

TEXTE

27/2014

# Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte



TEXTE 27/2014

Umweltforschungsplan des  
Bundesministeriums für Umwelt,  
Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit

Forschungskennzahl 3711 23 225  
UBA-FB 001897

# **Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte**

von

**Dr. Stephan Hannappel**

HYDOR CONSULT GmbH, Berlin

**Dr. Jost Groeneweg**

Forschungszentrum Jülich GmbH, Jülich

**Dr. Sebastian Zühlke**

Technische Universität Dortmund, Institut für Umweltforschung (INFU),  
Fakultät für Chemie und Chemische Biologie, Lehrstuhl für Umweltchemie  
und Analytische Chemie, Dortmund

Im Auftrag des Umweltbundesamt

## **Impressum**

Herausgeber:

Umweltbundesamt

Wörlitzer Platz 1

06844 Dessau-Roßlau

Tel.: 0340/2103-0

Telefax: 0340/2103 2285

info@umweltbundesamt.de

Internet: [www.umweltbundesamt.de](http://www.umweltbundesamt.de)

<http://fuer-mensch-und-umwelt.de/>

[www.facebook.com/umweltbundesamt.de](http://www.facebook.com/umweltbundesamt.de)

[www.twitter.com/umweltbundesamt](http://www.twitter.com/umweltbundesamt)

### **Durchführung der Studie:**

HYDOR CONSULT GmbH, Am Borsigturm 40, 13507 Berlin

Forschungszentrum Jülich GmbH

Institut für Bio- und Geowissenschaften IBG-3: Agrosphäre, 52425 Jülich

Institut für Umweltforschung (INFU), der Fakultät Chemie und Chemische Biologie

Technische Universität Dortmund, Otto-Hahn-Str. 6, 44227 Dortmund

### **Abschlussdatum:**

2014

### **Redaktion:**

Fachgebiet II 2.8 Landwirtschaft

Frederike Balzer

### **Publikation als pdf:**

<http://www.umweltbundesamt.de/publikationen/antibiotika-antiparasitika-im-grundwasser-unter>

ISSN 1862-4804

Dessau-Roßlau, März 2014

Das diesem Bericht zu Grunde liegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit unter dem Förderkennzeichen 3711 23 225 gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Autor.

## Berichtskennblatt

Berichtsnummer	UBA-FB
Titel des Berichts	Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte
Autoren	Dr. Hannappel, Stephan (HYDOR) Dipl. Ing. Borchert, Diana (HYDOR) Dr. Groeneweg, Joost (FZ Jülich) Dr. Zühlke, Sebastian (INFU TU Dortmund)
Durchführende Institutionen	HYDOR CONSULT GmbH Am Borsigturm 40 13507 Berlin  Forschungszentrum Jülich GmbH Institut für Bio- und Geowissenschaften IBG-3: Agrosphäre 52425 Jülich  Institut für Umweltforschung (INFU), der Fakultät Chemie und Chemische Biologie Technische Universität Dortmund Otto-Hahn-Str. 6 44227 Dortmund
Fördernde Institution	Umweltbundesamt Postfach 14 06 06813 Dessau-Roßlau
Abschlussjahr	2014
Forschungskennzahl (FKZ)	3711 23 225
Seitenzahl des Berichts	156
Zusätzliche Angaben	Ein Anhang
Schlagwörter	Antibiotika, Antiparasitika, Grundwasser, Landwirtschaft, Gülle, Viehbesatzdichte, Sickerwasser, Verweilzeiten, Sulfonamide, Tetrazykline, Nitrat, Biogasanlagen, Grundwassermessstellen, Niedersachsen, Nordrhein- Westfalen

## Report Cover Sheet

Report No.	UBA-FB
Report Title	Antibiotics and antiparasitics in groundwater under locations with high animal stock concentration
Author(s) (Family Name, First Name)	Dr. Hannappel, Stephan (HYDOR) Dipl. Ing. Borchert, Diana (HYDOR) Dr. Groeneweg, Joost (FZ Jülich) Dr. Zühlke, Sebastian (INFU TU Dortmund)
Performing Organisation (Name, Address)	HYDOR CONSULT GmbH Am Borsigturm 40 13507 Berlin  Forschungszentrum Jülich GmbH Institut für Bio- und Geowissenschaften IBG-3: Agrosphäre 52425 Jülich  Institut für Umweltforschung (INFU), der Fakultät Chemie und Chemische Biologie Technische Universität Dortmund Otto-Hahn-Str. 6 44221 Dortmund
Funding Agency	Umweltbundesamt Postfach 14 06 06813 Dessau-Roßlau
Report Date (Year)	2014
Project No. (FKZ)	371123225
No. of Pages	156
Supplementary Notes	One annex
Keywords	Antibiotics, antiparasitics, groundwater, live stock, agriculture, manure, vadose water, sulfonamide, tetracycline, nitrate, groundwater measurement points, fermentation plant Lower Saxony, North Rhine Westphalia

## Kurzbeschreibung

Der Einsatz von Medikamenten ist in der heutigen, intensiv betriebenen landwirtschaftlichen Tierhaltung weit verbreitet. Über den Eintrag der Stoffe sowie ihrer Transformationsprodukte über die Gülle in das oberflächennahe Grundwasser gibt es hingegen bisher wenig Informationen.

In vier Bundesländern wurden deshalb zur Untersuchung von Tierarzneimittel-Wirkstoffen im Grundwasser 48 Grundwassermessstellen ausgewählt. Die Auswahl erfolgte als „worst-case“-Ansatz: hohe Viehbesatzdichte, intensive Ausbringung von Wirtschaftsdünger, sorptionsschwache und gut belüftete Böden, hohe Stickstoffgehalte, geringer Flurabstand sowie hohe Neubildungsraten des Grundwassers, kurze Verweilzeiten des Sickerwassers im Untergrund. Die Auswahl der zu untersuchenden Tierarzneimittel erfolgte auf Basis einer Literaturstudie. Im Ergebnis wurden 23 TAM-Wirkstoffe und Carbamazepin als Tracer für Humanarzneimittel ausgewählt. Den 48 Messstellen wurden 2012 und 2013 mindestens zweimal Proben entnommen. Bei 39 Messstellen wurden keine Wirkstoffe nachgewiesen, bei sieben Messstellen in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen wurden Einzelwirkstoffe aus der Gruppe der Sulfonamide in sehr niedrigen und bei zwei Messstellen in den gleichen Ländern in sehr hohen Konzentrationen nachgewiesen.

Eindeutig ist die Befundlage vor dem Hintergrund einer vorab durchgeführten Literaturrecherche zu bisher nachgewiesenen Wirkstoffen. Sulfonamide sind die am häufigsten im Grundwasser analysierten Einzelwirkstoffe weltweit und werden auch in den Zielregionen eingesetzt. Ein Defizit besteht bei präzisen Informationen zu den eingesetzten Wirkstoffen selber, bei Daten zu den Verbrauchsmengen und vor allem in der räumlichen Auflösung. Hier wurde bislang kein relevanter Fortschritt durch die in Entstehung befindlichen Datenbanken in Deutschland erreicht.

