PERSPEKTIVEN FÜR UMWELT & GESELLSCHAFT umweltbundesamt

Umweltinstitut Vorarlberg

Eintrag von Arzneimittelwirkstoffen in die Umwelt

Manfred Clara
Christoph Scheffknecht
Stefan Weiß

Bericht UBA/UI-02/2013

Mitarbeiterinnen und Mitarbeiter beim Projekt:

Guntram Alge (wpa Beratende Ingenieure GmbH)
Katharina Braun (Umweltbundesamt)
Stefan Carotta (Amt der Landeshauptstadt Bregenz)
Mitarbeiter der ARA Bregenz („Kläranlage 2“)
Manfred Clara (Umweltbundesamt)
Werner Bader (Umweltinstitut des Landes Vorarlberg)
Andreas Grabher (Umweltinstitut des Landes Vorarlberg)
Walter Hämmerle (Umweltinstitut des Landes Vorarlberg)
Werner Hartl (Umweltbundesamt)
Rainer Florineth (Umweltinstitut des Landes Vorarlberg)
Norbert Lerchster (Umweltinstitut des Landes Vorarlberg)
Mitarbeiterinnen und Mitarbeiter der„Kläranlage 1“ und „Kompostierwerk“
Wolfgang Raffesberg (Umweltbundesamt)
Sigrid Scharf (Umweltbundesamt)
Christoph Scheffknecht (Umweltinstitut des Landes Vorarlberg)
Josef Scherer (Umweltinstitut des Landes Vorarlberg)
Monika Schmieder (Umweltinstitut des Landes Vorarlberg)
Manfred Schneider (Landwirt, Höchst)
Peter Singer (Umweltinstitut des Landes Vorarlberg)
Andrea Sitka (Umweltbundesamt)
Stefan Weiß (Umweltbundesamt)
Georg Windhofer (Umweltbundesamt)

Impressum:

Herausgeber und Medieninhaber:
Amt der Vorarlberger Landesregierung
Römerstraße 16, 6900 Bregenz

Verleger:
Umweltinstitut des Landes Vorarlberg
Montfortstraße 4, 6900 Bregenz
Tel. 05574/511-42099

Wien, Bregenz, März 2013

Inhalt

1 ZUSAMMENFASSUNG 4

2 EINLEITUNG 6

3 METHODIK 9

3.1 Probenahme 9

3.1.1 Beprobungsstrategie 9

3.1.2 Abwasserproben 9

3.1.3 Schlammproben 9

3.1.4 Kompostproben und Presswasser 9

3.1.5 Bodenproben 9

3.2 Chemische Analytik 10

3.3 Beschreibung der Kläranlagen 11

3.4 Untersuchte Bodenflächen 13

3.5 Datenauswertung – Bilanzierung 14

3.5.1 Plausibilisierung 16

4 ERGEBNISSE 20

4.1 Abwasserreinigung 20

4.1.1 Vorkommen in Zu- und Ablauf 20

4.1.2 Vorkommen im Schlamm 23

4.1.3 Verhalten in der Kläranlage 24

4.2 Klärschlammkompost 29

4.3 Boden 35

5 REFERENZEN 40

6 ANHANG 42

6.1 Anhang 1: Zusammenfassung der analysierten Referenzparameter in den untersuchten Proben 42

6.2 Anhang 2: Zusammenfassung der Analysenergebnisse für die Arzneimittelwirkstoffe in den untersuchten Proben 44

1 ZUSAMMENFASSUNG

Arzneimittelwirkstoffe gelangen auf dem Weg über die Kanalisation und die Kläranlage in die Gewässer. Auch auf den Boden können Arzneimittelwirkstoffe über den zu Düngezwecken verwendeten Klärschlammkompost eingetragen werden. Für die Erfassung der Mengen wurde ein Kooperationsprojekt des Umweltbundesamts und des Umweltinstituts des Landes Vorarlberg durchgeführt. Im Zuge der Untersuchungen wurden Arzneimittelwirkstoffe verschiedener indikativer Gruppen im Abwasser, im Klärschlamm, im Klärschlammkompost sowie auf landwirtschaftlich genutzten Flächen vor und nach der Ausbringung von Klärschlammkompost untersucht. Dazu zählen Antibiotika (Sulfamethoxazol inklusive des Acetyl-Metaboliten, Trimethoprim, Erythromycin, Roxithromycin, Clarithromycin), Antiepileptika (Carbamazepin), Analgetika/Antiphlogistica (Diclofenac, Ibuprofen und Phenazon), Lipidsenker (Bezafibrat), Antidepressiva (Diazepam/Valium), Betablocker (Atenolol, Sotalol, Propanolol, Metoprolol, Bisoprolol) sowie Antibiotika, die in der Veterinärmedizin (Sulfadiazin, Sulfadimidin/Sulfamethazin) verwendet werden. Zudem wurden Kokain und dessen Abbauprodukt Benzoylecognin analysiert.

Mit Ausnahme von Sulfadimidin waren alle Stoffe im Zulauf zumindest einer der zwei untersuchten Kläranlagen nachweisbar. Im Ablauf der zwei Kläranlagen konnten Ibuprofen, Bezafibrat sowie Kokain und dessen Abbauprodukt Benzoylecognin nicht mehr nachgewiesen werden, sondern wurden in den Kläranlagen vollständig ab- bzw. umgebaut. Carbamazepin, Sulfamethoxazol, Metoprolol, Phenazon und Diclofenac hingegen wurden in keiner der zwei Kläranlagen zurückgehalten. Die Frachten im Ablauf und im Klärschlamm entsprechen den jeweiligen Zulauffrachten. Die anderen Stoffe (Diazepam, Acetyl-Sulfamethoxazol, Erythromycin, Roxythromycin, Atenolol, Sotalol, Propanolol, Bisoprolol und Sulfadiazin wurden zumindest teilweise zurückgehalten, wobei die Ergebnisse zwischen den zwei untersuchten Kläranlagen z.T. sehr unterschiedlich sind. So wird in Kläranlage 1 kein Rückhalt von Diazepam festgestellt und die Ablaufkonzentration entspricht der Zulaufkonzentration, wohingegen in Kläranlage 2 eine Entfernung von 50 % bezogen auf die Zulauffracht zu beobachten ist. Bei den meisten dieser Stoffe, die zumindest teilweise zurückgehalten werden, sind die Entfernungsraten jedoch vergleichbar und liegen zwischen 20 und 50 %.

Die Entfernung über Adsorption an den Klärschlamm ist nur für wenige Stoffe relevant. So liegt der Frachtanteil im Schlamm zumeist deutlich unter 10 % der Zulauffracht. Nur für Carbamazepin, Acetyl-Sulfamethoxazol, Roxithromycin, Metoprolol und Diclofenac beträgt dieser Frachtanteil 10 % der Zulauffracht oder mehr. Während der anaeroben Schlammstabilisierung werden von diesen Stoffen Acetyl-Sulfamethoxazol, Metoprolol und Roxithromycin zumindest teilweise abgebaut, wohingegen Diclofenac nicht abgebaut wird. Für Carbamazepin werden wieder sehr unterschiedliche Ergebnisse in den zwei Kläranlagen beobachtet. So erfolgt in Kläranlage 1 ein rund 50%iger Abbau von Carbamazepin, während in Kläranlage 2 kein Abbau bei der anaeroben Schlammstabilisierung festzustellen ist.

Im rohen Klärschlammkompost werden auch die zuvor genannten und bereits im Klärschlamm nachgewiesenen Stoffe gefunden (Carbamazepin, Acetyl-Sulfamethoxazol, Metoprolol und Diclofenac). Die meisten dieser Stoffe werden

auch im Fertigkompost noch nachgewiesen, jedoch sind mit Ausnahme von Carbamazepin die gemessenen Konzentrationen im Fertigkompost deutlich geringer als im Rohkompost.

Die Bodenproben, die vor der Klärschlammkompostaufbringung gezogen wurden, sind nahezu unbelastet. Lediglich Carbamazepinkonzentrationen im Bereich der Bestimmungsgrenze werden in drei von vier Bodenproben gefunden. Die anderen untersuchten Stoffe sind nicht nachweisbar. In den Bodenproben, die zwei Monate nach der Klärschlammkompostaufbringung gezogen wurden, sind Carbamazepin und Erythromycin bestimmbar. Bei Carbamazepin ist die Konzentration im Boden auf die Klärschlammkompostaufbringung zurückzuführen. Bei Erythromycin kann der Klärschlammkompost nicht die Quelle für die vergleichsweise hohen Bodengehalte sein, weil dieses Antibiotikum im Klärschlammkompost nicht nachweisbar war.

Abbildung 1: Lagerplatz für Bioabfallkomposte

Zusätzlich zu den beschriebenen Proben wurden Bioabfallkomposte sowie eine Blumenerde untersucht. Generell ist festzuhalten, dass die Blumenerde deutlich geringere Belastungen aufwies als die untersuchten Bioabfallkomposte. Auffällig ist aber, dass sehr viele der analysierten Stoffe in diesen Proben nachweisbar waren. So wurden Carbamazepin, Trimethoprim, Erythromycin, Bezafibrat, Diclofenac und Ibuprofen in fast allen Bioabfallkomposten und auch der Blumenerde gemessen. Während die Konzentrationen von Carbamazepin in diesen Proben deutlich geringer als die Konzentration im Klärschlammkompost war, lagen die Konzentrationen von Bezafibrat, Diclofenac und Ibuprofen deutlich über jenen in den Klärschlammkomposten. Bei der Auswertung der Bioabfallkomposte ist auch ein deutlicher Unterschied zwischen verschiedenen Chargen festzustellen. Die Ergebnisse deuten jedenfalls darauf hin, dass Restarzneimittel aus Haushalten über die Bioabfallsammlung entsorgt werden.

2 EINLEITUNG

Sowohl in der Human- als auch in der Veterinärmedizin kommen zahlreiche Produkte zur Anwendung und für ausgewählte Wirkstoffe werden Verbrauchsmengen von über 100.000 Tonnen (z.B. Acetylsalicylsäure) jährlich erreicht.

Nach der Verwendung werden diese Stoffe entweder unverändert oder in metabolisierter Form wieder ausgeschieden und über das Abwasser in die Kanalisation eingebracht. Die nicht zulässige aber nichtsdestotrotz doch stattfindende Entsorgung angebrochener oder abgelaufener Arzneimittel über die Toilette stellt einen weiteren Eintragspfad dar. Insofern kein Abbau oder Umbau bzw. keine Anreicherung im Klärschlamm erfolgt, werden diese Arzneimittelwirkstoffe mit dem gereinigten Abwasser in die Oberflächengewässer abgeleitet und können dort ökotoxikologische Effekte bewirken. Bei einer allfälligen Nutzung dieser Gewässer als Trinkwasserressourcen finden sich diese Stoffe im Rohwasser und möglicherweise auch im aufbereiteten Trinkwasser wieder.

Wirkstoffe von Veterinärpharmaka können über den Hofdünger auf landwirtschaftlich genutzte Böden aufgebracht werden. Einen weiteren Eintragspfad in die Umwelt stellt die Ausbringung von Gärrückständen aus der Biogasproduktion dar. In Abhängigkeit ihrer Mobilität (Adsorption, Abbau, Löslichkeit) erfolgt eine Verfrachtung ins Grundwasser und im Falle der Nutzung für die Trinkwassergewinnung kann eine unerwünschte Exposition erfolgen.

Bei starken Regenereignissen kann eine direkte Abschwemmung ins Oberflächengewässer erfolgen.

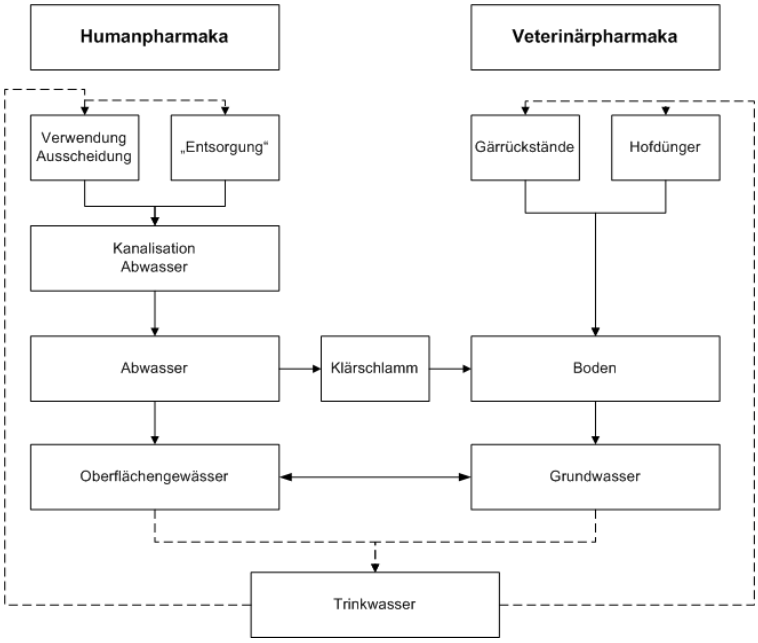

Abbildung 2: Schematische Darstellung potentieller Eintragspfade von Arzneimittelwirkstoffen in die aquatische Umwelt

Die Abwasserreinigung und das abgeleitete gereinigte Abwasser gelten gemeinhin als wesentliche Eintragspfade für Arzneimittelrückstände in die aquatische Umwelt.

Ein Schwerpunkt der Untersuchungen liegt daher in der Erfassung der Arzneimittelwirkstoffe im kommunalen Abwasser und deren Verhalten bei der biologischen Abwasserreinigung. Dazu liegen bereits Daten aus verschiedenen Untersuchungen vor (Clara, 2004; Joss et al., 2005; Verlicchi et al., 2012). Bei den Kläranlagen werden Proben von Zu- und Ablauf sowie vom stabilisierten Klärschlamm gezogen und bei der Kläranlage 2 wurden zudem Proben von der Schlammbeschickung in die Faulung genommen. Somit ist es möglich Aussagen zum Verhalten der untersuchten Arzneimittelwirkstoffe bei der Abwasserbehandlung zu erhalten. Bei der Kläranlage 2 ist zudem eine Bewertung der biologischen Reinigungsstufe (Abwasserlinie) sowie der anaerobne Schlammstabilisierung (Schlammlinie) möglich.

Neben der Einleitung gereinigten Abwassers stellt die Ausbringung von Klärschlamm bzw. Klärschlammkompost einen weiteren Eintragspfad für Arzneimittelwirkstoffe in die Umwelt dar. Bei den Beprobungen der Kläranlagen wird der stabilisierte Klärschlamm berücksichtigt. In Vorarlberg darf laut Klärschlammverordnung (LGBl. Nr. 75/1997 idgF) Klärschlamm nur in Form von Klärschlammdünger unter Einhaltung definierter Qualitätskriterien landwirtschaftlich verwertet werden. Üblicherweise erfolgt eine Kompostierung des Klärschlammes. Bei den Untersuchungen wurden sowohl der Rohkompost als auch der Klärschlammfertigkompost berücksichtigt.

Zusätzlich zu den Untersuchungen der Emission (gereinigtes Abwasser, Klärschlamm und Klärschlammkompost) wurde auch die Immission erfasst, wobei diese Untersuchungen auf Bodenuntersuchungen beschränkt wurden. Dazu wurden landwirtschaftlich genutzte Flächen, die mit Klärschlamm beaufschlagt werden zwei Mal beprobt. Die erste Beprobung erfolgte kurz vor der Beaufschlagung mit Klärschlamm, die zweite Beprobung erfolgt nach der Klärschlammaufbringung. Die Flächen wurden so gewählt, dass sowohl landwirtschafltich genutzte Flächen berücksichtigt wurden, die bereits seit mehreren Jahren mit Klärschlamm beaufschlagt werden, aber auch Böden, auf die bisher kein Klärschlamm aufgebracht wurde.

