaadmiumi kontsentratsioon 2,05 mg/kg KA. Ülejäänud humifitseerimisväljakute sette kaadmiumi kontsentratsioonid olid vastavalt vanusele (16, 28 ja 52 kuu vanune väljak) 1,37, 1,35, ja 1,26 mg/kg KA. Tahendatud sette kaadmiumi kontsentratsiooni oli 0,85 mg/kg KA. Läänemere merekeskkonna kaitse komisjon (HELCOM) on kaalunud soovitada põllumajanduses kasutatavale reoveesettele kaadmiumi piirväärtuseks 1 mg/kg KA (HELCOM 2014). Seda arvesse võttes võib öelda, et kõikides humifitseerimisväljakute setetes on kaadmiumi kontsentratsioonid suhteliselt suured.

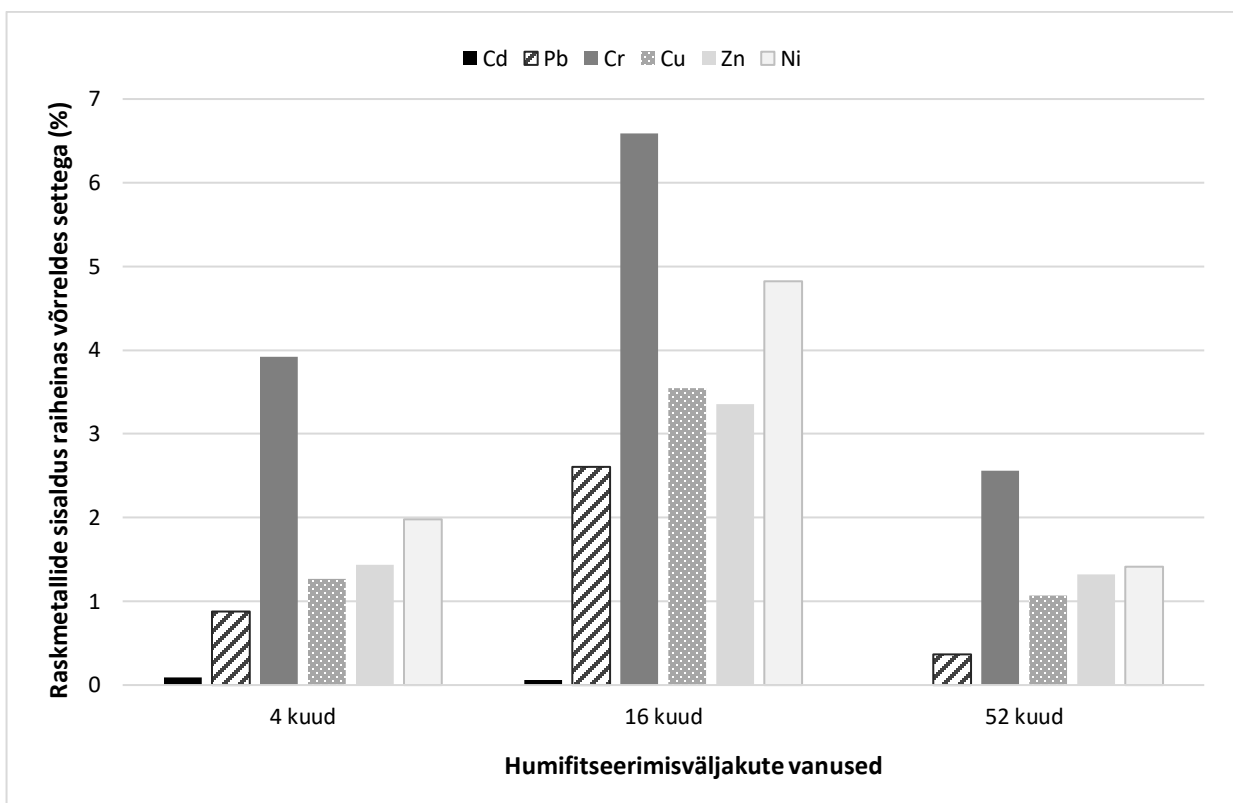
Määrusega nr 24 kehtestatud piirväärtusele on väga lähedane ka nelja kuu vanuse humifitseerimisväljaku sette vase kontsentratsioon, mis on 197 mg/kg KA (piirväärtus on 200 mg/kg KA). Teised raskmetallid jäävad humifitseerimisväljakutel oluliselt alla kehtestatud piirväärtustele.