Insgesamt und vor dem Hintergrund des worst-case-Ansatzes kann geschlussfolgert werden, dass der Eintrag von Tierarzneimitteln in das oberflächennahe Grundwasser unter den naturräumlichen und hydrogeologischen Bedingungen in Deutschland nicht ubiquitär stattfindet. Bei besonders ungünstigen Standortbedingungen hingegen wurden in Einzelfällen Nachweise der Stoffe in teilweise sehr deutlicher Ausprägung festgestellt.

## Abstract

Today the use of medications for intense cattle breeding is widely spread. However, there is only little information concerning the input of the drugs in shallow groundwater aquifers. Therefore investigations on active substances of veterinary drugs in groundwater 48 measurement points were chosen in four federal states. The selection was carried out by a “worst case”-approach: high cattle density, intense slurry input, light soils, high groundwater recharge and low groundwater floor distance. The selection of the 23 substances based on a literature research.

Two samples were taken from each of these 48 sampling wells in 2012 and 2013. At 39 points there was no occurrence of an active substance. In seven groundwater measurement points in Lower Saxony and North Rine-Westphalia single substances of the group of sulfonamides were detected in very low, and at two points in these federal states in very high concentrations. The findings are in line with a literature research on active substances, since sulfonamides are the most analyzed group of agents all over the world and are also applied in the area of interest. A shortage of information exists on precise information about the adopted substances themselves and on data of consumption amounts. In this case there was no achievement from the currently developed database in Germany. Deficits mainly consist in the spatial resolution.

All in all and with the background of the worst-case scenario, we can reason, that the input of veterinary drugs into the near-surface groundwater is by no means ubiquitous for the criteria of natural landscapes and hydrogeological terms. However, for a very unfavorable site condition, this scenario can take place and could happen in a quite distinct manner.

## Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis .....	6
Anhang .....	8
Abbildungsverzeichnis .....	9
Tabellenverzeichnis.....	12
Abkürzungen .....	14
Glossar .....	15
1 Zusammenfassung .....	21
1.1 Hintergrund, Ausgangssituation und Zielstellung .....	21
1.2 Projektdurchführung.....	21
1.3 Ergebnisse .....	24
1.4 Interpretation der Ergebnisse .....	25
1.5 Schlussfolgerungen und Empfehlungen .....	26
2 Extended summary .....	27
2.1 Background and aims .....	27
2.2 Methods.....	28
2.3 Results .....	30
2.4 Interpretation.....	31
2.5 Recommendations.....	32
3 Veranlassung und Zielstellung .....	33
4 Literaturrecherche zum Stand der Forschung .....	36
4.1 Analyse gesetzlicher Regelungen zum Umgang mit Tierarzneimitteln .....	36
4.2 Tierarzneimittel und deren mögliche Eintragswege in das Grundwasser .....	38
4.3 Art und Menge der in Deutschland und Europa eingesetzten Tierarzneimittel .....	41
4.3.1 Abgabemengen von Tierarzneimitteln in Deutschland .....	42
4.3.2 Abgabemengen von Tierarzneimitteln in anderen europäischen Ländern.....	44
4.3.3 Regionalspezifische Einsatzmengen.....	48
4.4 Dokumentierte Untersuchungen zu Tierarzneimitteln im Grundwasser .....	52
4.5 Für den Eintrag in das Grundwasser relevante Substanzeigenschaften .....	59
5 Analytierte Parameter und Labormethoden.....	69
5.1 Auswahl von Tierarzneimitteln für die Grundwasserbeprobung.....	69
5.2 Chemische Laboranalytik auf Tierarzneimittel-Wirkstoff .....	69
6 Recherche von Zielgebieten in Nordrhein-Westfalen und Niedersachsen .....	73
6.1 Definition und regionale Verteilung der Viehbesatzdichte in Deutschland .....	73

6.2	In die Recherche einbezogene Institutionen .....	74
6.3	Verfügbare Informationen zur Viehbesatzdichte .....	75
6.3.1	Regionale Verteilung der Großvieheinheiten in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen .....	75
6.3.2	Auswahl von Landkreisen mit hoher Viehbesatzdichte in beiden Ländern .....	75
6.3.3	Gemeindebezogene Daten zu Großvieheinheiten in Landkreisen hoher Viehbesatzdichte .....	77
6.3.4	Tierartenbezogene Daten in Landkreisen hoher Viehbesatzdichte.....	78
6.4	Naturräumliche Charakterisierung der Landkreise hoher Viehbesatzdichte.....	80
6.4.1	Vorbemerkungen.....	80
6.4.2	Topografische Beschreibung .....	80
6.4.3	Landnutzung.....	81
6.4.4	Nutzbare Feldkapazität der Bodenzone .....	82
6.4.5	Grundwasserneubildungsrate .....	83
6.4.6	Flurabstände und Schutzfunktion der Deckschichten des oberflächennahen Grundwassers.....	85
6.4.7	Hydrogeologische Charakterisierung der oberflächennahen Grundwasserleiter .....	87
6.4.8	Grundwasserdynamik bzw. -fließrichtung.....	88
6.5	Daten zum Stickstoff- und Gülleeintrag in den Untergrund.....	89
6.5.1	Stickstoffeinträge .....	89
6.5.2	Stickstoff-Bilanzüberschüsse.....	89
6.5.3	Recherche nach Informationen zum Gülleeintrag .....	91
6.6	Nitratgehalte des Grundwassers .....	91
6.6.1	Verfügbare Informationen in Niedersachsen.....	91
6.6.2	Verfügbare Informationen in Nordrhein-Westfalen.....	93
6.6.3	Verfügbare Daten für Bayern und Sachsen.....	93
7	Auswahl geeigneter Grundwassermessstellen für die Beprobung .....	94
7.1	Verwendete Datengrundlagen.....	94
7.2	Recherche von Grundwassermessstellen im Zielgebiet hoher Viehbesatzdichte.....	94
7.2.1	Stammdaten der Grundwassermessstellen des NLWKN und des LANUV .....	94
7.2.2	Bohrungsbezogene Daten in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen .....	96
7.2.3	Terminbezogene Grundwasserstände der Messstellen .....	99
7.2.4	Terminbezogene Beschaffenheitsdaten der Messstellen.....	100
7.3	Auswahl geeigneter Messstellen für die Beprobung .....	102
7.4	Relevante Stammdaten der ausgewählten Messstellen.....	103