Im Rahmen dieser Untersuchungen wird ein Schwerpunkt auf Arzneimittelwirkstoffe gelegt. Zu einigen Arzneitmittelwirkstoffen (z.B. Carbamazepin, Ibuprofen, u.a.m.) liegen Daten zu deren Vorkommen und Verhalten bei der Abwasserreinigung vor. Bei anderen Arzneimittelwirkstoffen (z.B. Betablocker) sowie zu Arzneimittelkonzentrationen in Klärschlämmen oder Klärschlammkomposten stehen nur eingeschränkt Daten zur Verfügung. Zudem treten Arzneimittelwirkstoffe und in diesem Kontext vor allem Antibiotika (Sulfamethoxazol, Trimethoprim, Erythromycin, Roxithromycin, Clarithromycin) sowie schwer abbaubare Verbindungen wie Carbamazepin (Antiepileptikum), Diclofenac (Antirheumatikum und Inhaltsstoff bei Voltaren), Ibuprofen (Antianalgetikum) und Bezafibrat (Lipidsenker) zunehmend in den Blickpunkt der öffentlichen Diskussion.

In allen Proben werden die folgenden Stoffe analysiert:

- Carbamazepin
- Sulfamethoxazol und Acetyl-Sulfamethoxazol
- Trimethoprim,
- Erythromycin
- Roxithromycin

- Clarithromycin (nicht in den Bodenproben des zweiten Beprobungsdurchganges)
- Diclofenac
- Ibuprofen
- Bezafibrat
- Atenolol
- Bisoprolol
- Metoprolol
- Propanolol
- Sotalol

Zusätzlich dazu wurden in den Zu- und Ablaufproben der untersuchten Kläranlagen noch weitere Stoffe analysiert:

- Sulfamethazin = Sulfadimidin
- Sulfadiazin
- Kokain und Benzoylecognin
- Diazepam

3 METHODIK

3.1 Probenahme

3.1.1 Beprobungsstrategie

Die Proben sollen möglichst repräsentaiv die jeweils zusammengehörenden Stoffströme in der zeitlichen Abfolge des Veränderungsprozesses abbilden. Um dies sicherzustellen wurden speziell für diesen Zweck sortenreine Kompostchargen aus dem untersuchten Klärschlamm hergestellt und gelagert. Am Ende des Rotteprozesses wurden dann diese Komposte auf die Untersuchungsflächen aufgebracht. Auch die Schlammprobenahme wurde zeitlich auf die Abwasserbeprobungen abgestimmt.

3.1.2 Abwasserproben

Bei beiden untersuchten Kläranlagen wurden im Juni 2010 über einen Zeitraum von drei Wochen mengenproportionale Tagesmischproben genommen. Eine zur Zuflussmenge aliqote Menge der jeweiligen Tagesmischprobe wurde fortlaufend eingefroren, um eine Veränderung der Probe zu verhindern. Durch die Akkumulation konnte eine repräsentative mengenproportionale Drei-Wochenmischprobe erhalten werden.

3.1.3 Schlammproben

Die Klärschlammproben wurden am Ende der Abwasserbeprobung als Stichprobe aus dem Stapelbehälter nach dem Faulturm gezogen. Die Proben des Rohschlamms vor der Stabiliserung im Faulturm der Kläranlage sowie des Primärschlamms aus der Vorklärung der Kläranlage 1 wurden aus zwei Stichproben während der Abwasserprobung gewonnen.

3.1.4 Kompostproben und Presswasser

Die Komposte wurden als Mischproben von mindestens 30 Einstichen mit dem Bohrstock genommen. Das Presswasser wurde aus dem für die Probenahme vorgesehenen Auslassstutzen als Stichprobe entnommen.

3.1.5 Bodenproben

Für die Gewinnung repräsentativer Bodenproben wurde eine Mischprobe aus 50 – 80 Einstichproben der obersten Bodenschicht (0 – 10cm) hergestellt.

3.2 Chemische Analytik

Feste Proben

Feste Proben werden nach der Lyophilisierung mit einer isotopenmarkierten Surrogatstandardmischung versetzt, mittels Druckextraktion extrahiert. Die erhaltenen Extrakte werden durch einen Stickstoffstrom eingeengt.

Zur Bestimmung von Diclofenac, Ibuprofen und Bezafibrat wird ein Aliquot des Extraktes angesäuert und mit Leitungswasser aufgefüllt, mittels Festphasenextraktion (SPE) gereinigt, und eluiert. Das erhaltene Eluat wird eingeengt, und dann mit Diazomethan derivatisiert. Das Extrakt wird nochmals mittels Kieselgel gereingt und am Gaschromatographen mit Massenspektrometrie analysiert.

Zur Bestimmung der restlichen Arzneimittelwirkstoffe wird ein weiteres Aliquot mit Leitungswasser aufgefüllt, mittels SPE gereinigt und mit einem Lösungsmittelgemisch eluiert. Das Eluat wird wiederum eingeengt und mittels Flüssigchromatographie-Tandemmassenspektrometrie (LC-MS/MS) analysiert.

Wässrige Proben

Zur Bestimmung von Diclofenac, Ibuprofen und Bezafibrat werden die Wasserproben mit einem Surrogatstandard versetzt, angesäuert und mittels Festphase extrahiert. Die Extrakte werden mit Diazomethan derivatisiert, auf einer Kieselgelsäule gereinigt und der Gaschromatographie mit Massenspektrometrie zugeführt.

Für die Bestimmung der restlichen Arzneimittelwirkstoffe wurden die Proben mit einer isotopenmarkierten Surrogatstandardmischung und EDTA versetzt, und der pH-Wert auf 4,5 eingestellt. Die Proben wurden mittels SPE angereichert und eluiert. Die erhaltenen Eluate wurden eingeengt und mittels LC-MS/MS analysiert.

In Tabelle 1 sind die Bestimmungs- (BG) und Nachweisgrenzen (NG) der analysierten Stoffe in den verschiedenen untersuchten Matrizes zusammengefasst.

Ergebnisse kleiner NG wurden für die Auswertungen gleich null gesetzt und Nachweise kleiner BG wurden mit dem Mittelwert aus Bestimmungs- und Nachweisgrenze berücksichtigt.

Tabelle 1: Zusammenfassung der Bestimmungs- (BG) und Nachweisgrenzen (NG) der analysierten Stoffe in den untersuchten Matrizes

Stoff	**Abwasser [ng/l]**		**Schlamm [µg/kg TM]**		**Boden [µg/kg TM]**	
	BG	NG	BG	NG	BG	NG
Carbamazepin	10*/2**	5*/1*	1	0,5	1-2	0,5-1
Diazepam	4*/2**	2*/1**	-	-	-	-
Sulfamethoxazol	10	5	5	2,5	5-6	2,5-3
Acetyl-Sulfamethoxazol	30	15	10	5	10	5
Trimethoprim	10	5	5	2,5	5	2,5
Erythromycin	20	10	10	5	10	5
Roxithromycin	10	5	10	5	10	5

Stoff	Abwasser [ng/l]		Schlamm [µg/kg TM]		Boden [µg/kg TM]	
	BG	NG	BG	NG	BG	NG
Atenolol	25	13	4	2	4	2
Bisoprolol	10	5	20	10	20	10
Metoprolol	30	15	15	7,5	15	7,5
Propanolol	10	5	50	25	50	25
Sotalol	25	13	4	2	4-5	2-2,5
Kokain	4*/2**	2*/1**	-	-	-	-
Benzoylecognin	10	5	-	-	-	-
Phenazon	25	13	-	-	-	-
Bezafibrat	40	20	50	25	50	25
Diclofenac	20	10	50	25	50	25
Ibuprofen	20	10	50	25	50	25
Clarithromycin	10	5	10	5	10	5
Sulfadimidin	40*/20**	20*/10**	-	-	-	-
Sulfadiazin	20	10	-	-	-	-

*…Zulauf, **…Ablauf

3.3 Beschreibung der Kläranlagen

Kläranlage 1

Kläranlage 1 hat eine Ausbaugröße von 138.150 EW-BSB_{60} und ist eine kommunale Kläranlage mit hohem Indirekteinleiteranteil. Im Einzugsgebiet befinden sich acht Gemeinden im unteren Rheintal mit insgesamt 64.386 Einwohnern, die zu einem Abwasserverband zusammen geschlossen sind. Die Abwässer weisen einen hohen Indirekteinleiteranteil (50-60 %) auf. Durch das große Einzugsgebiet und viele kleine bis mittlere Betriebe ist keiner dieser Indirekteinleiter dominant bzw. bestimmend für die Zusammensetzung des Abwassers. Maßgeblich sind Abwässer aus der Abfallwirtschaft, Textilveredelung, Getränkeabfüllung, Metalloberflächenbehandlung sowie Wäschereien.

Die Reinigung der Abwässer erfolgt nach der Vorklärung (Volumen 1.320 m³) in der einstufigen Biologie in drei längsdurchströmten Umlaufbecken mit Membran-Tiefenbelüftung (Gesamtvolumen 17.000 m³) und anschließender Nachklärung in zwei Becken (Gesamtvolumen 9000 m³). Phosphor wird durch eine Simultanfällung eliminiert. Die Bemessungswerte für BSB_5 und CSB betragen 8.288 kg/d bzw. 14.400 kg/d. Die hydraulische Bemessungswassermenge bei Trockenwetter liegt bei 29.000 m³/d. Die Anlage war im Jahr 2011 im Mittel zu 85 % bezüglich BSB_5, 106 % bezogen auf CSB und zu 64 % bei der hydraulischen Belastung ausgelastet. Die gereinigten Abwässer werden in den Mündungsbereich der Dornbirnerach in den Bodensee eingeleitet. Kläranlage 1 weist hohe Entfernungsraten für BSB_5, CSB sowie Nährstoffe aus. So wurden im Jahr 2011 99 % des BSB_5, 95 % des CSB, 82 % des Gesamtstickstoffs und 95 % des Gesamtphosphors entfernt (Hanefeld et al., 2012). Die Schlammstabilisierung erfolgt anaerob in einem Faulturm mit einem Volumen von 2.200 m^3. Das Faulgas wird zur Energienutzung über ein Blockheizkraftwerk geführt. Der

stabilisierte Klärschlamm wird einem Abfallbehandler übergeben und mit dem Ziel der landwirtschaftlichen Verwertung kompostiert.

Kläranlage 2

Kläranlage 2 hat eine Ausbaugröße von 80.000 EW-BSB_{60} und ist eine kommunale Kläranlage mit geringem Indirekteinleiteranteil. Im Einzugsgebiet von Kläranlage 2 befinden sich drei Gemeinden im unteren Rheintal mit insgesamt 30.545 Einwohnern. Die Abwässer weisen einen geringen Indirekteinleiteranteil (<25 %) auf.

Abbildung 3: Kläranlage Bregenz

Die Reinigung der Abwässer erfolgt in einer zweistufigen Biologie mit vorgeschaltetem Selektor (Gesamtvolumen 5.160 m³) und anschließender Nachklärung (Gesamtvolumen 10.800 m³). Phosphor wird durch eine Simultanfällung eliminiert. Die Bemessungswerte für BSB_5 und CSB betragen 4.500 kg/d bzw. 9.000 kg/d. Die hydraulische Bemessungswassermenge bei Trockenwetter liegt bei 12.000 m³/d. Die Anlage war im Jahr 2011 im Mittel zu 52 % bezüglich BSB_5, 47 % bezogen auf CSB und zu 63% bei der hydraulischen Belastung ausgelastet. Die gereinigten Abwässer werden in den Bodensee eingeleitet. Kläranlage 2 weist hohe Entfernungsraten für BSB_5, CSB sowie Nährstoffe aus. So wurden im Jahr 2011 99 % des BSB_5, 95 % des CSB, 71 % des Gesamtstickstoffs und 95 % des Gesamtphosphors entfernt. Die Schlammstabilisierung erfolgt anaerob in zwei in Serie geschalteten Faultürmen mit einem Gesamtvolumen von 2.000 m^3. Das Faulgas wird zur Energienutzung über zwei Blockheizkraftwerke geführt. Der stabilisierte Klärschlamm wird mit städtischem Grünabfall kompostiert und anschließend vollständig landwirtschaftlich sowie über Rekultivierungsprojekte und die Kleinmengenabgabe verwertet (Hanefeld et al., 2012).

3.4 Untersuchte Bodenflächen

Abbildung 4 zeigt eine Übersicht über die Lage der vier untersuchten landwirtschaftlich genutzten Flächen und Tabelle 2 enthält eine kurze Charakterisierung der Flächen. Die erste Beprobung wurde im Juli 2010 durchgeführt. Die Klärschlammausbringung auf die vier beprobten Bodenflächen erfolgte Anfang September 2010 und die zweite Beprobung fand Mitte November 2010 statt.

Abbildung 4: Übersicht über die Lage der vier untersuchten Bodenflächen (Maßstab 1:15.000)

Tabelle 2: Beschreibung der beprobten landwirtschaftlichen Flächen

Fläche Nr.	Status	Fläche [m^2]
Fläche 1	Bisher keine Klärschlammkompostaufbringung	4670
Fläche 2	Seit 6 Jahren Klärschlammkompostaufbringung	7660
Fläche 3	Bisher kein Klärschlammkompostaufbringung, Wirtschaftsdünger	3320
Fläche 4	Seit 10 Jahren Klärschlammkompostaufbringung	6130

Auf Fläche 1 und Fläche 2 wurde Klärschlammkompost von Kläranlage 1 aufgebracht, während die Flächen 3 und 4 mit Klärschlammkompost der Kläranlage 2 beaufschlagt wurden.

3.5 Datenauswertung – Bilanzierung

Es wurden zwei Kläranlagen beprobt und die Beprobungen erfolgten auf der Basis von Tagesmischproben. Die Beprobungen wurden über einen Zeitraum von drei Wochen durchgeführt und aus den Tagesmischproben wurden Drei-Wochen Mischproben erstellt und der chemischen Analyse unterzogen:

- Bei beiden Kläranlagen wurden die Zu- und Abläufe sowie der stabilisierte Klärschlamm beprobt. Damit ist bei beiden Kläranlagen die Bilanzierung des Systems Kläranlage möglich.
- Bei der Kläranlage 2 wurde zudem der nicht stabilisierte Schlamm aus der Beschickung der anaeroben Schlammstabilisierung (Faulung) beprobt. Damit ist es möglich, bei der Kläranlage 2 zusätzlich zur Bewertung des Gesamtsystems Kläranlage auch eine Beurteilung der biologischen Stufe (Teilsystem Abwasserlinie) sowie der anaeroben Schlammstabilisierung möglich (Teilsystem Schlammbehandlung).
- Bei der Kläranlage 1 sollte wie in Kläranlage 2 auch die Beschickung der Faulung beprobt werden. Aufgrund eines Fehlers bei der Probenahme wurde jedoch der Primärschlamm beprobt. Damit ist eine Bilanzierung der Teilsysteme Abwasserlinie und Schlammbehandlung für Kläranlage 1 nicht möglich. Die Messergebnisse für den Primärschlamm sind jedoch angegeben. Für Kläranlage 1 wird aber eine Auswertung der Biologie durchgeführt. Dabei wird angenommen, dass in der Vorklärung keine biologische Transformation erfolgt, wodurch der Zulauf zur Biologie aus dem Anlagenzulauf und der Fracht im Primärschlamm berechnet werden kann. Bei der Bewertung der Biologie ist eine Unterscheidung zwischen adsorptiver Entfernung über den Überschußschlamm und biologischer Transformation nicht möglich. Daher wird aus der Frachtdifferenz aus Zu- und Ablauf der Biologie die Entfernung berechnet. Diese Gesamtentfernung ist mit den Ergebnissen anderer Untersuchungen vergleichbar. Eine Bewertung des Teilsystems Schlammstabilisierung ist nicht möglich.