Sarnaselt analüüsiti humifitseerimisväljakute setete raskmetallide sisalduste vastavust Keskkonnaministri 31.07.2019 määrusega nr 29 kehtestatud piirväärtustele ning Keskkonnaministri 19.07.2017 määrusega nr 24 kehtestatud piirväärtustele, mis on kehtestatud reoveesettest valmistatud tootele, mida soovitatakse kasutada põllumajanduses ja aianduses. Kõikide humifitseerimisväljakute setete raskmetallide kontsentratsioonid vastasid kehtestatud piirväärtustele.



Joonis 13. Humifitserimisväljakute setete (Cd), plii (Pb), kroomi (Cr), vase (Cu), tsingi (Zn) ja nikli (Ni) sisalduse vastavus Keskkonnaministri määrusega nr 24 kehtestatud piirväärtustele, mis reguleerivad sette kasutust haljastuses ja rekultiveerimisel. Määrusega kehtestatud piirväärtus on võetud 100%-ks.

Joonisel 14 on välja toodud raskmetallide protsendiline sisaldus karjamaa-raiheinas võrreldes settega. Esitatud andmetest on näha, et kõikide humifitseerimisväljakute taimedes jäävad peaaegu kõik raskmetallide sisaldused alla 4%. Raskmetallide akumulatsiooni on näha võrreldes nelja ja kuueteistkümne kuu vanuse väljaku karjamaa-raiheina raskmetallide kontsentratsioone. Ootuspäraselt on raskmetallide akumulatsioon olnud väike 52 kuu vanuse humifitseerimisväljaku karjamaa-raiheinas. Kõige paremini akumululeerib karjamaa-raihein kroomi (Cr) (ca 3–7%) ning kõige halvemini kaadmiumit (Cd) (0–0,09%).



Joonis 14. Raskmetallide sisaldus karjamaa-raiheinas võrreldes settega.

Esitatud tulemustest järeldub, et raskmetalli kontsentratsiooni väike vähenemine reoveesettes oleks võimalik fütoremediatsiooni teel saavutada paari aasta vanuse karjamaa-raiheina niitmise. Türi reoveepuhasti reoveesettes oli kohati probleeme kaadmiumiga ning vasega. Kuna karjamaa-raihein ei omasta kaadmiumit peaaegu üldse ning vase vaid väga vähe (ca 1–3%), siis ei ole otstarbekas karjamaa-raiheina humifitseerimisväljakutelt niita, eriti kuna enamasti on Türi reoveepuhastusjaama reoveesette vase ja kaadmiumi sisaldused madalad. Samas võib karjamaa-raiheina niitmine olla kasulik mõne teise väikepuhasti jaoks, kus on näiteks kroomi

konsentratsioonid settes stabiilselt täpselt piirnormi juures. Sellisel juhul võib ka 5%-ne raskmetalli sisalduse vähenemine aidata sette tootestamise juures kaasa. Siiski kõrgema raskmetallide kontsentratsiooniga sette puhul fütoremediatsiooni meetodiga raskmetalle roveesetest vähendada olulisel määral ei saa. Joonisel 14 esitatud tulemustest järeldub, et fütoremediatsiooni teel saab eemaldada roveesetest raskmetalle, kuid selle efekt on väga väike ning seetõttu tuleb igal roveepuhastil hoolikalt kaaluda, kas humifitseerimisväljakult taime niitmine on finantsiliselt mõistlik.