7.5	Abschätzung der Verweilzeiten des Sickerwassers der ausgewählten Messstellen ....	107
7.6	Ausweisung von unterirdischen Zustromgebieten der Messstellen .....	108
7.7	Recherche von Daten zum Tierbestand und zur Gülleverbringung.....	110
8	Durchführung und Ergebnisse der Probenahmen.....	113
8.1	Beprobung 2012 .....	113
8.2	Beprobung 2013 .....	115
8.3	Wiederholungsbeprobungen an zwei Standorten in NW und Niedersachsen.....	115
9	Bewertung und Interpretation der Ergebnisse der Beprobungen .....	116
9.1	Vor-Ort-Parameter und Hauptinhaltsstoffe .....	116
9.2	Genetische Bewertung der Analysenergebnisse .....	130
9.3	Übersicht zu den Ergebnissen der Analytik auf Tierarzneimittelwirkstoffe .....	131
9.4	Bewertung der sieben Standorte mit Funden im Bereich der Nachweis- bzw. Bestimmungsgrenzen .....	136
9.5	Bewertung der beiden Standorte mit stark erhöhten Funden .....	139
9.5.1	Standort Nordick.....	139
9.5.2	Standort Bösel .....	144
10	Resume und Ausblick .....	147
10.1	Defizite und offene Fragen .....	147
10.2	Schlussfolgerungen.....	148
11	Literaturverzeichnis.....	149

## Anhang

Dokumentation aller hydrochemischen Analysenergebnisse 2012 und 2013

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Schematische Darstellung der Einträge von Arzneimitteln und deren Rückstände in ober- und unterirdische Umweltkompartimente .....	34
Abbildung 2:	Erfassung der 2011 verkauften Antibiotika in Deutschland nach DIMDI .....	43
Abbildung 3:	Regionale Abgabemengen von Tierarzneimitteln in 2012 .....	45
Abbildung 4:	Geschätzter Verbrauch von TAM in der Tiermast in Dänemark .....	46
Abbildung 5:	Verkaufszahlen von TAM in den Niederlanden von 1999 bis 2012 .....	47
Abbildung 6:	Verteilung der Radioaktivität in 1 m <sup>2</sup> großen Lysimetern nach Applizierung von Schweinegülle .....	57
Abbildung 7:	Übersicht über die durchgeführte Probenvorbereitung, Trennung und Detektion am Beispiel der Sulfonamide .....	71
Abbildung 8:	Beispielchromatogramme einer Probe mit Sulfadimidingehalt über der Bestimmungsgrenze und einer Probe ohne Befund .....	72
Abbildung 9:	Regionale Verteilung der Viehbesatzdichte in Deutschland .....	74
Abbildung 10:	Großvieheinheiten je landwirtschaftlicher Nutzfläche in Nordrhein-Westfalen und Niedersachsen auf Ebene der Landkreise .....	76
Abbildung 11:	Großvieheinheiten je landwirtschaftlicher Nutzfläche in den Gemeinden .....	77
Abbildung 12:	Gemeindebezogene Angaben zur Anzahl der Rinder je Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche in den ausgewählten Landkreisen) .....	79
Abbildung 13:	Gemeindebezogene Angaben zur Anzahl der Schweine je Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche in den ausgewählten Landkreisen .....	79
Abbildung 14:	Gemeindebezogene Angaben zur Anzahl der Hühner je Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche in den ausgewählten Landkreisen .....	79
Abbildung 15:	Flächenanteile der 5 aggregierten Landnutzungsklassen in den 7 Kreisen hoher Viehbesatzdichte .....	81
Abbildung 16:	Landnutzung innerhalb der sieben ausgewählten Landkreise hoher Viehbesatzdichte .....	82
Abbildung 17:	Nutzbare Feldkapazität bis 1 m Bodentiefe in den sieben ausgewählten Landkreisen .....	83
Abbildung 18:	Grundwasserneubildungsraten innerhalb der sieben ausgewählten Landkreise .....	84
Abbildung 19:	Schematische Darstellung der Verweilzeiten des Sickerwassers in der ungesättigten Zone im norddeutschen Lockergesteinsbereich .....	86
Abbildung 20:	Flurabstände des Grundwassers in 4 Landkreisen hoher Viehbesatzdichte in Niedersachsen .....	86

Abbildung 21:	Schutzfunktion der Deckschichten des Grundwassers in den 7 ausgewählten Landkreisen hoher Viehbesatzdichte in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen.....	87
Abbildung 22:	Stickstoffeinträge aus Wirtschaftsdüngern in NW.....	89
Abbildung 23:	Modifizierte Stickstoff-Flächenbilanz.....	90
Abbildung 24:	N-Bilanzüberschüsse in Niedersachsen .....	90
Abbildung 25:	N-Bilanzüberschüsse NW in kg N/ha*LF.....	90
Abbildung 26:	Potenzielle Nitratwerte im Sickerwasser in Niedersachsen .....	92
Abbildung 27:	Nitratkonzentrationen im Einzugsgebiet der Hase .....	92
Abbildung 28:	Nitratwerte im Kreis Borken .....	93
Abbildung 29:	Lage der 111 Grundwassermessstellen in Nordrhein-Westfalen und Niedersachsen nach einer ersten Präselektion .....	95
Abbildung 30:	Schichtenverzeichnis der Messstelle Itterbeck I in Niedersachsen.....	96
Abbildung 31:	Foto der Bodendauerbeobachtungsfläche Dinklage und Schichtenverzeichnis der dazugehörigen Grundwassermessstelle GWM 033-L.....	97
Abbildung 32:	Sulfadimidin-Konzentrationen an der BDF in Dinklage in 1,4 m Tiefe sowie Einbau der 4 Saugsonden in den Boden .....	98
Abbildung 33:	Schichtenverzeichnis der Messstelle Markhausen BDF.....	98
Abbildung 34:	Schichtenverzeichnis der Messstelle Dwergte .....	98
Abbildung 35:	Schichtenverzeichnis der für die Beprobung ausgewählten Messstelle Nordick.....	99
Abbildung 36:	Flurabstände des Grundwassers von 1981 bis 2010 von 12 vorausgewählten Messstellen in NW .....	99
Abbildung 37:	Nitratwerte des Grundwassers von 2000 bis 2011 von 12 ausgewählten Messstellen in NW .....	101
Abbildung 38:	Ammoniumwerte des Grundwassers von 2000 bis 2011 von 12 ausgewählten Messstellen in NW .....	101
Abbildung 39:	Nitrat- und Ammoniumwerte von zwei ausgewählten Messstellen in NW .....	102
Abbildung 40:	Regionale Verteilung der 40 ausgewählten Messstellen in Niedersachsen und NW.....	104
Abbildung 41:	Zustromgebiete zu zwei Messstellen in Niedersachsen und NW.....	110
Abbildung 42:	48 Standorte der Entnahme von Grundwasserproben in den Jahren 2012 und 2013 in 4 Ländern und 5 Flusseinzugsgebieten .....	113
Abbildung 43:	Ergebnisse der Ionenbilanzrechnung als Plausibilitätsprüfung der analysierten Konzentrationen.....	116
Abbildung 44:	Histogramme der Konzentrationen von vor-Ort-Parametern und Hauptinhaltsstoffen des Grundwassers der Beprobung 2012 in den 48 Messstellen.....	118