Abbildung 5 zeigt eine schematische Darstellung der beprobten Kläranlagen und der berücksichtigten Teilsysteme (Kläranlage, Abwasserlinie und Schlammlinie). Die beprobten Teilströme sind in der Abbildung dunkel dargestellt.

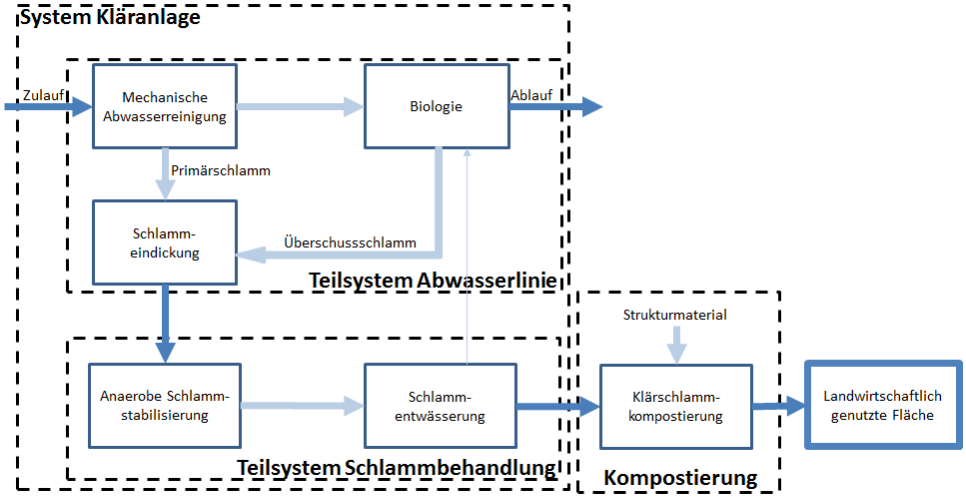

Abbildung 5: Schematische Darstellung der berücksichtigten Teilströme bei den untersuchten Kläranlagen und Abfallbehandlern

Zusätzlich zur Kläranlage wurde auch die Klärschlammkompostierung untersucht. Dabei wurden der eingebrachte Klärschlamm sowie der Klärschlammkompost analysiert. Das in die Kompostierung eingebrachte Strukturmaterial wurde nicht berücksichtigt. Damit ist die Erstellung einer geschlossenen Bilanz nicht möglich.

Im Zuge der Datenauswertung wurde eine Plausibiltätsprüfung der Daten mittels einer Bilanzierung durchgeführt. Basis für die Bilanzierung waren die Daten der Eigenüberwachung der zwei Abwasserverbände. Zusätzlich wurden in den Mischproben die Referenzparameter untersucht. Basierend auf diesen Eigenüberwachungsdaten wurden Massenbilanzen zu Phosphor, CSB und TS erstellt, um verschiedene Teilprozesse der Abwasserreinigungsanlage zu beschreiben. Ausgehend von dieser Plausibilisierung wurden die entsprechenden Volumensströme festgelegt, mit denen die Berechnung der Massenbilanz für die untersuchten Arzneimittelwirkstoffe erfolgte.

Üblicherweise sollten für die Bilanzierung auf Basis der verfügbaren Daten Frachten gerechnet und diese Frachten über den Bilanzzeitraum gemittelt werden. Da für die Auswertungen für die verschiedenen Teilströme jedoch nur eine 3-Wochen Mischprobe vorliegt, werden die Abwasser- bzw. Schlammtrockenmasseflüsse gemittelt und mit dem Konzentrationswert eine Fracht bestimmt. Anzumerken ist bei dieser Vorgehensweise, dass Unsicherheiten aufgrund der chemischen Analytik nicht bewertet werden können, weil keine Vergleichswerte vorliegen. Da keine Informationen zur Streuung der Konzentrationen vorliegen, ist eine Bewertung allfälliger Bilanzfehler nicht möglich. Andererseits wurde der Beprobungszeitraum mit 3 Wochen so festgelegt, dass die Beprobung mindestens ein Schlammalter berücksichtigt.

3.5.1 Plausibilisierung

Kläranlage 1

Tabelle 3 zeigt einen Überblick über die gemessenen Referenzparameter in den untersuchten Mischproben aus Kläranlage 1.

Tabelle 3: Übersicht über die analysierten Referenzparameter in den Proben der Kläranlage 1

Parameter.	**Zulauf [mg/l]**	**Ablauf [mg/l]**	***Primärschlamm [g/kg]***	**Schlamm entwässert [g/kg]**
Abf. Stoffe	280	41	-	-
CSB	460	33	*49 [g/l]*	9,7 [g/l]
CSB-filtriert	230	28	-	-
TOC	150	11	*370*	270
N_{ges}	43	5,3	*29*	33
NH_4-N	28	1	-	-
NO_3-N	-	20	-	-
P_{ges}	9,3	0,29	*12*	32
TS	-	-	*49,3*	20,5
oTS	-	-	*35,3*	11,7
Cadmium	<0,0020	<0,0020	*0,00075*	0,0016
Chrom	0,3	<0,0080	*0,060*	0,150
Kupfer	0,067	<0,039	*0,16*	0,27
Nickel	<0,025	<0,0080	*0,022*	0,027
Blei	<0,030	<0,030	*0,030*	0,037
Zink	0,26	0,17	*0,58*	0,98

Basierend auf den Daten der Eigenüberwachung für den Monat Juni wurde eine Bilanzierung für Phosphor durchgeführt. Aus den Phosphorfrachten in Zu- und Ablauf wurde die Phosphorfracht im Schlamm berechnet, die in die Faulung eingebracht wird (Primärschlamm und Überschußschlamm). Bezogen auf die Trockensubstanzfracht in der Beschickung des Faulturms beträgt der Phosphorgehalt rund 0,027 kg P/kg TS. Dieser Wert zeigt eine gute Übereinstimmung mit Literaturwerten und früheren Untersuchungen.

Der Phosphorgehalt im stabilisierten Klärschlamm wurde mit 32 g/kg Trockensustanz bestimmt. Diese Konzentration liegt im Bereich von Literaturwerten. Der durchschnittliche Phosphorgehalt in voll stabilisierten Naßschlämmen liegt zumeist zwischen 20-40 g/kg Trockensubstanz. Hanefeld et al. (2012) berichten durchschnittliche Tagesfrachten und auch den Klärschlammanfall. Aus diesen durchschnittlichen Tagesfrachten für Phosphor und dem mittleren Klärschlammanfall wird der Phosphorgehalt des stabilisierten und entwässerten Schlammes mit 0,055 kg P/kg TS berechnet. Dieser berechnete Wert liegt deutlich über dem gemessenen Wert. Aufgrund der Angaben im Jahresbericht 2011 zu den Abwasserreinigungsanlagen in Vorarlberg (Hanefeld et al., 2012) ist davon auszugehen, dass die angegebene Klärschlammmenge für die Kläranlage 1 zu gering ist. Ausgehend von einer mittleren Belastung, errechnet aus der

CSB-Fracht im Zulauf, einer spezifischen CSB-Fracht von 120 g EW / d und der Annahme einer geringen spezifischen Schlammproduktion von rund 40 g TS / EW / d, wird die Schlammproduktion mit rund 1900 t TS / Jahr berechnet. Diese Schlammmenge überschreitet die ausgewiesene Klärschlammproduktion von 1185 t TS / Jahr deutlich.

Auch die Phosphorbilanz über die Gesamtanlage basierend auf den gemessenen Konzentrationen in den Referenzproben aber auch basierend auf Mittelwerten der Eigenüberwachungsdaten für den Monat Juni für Zu- und Ablauf führen zu einem erheblichen Bilanzfehler. Die Summe der Phosphorfrachten im Ablauf und im Klärschlamm beträgt nur rund die Hälfte der Phosphorfracht im Zulauf. Wird die Bilanzierung mit einer Klärschlammproduktion von rund 1900 t TS / Jahr (rund 5200 kg TS / Tag) wie zuvor abgeschätzt durchgeführt, so ergibt die Berechnung mit den Konzentrationen aus der Eigenüberwachung einen Bilanzfehler von rund 6 %. Auch dies deutet darauf hin, dass die Klärschlammmengen nicht korrekt erfasst werden. Für die Bilanzierung werden daher nicht die Daten aus der Eigenüberwachung, sondern die angepasste Klärschlammmenge verwendet. Für die Abschätzung des Zulaufes zur Biologie und die Berechnung des Primärschlammes wird ausgehend von einer durchschnittlichen Aufenthaltszeit in der Vorklärung von rund 1,3 Stunden und einer CSB Entfernung von 30 % sowie einem CSB/TS Verhältnis von 1 der Primärschlammanfall aus der CSB Zulauffracht berechnet. Dieser beträgt rund 4500 kg Primärschlamm (TS) pro Tag. Die Daten der Eigenüberwachung weisen einen durchschnittlichen täglichen Primärschlammanfall von rund 4600 kg TS aus. Hier zeigen der berechnete und der aufgezeichnete Wert eine gute Übereinstimmung. Somit werden für die Bilanzierung der Arzneimittelwirkstoffe die folgenden Abwasser- und Schlammmengen verwendet:

- Abwassermenge: 27.350 m^3/d
- Primärschlammanfall: 4.600 kg TS/d
- Stabilisierter/entwässerter Schlamm: 5.200 kg TS/d

Kläranlage 2

Tabelle 4 zeigt einen Überblick über die gemessenen Referenzparameter in den untersuchten Mischproben aus Kläranlage 2.

Die Daten der Eigenüberwachung für den Monat Juni wurden für eine Phosphor-Bilanzierung Phosphor herangezogen. Aus den Phosphorfrachten in Zu- und Ablauf wurde die Phosphorfracht im Schlamm berechnet, die in die Faulung eingebracht wird (Überschussschlamm). Bezogen auf die Trockensubstanzfracht in der Beschickung des Faulturms beträgt der Phosphorgehalt rund 0,020 kg P/kg TS. Dieser Wert zeigt eine akzeptable Übereinstimmung mit dem gemessenen Phosphorgehalt in der Mischprobe aus der Beschickung des Faulturms (0,025). Hanefeld et al. (2012) berichten durchschnittliche Tagesfrachten und auch den Klärschlammanfall. Aus diesen durchschnittlichen Tagesfrachten für Phosphor, der daraus errechneten mittleren Phosphorentfernung und dem mittleren Klärschlammanfall wird der Phosphorgehalt des stabilisierten und entwässerten Schlammes mit 0,035 kg P/kg TS berechnet. Dieser gerechnete Phosphorgehalt ist ident mit dem gemessenen Phosphorgehalt in der Mischprobe. In der Mischprobe wurde ein Phosphorgehalt von 0,035 kg P/kg TS gemessen.

Tabelle 4: Übersicht über die analysierten Referenzparameter in den Proben der Kläranlage 2

Parameter.	**Zulauf [mg/l]**	**Ablauf [mg/l]**	**Zulauf Faulung [g/kg]**	**Schlamm entwässert [g/kg]**
Abf. Stoffe	140	37	-	-
CSB	360	27	85 [g/l]	49 [g/l]
CSB-filtriert	180	27	-	-
TOC	110	7,6	370	290
N_{ges}	36	8,7	41	32
NH_4-N	25	0,51	-	-
NO_3-N	-	7,2	-	-
P_{ges}	6,1	0,39	25	35
TS	-	-	36,6	32,4
oTS	-	-	26,2	18,8
Cadmium	-	-	0,0020	0,0027
Chrom	<0,025	<0,0080	0,069	0,090
Kupfer	0,034	<0,055	0,19	0,27
Nickel	<0,0080	<0,0080	0,013	0,019
Blei	-	-	0,032	0,044
Zink	0,070	0,40	0,77	1,1

Aus den Phosphorfrachten in Zu- und Ablauf wurde die Phosphorfracht im Klärschlamm bestimmt und mit dem gemessenen Phosphorgehalt des Schlammes die theoretisch anfallende tägliche Schlammmenge bestimmt. Diese liegt bei rund 1400 kg TS pro Tag. Dieser Wert zeigt eine gute Übereinstimmung mit den Angaben der Eigenüberwachung. Die Angaben aus Hahnefeld et al. (2012) sind zwar geringfügig höher (rund 1600 kg TS pro Tag), sind aber durchaus auch mit den Daten aus der Eigenüberwachung und den theoretisch berechneten Werten vergleichbar.

Der Zulauf zur Faulung sowie der stabilisierte und entwässerte Schlamm wurden auf Phosphor und Schwermetalle untersucht. Sowohl Phosphor als auch die Metalle werden nicht abgebaut, sondern die Ablauffracht muss der Zulauffracht entsprechen, wenn Speicheränderungen als vernachlässigbar eingestuft werden. Abbildung 6 zeigt eine Gegenüberstellung der Frachten für Gesamtphosphor und für die Schwermetalle in der Beschickung des Faulturms und im stabilisierten und entwässerten Klärschlamm.

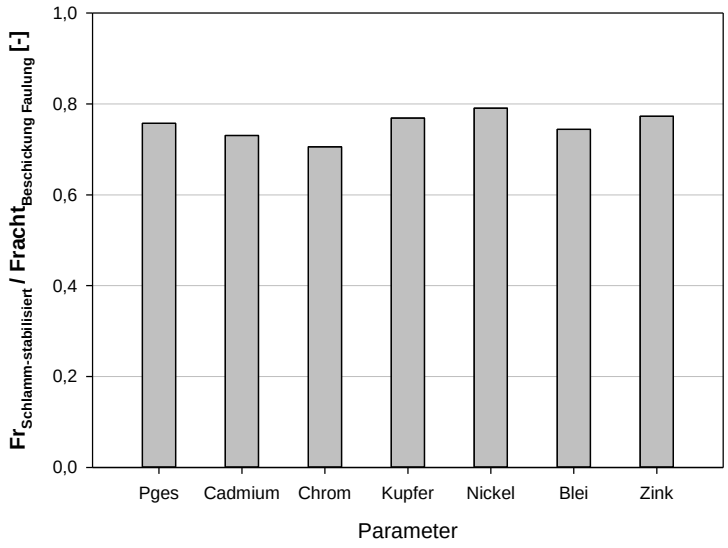

Abbildung 6: Gegenüberstellung der Frachten für Gesamtphosphor und für die Schwermetalle in der Beschickung des Faulturms und im stabilisierten und entwässerten Klärschlamm

Die berechneten Verhältnisse der Stofffrachten im stabilisierten Klärschlamm im Vergleich zu den Zulauffrachten liegen zwischen 0,7 und 0,8. Eine Überschätzung des Frachteintrags in die Faulung, eine Unterschätzung der Schwermetallgehalte im stabilisierten Schlamm bzw. eine geringfügige Unterschätzung des Klärschlammanfalles sind eine mögliche Begründung für diese Beobachtung. Bei beiden Anlagen ist jedoch die Erstellung einer geschlossenen Bilanz über die Schlammbehandlung nicht möglich, weil zwar die Beschickung der Faulung und der stabilisierte, entwässerte Schlamm, nicht aber das Trübwasser untersucht wurden. Dieser Frachtanteil, der über das Trübwasser wieder in die Biologie zurückgeführt wird, ist nicht bestimmbar. Hinzu kommt, dass nur eine Probe untersucht wurde und daher keine Aussage über die Streuung möglich ist. Unter Berücksichtigung dieser nicht bewertbaren Unsicherheiten werden bei der Bewertung der Schlammbehandlung in Bezug auf die Arzneimittelwirkstoffe die Schlammfrachten aus den Daten der Eigenüberwachung als plausibel für die vorliegende Bewertung eingestuft.