5. Kokkuvõte

Reoveesete sisaldab palju toitaineid, mistõttu on mõistlik seda kasutada väetisena ja mullaparandajana, selle asemel, et seda ladestada keskkonda või jäätmejaama. Reoveesette stabiliseerimiseks ja hügieniseerimiseks on olemas erinevaid meetodeid, kuid puuduvad kuluefektiivsed lahendused reoveesetest spetsiifiliste saasteainete eemaldamiseks. Eriti oluline on reoveesette taaskasutamise seisukohast sette raskmetallide sisaldused, sest tegemist on anorgaaniliste ainetega, mis looduses ei lagune. Seadusandlusega on määratud põllumajanduses, haljastuses ja rekultiveerimisel kasutatavale reoveesetele ning reoveesetest valmistatud tootele raskmetallide piirväärtused. Käesolevas magistritöös analüüsiti Türi linna reoveepuhasti humifitseerimisväljakute näitel humifitseerimise mõju olmereoveesette üldparameetritele ning humifitseerimisväljakutel kõrvalprotsessina toimuva fütoremediatsiooni kasutamise võimalust raskmetallide eemaldamiseks reoveesetest. Humifitseerimise ja fütoremediatsiooni läbiviimiseks kasutati Türi humifitseerimisväljakutel taimeliiki karjamaa-raihein (*Lolium perenne*).

Magistritöö andmete analüüsist selgus, et summaarselt ajas humifitseerimisväljakutel reoveesette kuivaine sisaldus kasvab ja orgaanilise aine sisaldus väheneb. Karjamaa-raiheina juurestiku läheduses toimus orgaanilise aine lagunemine oluliselt efektiivsemalt, seega on reoveesette tõhusaks stabiliseerimiseks vajalik sete laotada väljakule võimalikult õhukeselt (mitte üle 20 cm) ning karjamaa-raihein külvata võimalikult tihedalt. Türi humifitseerimisväljakute setetes oli näha ajas üldlämmastiku ja üldfosfori sisalduse langust. Seejuures langes üldlämmastiku sisaldus setetes palju kiiremini ning oluliselt suuremal määral kui üldfosfor. Kuna Türi reoveepuhasti humifitseerimisväljakutel karjamaa-raiheina ei niidetud, siis tulenevalt antud taime elueast (karjamaa-raiheina kasvuiga on neli kuni viis aastat) oli vanima humifitseerimisväljaku proovide tulemustest näha, et surnud taimemassi lagunemise teel seotakse orgaaniline aine ja üldlämmastik settesse tagasi.

Antud magistritöö tulemused viitavad sellele, et karjamaa-raihein akumuleerib endasse raskmetalle, kuid pärast kolmandat aastat taime fütoremediatsiooni efektiivsus langeb, kuna selleks ajaks ei ole taim enam väga elujõuline. Kuigi humifitseerimisväljakutel toimub fütoremediatsioon, ei ole taimede poolt omandavad raskmetallide kogused väga suured. Nelja, kuuteistkümne ja viiekümne kahe kuu vanustel humifitseerimisväljakutel jäid karjamaa-raiheintes enamus raskmetallide sisaldused alla 4% (erandiks oli neljanda kuu vanuse humifitseerimisväljakul nikkel

ja kroom). Tulemustest järeldus, et raskmetalli kontsentratsiooni väike vähenemine reoveesettes oleks võimalik fütoremediatsiooni teel saavutada paari aasta vanuse karjamaa-raiheina niitmise, kuid Türi reoveepuhasti puhul ei ole see otstarbekas, sest enamasti jäävad reoveesettes raskmetallide sisaldused oluliselt alla kehtestatud piirväärtuste. Karjamaa-raihein omastas vaadeldavatest raskmetallidest kõige efektiivsemalt kroomi (ca 3–7%), mistõttu võib taime niitmine olla kasulik mõne teise väikepuhasti jaoks, kus on kroomi kontsentratsioonid settes stabiilselt täpselt piirnormi lähedal. Kuigi humifitseerimisväljakutel toimub ka fütoremediatsioon, on selle tõhusus väga madal ning seetõttu tuleb igal reoveepuhastil hoolikalt kaaluda, kas humifitseerimisväljakult taime niitmine on finantsiliselt mõistlik.