Abbildung 45:	Histogramme der Konzentrationen von Haupt- und Spureinhaltsstoffen des Grundwassers der Beprobung 2012 in den 48 Messstellen.....	120
Abbildung 46:	TOC-Konzentrationen an den beprobten Grundwassermessstellen in NW und NI im Jahr 2012 .....	124
Abbildung 47:	Kalium-Konzentrationen an den beprobten Grundwassermessstellen in NW und NI im Jahr 2012 .....	125
Abbildung 48:	Elektrische Leitfähigkeiten an den beprobten Grundwassermessstellen in NW und NI im Jahr 2012 .....	126
Abbildung 49:	Nitrat-Konzentrationen an den beprobten Grundwassermessstellen in NW und NI im Jahr 2012 .....	127
Abbildung 50:	Sauerstoffkonzentrationen an den beprobten Grundwassermessstellen in NW & NI im Jahr 2012 .....	128
Abbildung 51:	Sulfatkonzentrationen an den beprobten Grundwassermessstellen in NW und NI im Jahr 2012 .....	129
Abbildung 52:	PIPER-Diagramme der Analysen aus dem Jahr 2012 und aus dem Jahr 2013 .....	130
Abbildung 53:	Klassifizierte Form der Ergebnisse der Grundwasseranalytik auf 17 TAM-Wirkstoffe (ohne Tetrazykline) im Jahr 2012 und im Jahr 2013 .....	132
Abbildung 54:	Messstellenbezogenes Ergebnis der TAM-Analytik .....	133
Abbildung 55:	Regionale Verteilung der Messstellen mit Funden von TAM-Wirkstoffen in Niedersachsen und NW in den beiden Jahren 2012 und 2013 .....	134
Abbildung 56:	Beziehungen zwischen dem Flurabstand des Grundwassers, den mittleren Gesamt-Stickstoffgehalten (berechnet) sowie den TAM-Funden in den Jahren 2012 und 2013.....	135
Abbildung 57:	Zustromgebiet Messstelle Sutrum .....	137
Abbildung 58:	Zustromgebiet Messstelle Lowick im LK Borken.....	137
Abbildung 59:	Zustromgebiet und Foto der Messstelle Carum I im Kreis Vechta in Niedersachsen.....	138
Abbildung 60:	Zustromgebiet der Messstelle Kleinringerwösten I in der Grafschaft Bentheim in Niedersachsen .....	138
Abbildung 61:	Geologisches Schichtenverzeichnis der Messstelle des LANUV in Nordick.....	139
Abbildung 62:	Nitratkonzentrationen (mg/l) der Messstelle Nordick von 1984 bis 2013 .....	141
Abbildung 63:	Anlagen zur landwirtschaftlichen Bewässerung im Umfeld der Messstelle Nordick .....	142
Abbildung 64:	Bor-Gehalte in Nordick von 1988 bis 2012 in mg/l (Daten vom LANUV NW) .....	143
Abbildung 65:	Geflügelmistlagerung westlich der Messstelle Bösel im Herbst 2013.....	144

Abbildung 66:	Lageplan der Messstelle Bösel I mit Informationen des NLWKN zum Umfeld des Messstellenstandortes .....	144
Abbildung 67:	Schichtenverzeichnis und Ausbau der Messstelle Bösel I des NLWKN .....	145
Abbildung 68:	Stickstoffkonzentrationen der Messstelle Bösel I von 2001 bis 2013 .....	145

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Gruppen veterinärmedizinisch bedeutender Antiinfektiva und Antiparasitika .....	39
Tabelle 2:	In der Veterinärmedizin eingesetzte Wirkstoffgruppen, sortiert nach Anwendungshäufigkeit .....	40
Tabelle 3:	Erfassung der in 2011 und 2012 abgegebenen Mengen von Antibiotika in Deutschland .....	44
Tabelle 4:	Verkaufte Antibiotika in Tonnen Wirksubstanz in Dänemark in 2010 nach Tiergruppen .....	46
Tabelle 5:	Verschreibungsmengen von Reinwirkstoffen in tierärztlichen Herstellungsaufträgen und Verschreibungen in Niedersachsen .....	49
Tabelle 6:	Häufigkeit der Anwendungen mit Wirkstoffkombinationen bei der Hähnchenmast in NW .....	50
Tabelle 7:	Anteil der Durchgänge pro Wirkstoffgruppe bei Hühnern und Puten in Niedersachsen.....	50
Tabelle 8:	Anteil der Durchgänge pro Wirkstoffgruppe bei Schweinen, Kälbern und Fressern in NI .....	51
Tabelle 9:	Wirkstoffgruppen und prozentualer Anteil der Durchgänge in Hühnermastbetrieben in Niedersachsen , in Dänemark und in den Niederlanden .....	51
Tabelle 10:	Wirkstoffgruppen und prozentualer Anteil der Durchgänge in Schweinemastbetrieben in Niedersachsen , in Dänemark und in den Niederlanden .....	51
Tabelle 11:	Wirkstoffgruppen und prozentualer Anteil der Durchgänge in Putenmastbetrieben in Niedersachsen .....	52
Tabelle 12:	In der Literatur dokumentierte Einträge von Arzneimitteln in die Umwelt.....	53
Tabelle 13:	Antibiotika in Gülleteichen und Brunnen von Rindermastbetrieben in den USA mit Beprobung der Brunnen in 2 m Tiefe.....	54
Tabelle 14:	Antibiotika in Gülleteichen und Brunnen von Schweinemastbetrieben in den USA .....	55
Tabelle 15:	Antibiotika in µg/l in Lagoons und im Grundwasser im Abstrom von Rinderfarmen in den USA.....	55
Tabelle 16:	Dokumentierte Funde von Tierarzneimitteln im Grundwasser .....	58