Die im Rahmen der Eigenüberwachung aufgezeichneten Abwasser- und Schlammmengen erscheinen plausibel und werden für die Bilanzierung der Arzneimittelwirkstoffe verwendet:

- Abwassermenge: 9.025 m3/d
- Beschickung Faulturm: 2.660 kg TS/d
- Stabilisierter/entwässerter Schlamm: 1.440 kg TS/d

4 ERGEBNISSE

4.1 Abwasserreinigung

4.1.1 Vorkommen in Zu- und Ablauf

In der folgenden Tabelle 5 sind die gemessenen Konzentrationen im Zu- und Ablauf der zwei beprobten Kläranlagen für die untersuchten Arzneimittelwirkstoffe zusammengefasst. In Tabelle 5 ist zudem der Schwankungsbereich der mittleren gemessenen Konzentrationen in der Literatur für die untersuchten Stoffe dargestellt. Dabei wurden Daten aus der Schweiz, Deutschland und Österreich berücksichtigt (Clara et al., 2005; Sadezky et al., 2010).

Im Jahr 2010 wurde auch eine Kläranlage in der Steiermark im Detail auf Arzneimittelwirkstoffe untersucht und die Ergebnisse dieser Untersuchungen sind in Clara et al. (2012) zusammengefasst. Die gemessenen Arzneimittelkonzentrationen in Zu- und Ablauf dieser Kläranlage sind in Tabelle 5 den gemessenen Konzentrationen in den zwei untersuchten Vorarlberger Kläranlagen gegenübergestellt. Zudem enthält die Tabelle auch Daten aus Untersuchungen von Tagesmischproben aus den Jahren 2007 und 2009.

Bei den meisten der untersuchten Stoffe sind die gemessenen Konzentrationen in Zu- und Ablauf der zwei Kläranlagen mit den Ergebnissen früherer Untersuchungen und mit Untersuchungsergebnissen aus der Schweiz, Österreich un d Deutschland vergleichbar (siehe Tabelle 5). Bei den Betablockern Atenolol, Sotalol, Propanolol und Metoprolol und bei Bezafibrat liegen die gemessenen Konzentrationen sowohl im Zu- als auch im Ablauf der zwei Kläranlagen deutlich unter den mittleren Literaturwerten aus Sadezky et al. (2010), wohingegen die Clarithromycin Konzentrationen deutlich höher sind als in der Literatur. Bei dem Antibiotikum Trimethoprim und den Analgetika Diclofenac und Ibuprofen sind die gemessenen Zulaufkonzentrationen in beiden Kläranlagen deutlich niedriger als in der (Sadezky et al., 2010) Literatur, wohingegen die Ablaufkonzentrationen vergleichbar sind. Anzumerken ist jedoch, dass auch bei diesen Stoffen eine gute Vergleichbarkeit der gemessenen Konzentrationen mit den früheren Untersuchungen bei den zwei Kläranlagen und den annähernd zeitgleichen Untersuchungen der steirischen Kläranlage (Clara et al., 2012) gegeben ist.

Tabelle 5: Gemessene Arzneimittelkonzentrationen in Zu- und Ablauf [ng/l] der zwei beprobten Kläranlagen und Vergleich mit Literaturwerten sowie früheren Messungen ([a]…Untersuchungen von 6 vorarlberger Kläranlagenabläufen im Jahr 2007, Schwankungsbereich sowie Messwert für KA 1 in Klammer, [b]…Messergebnisse für KA 1/KA 2 aus Untersuchungen im Jahr 2009)

Parameter	**Zulauf [ng/l]**					**Ablauf [ng/l]**					
	KA 1	KA 2	Literatur[1,2,3]	Strass[4]	2009[5]	KA 1	KA 2	Literatur[1,2,3]	Strass[4]	2007[6,a]	2009[5,b]
Carbamazepin	950	850	1258-1600	300-390	740/580	640	660	1132-1187	300-510	150-1100 (880)	920/990
Diazepam	9,7	6,5	21-23	-	-	10	3,1	<10-19,3	-	n.n.-13 (8,3)	-
Sulfamethoxazol	29	48	90-742	n.n.-27	<86/<92	31	57	n.n.-307	n.n.-<10	41-140 (64)	<37/<88
Acetyl-Sulfamethoxazol	66	160		37-89	200/140	<30	n.n.		n.n.-33	-	n.n./40
Trimethoprim	n.n.	30	290-291	31-86	-	96	99	70	40-110	94-290 (150)	-
Erythromycin	44	120	70-189	32-37	-	27	84	68-252	23-42	69-270 (130)	-
Roxithromycin	33	<10	20-187	37-180	-	26	<10	11-101	30-130	27-160 (78)	-
Atenolol	200	240	923	160-220	-	230	98	277	37-61	-	-
Bisoprolol	120	170	74	190-250	-	100	120	73	56-140	-	-
Metoprolol	500	420	2050	390-560	-	520	420	842	300-490	-	-
Propanolol	17	38	814	19-26	-	15	29	72	10-17	-	-
Sotalol	130	370	1255	82-100	-	120	290	1109	49-120	-	-
Kokain	<4.0	6	-	n.n.	-	n.n.	n.n.	-	n.n.	<2,3-19 (<2,3)	-
Benzoylecognin	110	260	-	<10-24	-	n.n.	n.n.	-	n.n.	2,3-170 (6,8)	-
Phenazon	63	52	-	-	-	69	80	-	-	-	-
Bezafibrat	160	900	3526-4135	650-3000	-	n.n.	n.n.	50-1160	200-280	400-1300 (1200)	-
Diclofenac	1100	1100	2150-2430	1300-3200	1600/2000	1100	1500	1344-1844	1500-2300	1100-2000 (2000)	2000/1900
Ibuprofen	2000	2700	1642-3512	3100-3300	-	n.n.	n.n.	12-175	n.n.-<20	44-220 (44)	-
Clarithromycin	990	830	214-380	650-1300	-	520	120	109-225	400-1100	-	-
Sulfadimidin	n.n.	n.n.	-	n.n.	-	n.n.	n.n.	-	n.n.	n.n.	-
Sulfadiazin	22	n.n.	-	n.n.-<20	-	<20	n.n.	-	n.n.	n.n.	-

[1]…Clara et al. (2005), [2]…Sadezky et al. (2010), [3]…Verlicchi et al. (2012), [4]…Clara et al. (2011), [5]…Hanefeld (2012), [6]…Scheffknecht (2012)

Aus den Zulauffrachten zu den zwei Kläranlagen und den angeschlossenen Einwohnern in den jeweiligen Einzugsgebieten werden einwohnerspezifische Frachten berechnet. Es wird angenommen, dass der Haupteintrag von Arzneimittelwirkstoffen in das kommmunale Abwasser durch die Bevölkerung erfolgt und der Eintrag aus Gewerbe und Industrie im Vergleich dazu gering ist. Dies gilt natürlich nur dann, wenn keine pharmazeutische Industrie im Einzugsgebiet tätig ist. Diese berechneten einwohnerspezifischen Emissionen in das Abwasser sind in Tabelle 6 zusammengefasst. Zudem sind auch die Ergebnisse für die ARA Strass in der Steiermark basierend auf den Angaben in Clara et al. (2012) angegeben.

Tabelle 6: Enwohnerspezifische Frachten [µg / E / d] im Zulauf zu den Kläranlagen 1 und 2 sowie zur Kläranlage Strass in der Steiermark

Parameter	**Spezifische Fracht [µg / E / d]**		
	KA 1	KA 2	ARA Strass
Carbamazepin	400	250	110
Diazepam	4,1	1,9	-
Sulfamethoxazol	12	14	3,0
Acetyl-Sulfamethoxazol	28	47	19
Sulfamethoxazol +Acetyl- Sulfamethoxazol	40	61	22
Trimethoprim	-	8,9	19
Erythromycin	19	35	11
Roxithromycin	14	2,2	30
Atenolol	85	71	63
Bisoprolol	51	50	74
Metoprolol	210	120	160
Propanolol	7,2	11	7,2
Sotalol	55	110	30
Kokain	1,3	1,8	-
Benzoylecognin	47	77	6,1
Phenazon	27	15	-
Bezafibrat	68	270	490
Diclofenac	470	330	760
Ibuprofen	850	800	1100
Clarithromycin	420	250	300
Sulfadimidin	-	-	-
Sulfadiazin	9,3	-	1,8

Die berechneten spezifischen Frachten zeigen bei einigen Arzneimittelwirkstoffen eine gute Übereinstimmung und weisen nur eine geringe Streuung auf, so z.B. bei den Betablockern aber auch Ibuprofen, oder Clarithromycin. Bei anderen Wirkstoffen ist der Schwankungsbereich zwar größer, aber die Ergebnisse sind durchaus vergleichbar. Für die Schweiz werden zum Teil deutlich geringere spezifische Zulauffrachten angegeben (240 µg / E / d für Diclofenac und 180 µg / E / d für Carbamazepin) (Gälli et al., 2009). Unabhängig von diesen

Unterschieden erscheinen die angegebenen spezifischen Frachten aber doch geeignet für eine Abschätzung der Arzneimittelfracht im Zulauf kommunaler Kläranlagen, weil der Schwankungsbereich begrenzt ist.

4.1.2 Vorkommen im Schlamm

In den Schlammproben wurden nicht alle Arzneimittelwirkstoffe untersucht. Die untersuchten Schlammproben waren Stichproben, die zu einer Mischprobe zusammengefasst und analysiert wurden. In Tabelle 7 sind die mittleren gemessenen Konzentrationen in µg/kg Trockenmasse angeführt. Als Rohschlamm wird der Zulauf zur anaeroben Schlammstabilisierung und als Klärschlamm wird der stabilisierte und entwässerte Schlamm bezeichnet.

Tabelle 7: Mittlere gemessene Konzentrationen [µg/kg Trockenmasse] der untersuchten Stoffe in den Schlammproben (PS…Primärschlamm Kläranlage 1, RS…Rohschlamm Beschickung Faulung Kläranlage 2) und Vergleich mit Literaturwerten (Mittelwerte)

Parameter	**PS**	**RS**	**Klärschlamm**		
	[µg/kg TM]				
	KA 1	KA 2	KA 1	KA 2	Literatur ([1]/[2])
Carbamazepin	1600	530	1600	1900	29-35/220
Sulfamethoxazol	3,75	14	11	3,75	-/2,5
Acetyl-Sulfamethoxazol	n.n.	260	140	83	-/77
Trimethoprim	21	34	n.n.	n.n.	12-30/3,2
Erythromycin	n.n.	21	n.n.	17	-/7,5
Roxithromycin	18	7,5	n.n.	7,5	-/n.d.
Atenolol	9,8	3	n.n.	n.n.	4,3-9,0/n.d.
Bisoprolol	n.n.	15	n.n.	15	-/n.d.
Metoprolol	170	130	180	170	n.d./52
Propanolol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	-/n.d.
Sotalol	n.n.	9,4	5,5	16	9,3-12/n.d.
Bezafibrat	110	n.n.	220	220	3,1-18/130
Diclofenac	150	160	290	360	23-61/320
Ibuprofen	37,5	63	220	300	-/38
Clarithromycin	180	380	n.n.	54	40-55/-

[1]…Jelic et al. (2011), [2]…Clara et al. (2012)

Die gemessenen Konzentrationen im stabilisierten und entwässerten Schlamm weichen bei einigen Stoffen deutlich von den Literaturwerten aus Jelic et al. (2011) ab. So wurden in den Klärschlämmen der zwei untersuchten Kläranlagen für Carbamazepin, Metoprolol, Bezafibrat und Diclofenac deutlich höhere Konzentrationen gemessen, wohingegen Trimethoprim und Atenolol in den stabilisierten Schlämmen nicht mehr nachweisbar waren. Demgegenüber weisen die Ergebnisse der Untersuchungen mit Ausnahme von Carbamazepin und

Ibuprofen eine gute Übereinstimmung mit den Messergebnissen bei der Kläranlage Strass in der Steiermark auf (siehe dazu Clara et al., 2012).

4.1.3 Verhalten in der Kläranlage

Für die Beurteilung des Verhaltens der untersuchten Stoffe bei der Abwasserreinigung werden Massenbilanzen erstellt. Dabei werden sowohl die Gesamtanlage als auch die Teilsysteme Abwasserbehandlung und Schlammstabilisierung betrachtet. Abbildung 7 zeigt die schematische Darstellung der Kläranlage 2 und die Abgrenzung der bilanzierten Teilsysteme am Beispiel Carbamazepin.

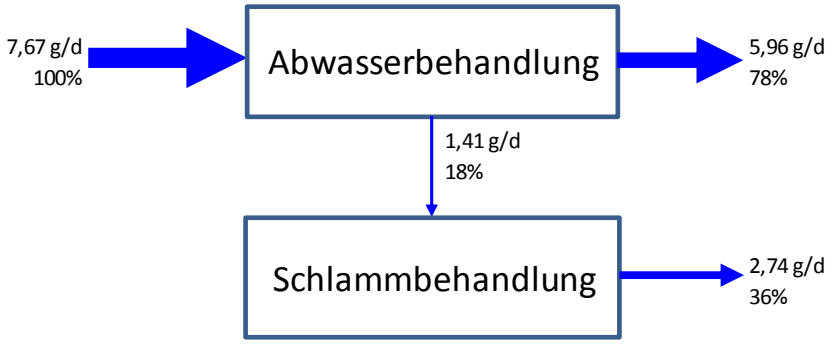

Abbildung 7: schematische Darstellung der Kläranlage 1 und Abgrenzung der bilanzierten Teilsysteme

4.1.3.1 Gesamtanlage

In einem ersten Schritt wurde die Bilanzgrenze um die gesamte Kläranlage gezogen und es wurden nur der Zulauf, der Ablauf und der stabilisierte Klärschlamm berücksichtigt. Die interen Teilströme wurden nicht betrachtet. Generell ist festzustellen, dass in Kläranlage 2 für die meisten der untersuchten Arzneimittelwirkstoffe geringfügig höhere Entfernungen berechnet werden.

Die Ergebnisse der Bilanzierung der Gesamtanlage sind in Abbildung 8 dargestellt. Für die meisten der untersuchten Stoffe sind in den zwei Kläranlagen vergleichbare Ergebnisse zu beobachten. Unterschiedliche Ergebnisse werden für die Stoffe Diazepam, Sulfamethoxazol und Acetyl-Sulfamethoxazol sowie Atenolol errechnet. So entsprechen in Kläranlage 1 die Ablaufkonzentrationen von Diazepam und Atenolol den Zulaufkonzentrationen und es ist kein Rückhalt in der Kläranlage festzustellen, wohingegen in Kläranlage 2 ein zumindest teilweiser Abbau beobachtet wird. Ähnliches gilt für Sulfamethoxazol und den Metaboliten Acetyl-Sulfamethoxazol. Diese zwei Stoffe sind gemeinsam zu bewerten. Im Zulauf liegt Sulfamethoxazol hauptsächlich in Form des Acetyl-Metabilten vor. Während Sulfamethoxazol nur teilweise entfernt wird, wird der Metabolit sowohl abgebaut als auch über den Schlamm entfernt und im Ablauf verschiebt sich das Verhältnis in Richtung Sulfamethoxazol. Es werden auch häufig höhere Sulfamethoxazol Konzentrationen im Ablauf als im Zulauf gemessen (Göbel et al., 2004; Clara et al., 2005), die auf den Abbau des Metaboliten und die Freisetzung der Ausgangssubstanz zurückzuführen sind. In Kläranlage 1 erfolgt kein Rückhalt, während in Kläranlage 2 eine deutliche Verringerung festzustel-

len ist. Diese ist vor allem auf den Umbau des Acetylmetaboliten zurückzuführen, wohingegen die Ablaufkonzentrationen von Sulfamethoxazol in beiden Anlagen höher als die Zulaufkonzentrationen sind.

Einige der untersuchten Stoffe werden in den Kläranlagen nicht zurückgehalten bzw. ist der errechnete Abbau mit weniger als 20 % vernachlässigbar. Zu diesen Stoffen zählen Carbamazepin, Trimethoprim, Roxythromycin, Metoprolol, Bisoprolol, Propanolol, Sotalol, Phenazon und Diclofenac.

Für Erythromcyin, Bisoprolol und Sulfadiazin wird zumindest ein teilweiser Abbau in der Kläranlage beobachtet. Für diese Stoffe werden Abbauraten von rund 20-50% bestimmt.