6. Summary

Sewage sludge contains lots of nutrients, which makes it a good fertilizer and soil improver, while the stability and safety of it can be questionable. There are various methods for stabilizing and hygienizing sewage sludge, but there are no cost-efficient solutions for removing specific contaminants. Heavy metals in the sewage sludge are particularly important contaminants, as they do not decompose in nature. Legislations have set heavy metals limit values for sewage sludge used in agriculture, landscaping and recultivation and for products made from sewage sludge. The purpose of this master's thesis was to study the effect of the humification process on the general parameters of domestic sewage sludge and to analyze the efficiency of concurrent phytoremediation in removing heavy metals from sewage sludge. Study was carried out on the humification fields of the Türi city wastewater treatment plant, where ryegrass (*Lolium perenne*) was used for humification.

The results revealed that the dry matter content of sewage sludge increases and the organic matter content decreases over time in the humification fields. Decomposition of organic matter was much more efficient in the vicinity of the ryegrass roots, so in order to effectively stabilize sewage sludge, it is necessary to spread the sludge as thinly as possible (not more than 20 cm layers) and plant ryegrass as densely as possible. The results of the work showed a decrease of total nitrogen and total phosphorus in humification fields over time. The content of total nitrogen in fields decreased much faster and to a much greater extent than total phosphorus. As ryegrass was not mowed from the humification fields of the Türi wastewater treatment plant, the results of the oldest humification field showed that organic matter and total nitrogen are released back to the sediment from decaying plant mass.

The results of this master's thesis indicate that ryegrass accumulates heavy metals, but after the third year the efficiency of phytoremediation of the plants decrease because by that time the plant is no longer very viable. Although phytoremediation takes place in humification fields, the amount of heavy metals uptaken by the plants is not very high. In the four-, sixteen- and fifty-two-month-old humification fields most heavy metal contents in the ryegrass remained below 4% (with the exception of nickel and chromium in the 4-month-old humification field). The results concluded that a small reduction in the concentrations of heavy metals in sewage sludge could be achieved by mowing a few years old ryegrass but is not necessary for the Türi wastewater

treatment plant as in most cases the heavy metal concentrations in sewage sludge are well below the established limits. Out of all the heavy metals, ryegrass absorbed chromium most efficiently (around 3–7%) which is why mowing the plants may be useful for another small treatment plant where the concentrations of chromium in the sediment are near the maximum limit values. Although concurrent phytoremediation takes place in humification fields, its efficiency is very low and therefore any wastewater treatment plant must carefully consider whether it is financially reasonable to mow the plant from the humification fields in order to remove heavy metals from sewage sludge.