Tabelle 17:	Zusammenfassung der in der Literatur dokumentierten Angaben zu verlagerungsrelevanten Parametern.....	66
Tabelle 18:	Zusammenfassung der Nachweisbarkeit und der Funde im Grundwasser aufgrund der Substanzeigenschaften für alle untersuchten Stoffe .....	68
Tabelle 19:	Informationen zum Einsatz der ausgewählten 23 Substanzen für die Grundwasseranalytik .....	70
Tabelle 20:	Viehhaltungen in deutschen landwirtschaftlichen Betrieben im Mai 2009 .....	73
Tabelle 21:	Tierartenbezogene Angaben zu den sieben ausgewählten Landkreisen in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen .....	76
Tabelle 22:	Stammdaten- und Beschaffenheitsparameter der ausgewählten Messstellen .....	106
Tabelle 23:	Stammdaten und Beschaffenheitsparameter der zwei Grundwassermessstellen des LfULG Sachsen .....	107
Tabelle 24:	Stammdaten und Beschaffenheitsparameter der sechs vom LfU Bayern beprobten Quellfassungen .....	107
Tabelle 25:	Abgeschätzte Verweilzeiten des Sickerwassers nach DIN 19732 zu den 40 ausgewählten Messstellen in Niedersachsen und NW.....	109
Tabelle 26:	Exemplarische Darstellung der schlagbezogenen Informationen zum Tierbestand innerhalb der 11 Schläge eines Zustromgebietes zur Messstelle Beesten-Bahnhof in Niedersachsen .....	111
Tabelle 27:	Ergebnisse der von der LWK NW übermittelten Daten zur feldblockbezogenen Einschätzung der Begüllung der Jahre 2007 bis 2011 .....	111
Tabelle 28:	Ergebnisse der von der Landwirtschaftskammer Nordrhein-Westfalen übermittelten Informationen zur summarischen Einschätzung der Begüllung aller Zustromgebiete .....	112
Tabelle 29:	Auszug aus den aggregierten Analyseergebnissen der Beprobung im Jahr 2012 an 48 Standorten.....	114
Tabelle 30:	Arithmetische Mittelwerte von Haupt- und Nebeninhaltsstoffen der Beprobungen pro Bundesland .....	117
Tabelle 31:	Dokumentation der Konzentrationen aller Einzelfunde von TAM-Wirkstoffen in den Jahren 2012 und 2013 bei insgesamt neun Messstellen .....	133
Tabelle 32:	Ausgewählte Informationen zu den sieben Messstellen mit Nachweisen von Sulfonamiden.....	136
Tabelle 33:	C <sub>org</sub> -Gehalte ausgesuchter Grundwasserleiter in NW ergänzt durch Schwefel-Pyrit-Daten .....	140

## Abkürzungen

BDF	Bodendauerbeobachtungsfläche
BGR	Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe
BLAC	Bund/Länder-Arbeitsgemeinschaft Chemikaliensicherheit
BPT	Bundesverband Praktischer Tierärzte e.V.
BTK	Bundestierärztekammer
BÜK	Bodenübersichtskarte
DOC	gelöster organischer Kohlenstoff
EMA	European Medicines Agency
ESBL	Extended-Spectrum Beta-Laktamase Keime
GOK	Geländeoberkante
GV	Großvieheinheit
HÜK 200	Hydrogeologische Übersichtskarte von Deutschland im Maßstab 1 : 200 000
IT.NW	Landesbetrieb Information und Technik Nordrhein-Westfalen
KB <sub>82</sub>	Basenkapazität bei pH 8,2
KS <sub>43</sub>	Säurekapazität bei pH 4,3
LANUV NW	Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz Nordrhein-Westfalen
LAVES NI	Niedersächsisches Landesamt für Verbraucherschutz und Lebensmittelsicherheit
LBEG	Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie Niedersachsen
LF	Landwirtschaftlich genutzte Fläche
LK	Landkreis
LSKN NI	Landesbetrieb für Statistik und Kommunikationstechnologie Niedersachsen
LWK	Landwirtschaftskammer
m	Meter
MRSA	Methicillinresistenter Staphylococcus aureus auch Multiresistenter Staphylococcus aureus
N	Stickstoff
NI	Niedersachsen
NW	Nordrhein-Westfalen
Nawaro	Nachwachsende Rohstoffe
NH <sub>4</sub>	Ammonium
NLWKN	Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz
NO <sub>3</sub>	Nitrat
SMX	Sulfamethoxazol
TAM	Tierarzneimittel
TOC	gesamter organischer Kohlenstoff
UBA	Umweltbundesamt

**Glossar**(die nachfolgend erläuterten Fachbegriffe sind im Text unterstrichen):

Absorption	ist ein Prozess bei dem Stoffe in das Innere eines Festkörpers oder einer Flüssigkeit eindringen.
Abstandsgeschwindigkeit	beschreibt die Transportgeschwindigkeit von Wasserteilchen (oder vollständig gelösten Wasserinhaltsstoffen). Sie ist eine fiktive mittlere Geschwindigkeit und wird aus dem Quotienten der Länge des Stromabschnittes und der Zeit, die das Grundwasser zum Durchfließen braucht, berechnet.
Adsorption	bezeichnet die Anreicherung von Stoffen aus Gasen oder Flüssigkeiten an der Oberfläche eines Festkörpers, allgemeiner an der Grenzfläche zwischen zwei Phasen.
Akkumulierung	Ansammlung
Bestimmungsgrenze	ist die kleinste Konzentration eines Analyten, die quantitativ mit einer festgelegten Präzision bestimmt werden kann. Sie ist immer genauer als die Nachweisgrenze.
bindige Deckschichten	meist lehmig oder tonige nicht- oder schwer wasserdurchlässige Deckbodenschichten.
bioakkumulativ	bezeichnet die Anreicherung einer Substanz in einem Organismus durch Aufnahme aus dem umgebenden Medium oder die Nahrung.
Denitrifikation	ist die Umwandlung von im Nitrat gebundenem Stickstoff zu molekularem Stickstoff unter Sauerstoffabschluss.
Deuterium	ist ein natürliches, stabiles Isotop des Wasserstoffs. Sein Atomkern wird auch Deuteron genannt, er besteht aus einem Proton und einem Neutron (2H). Deuterium wird aufgrund seiner Masse auch als „Schwerer Wasserstoff“ bezeichnet
Direct-Push-Sondierungen	ist ein Verfahren zur tiefendifferenzierten Grundwasserprobenahme mittels einer Oszillationspumpe und kann fortlaufend für Probenahme in verschiedenen Tiefen verwendet werden. Es kann zur Analyse von Bodenwässern und geringmächtigen und schwach wasserführenden Schichten und zur Bestimmung des Grundwasserstandes verwendet werden.
DIMDI-AMV	das Deutsche Institut für medizinische Dokumentation und Information- Abteilung Arzneimittelverordnung verpflichtet pharmazeutische Unternehmer und Großhändler die Abgabemengen von Tierarzneimitteln mit antimikrobiellen oder hormonellen Wirkstoffen zu erfassen und zu melden.
DT <sub>50</sub>	(disappearance time) ist die Abbaupzeit in der sich 50% der Konzentration des Ausgangswertes reduziert hat.
Dränage	künstliche Bodenentwässerung, zum schnelleren Abfließen von Wasser und der Regelung des Bodenwasserhaushaltes.
ESBL	Extended Spectrum Beta Laktamase: Keime aus der Familie der Enterobakterien (Enteron = Darm) erzeugen ein verändertes Enzym der Beta-Laktamase, welches Antibiotika inaktiviert. ESBL ist demnach kein bestimmter Keim, sondern bezeichnet diese gemeinsam erworbene Eigenschaft.