Bezafibrat, Ibuprofen, Kokain und Benzoylecognine sowie Clarithromycin werden nahezu vollständig entfernt.

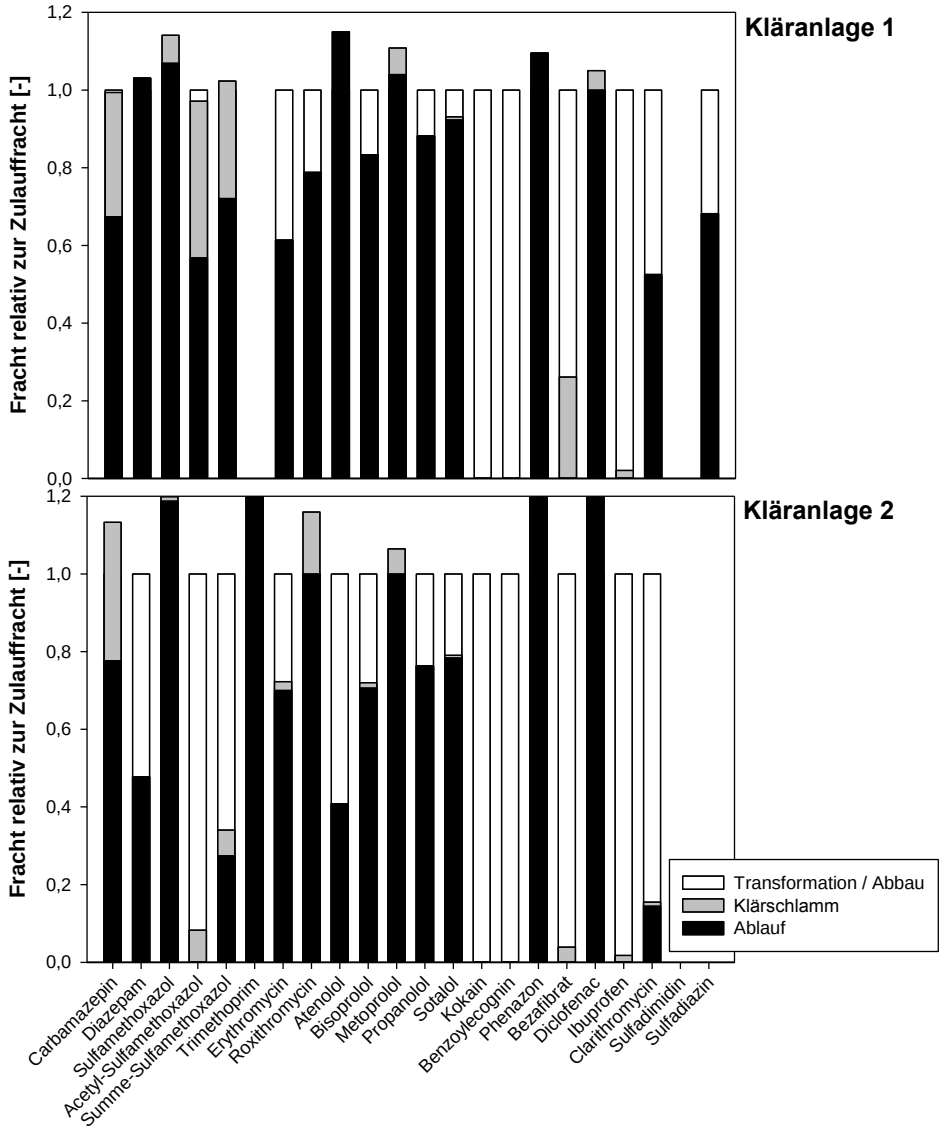

Abbildung 8: Ergebnisse der Bilanzierung der zwei Kläranlagen bezogen auf die Gesamtanlage

Die Entfernung über Anlagerung an den Schlamm und Entfernung über den Schlamm erscheint nur für Carbamazepin und Acetyl-Sulfamethoxazol und in geringerem Umfang für Bezafibrat relevant. Für die anderen Stoffe ist dieser Entfernungspfad nur sehr eingeschränkt von Bedeutung. Die beobachteten Entfernungsraten decken sich mit Literaturdaten (Sadezky et al., 2010), wobei die Literaturangaben zum Teil stark variieren.

4.1.3.2 Biologie / Belebung

Die Ergebnisse der Bilanzierung für das Teilsystem Biologie/Belebung sind in Abbildung 9 dargestellt.

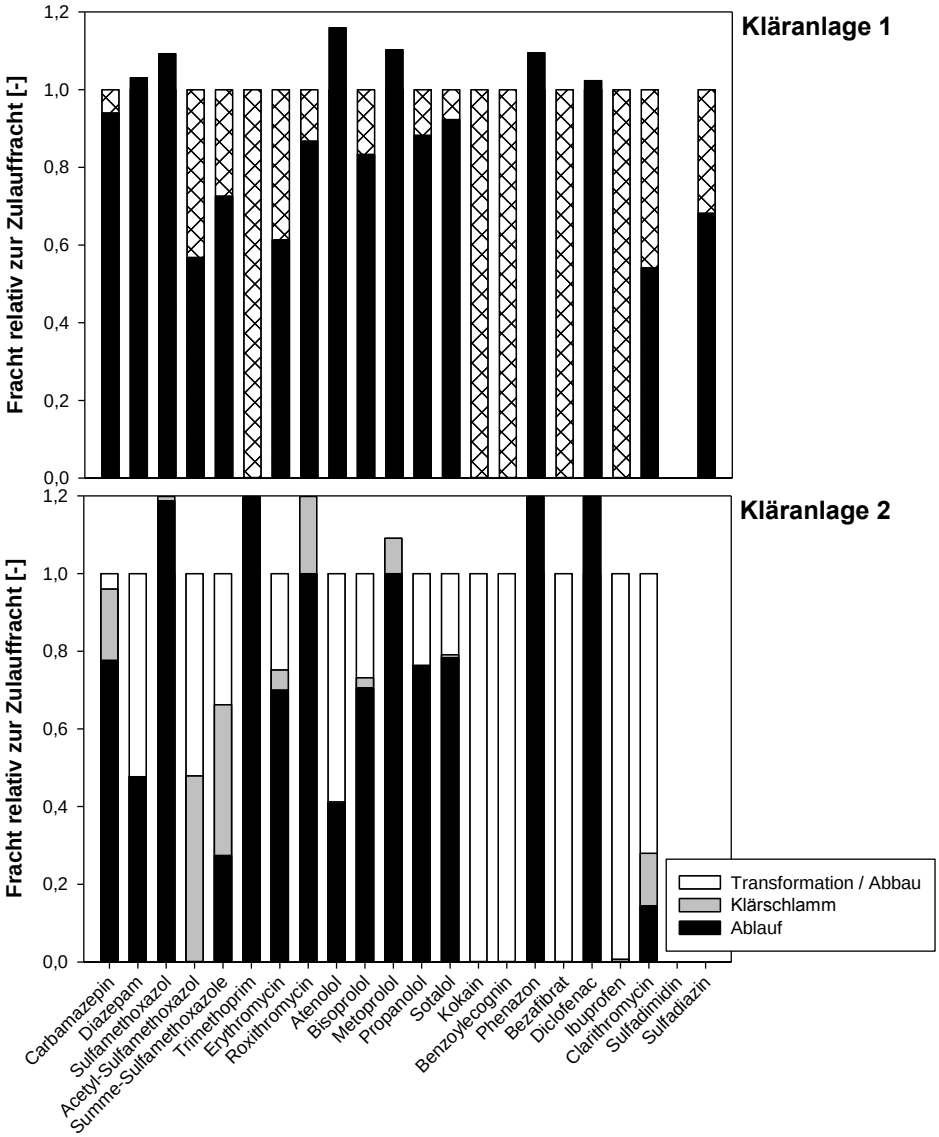

Abbildung 9: Ergebnisse der Bilanzierung für das Teilsystem Biologie/Belebung (schraffierter Bereich bei Kläranlage 1 entspricht Gesamtentfernung = Adsorption Überschussschlamm + Abbau/Transformation)

Für Kläranlage 1 wurden aus den Frachten im Zulauf und den Frachten im Primärschlamm die Zulauffrachten zur Biologie berechnet. Da die Konzentrationen im Überschusschlamm nicht gemessen wurden, ist keine Unterscheidung zwischen biologischer Transformation/Abbau und Entfernung durch Adsorption an den Schlamm über den Überschussschlamm möglich. Die angegebenen Entfernungen bei Kläranlage 1 geben somit die aus dem Abwasser entfernte Fracht (Schlamm plus Transformation/Abbau) wieder. Diese Gesamtentfernung ist durch die schraffierte Darstellung in Abbildung 9 zusammengefasst.

Kläranlage 2 verfügt über keine Vorklärung und die abgezogenen Überschussschlämme aus der Hochlast- und der Schwachlaststufe werden zusammengeführt und in die Faulung eingebracht. Die untersuchte Probe stammt aus der Beschickung der Faulung. Es ist somit auch für Kläranlage 2 möglich, die biologische Abwasserreinigungsstufe (Hochlast und Schwachlast) zu bewerten. Dabei ist auch eine Unterscheidung zwischen Entfernung über den Überschußschlammabzug und Entfernung durch biologischen Umbau/Abbau möglich.

Für Carbamazepin, Trimethoprim, Sulfamethoxazol, Roxithromycin, Phenazon, Diclofenac, Sotalol, Propanolol und Metoprolol erfolgt eine teilweise Entfernung aus der Wasserphase durch Adsorption an den Schlamm; diese Arzneimittelwirkstoffe werden aber bei der biologischen Abwasserreinigung nicht ab- oder umgebaut.

Vergleichbare Ergebnisse werden auch in der Literatur berichtet. Carbamazepin gilt als persistent und wird bei der Abwasserreingigung nicht abgebaut, weshalb es sich auch als Abwasserindikator eignet (Clara et al., 2004, Sadezky et al., 2010). Untersuchungen in der Schweiz haben gezeigt, dass auch Trimethoprim, und Roxithromycin nur in geringem Umfang (<20 %) zurückgehalten werden (Göbel et al., 2007).

Für Betablocker liegen nur begrenzt Daten vor. Laut Sadezky et al. (2010) werden Sotalol, Metoprolol und Propanolol nur in sehr geringem Maße zurückgehalten, wobei jedoch anzumerken ist, dass die Literaturangaben (z.B. für Propanolol) sehr stark schwanken. Generell zeigen die Ergebnisse eine gute Übereinstimmung mit den Literaturangaben.

Während Bisoprolol, Erythromycin und Clarithromycin teilweise um- bzw. abgebaut werden, werden Sulfadiazin, Bezafibrat, Ibuprofen, Kokain und Benzylecognine nahezu vollständig abgebaut bzw. transformiert. Ausgenommen die Antibiotika Erythromycin und Clarithromycin decken sich auch diese Beobachtungen sehr gut mit Literaturangaben. So werden Ibuprofen und Bezafibrat weitgehend abgebaut (Clara et al., 2005, Joss et al., 2005, Sadezky et al., (2010).

Clarithromycin und Erythromycin werden nach Göbel et al. (2007) ähnlich wie andere Antibotika wie Trimethoprim oder Roxithromycin nur sehr geringfügig in Kläranlagen abgebaut (<20 %). Ein ähnliches Ergebnis wie Göbel et al. (2007) wurde auch bei der Untersuchung einer steirischen Kläranlage erzielt (Clara et al., 2012). Bei den vorliegenden Untersuchungen wurden zum Teil sehr hohe Abbauraten von 25-75 % beobachtet.

Ähnliches gilt auch für Atenolol. In Kläranlage 2 wurde für Atenolol eine Entfernung von rund 60 % berechnet und dieses Ergebnis zeigt eine gute Übereinstimmung mit den Literaturangaben. So geben Sadezky et al. (2010) Entfernungsraten zwischen 60-80% für Atenolol an. In Kläranlage 1 wird demgegen-

über jedoch keine Entfernung festgestellt und die gemessene Ablaufkonzentration in der 3-Wochen Mischprobe liegt über der Zulaufkonzentration.

Die Entfernung aus der Wasserphase über die Adsorption an den Schlamm ist bei den meisten der untersuchten Arzneimittelwirkstoffe von geringer Relevanz. Nur für wenige Stoffe wie Carbamazepin und Sulfamethoxazol inklusive des Acetylmetaboliten beträgt der Massenanteil im Schlamm in Relation zum Zulauf mehr als 20 %. Bei Roxithromycin, Clarithromycin, Bezafibrat und Metoprolol liegt dieser Anteil zwischen 10 und 20 % wohingegen die anderen untersuchten Arzneimittelwirkstoffe im Schlamm nicht relevant sind.

4.1.3.3 Schlammlinie

Das Teilsystem Schlammlinie ist nur in Kläranlage 2 bewertbar. In Kläranlage 1 wurde nur der Primärschlamm, nicht aber die Beschickung der Faulung beprobt, womit keine Aussage zur Belastung der anaeroben Schlammstabilisierung und damit auch keine Bewertung des Verhaltens bei der Faulung durchgeführt werden kann.

Die Ergebnisse der Bilanzierung für das Teilsystem Schlammlinie/Faulung für Kläranlage 2 sind in Abbildung 10 dargestellt. In Abbildung 10 sind nur die Bilanzierungsergebnisse jener Stoffe berücksichtigt, die im Rohschlamm nachweisbar waren.

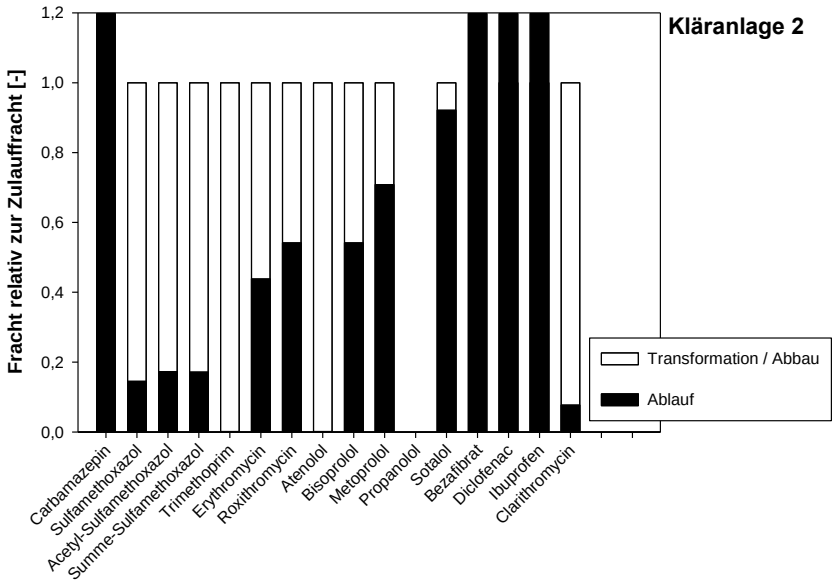

Abbildung 10: Ergebnisse der Bilanzierung für das Teilsystem Faulung

Ibuprofen und Bezafibrat werden bei der anaeroben Schlammstabilisierung nicht entfernt. Diese Ergebnisse stimmen nicht mit Literaturangaben überein. So berichten Carballa et al. (2007) für beide Arzneimittelwirkstoffe Entfernungsraten bei der mesophilen anaeroben Schlammstabilisierung von 40-60 % und auch bei den Untersuchungen einer steirischen Kläranlage (Clara et al., 2012) wurden vergleichbare Entfernungsraten bei der anaeroben Schlammstabilisierung bestimmt. Bei Bezafibrat ist jedoch anzumerken, dass in der Beschickung zur Faulung dieser Arzneimittelwirkstoff nicht nachweisbar war, wohingegen im

stabilisierten Klärschlamm eine Konzentration von 220 µg / kg TS nachgewiesen wurde.