7. Kirjanduse loetelu

- Ali H., Khan E., Sajad M. A. (2013) Phytoremediation of heavy metals – Concepts and applications. *Chemosphere* **91**, 869–881.
- Appenroth K.-J. (2010) Definition of “Heavy Metals” and Their Role in Biological Systems, in *Soil Heavy Met.*, pp. 19–29. Springer, Berlin, Heidelberg.
- Babel S., Mundo Dacera D. (2006) Heavy metal removal from contaminated sludge for land application: A review. *Waste Manag.* **26**, 988–1004.
- Barjenbruch M., Kopplow O. (2001) Sludge humification as sustainable and simple method of sewage sludge treatment. *J. Chinese Inst. Chem. Eng.*, **32**, 419–424.
- Bisht R., Agarwal M., Singh K. (2017) Methodologies for removal of heavy metal ions from wastewater: an overview. *Interdiscip Env. Rev* **18**.
- Blais J. F., Tyagi R. D., Auclair J. C., Huang C. P. (1992a) Comparison of Acid and Microbial Leaching for Metal Removal from Municipal Sludge. *Water Sci. Technol.* **26**, 197–206.
- Blais J., Tyagi R., Auclair J., Lavoie M. (1992b) Indicator bacteria reduction in sewage sludge by a metal bioleaching process. *Water Res.* **26**, 487–495.
- Boruszko D., Dąbrowski W., Malinowski P. (2017) Organic matter and heavy metals content modeling in sewage sludge treated with reed bed system. *E3S Web Conf.* **22**.
- Brix H. (2017) Sludge Dewatering and Mineralization in Sludge Treatment Reed Beds. *Water* **9**, 160.
- Cantinho P., Matos M., Trancoso M. A., Santos M. M. C. (2016) Behaviour and fate of metals in urban wastewater treatment plants: a review. *Int. J. Environ. Sci. Technol.* **13**, 359–386.
- Canziani R., Spinosa L. (2019) Sludge from wastewater treatment plants, pp. 3–30.
- Desmidt E., Ghyselbrecht K., Zhang Y., Pinoy L., Van der Bruggen B., Verstraete W., Rabaey K., Meesschaert B. (2015) Global Phosphorus Scarcity and Full-Scale P-Recovery Techniques: A Review. *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.* **45**.
- Duffus J. H. (2002) “Heavy metals” – a meaningless term? IUPAC Technical Report. *Pure Appl. Chem.* **74**, 793–807.

- Eesti Taimekasvatuse Instituut. *Karjamaa-raihein*; <https://www.etki.ee/index.php/92-sortide-kirjeldused-alam/101-karjamaa-raihein?showall=&start=1> viimati alla laetud 14.05.2020.
- Elicker C., Sanches Filho P. J., Castagno K. R. L. (2014) Electroremediation of heavy metals in sewage sludge. *Braz. J. Chem. Eng.* **31**, 365–371.
- Emorsgate Seeds. *Lolium perenne – Perennial Ryegrass*; <https://wildseed.co.uk/species/view/200> viimati alla laaditud 14.05.2020.
- Etim E. E. (2012) Phytoremediation and Its Mechanisms: A Review. **2**, 120–136.
- Fijalkowski K., Rorat A., Grobelak A., Kacprzak M. J. (2017) The presence of contaminations in sewage sludge – The current situation. *J. Environ. Manage.* **203**, 1126–1136.
- Fu F., Wang Q. (2011) Removal of heavy metal ions from wastewaters: A review. *J. Environ. Manage.* **92**, 407–418.
- Grobelak A., Czerwińska K., Murtaś A. (2019) General considerations on sludge disposal, industrial and municipal sludge, in *Ind. Munic. Sludge*, (Prasad M. N. V., Campos Favas P. J. de, Vithanage M., Mohan S. V., eds), pp. 135–153. Butterworth-Heinemann.
- Guangyin Z., Youcai Z. (2017) Sewage Sludge Generation and Characteristics, in *Pollut. Control Resour. Recovery*, pp. 1–11. Elsevier.
- Gunatilake S. (2015) Methods of Removing Heavy Metals from Industrial Wastewater. *J. Multidisciplinary Eng. Sci. Stud.* **1**.
- Hannaway D., Fransen S., Cropper J., Teel M., Chaney M., Griggs T., Halse R., et al. (1999) Perennial ryegrass (*Lolium perenne* L.).
- Hargreaves A. J., Constantino C., Dotro G., Cartmell E., Campo P. (2018) Fate and removal of metals in municipal wastewater treatment: a review. *Environ. Technol. Rev.* **7**, 1–18.
- HELCOM. (2014) Drafting of HELCOM Recommendation on Sewage Sludge Handling.
- Karvelas M., Katsoyiannis A., Samara C. (2003) Occurrence and fate of heavy metals in the wastewater treatment process. *Chemosphere* **53**, 1201–1210.
- Kołecka K., Obarska-Pempkowiak H., Gajewska M. (2018) Polish experience in operation of sludge treatment reed beds. *Ecol. Eng.* **120**, 405–410.