nutzbare Feldkapazität	kennzeichnet die pflanzenverfügbare Bodenwassermenge in bis zu 1 m Bodentiefe und gilt als indirektes Maß für das quantitative Rückhaltevermögen des Bodens gegenüber Sickerwasser. Sie hängt u. a. stark von der Bodenart ab.
Fermentation	lat. Gärung- bezeichnet in der Biologie die enzymatische Umwandlung organischer Stoffe. Die Fermentation wird in der Biotechnologie bewusst angewendet. Dies geschieht entweder durch Zugabe der benötigten Enzyme oder durch Zugabe von Bakterien-, Pilz-, sonstige biologische Zellkulturen, die die Fermentation im Rahmen ihres enzymkatalysierten Stoffwechsels ausführen.
Fresser	bezeichnet beim Rind Jungtiere im Alter von etwa vier bis zwölf Monaten.
Geest	bezeichnet einen Landschaftstyp in Norddeutschland, den nördlichen Niederlanden und Dänemark, der durch Sandablagerungen während der Eiszeiten entstanden ist. Da sie eine höher gelegene Ebene ist, nennt man sie auch Geest- oder Sandrücken.
Grasnarbe	wird als der zusammenhängende Bewuchs des Bodens durch Gräser und Kräuter bezeichnet, der durch geschlossenen Pflanzenbestand und die Wurzeln einen festen Zusammenhalt bekommt.
Großvieheinheit	Äquivalent für das Lebendgewicht eines Rindes (etwa 500 kg).
Grundwasser	nach DIN 4049: unterirdisches Wasser, das die Hohlräume der Erdrinde zusammenhängend ausfüllt und dessen Bewegung ausschließlich oder nahezu ausschließlich von der Schwerkraft und den durch die Bewegung selbst ausgelösten Reibungskräften bestimmt wird.
Grundwasser-Flurabstand	ist der Höhenunterschied zwischen der Geländeoberkante und der Grundwasseroberfläche
Grundwassergleichen	auch Isohypse, ist eine Verbindungslinie gleich hoher und gleichzeitig gemessener Grundwasserstände eines definierten Grundwasserkörpers zu einem Bezugsniveau (NN). Mit ihnen können z. B. Grundwasserfließrichtungen ermittelt werden.
Grundwasserleiter	ist ein Gesteinskörper, in dem sich das Grundwasser aufhält und fließt. Nach oben wird er von der Grundwasseroberfläche und nach unten durch einen wasserundurchlässigen Grundwassernichtleiter begrenzt. Bei vertikaler Abfolge von mehreren Grundwasserleitern und Grundwassernichtleitern können mehrere übereinander liegende Grundwasserstockwerke vorliegen.
Grundwassermessstelle	ist eine Einrichtung (z. B. Bohrung) zur Erfassung hydrologischer und hydrochemischer Daten des Grundwassers
Grundwasserneubildung	ein Maß für die Wassermenge, die in den Untergrund bzw. aus dem Boden heraus in die ungesättigte Zone unterhalb der Bodenoberfläche versickert und anschließend über die vertikale Fließkomponente dem Grundwasser Zutritt. Je höher diese Rate ist, desto schneller kann das Sickerwasser und die in ihm gelösten Stoffe das Grundwasser erreichen.
Grundwasseroberfläche	oft auch Grundwasserspiegel, ist die Ausgleichsfläche in dem der absolute Druck des Grundwassers gleich dem Druck der Atmo-

	sphäre ist und bildet die obere messbare Grenze des Grundwassers in den Grundwassermessstellen.
Holozän	Erdzeitalter der Gegenwart seit 11.000 Jahren.
hydrodynamische Dispersion	bezeichnet den Prozess der Konzentrationsverminderung durch die laterale und vertikale Ausbreitung einer Stoffwolke im Grundwasserstrom. Die Dispersion beschreibt hierbei die nicht einfach zu trennenden Effekte der mechanischen Dispersion (laterale Ausbreitung) und Diffusion im Grundwasser.
Illit	Tonmineral
Ionenbilanzen	ist die Gegenüberstellung der molaren Äquivalentkonzentrationen der Kationen und Anionen als einfache Form der Plausibilitätsprüfung der Ergebnisse der chemischen Laboranalytik.
Interflow	auch Zwischenabfluss, ist der Anteil des Niederschlags der nicht bis zur Grundwasseroberfläche gelangt, sondern als unterirdischer Abfluss zu Oberflächengewässern abfließt.
Irrigation	künstliche Boden - und Pflanzenbewässerung.
Isotop $^{13}\text{C}$	ist ein natürliches stabiles Isotop des Kohlenstoffes und macht etwa 1,1 % allen Kohlenstoffes der Erde aus. In den Naturwissenschaften wird es genutzt, um die Herkunft des Kohlenstoffes, im Verhältnis $^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$ , genauer zu bestimmen. So kann unterschieden werden ob z. B. Karbonate an Land oder im Wasser entstanden sind, in welchem Ökosystem (z. B. tropisch, arktisch) organisches Sediment gebildet wurde und ob es dort Klimaveränderungen gab.
Isotop $^{14}\text{C}$	wird zur radiometrischen Datierung von kohlenstoffhaltigen, insbesondere organischen Materialien verwendet. Der zeitliche Anwendungsbereich liegt zwischen 300 und etwa 60.000 Jahren. Das Verfahren beruht darauf, dass in abgestorbenen Organismen die Menge an gebundenen radioaktiven $^{14}\text{C}$ -Atomen gemäß dem Zerfallsgesetz abnimmt. In noch lebenden Organismen ist das natürliche Verhältnis von $^{14}\text{C} / ^{12}\text{C}$ konstant.
$K_d$	Dissoziationskonstante, beschreibt das Verhältnis der Konzentration eines Stoffes im Boden zu seiner Konzentration im Wasser. Der Sorptionskoeffizient gibt somit einen Anhaltspunkt dafür, wie stark ein Stoff durch Anlagerung an die Feststoffmatrix im Untergrund zurückgehalten bzw. wie stark er in seiner Ausbreitung verzögert werden kann.
$K_{oc}$	Die Sorptionsaffinität von Stoffen kann vereinfacht mit dimensionslosen und konzentrationsunabhängigen Verteilungskoeffizienten beschrieben werden, z. B. dem Verteilungskoeffizienten zwischen dem organischen Kohlenstoff im Boden und Wasser ( $K_{oc}$ ).
$K_{ow}$	Der n-Okthanol-Wasser-Verteilungskoeffizient ist ein dimensionsloser Verteilungskoeffizient, der das Verhältnis der Konzentrationen einer Chemikalie in einem Zweiphasensystem aus 1-Octanol und Wasser angibt. Er gibt das Verhältnis zwischen Lipophilie (Fettlöslichkeit) und Hydrophilie (Wasserlöslichkeit) an.
Kombinationspräparat	(Composita) werden alle Medikamente bezeichnet, die mehrere Wirkstoffe enthalten. Diese Wirkstoffe können in ihrer Zusammensetzung ähnliche oder vollkommen andere Wirkungen haben.