Für Carbamazepin ist keine Entfernung festzustellen. Diese Beobachtung deckt sich mit den Untersuchungsergebnissen von Carballa et al. (2007).

Bei den Antibiotika Trimethoprim, Sulfamethoxazol, Erythromycin, Roxithromycin und Clarithromycin sowie bei den Betablockern Atenolol, Bisoprolol, Metoprolol, Propanolol und Sotalol ist zumindest ein teilweiser Abbau bei der anaeroben Schlammstabilisierung festzustellen. Vergleichbare Ergebnisse für die Antibiotika und die Betablocker sind in der Literatur dokumentiert (Carballa et al., 2007; Clara et al., 2012).

Bei diesen Ausführungen zum Klärschlamm und zum Verhalten der untersuchten Arzneimittelwirkstoffe bei der anaeroben Schlammstabilisierung ist jedoch nochmals anzumerken, dass die Entfernung aus der Wasserphase über den Schlammabzug nur für einzelne Stoffe von Relevanz ist.

4.2 Klärschlammkompost

Die stabilisierten und entwässerten Klärschlämme beider untersuchter Kläranlagen werden kompostiert. Dazu erfolgt die Mischung des Klärschlamms mit Strukturmaterial im Verhältnis 1:2 und laut Angaben der Komposthersteller weist das Strukturmaterial (gehäckselter Grünschnitt) eine Dichte von 1 auf. In Tabelle 8 sind die gemessenen Konzentrationen der untersuchten Arzneimittelwirkstoffe im Rohkompost sowie im fertigen Klärschlammkompost zusammengefasst. Aus den gemessenen Konzentratonen im Klärschlamm wurde zudem die theoretische Konzentration im Rohkompost errechnet, wobei angenommen wurde, dass das Strukturmaterial unbelastet ist und dieses unbelastete Strukturmaterial eine Dichte von 1 hat und jeweils 2 Volumsteile Strukturmaterial mit einem Volumsteil Klärschlamm vermengt werden.

Abbildung 11: Klärschlammkompostmieten ARA Bregenz

Im Rohkompost sind die gleichen Arzneimittelwirkstoffe nachweisbar wie auch im stabilisierten Klärschlamm. In den Klärschlämmen aber auch in den Rohkomposten sind Carbamazepin, Sulfamethoxazol und Acetyl-Sulfamethoxazol, Metoprolol, Bezafibrat, Diclofenac und Clarithromycin nachweisbar. Dies sind auch die Stoffe, die zumindest in geringem Umfang durch Adsorption an den Schlamm aus dem Abwasser entfernt werden. Auch die theoretischen und die gemessenen Konzentrationen weisen mit Ausnahme von Sulfamethoxazol eine sehr gute Übereinstimmung auf. Basierend auf den vorliegenden Daten ist zu schließen, dass die Arzneimittelkonzentrationen im Rohkompost auf den Klärschlamm zurückzuführen sind.

Auffällig ist, dass Bezafibrat und Ibuprofen in den stabilisierten Klärschlämmen nachweisbar sind, in den jeweiligen Rohkomposten aber nicht mehr oder in deutlich niedrigeren Konzentrationen. Beide Stoffe sind aerob abbaubar was einen Abbau während der Lagerung wahrscheinlich macht und wodurch diese Diskrepanz vielleicht erklärt wird. Keine Erklärung kann jedoch für den sehr hohen Bezafibratgehalt im Rohkompost von Anlage 2 gefunden werden. Dieser Messwert wird als nicht plausibel eingestuft.

Ausgenommen Carbamazepin erfolgt bei der Kompostierung ein weiterer zumidest teilweiser Abbau für diese Arzneimittelwirkstoffe. In den Fertigkomposten sind noch Carbamazepin, Acetyl-Sulfamethoxazol, Metoprolol, Diclofenac und Clarithromycin nachweisbar. Die gemessenen Konzentrationen im Fertigkompost für diese Arzneimittelwirkstoffe sind in Abbildung 12 relativ zu den gemessenen Konzentrationen im Rohkompost dargestellt.

Tabelle 8: Zusammenfassung der gemessenen Arzneimittelwirkstoffkonzentrationen [µg/kg Trockenmasse] im Rohkompost und im fertigen Klärschlammkompost. War für einen Arzneimittelwirkstoff eine theoretische Konzentration im Rohkompost ermittelt, aber der entsprechende Wirkstoff im Rohkompost nicht nachweisbar, so ist der Wert der Nachweisgrenze [µg/kg Trockenmasse] in Klammern angeführt.

Parameter	**Anlage 1**				**Anlage 2**			
	Klärschlamm	Rohkompost-theoretisch	Rohkompost-gemessen	Fertigkompost	Klärschlamm	Rohkompost-theoretisch	Rohkompost-gemessen	Fertigkompost
Trocknungsrückstand [%]	25	-	41	61	29	-	41	50
Carbamazepin	1600	330	350	240	1900	450	420	330
Sulfamethoxazol	11	2,0	<5.0	n.n.	<5,0	1,0	6,1	n.n.
Acetyl-Sulfamethoxazol	140	28	110	33	83	20	n.n. (5)	n.n.
Trimethoprim	n.n.	-	n.n.	n.n.	n.n.	-	n.n.	n.n.
Erythromycin	n.n.	-	<10	n.n.	17	4,0	n.n. (5)	n.n.
Roxithromycin	n.n.	-	n.n.	n.n.	<10	<10	n.n. (5)	n.n.
Atenolol	n.n.	-	n.n.	n.n.	n.n.	-	n.n.	n.n.
Bisoprolol	n.n.	-	n.n.	n.n.	<20	<20	<20	n.n.
Metoprolol	180	37	59	20	170	40	61	<15
Propanolol	n.n.	-	n.n.	n.n.	n.n.	-	n.n.	n.n.
Sotalol	5,5	1,0	n.n. (2,0)	n.n.	16	4,0	<4.0	n.n.
Bezafibrat	220	45	n.n. (25)	n.n.	220	52	*1200**	n.n.
Diclofenac	290	59	59	n.n.	360	85	110	<50
Ibuprofen	220	45	n.n. (25)	n.n.	300	71	<50	n.n.
Clarithromycin	n.n.	-	<10	10	54	13	22	<10

*…Messwert nicht plausiblel

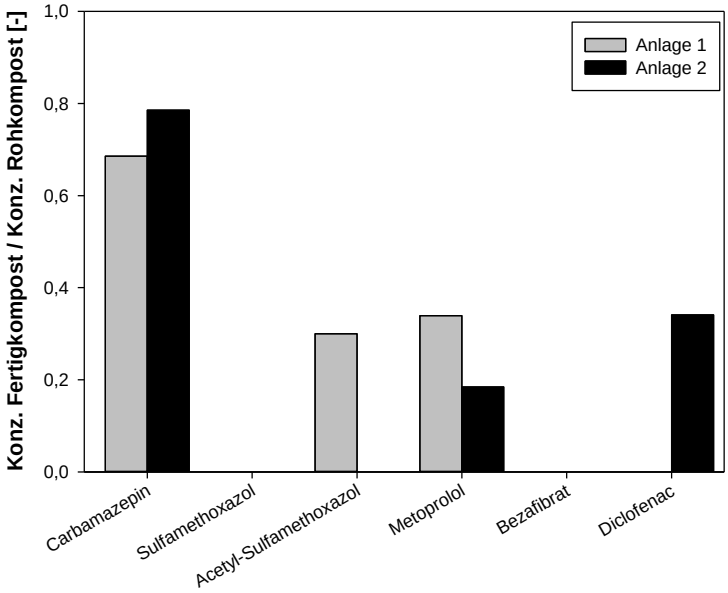

Abbildung 12: Konzentrationen der nachweisbaren Arzneimittelwirkstoffe im Fertigkompost relativ zu den gemessenen Konzentrationen im Rohkompost

Mit Ausnahme von Carbamazepin ist bei allen Arzneimittelwirkstoffen eine deutliche Konzentrationsverringerung zu beobachten. Clarithromycin ist in Abbildung 12 nicht dargestellt, weil die Darstellung aufgrund der angewandten Berechnungskonvention zu einer Überinterpretation des Abbaus führen würde. Bei Clarithromycin ist die gemessene Konzentration im Rohkompost unterhalb der Bestimmungsgrenze und die Konzentration im Fertigkompost entspricht der Bestimmungsgrenze, womit im Roh- und im Fertigkompost annähernd die gleichen Konzentrationen gemessen wurden.

Bei Carbamazepin hingegen wurde in beiden beprobten Kompostieranlagen ein vergleichbares Ergebnis beobachtet. In beiden Klärschlammkomposten werden vergleichbare Carbamazepinkonzentrationen nachgewiesen und bei der Kompostierung erfolgt nur ein sehr geringfügiger Ab- bzw. Umbau. Dieser beträgt bei beiden Anlagen zwischen 20 und 30 %.

Es sind keine Literaturwerte für einen Vergleich verfügbar. Um diese Einmalmessungen bewerten zu können, wurden im Rahmen der Untersuchungen verschiedene Komposte und Erden zusätzlich untersucht. Bei der Auswahl wurden sowohl Bioabfallkomposte und Klärschlammkomposte aber auch Blumenerden berücksichtigt. Die Ergebnisse dieser Vergleichsuntersuchungen sind in Tabelle 9 zusammengefasst.

Tabelle 9: Ergebnisse [µg/kg TM] der Vergleichsuntersuchungen in unterschiedlichen Komposten und einer Blumenerde

Parameter	**Bioabfallkompost 1**	**Bioabfallkompost 2[1]**	**Bioabfallkompost 3[2]**	**Bioabfallkompost 4**	**Klärschlammkompost**	**Blumenerde**
Carbamazepin	170	110	80	7	96	8,5
Sulfamethoxazol	<5,0	<6,0	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Acetyl-Sulfamethoxazol	75	<10	n.n.	n.n.	12	n.n.
Trimethoprim	n.n.	23	28	28	34	31
Erythromycin	n.n.	15	n.n.	46	12	38
Roxithromycin	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Atenolol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	28
Bisoprolol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Metoprolol	<15	25	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Propanolol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Sotalol	n.n.	<5	n.n.	n.n.	5,3	n.n.
Bezafibrat	66	< 50	<50	n.n.	94	50
Diclofenac	140	160	n.n.	<50	n.n.	n.n.
Ibuprofen	150	690	210	n.n.	70	n.n.
Clarithromycin	35	-	-	-	-	-

[1]…Bioabfallkompost frisch, [2]…Bioabfallkompost 5 Monate alt

In den untersuchten Vergleichsproben sind die gleichen Stoffe nachweisbar wie in den zuvor beschriebenen Klärschlammkomposten. So werden Carbamazepin, Sulfamethoxazol und Acetyl-Sulfamethoxazol, Bezafibrat, Diclofenac und Ibuprofen sowie vereinzelt Clarithromycin und Metoprolol nachgewiesen. Zusätzlich werden aber in den Vergleichsproben auch Trimethoprim und Erythromycin sowie vereinzelt Sotalol nachgewiesen. Das nachweisbare Arzneimittelspektrum in den Vergleichsproben ist somit ähnlich den Stoffen in den Klärschlammkomposten. Für einige Arzneimittelwirkstoffe wie z.B. Ibuprofen werden in den Vergleichsproben deutlich höhere Konzentrationen gemessen als in den untersuchten Klärschlammkomposten, wohingegen für andere Stoffe die wie z.B. Carbamazepin in den Klärschlammkomposten die höchsten Konzentrationen nachweisbar waren.

Die angeführten Bioabfallkomposte stammen aus zeitlich versetzten Chargen, aber vom gleichen Kompostierer. Vor der Kompostierung wird der vergorene Bioabfall zur Entwässerung gepresst. Ein Teil des Presswassers wird vor der Vergärung zur Befeuchtung des Bioabfalls verwendet und somit im Kreislauf geführt. Presswasser wird aber auch landwirtschaftlich zu Düngezwecken verwertet. Daher wurde auch das Presswasser untersucht, wobei nahezu alle untersuchten Arzneimittelwirkstoffe nachgewiesen wurden. Durch die Kreislaufführung erfolgt ein kontinuierlicher Eintrag während des Rotteprozesses. Die Ergebnisse der zwei untersuchten Presswasserproben sind in Tabelle 10 zusammengefasst. Die Ergebnisse beziehen sich auf die Einheit [µg/kg] um eine bessere Vergleichbarkeit mit den Feststoffproben zu erlauben. Auch weist das „Presswasser“ einen Feststoffgehalt von rund 13 % bezogen auf das Gewicht auf, womit der Begriff „Presswasser“ ein wenig irreführend ist. Während die zweite Presswasserprobe gefriergetrocknet wurde und die Analysenwerte bereits auf die Trockenmasse bezogen sind, wurde die erste Presswasserprobe als wässrige Probe behandelt. Diese auf ng/l bezogenen Ergebnisse wurden mit dem Feststoffgehalt von 13 Gewichtsprozent und der Annahme einer Dichte von 1 kg/l auf die entsprechenden Feststoffgehalte zurückgerechnet.

Im Presswasser der Bioabfälle werden nahezu alle untersuchten Arzneimittelwirkstoffe nachgewiesen, wobei bei einigen Wirkstoffen der Schwankungsbereich zwischen den zwei Proben einen Faktor 10 erreicht oder überschreitet. Dieser Schwankungsbereich deckt sich jedoch mit dem Schwankungsbereich in den zwei untersuchten Bioabfallkomposten. Die gemessenen Konzentrationen im Presswasser liegen im Bereich der Konzentrationen im kommunalen Rohabwasser und zum Teil auch deutlich darüber und sind auch mit den Konzentrationen im Klärschlamm vergleichbar. So sind vor allem die Konzentrationen in der ersten Presswasserprobe im Vergleich mit kommunalem Abwasser als sehr hoch zu bewerten.

Der Nachweis von Arzneimittelwirkstoffen im Abwasser ist durch Ausscheidung in unveränderter oder metabolisierter Form nach deren Verwendung bedingt und das Vorkommen dieser Stoffe im Abwasser demnach zu erwarten. Die Präsenz der nachgewiesenen Arzneimittelwirkstoffe in den untersuchten Komposten und in dem Presswasser aus der Bioabfallkompostierung ist in dieser Höhe überraschend. Die Nachweise deuten darauf hin, dass Arzneimittel u.a. auch über den Bioabfall entsorgt werden. Weitere Untersuchungen zur Abgrenzung der Massenfrachten und zur Bestimmung der Relevanz dieses Stoffstromes erscheinen sinnvoll, ebenso eine Informationskampagne zur Aufklärung über die Unzulässigkeit der Medikamentenentsorgung über den Bioabfall.

Tabelle 10: Gemessene Arzneimittelwirkstoffkonzentrationen [µg/kg TM] im Presswasser von Bioabfällen, die zur Kompostierung verwendet werden

Parameter		Presswasser 1	Presswasser 2
Carbamazepin	µg/kg	15	210
Diazepam	µg/kg	0,23	-
Sulfamethoxazol	µg/kg	2,6	24
Acetyl-Sulfamethoxazol	µg/kg	1,3	24
Trimethoprim	µg/kg	0,31	n.n.
Erythromycin	µg/kg	4,2	18
Roxithromycin	µg/kg	<0,077	n.n.
Atenolol	µg/kg	1,6	5,2
Bisoprolol	µg/kg	0,70	n.n.
Metoprolol	µg/kg	7,7	29
Propanolol	µg/kg	-	n.n.
Sotalol	µg/kg	3,8	<5
Kokain	µg/kg	-	-
Benzoylecognin	µg/kg	0,32	-
Phenazon	µg/kg	2,5	-
Bezafibrat	µg/kg	33	<50
Diclofenac	µg/kg	2,4	220
Ibuprofen	µg/kg	170	1100
Clarithromycin	µg/kg	-	-

4.3 Boden

Vier landwirtschaftlich genutzte Flächen wurden bei den Untersuchungen berücksichtigt. Zwei dieser Flächen wurden bisher nicht mit Klärschlammkompost beaufschlagt und zwei weitere Flächen werden bereits seit mehreren Jahren (6 bzw. 10 Jahre) mit Klärschlammkompost gedüngt. Die Beprobungen erfolgten etwa zwei Monate vor und zwei Monate nach der Aufbringung des Klärschlammkompostes. Die Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 11 zusammengefasst.