- Kõrgmaa V. (2010) *Reoveesette töölemise strateegia väljatöötamine, sh ohutu taaskasutamise tagamine järelevalve tõhustamise, keemiliste- ja bioloogiliste indikaatornäitajate rakendamise ning kvaliteedi süsteemide juurutamise abil: II ETAPP*. Eesti Keskkonnauuringute Keskus OÜ.
- Larsen J. D., Nielsen S. M., Scheutz C. (2017) Assessment of a Danish sludge treatment reed bed system and a stockpile area, using substance flow analysis. *Water Sci. Technol.* **76**, 2291–2303.
- Ledin M. (2000) Accumulation of metals by microorganisms – processes and importance for soil systems. *Earth-Sci. Rev.* **51**, 1–31.
- Lee J. (2013) An overview of phytoremediation as a potentially promising technology for environmental pollution control. *Biotechnol. Bioprocess Eng.* **18**.
- Lorestani B., Cheraghi M., Yousefi N. (2012) The potential of phytoremediation using hyperaccumulator plants: a case study at a lead-zinc mine site. *Int. J. Phytoremediation* **14**, 786–795.
- Maa-ameti geoportaal; <https://geoportaal.maaamet.ee/> viimati alla laaditud 24.05.2020.
- Masciandaro G., Peruzzi E., Nielsen S. (2017) Sewage sludge and waterworks sludge stabilization in sludge treatment reed bed systems. *Water Sci. Technol.* **76**, 355–363.
- Nalenthiran P., Sambandam A., Ashokkumar M. (2016) Removal of Heavy Metal from Wastewater, pp. 813–839.
- Nazari L., Sarathy S., Santoro D., Ho D., Ray M. B., Xu C. (2018) Recent advances in energy recovery from wastewater sludge, in *Direct Thermochem. Liq. Energy Appl.*, pp. 67–100. Elsevier.
- Nielsen S., Larsen J. D. (2016) Operational strategy, economic and environmental performance of sludge treatment reed bed systems – based on 28 years of experience. *Water Sci. Technol.* **74**, 1793–1799.
- OÜ aqua consult baltic. (2015a) *Regionaalsete reoveesette käitlemise lahenduste väljatöötamine ja jäätmete lakkamise kriteeriumite väljatöötamine reoveesette kohta: I osa*.

- OÜ aqua consult baltic. (2015b) *Regionaalsete reoveesette käitlemise lahenduste väljatöötamine ja jäätmete lakkamise kriteeriumite väljatöötamine reoveesette kohta: II osa.*
- OÜ aqua consult baltic. (2015c) *Regionaalsete reoveesette käitlemise lahenduste väljatöötamine ja jäätmete lakkamise kriteeriumite väljatöötamine reoveesette kohta: III osa.*
- OÜ Europolis. (2015) *Türi valla ühisveevärgi ja -kanalisatsiooni arendamise kava aastateks 2014-2026.* Vastu võetud 26.02.2015 Türi Vallavolikogu poolt määrusega nr 3.
- Pandey M. K., Jenssen P. D. (2015) Reed Beds for Sludge Dewatering and Stabilization. *J. Environ. Prot.* **6**, 341–350.
- Rajaei S., Seyedi S. (2018) Phytoremediation of Petroleum-Contaminated Soils by *Vetiveria zizanioides* (L.) Nash. *CLEAN - Soil Air Water* **46**.
- Rorat A., Courtois P., Vandenbulcke F., Lemiere S. (2019) Sanitary and environmental aspects of sewage sludge management, in *Ind. Munic. Sludge*, pp. 155–180. Elsevier.
- Säre M., Nooremäe M. (2014) *Loodusõpetuse tööraamat VI klassile. 2. osa.* SA Innove.
- Siciliano S., Germida J. (2011) Mechanisms of phytoremediation: Biochemical and ecological interactions between plants and bacteria. *Environ. Rev.* **6**.
- Susarla S., Medina V. F., McCutcheon S. C. (2002) Phytoremediation: An ecological solution to organic chemical contamination. *Ecol. Eng.* **18**, 647–658.
- Tamm K., Vettik R., Viil P., Võsa T., Kažotnieks J. (2016) *Sõnnikulaotamise tehnoloogiate võrdlev uuring.* Tellija: Eesti Põllumajandus-Kaubanduskoda.
- Tangahu B. V., Sheikh Abdullah S. R., Basri H., Idris M., Anuar N., Mukhlisin M. (2011) *A Review on Heavy Metals (As, Pb, and Hg) Uptake by Plants through Phytoremediation.* Hindawi.
- Tervahauta T., Rani S., Hernández Leal L., Buisman C. J. N., Zeeman G. (2014) Black water sludge reuse in agriculture: Are heavy metals a problem? *J. Hazard. Mater.* **274**, 229–236.
- Tytła M. (2019) Assessment of Heavy Metal Pollution and Potential Ecological Risk in Sewage Sludge from Municipal Wastewater Treatment Plant Located in the Most Industrialized Region in Poland – Case Study. *Int. J. Environ. Res. Public Health* **16**, 2430.
- UNESCO. (2017) *Wastewater: The Untapped Resource.* UNESCO, Paris.