	Die Kombination von Wirkstoffen hat eine verbesserte Hauptwirkung oder eine Erweiterung des Wirkungsspektrums (beispielsweise die Kombination von Sulfonamiden mit Trimethoprim) und dient zur Verminderung der Nebenwirkungen, da die Wirkstoffe jeweils in niedrigeren Dosen enthalten sind.
Kluft	sind Trennflächen im Gestein bzw. im Gebirge, die durch tektonische Beanspruchung entstehen, aber auch durch diagenetische Prozesse oder Abkühlung von Gesteinen. Die Größenordnung einer Kluft liegt im Bereich von wenigen Millimetern Weite bis zu einer Erstreckung von mehreren Metern.
Kluftgrundwasserleiter	sind Festgesteinsgrundwasserleiter, in dem die Wasserbewegung primär in nicht signifikant durch Lösungsvorgänge erweiterten Trennflächen wie Klüften, Störungen, Verwerfungen oder Schichtgrenzen stattfinden. Sie treten in sedimentären, metamorphen oder magmatischen, nicht verkarstungsfähigen Festgesteinen auf.
Korngröße	beschreibt die Größe einzelner Partikel in einem Gemenge, hier im Boden und im Lockergestein. Mechanische und chemische Eigenschaften können in verschiedenen Korngrößengemengen unterschiedlich sein.
Kreide	Erdzeitalter (von 142 bis 65 Millionen Jahre vor unserer Zeit)
Laborsäulenversuch	eine Säule, die mit homogenisiertem Sediment/Boden des zu untersuchenden Standortes gefüllt ist, wird mit Wasser vertikal durchströmt. Die Probenahme erfolgt nach einer definierten Zeit. Es können somit z. B. Abbauprozesse von Schadstoffen simuliert werden.
Lipophil	wird eine Substanz die ‚Fett liebend‘ ist bezeichnet, sie ist in Fetten und Ölen besonders gut löslich, nicht aber in Wasser.
Makroporenfluss	Makroporen entstehen durch biogene Aktivität (Maulwürfe, Mäuse, Regenwürmer, Pflanzenwurzeln), durch die Quell-Schrumpfdynamik austrocknender tonhaltiger Böden oder durch Verwitterungsprozesse.
Matrixfluss	Stofftransport im Boden durch Fein- und Mittelporen.
Metabolit	entsteht im Körper des Zielorganismus und wird in die Umwelt exponiert (s. auch Transformationsprodukt).
Metaphylaxe	In der Tiermedizin, vor allem in der Herdenbetreuung, wird der Begriff für spezielle Behandlungen gebraucht, die bei noch nicht klinisch erkrankten Tieren durchgeführt werden. Tritt eine Infektionskrankheit oder Parasitose bei einem Einzeltier auf, werden metaphylaktisch alle anderen Tiere des Bestandes behandelt.
Montmorillonit	Tonmineral
Nachweisgrenze	(Limit of Detection), bezeichnet den extremen Wert eines Messverfahrens bis zu dem die Messgröße gerade noch zuverlässig nachgewiesen werden kann.
Nitrifikation	in sauerstoffreichen Bedingungen wird Ammoniak bakteriell zu Nitrat oxidiert.

PEC/ PNEC	<p><i>predicted environmental concentration</i> bei der Umweltprüfung wird aus der Verbrauchsmenge und den Abbauraten eines Wirkstoffs seine vermutliche Umweltkonzentration (PEC) ermittelt.</p> <p><i>predicted no-effect concentration</i> ist die Konzentration bei der keine schädigenden Effekte auf das Ökosystem zu erwarten sind (PNEC).</p>
Pedologie	Bodenkunde
Perkolation	(bodenkundlich) das Durchsickern von Wasser durch die Poren des Bodens.
Persistent	dauerhaft festsitzende, immobile Substanzen im Boden.
photostabil	eine unter Lichteinfluss stabile Substanz.
PIPER Diagramm	Genetische Darstellung der Grundwasserchemie nach dem molaren Äquivalentgehalt der vorherrschenden Kat- und Anionen.
$pK_a$	Die Säurekonstante $K_a$ ist eine Stoffkonstante und gibt Aufschluss darüber, in welchem Maße ein Stoff in einer Gleichgewichtsreaktion mit Wasser unter Protolyse reagiert.
$K_a$	ist die Gleichgewichtskonstante dieser Reaktion und damit ein Maß für die Stärke einer Säure. Sie wird meist als ihr negativer dekadischer Logarithmus, dem $pK_a$ -Wert angegeben.
Porengrundwasserleiter	ist ein Grundwasserleiter im Locker- oder Festgestein in dem das Grundwasser durch die Gesteinsporen strömt. Charakteristisch ist ein hohes effektives Porenvolumen. Weit verbreitet in Norddeutschland.
Pyrit	Schwefelhaltiges Mineral
Quartär	Erdzeitalter, vor 2,58 Millionen Jahren bis heute
Quell-Schrumpf-Dynamik	Abhängig vom Wassergehalt des Bodens quellen oder schrumpfen tonhaltige Bodenpartikel und führen damit zu einer Volumenzu- oder -abnahme des Bodens.
Raufutter	Grundfutter oder Wirtschaftsfutter zum Beispiel Heu, Stroh, Rüben, Silage, oder Grünfutter.
Redoxpotential	Hydrochemischer Parameter, der Auskunft über das Oxidations- bzw. Reduktionsverhalten von Wässern gibt. Bei allen Oxidations- bzw. Reduktionsvorgängen werden Elektronen aufgenommen bzw. abgegeben. Sauerstoff gehört zu den oxidierenden Stoffen und puffert die negative Wirkung der reduzierenden Stoffe ab.
Reserveantibiotikum	ist ein Antibiotikum das nur unter strengen Auflagen gegen resistente Bakterien eingesetzt werden darf.
Resistenzbildung	bezeichnet die Eigenschaft von Bakterien o. a. Organismen die Wirkung von antibiotisch wirkenden Substanzen durch Anpassung an extreme Umweltbedingungen abzuschwächen oder zu neutralisieren.
Rohwasser	ist ein unbehandeltes Wasser, bevor es (z. B. zur Trinkwassergewinnung) gereinigt oder aufbereitet wird.
Schafsbad	engl. sheep dip, wird im angelsächsischen Raum bei Schädlingsbefall von Schafen verwendet, indem Schafe durch eine Wanne mit einem Gemisch von Insektiziden und Fungiziden getrieben