In den untersuchten Bodenproben waren die Arzneimittelwirkstoffe Carbamazepin, Trimethoprim und Erythromycin nachweisbar. In den Proben, die vor der Klärschlammaufbringung gezogen wurden, lagen die Konzentrationen dieser Stoffe insofern sie nachweisbar waren im Bereich der Bestimmungsgrenze. Für Carbamazepin wurde die höchste Konzentration in der Bodenprobe gemessen, die seit etwa 10 Jahren mit Klärschlammkompost beaufschlagt wird (Fläche 4). Nicht nachweisbar hingegen war Carbamazepin auf Fläche 3, die zwar mit Wirtschaftsdünger nicht aber mit Klärschlammkompost gedüngt wurde. Konzentrationen unterhalb der Bestimmungsgrenze wurden in den Flächen 1 und 2

nachgewiesen. Fläche 1 wurde noch nie und Fläche 2 wird seit rund 6 Jahren mit Klärschlammkompost beschickt.

In den Bodenproben, die vor der Klärschlammkompostaufbringung gezogen wurden, wurde Erythromycin nur in Fläche 2 nachgewiesen, die seit etwa 6 Jahren mit Klärschlammkompost beaufschlagt wird. Nach dem Aufbringen von Klärschlammkompost wurde Erythromycin in allen Bodenproben gefunden, obwohl es in den entsprechenden Komposten nicht nachweisbar ist. Es muss also noch einen anderen Eintragspfad geben, wie zum Beispiel Gülle. Dies wäre plausibel, da Erythromycin auch im Veterinärbereich eingesetzt wird.

Trimethoprim ist in den Bodenproben, die vor der Klärschlammkompostaufbringung gezogen wurden nicht nachweisbar.

Tabelle 11: Zusammenfassung der Untersuchungsergebnisse [µg/kg Trockenmasse] in den Bodenproben (Diazepam, Kokain, Benzoylecognin, Phenazon, Sulfadimidin und Sulfadiazin wurden in den Bodenproben nicht untersucht)

Parameter	**Vor KS-Kompostaufbringung [µg/kg TM]**				**Nach KS-Kompostaufbringung [µg/kg TM]**			
	Fläche 1	Fläche 2	Fläche 3	Fläche 4	Fläche 1	Fläche 2	Fläche 3	Fläche 4
Carbamazepin	<1,0	<1,0	n.n.	1,6	7,3	7,1	6,3	7
Sulfamethoxazol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	< 6.0	n.n.
Acetyl-Sulfamethoxazol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Trimethoprim	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	5,9	n.n.	n.n.	6,5
Erythromycin	n.n.	<10	n.n.	n.n.	26	27	25	35
Roxithromycin	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Atenolol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Bisoprolol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Metoprolol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Propanolol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Sotalol	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Bezafibrat	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Diclofenac	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Ibuprofen	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.
Clarithromycin	n.n.	n.n.	n.n.	n.n.	-	-	-	-

Beim Vergleich der Untersuchungsergebnisse der bisher nicht mit Klärschlammkompost Flächen mit denen, die bereits seit mehreren Jahren mit Klärschlammkompost beaufschlagt werden, erscheint zumindest ein geringfügiger Unterschied erkennbar. So wurde die höchste Carbamazepin Konzentration in einer vorbelasteten Fläche gemessen und in der zweiten vorbelasteten Fläche wurde sowohl Carbamazepin als auch Erythromycin nachgewiesen. Nichtsdestotrotz ist der Unterschied jedoch marginal, weil auch auf einer bisher nicht mit Klärschlammkompost gedüngten Fläche Carbamazepin nachweisbar war. Basierend auf vorliegenden Messungen ist daher zu schließen, dass für detaillierte Aussagen weitere Flächen untersucht werden sollten, um zumindest eine statistisch auswertbare Datengrundlage zu generieren. Die vorliegenden Untersuchungsergebnisse (2 Einzelmessungen auf jeweils zwei unbelasteten und zwei vorbelasteten Flächen) können nur als erste Basisinformation und Ausgangspunkt für weitere Untersuchungen angesehen werden.

Auf die vier Flächen wurden jeweils 16 m^3 Klärschlammkompost aufgebracht. Unter Annahme einer Feuchtdichte von 700 kg/m^3 und eines Trockemassegehaltes von 60 % der Feuchtmasse (Lebensministerium, 2010). Aus diesen Angaben wird die Beaufschlagung der Flächen mit Klärschlammkompost mit rund 6720 kg Trockenmasse berechnet.

Tabelle 12: Aufgebrachte Arzneimittelwirkstofffrachten auf die beprobten landwirtschaftlichen Flächen.

Parameter	**Kompost 1**		**Kompost 2**	
	[µg/kg TM]	[g/Fläche][1]	[µg/kg TM]	[g/Fläche][2]
Carbamazepin	240	1,6	330	2,2
Acetyl-Sulfamethoxazol	33	0,22	n.n.	-
Metoprolol	20	0,13	<15	<0,10
Diclofenac	n.n.	-	<50	<0,34
Clarithromycin	10	0,067	<10	<0,067

[1]…Klärschlammkompost aus Anlage 1 wird auf Fläche 1 und Fläche 2 aufgebracht

[2]… Klärschlammkompost aus Anlage 2 wird auf Fläche 3 und Fläche 4 aufgebracht

Laut Fiedler (2001) beträgt die Trockenrohdichte von Mineralböden in Abhängigkeit vom Humusgehalt zwischen 1,0 und 1,8 g/cm^3 und die Trockenrohdichte der Ackerkrume liegt bei 1,35-1,5 g/cm^3. Aus den aufgebrachten Arzneimittelmengen pro Fläche wird basierend auf diesen Angaben mit einer Trockenrohdichte von rund 1,5 g/cm^3 (1500 kg/m^3) und der Annahme einer Einmischtiefe von rund 5 cm, einer homogenen Verteilung und keiner Verluste die theoretische Konzentration im Boden berechnet. Die somit ermittelten theoretischen Arzneimittelwirkstoffkonzentrionen im Boden aufgrund der Klärschlammkompostzugabe (ohne Berücksichtigung der gemessenen Konzentrationen im Boden vor der Klärschlammbeaufschlagung) schwanken zwischen 2,8-8,8 µg/kg Trockenmasse für Carbamazepin, kleiner 1,0 µg/kg Trockenmasse für Acetyl-Sulfamethoxazol und Diclofenac, zwischen 0,22-0,40 µg/kg Trockenmasse für Metoprolol und zwischen 0,12 und 0,27 µg/kg Trockenmasse für Clarithromycin. Aus diesen theoretischen Überlegungen geht hervor, dass von über den Klärschlammkompost aufgebrachten Arzneimittelwirkstoffen nur Carbamazepin

analytisch noch nachweisbar sein sollte, weil die anderen errechneten Zusatzkonzentratonen deutlich unter den jeweiligen Nachweisgrenzen liegen.

Bei Carbamazepin zeigen die errechneten Zusatzkonzentrationen zusätzlich zu den gemessenen Konzentrationen im Boden vor der Klärschlammkompostaufbringung eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Konzentrationen. Die getroffenen Annahmen erscheinen somit geeignet und die gemessenen Carbamazepin Konzentrationen im Boden sind auf die Klärschlammkompostaufbringung zurückzuführen. Würde die angenommen Durchmischungtiefe höher angesetzt, so verringern sich die angegebenen Zusatzkonzentrationen entsprechend. Die Annahme einer theoretischen Einmischtiefe von rund 10 cm würde die errechneten Zusatzkonzentrationen aufgrund der Klärschlammkompostzugabe halbieren.

Nach der Klärschlammkompostaufbringung werden in den untersuchten Bodenproben die Antibiotika Trimethoprim und Erythromycin nachgewiesen und die Konzentrationen für Erythromycin liegen mit 25-35 µg/kg Trockenmasse deutlich über den gemessenen Konzentrationen in den untersuchten Klärschlämmen. In zahlreichen der zusätzlich untersuchten Komposte wurden auch beide Stoffe nachgewiesen. Werden diese Konzentrationen der Berechnung zugrundegelegt, so ergeben sich theoretische Zusatzgehalte von weniger als 1 µg/kg Trockenmasse. Die vergleichsweise hohen Antibiotika Konzentrationen im Boden sind somit durch die Klärschlammkompostaufbringung nicht zu erklären und weisen darauf hin, dass es noch weitere Eintragspfade geben könnte, wie z.B. die Aufbringung von Gülle oder von Resten aus der Biogasvergärung. Dazu liegen jedoch keine Informationen vor und daher wird auf mögliche andere Quellen nicht weiter eingegangen.

5 REFERENZEN

Andreozzi, R., Marotta, R., Pinto, G., Pollio, A. (2002). Carbamazepine in water: persistence in the environment, ozonation treatment and preliminary assessment on algal toxicity. Water Research 36, 2869-2877.

Carballa, M., Omil, F., Ternes, T., Lema, J.M. (2007). Fate of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) during anaerobic digestion of sewage sludge. Water Research 41, 2139-2150.

Clara, M. (2004). Das Verhalten ausgewählter organischer Spurenstoffe bei der biologischen Abwasserreinigung. Dissertation. Wiener Mitteilungen Bd. 191, Wien.

Clara, M., Strenn, B., Kreuzinger, N. (2003). Carbamazepine as a possible anthropogenic marker in the aquatic environment: investigations on the behaviour of Carbamazepine in wastewater treatment and during groundwater infiltration. Water Research 38, 947–954.

Clara, M., Strenn, B., Gans, O., Martinez, E., Kreuzinger, N., Kroiss, H. (2005). Removal of selected pharmaceuticals, fragrances and endocrine disrupting compounds in a membrane bioreactor and conventional wastewater treatment plants. Water Research 39, 4797-4807.

Clara, M., Gans, O., Weiß, S., Windhofer, G., Stadlbauer, H. (2011). Eintrag von Arzneimittelwirkstoffen in die aquatische Umwelt - Untersuchungszeitraum April 2010. Amt der Steiermärkischen Landesregierung, Fachabteilung 17C - Technische Umweltkontrolle, Gewässeraufsicht (Hrsg.). Dokumentation der Gewässeraufsicht GA-02-2011, Graz. http://www.umwelt.steiermark.at.

Fiedler, H.J. (2001). Böden und Bodenfunktionen: In Ökosystemen, Landschaften und Ballungsgebieten. Renningen-Malsheim, expert Verlag 2001, S. 196.

Gälli, R., Ort, C., Schärer, M. (2009). Mikroverunreinigungen in den Gewässern. Bewertung und Reduktion der Schadstoffbelastung aus der Siedlungsentwässerung. Umwelt-Wissen Nr. 0917. Bundesamt für Umwelt, Bern. http://www.bafu.admin.ch/publikationen/publikation/01051/index.html?lang=de.

Göbel, A., McArdell, C.S., Suter, M.J.F., Giger, W. (2004). Trace determination of macrolide and sulfonamide antimicrobials, a human sulfonamide metabolite and trimethoprim in wastewater using liquid chromatography coulpled to electrospray tandem mass spectrometry. Analytical Chemistry 76, 4756-4764.

Göbel, A., McArdell, C.S., Joss, A., Siegrist, H., Giger, W. (2007). Fate of sulfonamides, macrolides and trimethoprim in different wastewater treatment technologies. Science of the Total Environment 372, 361-371.

Hanefeld, W. (2012). Übermittlung der Untersuchungsergebnisse der vorarlberger Kläranlagen durch die EAWAG. Persönliche Mitteilung (E-Mail vom 14.05.2012).

Hanefeld, W., Koch, K., König, K., Küng, G., Marent, E. (2012). Abwasserreinigungsanlagen in Vorarlberg – Jahresbericht 2011. Amt der Vorarlberger

Landesregierung, Bregenz.
http://www.vorarlberg.at/pdf/abwasserreinigungsbericht.pdf

Joss, A., Keller, E., Alder, A.C., Göbel, A., McArdell, C.S., Ternes, T., Siegrist, H. (2005). Removal of pharmaceuticals and fragrances in biological wastewater treatment. Water Research 39, 3139-3152.

Lebensministerium (2010). Richtlinie für die Anwendung von Kompost aus biogenen Abfällen in der Landwirtschaft. Fachbeirat für Bodenfruchtbarkeit und Bodenschutz beim Bundesministerium für Land- und Forstwirtschaft. Wien, 2010. http://www.ages.at/fileadmin/redakteure/lwt-bgp/Download_Broschueren/Kompost_2010.pdf.

Sadezky, A., Löffler, D., Schlüsener, M., Roig, B., Ternes, T. (2010). Real situation: occurrence of the main investigated PPs in water bodies. In Roig, B. (ed.) Pharmaceuticals in the environment: current knowledge and need assessment to reduce presence and impact. IWA Publishing, London, UK, 31-87.

Scheffknecht (2012). Untersuchungen von Arzneimittelwirkstoffen und Benzotriazolen – Prüfbericht des Umweltbundesamtes GZ 123-68/07 vom 14.3.2007. Persönliche Mitteilung (E-Mail vom 15.05.2012).

Schramm, C., Gans, O., Uhl, M., Grath, J., Scharf, S., Zieritz, I., Kralik, M., Scheidleder, A., Humer, F. (2006). Carbamazepin und Koffein – potentielle Screeningparameter für Verunreinigungen des Grundwassers durch kommunales Abwasser? Umweltbundesamt, Report REP-0061, Wien, 2006.