Vahtramäe E. (2017) Reoveesette käitlemine humifitseerimisväljakutel. Magistritöö. Tartu Ülikool, keemia instituut.

Van Vuuren D. P., Bouwman A. F., Beusen A. H. W. (2010) Phosphorus demand for the 1970–2100 period: A scenario analysis of resource depletion. *Glob. Environ. Change* **20**, 428–439.

Õigusaktid

Haljastuses, rekultiveerimisel ja põllumajanduses kasutatava reoveesette kvaliteedi piirväärtused ning kasutamise nõuded. (31.07.2019) RT I, 06.08.2019, 7.

Jäätmeseadus. (28.01.2004) RT I, 21.12.2019, 6.

Reoveesetest toote valmistamise nõuded. (19.07.2017) RT I, 18.02.2020, 5.

Tänuavaldused

Käesoleva töö autor avaldab tänu kõigile, kes aitasid kaasa magistritöö valmimisele.

Eriti suured tänusõnad minu juhendajale Markus Raudkivile (MSc) oskusliku juhendamise ning heatahtliku suhtumise eest.

Lisaks tänan ka Päärn Paistet (PhD), Anne Paaverit (MSc) ja Christina Mürki (MSc) töös kasutatud metoodikate tutvustamise ja juhendamise eest ning Ene Kõndu keelelise toimetuse eest.

Lihtlitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja üldsusele kättesaadavaks tegemiseks

Mina, Marite Blankin,

1. annan Tartu Ülikoolile tasuta loa (lihtlitsentsi) minu loodud teose „Fütoremediatsiooni mõju reoveesette raskmetallide kontsentratsioonidele Türi reoveepuhasti näitel“, mille juhendaja on Markus Raudkivi, reprodutseerimiseks eesmärgiga seda säilitada, sealhulgas lisada digitaalarhiivi DSpace kuni autoriõiguse kehtivuse lõppemiseni;
2. annan Tartu Ülikoolile loa teha punktis 1 nimetatud teos üldsusele kättesaadavaks Tartu Ülikooli veebikeskkonna, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace kaudu Creative Commons'i litsentsiga CC BY NC ND 3.0, mis lubab autorile viidates teost reprodutseerida, levitada ja üldsusele suunata ning keelab luua tuletatud teost ja kasutada teost ärieesmärgil, kuni autoriõiguse kehtivuse lõppemiseni;
3. olen teadlik, et punktides 1 ja 2 nimetatud õigused jäävad alles ka autorile;
4. kinnitan, et lihtlitsentsi andmisega ei riku ma teiste isikute intellektuaalomandi ega isikuandmete kaitse õigusaktidest tulenevaid õigusi.

Marite Blankin

01.06.2020