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

6 ANHANG

6.1 **Anhang 1:** Zusammenfassung der analysierten Referenzparameter in den untersuchten Proben

Probenstelle	Einheit	Abfiltr.St.	TR	GR	TOC	CSB	CSB fi	N	P	Cd	Cr	Cu	Hg	Ni	Pb	Zn
Kläranlage 1 - Zulauf	mg/l	280	-	-	150	460	230	43	9,3	<0,0020	0,3	0,067	-	<0,025	<0,030	0,26
Kläranlage 1 - Ablauf	mg/l	41	-	-	11	33	28	5,3	0,29	<0,0020	<0,0080	<0,039	-	<0,0080	<0,030	0,17
Kläranlage 1 - Rohschlamm	mg/kg, Gew%*	-	4,9	28	37	49000	-	2,9	-	0,75	60	160	-	22	30	580
Kläranlage 1 - Klärschlamm	mg/kg, Gew%*	-	2,1	43	27	9700	-	3,3	-	1,6	150	270	-	27	37	980
Kläranlage 2 - Zulauf	mg/l	140	-	-	110	360	180	36	6,1	<0,025	0,034	<0,0080	-	-	-	0,40
Kläranlage 2 - Ablauf	mg/l	37	-	-	7,6	27	27	8,7	0,39	<0,0080	<0,055	<0,0080	-	-	-	0,070
Kläranlage 2 - Rohschlamm	mg/kg, Gew%*	-	3,7	28	37	85000	-	4,1	-	2,0	69	190	-	13	32	770
Kläranlage 2 - Klärschlamm	mg/kg, Gew%*	-	3,2	42	29	49000	-	3,2	-	2,7	90	270	-	19	44	1100
Rohkompost Anlage 1	mg/kg, Gew%*	-	41	48	24	-	-	2,4	16000	1,0	97	170	-	32	34	550
Fertigkompost Anlage 1	mg/kg, Gew%*	-	61	57	19	-	-	2,0	13000	0,94	84	180	-	33	35	490
Rohkompost Anlage 2	mg/kg, Gew%*	-	41	26	35	-	-	2,2	15000	1,2	41	120	-	15	24	470
Fertigkompost Anlage 2	mg/kg, Gew%*	-	50	50	23	-	-	2,4	22000	1,7	61	170	-	22	41	670
Fläche 1 (vorher)	mg/kg, Gew%*	-	-	87	-	-	-	0,65	1100	0,48	54	41	0,093	49	33	120
Fläche 2 (vorher)	mg/kg, Gew%*	-	-	89	-	-	-	0,54	1700	0,60	59	52	0,059	51	41	150
Fläche 3 (vorher)	mg/kg, Gew%*	-	-	90	-	-	-	0,51	1500	0,54	48	45	0,098	43	30	130
Fläche 4 (vorher)	mg/kg, Gew%*	-	-	89	-	-	-	0,59	1800	0,49	42	39	0,15	36	29	140
Fläche 1 (nachher)	mg/kg, Gew%*	-	-	85	6,4	-	-	0,71	2100	0,62	50	43	0,18	41	31	150
Fläche 2 (nachher)	mg/kg, Gew%*	-	-	88	5,4	-	-	0,63	2000	0,69	59	51	0,15	50	34	150
Fläche 3 (nachher)	mg/kg, Gew%*	-	-	90	4,2	-	-	2,6	1200	0,67	59	40	0,13	51	34	120
Fläche 4 (nachher)	mg/kg, Gew%*	-	-	87	5,9	-	-	0,63	1900	0,74	57	51	0,12	56	43	150
Presswasser - Bioabfall	mg/l	-	-	-	-	-	-	-	1200	0,092	3,7	13	-	1,7	2,4	34
Presswasser - Bioabfall	mg/kg, Gew%*	-	-	43	27	-	-	3,3	13000	0,59	48	120	0,14	21	31	370
Bioabfallkompost	mg/kg, Gew%*	-	66	48	23	-	-	0,18	16000	0,69	42	140	-	20	23	290

Probenstelle	Einheit	Abfiltr.St.	TR	GR	TOC	CSB	CSB fi	N	P	Cd	Cr	Cu	Hg	Ni	Pb	Zn
Bioabfallkompost frisch	mg/kg, Gew%*	-	-	50	27	-	-	2,0	12000	0,41	33	130	0,091	13	23	230
Bioabfallkompost 5 Monate	mg/kg, Gew%*	-	-	47	24	-	-	1,7	11000	0,40	32	96	0,11	14	19	250

* Ergebnisse in mg/kg TM bzw. Gew.% für die Parameter TR, GR, TOC und N

6.2 **Anhang 2:** Zusammenfassung der Analysenergebnisse für die Arzneimittelwirkstoffe in den untersuchten Proben

		Carbamazepin			Diazepam			Sulfamethoxazol			Acetyl-Sulfamethoxazol			Trimethoprim		
	Einheit	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**
Kläranlage 1 - Zulauf	ng/l	950	10	5	9,7	4	2	29	10	5	66	30	15	n.n.	10	5
Kläranlage 1 - Ablauf	ng/l	640	2	1	10	2	1	31	10	5	<30	30	15	96	10	5
Kläranlage 1 - Rohschlamm	µg/kg TM	1600	1	0,5	-	-	-	<5.0	5	2,5	n.n.	10	5	21	5	2,5
Kläranlage 1 - Klärschlamm	µg/kg TM	1600	1	0,5	-	-	-	11	5	2,5	140	10	5	n.n.	5	2,5
Kläranlage 2 - Zulauf	ng/l	850	10	5	6,5	4	2	48	10	5	160	30	15	30	20	10
Kläranlage 2 - Ablauf	ng/l	660	2	1	3,1	2	1	57	10	5	n.n.	30	15	99	10	5
Kläranlage 2 - Rohschlamm	µg/kg TM	530	1	0,5	-	-	-	14	5	2,5	260	10	5	34	5	2,5
Kläranlage 2 - Klärschlamm	µg/kg TM	1900	1	0,5	-	-	-	< 5.0	5	2,5	83	10	5	n.n.	5	2,5
Rohkompost Anlage 1	µg/kg TM	350	1	0,5	-	-	-	< 5.0	5	2,5	110	10	5	n.n.	5	2,5
Fertigkompost Anlage 1	µg/kg TM	240	1	0,5	-	-	-	n.n.	5	2,5	33	10	5	n.n.	5	2,5
Rohkompost Anlage 2	µg/kg TM	420	1	0,5	-	-	-	6,1	5	2,5	n.n.	10	5	n.n.	5	2,5
Fertigkompost Anlage 2	µg/kg TM	330	1	0,5	-	-	-	n.n.	5	2,5	n.n.	10	5	n.n.	5	2,5
Fläche 1 (vorher)	µg/kg TM	<1.0	1	0,5	-	-	-	n.n.	5	2,5	n.n.	10	5	n.n.	5	2,5
Fläche 2 (vorher)	µg/kg TM	<1.0	1	0,5	-	-	-	n.n.	5	2,5	n.n.	10	5	n.n.	5	2,5
Fläche 3 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	1	0,5	-	-	-	n.n.	5	2,5	n.n.	10	5	n.n.	5	2,5
Fläche 4 (vorher)	µg/kg TM	1,6	1	0,5	-	-	-	n.n.	5	2,5	n.n.	10	5	n.n.	5	2,5
Fläche 1 (nachher)	µg/kg TM	7,3	2	1	-	-	-	n.n.	6	3	n.n.	10	5	5,9	5	2,5
Fläche 2 (nachher)	µg/kg TM	7,1	2	1	-	-	-	n.n.	6	3	n.n.	10	5	n.n.	5	2,5
Fläche 3 (nachher)	µg/kg TM	6,3	2	1	-	-	-	< 6.0	6	3	n.n.	10	5	n.n.	5	2,5
Fläche 4 (nachher)	µg/kg TM	7	2	1	-	-	-	n.n.	6	3	n.n.	10	5	6,5	5	2,5
Presswasser - Bioabfall	ng/l	2000	10	5	30	30	15	340	10	5	170	30	15	40	10	5
Presswasser - Bioabfall	µg/kg TM	210	2	1	-	-	-	24	6	3	24	10	5	n.n.	5	2,5
Bioabfallkompost	µg/kg TM	170	1	0,5	-	-	-	<5.0	5	2,5	75	10	5	n.n.	5	2,5
Bioabfallkompost frisch	µg/kg TM	110	2	1	-	-	-	<6.0	6	3	< 10	10	5	23	5	2,5
Bioabfallkompost 5 Monate	µg/kg TM	80	2	1	-	-	-	n.n.	6	3	n.n.	10	5	28	5	2,5
Bioabfallkompost	µg/kg TM	7	2	1	-	-	-	n.n.	6	3	n.n.	10	5	28	5	2,5
Klärschlammkompost	µg/kg TM	96	2	1	-	-	-	n.n.	6	3	12	10	5	34	5	2,5
Blumenerde	µg/kg TM	8,5	2	1	-	-	-	n.n.	6	3	n.n.	10	5	31	5	2,5

		Atenolol			Bisoprolol			Metoprolol			Propanolol			Sotalol		
	Einheit	Messwert	BG	NG	Messwert	BG	NG	Messwert	BG	NG	Messwert	BG	NG	Messwert	BG	NG
Kläranlage 1 - Zulauf	ng/l	200	25	12,5	120	10	5	500	30	15	17	10	5	130	25	12,5
Kläranlage 1 - Ablauf	ng/l	230	25	12,5	100	10	5	520	30	15	15	10	5	120	25	12,5
Kläranlage 1 - Rohschlamm	µg/kg TM	9,8	4	2	n.n.	20	10	170	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	4	2
Kläranlage 1 - Klärschlamm	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	180	15	7,5	n.n.	50	25	5,5	4	2
Kläranlage 2 - Zulauf	ng/l	240	25	12,5	170	10	5	420	30	15	38	10	5	370	25	12,5
Kläranlage 2 - Ablauf	ng/l	98	25	12,5	120	10	5	420	30	15	29	10	5	290	25	12,5
Kläranlage 2 - Rohschlamm	µg/kg TM	<4.0	4	2	<20	20	10	130	15	7,5	n.n.	50	25	9,4	4	2
Kläranlage 2 - Klärschlamm	µg/kg TM	n.n.	4	2	<20	20	10	170	15	7,5	n.n.	50	25	16	4	2
Rohkompost Anlage 1	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	59	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	4	2
Fertigkompost Anlage 1	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	20	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	4	2
Rohkompost Anlage 2	µg/kg TM	n.n.	4	2	<20	20	10	61	15	7,5	n.n.	50	25	< 4.0	4	2
Fertigkompost Anlage 2	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	<15	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	4	2
Fläche 1 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	4	2
Fläche 2 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	4	2
Fläche 3 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	4	2
Fläche 4 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	4	2
Fläche 1 (nachher)	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	5	2,5
Fläche 2 (nachher)	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	5	2,5
Fläche 3 (nachher)	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	5	2,5
Fläche 4 (nachher)	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	5	2,5
Presswasser - Bioabfall	ng/l	210	25	13	91	10	5	1000	30	15	n.n.	10	5	500	25	13
Presswasser - Bioabfall	ng/l	5,2	4	2	n.n.	20	10	29	15	7,5	n.n.	50	25	<5	5	2,5
Bioabfallkompost	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	<15	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	4	2
Bioabfallkompost frisch	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	25	15	7,5	n.n.	50	25	<5	5	2,5
Bioabfallkompost 5 Monate	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	5	2,5
Bioabfallkompost	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	5	2,5
Klärschlammkompost	µg/kg TM	n.n.	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	5,3	5	2,5
Blumenerde	µg/kg TM	28	4	2	n.n.	20	10	n.n.	15	7,5	n.n.	50	25	n.n.	5	2,5

		Erythromycin			Roxithromycin			Bezafibrat			Diclofenac			Ibuprofen		
	Einheit	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**
Kläranlage 1 - Zulauf	ng/l	44	20	10	33	10	5	160	40	20	1100	20	10	2000	20	10
Kläranlage 1 - Ablauf	ng/l	27	10	5	26	10	5	n.n.	40	20	1100	20	10	n.n.	20	10
Kläranlage 1 - Rohschlamm	µg/kg TM	n.n.	10	5	18	10	5	110	50	25	150	50	25	<50	50	25
Kläranlage 1 - Klärschlamm	µg/kg TM	n.n.	10	5	n.n.	10	5	220	50	25	290	50	25	220	50	25
Kläranlage 2 - Zulauf	ng/l	120	20	10	< 10	10	5	900	40	20	1100	20	10	2700	20	10
Kläranlage 2 - Ablauf	ng/l	84	10	5	< 10	10	5	n.n.	40	20	1500	20	10	n.n.	20	10
Kläranlage 2 - Rohschlamm	µg/kg TM	21	10	5	< 10	10	5	n.n.	50	25	160	50	25	63	50	25
Kläranlage 2 - Klärschlamm	µg/kg TM	17	10	5	< 10	10	5	220	50	25	360	50	25	300	50	25
Rohkompost Anlage 1	µg/kg TM	<10	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	59	50	25	n.n.	50	25
Fertigkompost Anlage 1	µg/kg TM	n.n.	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	n.n.	50	25	n.n.	50	25
Rohkompost Anlage 2	µg/kg TM	n.n.	10	5	n.n.	10	5	1200	50	25	110	50	25	<50	50	25
Fertigkompost Anlage 2	µg/kg TM	n.n.	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	<50	50	25	n.n.	50	25
Fläche 1 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	n.n.	50	25	n.n.	50	25
Fläche 2 (vorher)	µg/kg TM	<10	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	n.n.	50	25	n.n.	50	25
Fläche 3 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	n.n.	50	25	n.n.	50	25
Fläche 4 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	n.n.	50	25	n.n.	50	25
Fläche 1 (nachher)	µg/kg TM	26	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	n.n.	50	25	n.n.	50	25
Fläche 2 (nachher)	µg/kg TM	27	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	n.n.	50	25	n.n.	50	25
Fläche 3 (nachher)	µg/kg TM	25	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	n.n.	50	25	n.n.	50	25
Fläche 4 (nachher)	µg/kg TM	35	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	n.n.	50	25	n.n.	50	25
Presswasser - Bioabfall	ng/l	550	10	5	<10	10	5	4300	40	20	310	20	10	22000	20	10
Presswasser - Bioabfall	µg/kg TM	18	10	5	n.n.	10	5	<50	50	25	220	50	25	1100	50	25
Bioabfallkompost	µg/kg TM	n.n.	10	5	n.n.	10	5	66	50	25	140	50	25	150	50	25
Bioabfallkompost frisch	µg/kg TM	15	10	5	n.n.	10	5	< 50	50	25	160	50	25	690	50	25
Bioabfallkompost 5 Monate	µg/kg TM	n.n.	10	5	n.n.	10	5	<50	50	25	n.n.	50	25	210	50	25
Bioabfallkompost	µg/kg TM	46	10	5	n.n.	10	5	n.n.	50	25	<50	50	25	n.n.	50	25
Klärschlammkompost	µg/kg TM	12	10	5	n.n.	10	5	94	50	25	n.n.	50	25	70	50	25
Blumenerde	µg/kg TM	38	10	5	n.n.	10	5	50	50	25	n.n.	50	25	n.n.	50	25

		Kokain			Benzoylecognin			Phenazon			Sulfadimidin			Sulfadiazin		
	Einheit	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**	**Messwert**	**BG**	**NG**
Kläranlage 1 - Zulauf	ng/l	<4.0	4	2	110	10	5	63	25	12,5	n.n.	40	20	22	20	10
Kläranlage 1 - Ablauf	ng/l	n.n.	2	1	n.n.	10	5	69	25	12,5	n.n.	20	10	<20	20	10
Kläranlage 2 - Zulauf	ng/l	6,0	4	2	260	10	5	52	25	12,5	n.n.	40	20	n.n.	20	10
Kläranlage 2 - Ablauf	ng/l	n.n.	2	1	n.n.	10	5	80	25	12,5	n.n.	20	10	n.n.	20	10
Presswasser - Bioabfall	ng/l	n.n.	10	5	42	10	5	320	25	13	-	-	-	-	-	-

		Clarithromycin		
	Einheit	**Messwert**	**BG**	**NG**
Kläranlage 1 - Zulauf	ng/l	990	10	5
Kläranlage 1 - Ablauf	ng/l	520	10	5
Kläranlage 1 - Rohschlamm	µg/kg TM	180	10	5
Kläranlage 1 - Klärschlamm	µg/kg TM	n.n.	10	5
Kläranlage 2 - Zulauf	ng/l	830	10	5
Kläranlage 2 - Ablauf	ng/l	120	10	5
Kläranlage 2 - Rohschlamm	µg/kg TM	380	10	5
Kläranlage 2 - Klärschlamm	µg/kg TM	54	10	5
Rohkompost Anlage 1	µg/kg TM	<10	10	5
Fertigkompost Anlage 1	µg/kg TM	10	10	5
Rohkompost Anlage 2	µg/kg TM	22	10	5
Fertigkompost Anlage 2	µg/kg TM	<10	10	5
Fläche 1 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	10	5
Fläche 2 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	10	5
Fläche 3 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	10	5
Fläche 4 (vorher)	µg/kg TM	n.n.	10	5
Fläche 1 (nachher)	µg/kg TM	-	-	-
Fläche 2 (nachher)	µg/kg TM	-	-	-
Fläche 3 (nachher)	µg/kg TM	-	-	-
Fläche 4 (nachher)	µg/kg TM	-	-	-
Presswasser - Bioabfall	ng/l	-	-	-
Presswasser - Bioabfall	ng/l	-	-	-
Bioabfallkompost	µg/kg TM	35	10	5
Bioabfallkompost frisch	µg/kg TM	-	-	-
Bioabfallkompost 5 Monate	µg/kg TM	-	-	-
Bioabfallkompost	µg/kg TM	-	-	-
Klärschlammkompost	µg/kg TM	-	-	-
Blumenerde	µg/kg TM	-	-	-