	werden. Die Substanzen des Schafsbads sind u. a. toxisch für Menschen und wurden in Boden- und Wasserproben an den jeweiligen Standorten nachgewiesen.
Schichtenverzeichnis	ist die geologische Aufnahme der Bodenschichten, die bei einer Bohrung im Untergrund (z. B. für Grundwassermessstelle) angetroffen werden. Die erbohrten Schichten werden mit ihrer Teufe (Tiefenlage) erfasst, benannt und ausführlich beschrieben.
Saugsonden	auch Saugkerzen, dienen der Entnahme von Bodenwasser oder Bodenlösungen aus mineralischen Böden oder Substanzen, meist in verschiedenen Tiefen. Die Wasserprobe wird mit Unterdruck, der mit einer Vakuum-Handpumpe erzeugt wird, in das Innere der Sonde gezogen und steht dann zur Analyse bereit.
Sickerwasser	ist unterirdisches Wasser, das sich unter Einwirkung der Schwerkraft abwärts bewegt. Dabei durchquert es alle wasserleitenden Boden- und Gesteinsschichten, bis es auf den wasserführenden Grundwasserleiter trifft.
Sorption	ist eine Sammelbezeichnung für Vorgänge, die zu einer Anreicherung eines Stoffes innerhalb einer Phase oder auf einer Grenzfläche zwischen zwei Phasen führen.
Stauchendmoräne	ist eiszeitlich entstanden und eine wallartige Aufschüttung von Gesteinsmaterial am Ende eines Gletschers, sie kennzeichnet die Linie des maximalen Gletschervorstoßes oder eines Gletscherstillstandes. Sie zeichnen sich oft durch sehr hohe Reliefenergie aus und entstehen, wenn durch den Druck eines vorstoßenden Gletschers älteres Material, das vor der Gletscherfront abgelagert wurde, unter horizontalen und vertikalen Druck gerät und dabei gestaucht und aufgeworfen wird.
Tertiär	Erdzeitalter (von 65 bis 2,6 Millionen Jahre vor unserer Zeit).
Transformationsprodukt	entstehen in der Umwelt bzw. in der Gülle (s. auch Metabolit).
Uferfiltrat	Wasser, das in Ufernähe eines Flusses durch Brunnen gewonnen wird. Ein geringer Teil des Flusswassers sickert ständig durch die Flusssohle und weiter durch den Boden auf den Brunnen zu. Das Uferfiltrat enthält dann mit Grundwasser vermisches Flusswasser, das durch die Bodenpassage teilweise gereinigt wurde.
Viehbesatzdichte	Maß für die räumliche Dichte des Flächenbesatzes mit Nutztierhaltungen, ausgedrückt in Großvieheinheiten je Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche.
Vorflut	ist das Entwässerungsnetz ‚vor der Flut‘, genauer Flüsse.
Wiederfindungsrate	ist ein Kriterium zur Bewertung von analytischen Verfahren oder Messverfahren. Sie ist das Verhältnis eines Analyten, der vor der Probearbeitung zu einer Probe zugefügt wird und der Menge dieses Analyten, die als Messergebnis gefunden wird.
Wirtschaftsdünger	Wirtschaftseigener Dünger, organische Substanzen wie Gülle, Jauche, Mist, Stroh, Futterreste, Rindenmulch, Pflanzenrückstände, Gärreste aus Biogasanlagen.

## 1 Zusammenfassung

### 1.1 Hintergrund, Ausgangssituation und Zielstellung

In der Intensiv-Tierhaltung ist der Einsatz von Medikamenten weit verbreitet. Die heutige stark arbeitsteilige Tierhaltung - z. B. die Trennung von Aufzucht und Mast - führt zu häufigen Ortswechseln der Tiere und zur Zusammenstellung neuer Tiergruppen durch den Kauf von Tieren von unterschiedlichen Züchtern aus dem In- und Ausland. Stress im Zusammenhang mit der Haltung und dem Transport der Tiere bzw. der Neugruppierung von Tieren erhöht ihre Infektionsanfälligkeit und führt zu steigenden Erkrankungsraten. Diese werden dann häufig mit antibakteriell wirksamen Arzneimitteln (Antibiotika) oder mit Antiparasitika behandelt.

Tierarzneimittel (TAM) werden aktuell deutlich häufiger eingesetzt als Antibiotika in der Humanmedizin. Im Jahr 2012 wurden rund 1619 Tonnen Antibiotika von pharmazeutischen Unternehmen und Arzneimittelgroßhändlern an Betreiber tierärztlicher Hausapotheken abgegeben. Gegenüber den Abgabemengen in der Humanmedizin - jährlich rund 630 Tonnen - entspricht dies etwa der zwei- bis dreifachen Menge. Mit jeder Antibiotika-Anwendung steigt die Gefahr der Resistenzbildung. Eine Infektion mit multiresistenten Keimen (z. B. ESBL und MRSA) kann häufig nur noch sehr schwer behandelt werden. Laut WHO sterben in Europa jährlich 25.000 Menschen an einer Infektion mit multiresistenten Keimen.

Die an die Tiere verabreichten Antibiotika verbleiben nur zu einem geringen Teil im Organismus. Ein Großteil (etwa 60 bis 80 %) der Wirkstoffe und deren Umwandlungsprodukte werden wieder ausgeschieden. Mit der Ausbringung der Ausscheidungsprodukte als Wirtschaftsdünger (Gülle, Jauche oder Stallmist) gelangt ein Teil der Antibiotika oder deren Rückstände und Umwandlungsprodukte (Metabolite und/oder Transformationsprodukte) auf die landwirtschaftlichen Nutzflächen. Nach der Passage durch den Boden und die ungesättigte Zone besteht die Gefahr, dass sie in das oberflächennahe und/oder wasserwirtschaftlich als Trinkwasser genutzte Grundwasser sowie anschließend auch in oberirdische Gewässer ausgeschwemmt werden können. Ein Grenzwert für TAM existiert in der deutschen Trinkwasserverordnung nicht.

Ziel des Forschungsvorhabens war es, anhand eines „worst case“-Ansatzes zu untersuchen, ob bei ungünstigen Standortbedingungen und unter repräsentativen Probenahmebedingungen der Eintrag ausgewählter Tierarzneimittel in das oberflächennahe Grundwasser nachgewiesen bzw. ausgeschlossen werden kann. Daraus soll der weitere umwelt- oder gesundheitspolitische Handlungsbedarf bzw. weiterer Forschungsbedarf abgeleitet werden.

Der tatsächliche Verbleib der TAM in den unterschiedlichen Untergrundkompartimenten ist bisher - in Deutschland und international - wenig untersucht. Der aktuelle Belastungszustand des oberflächennahen Grundwassers in Deutschland durch TAM ist gänzlich unbekannt und stand daher im Fokus der in diesem Projekt durchgeführten Untersuchungen.

### 1.2 Projektdurchführung

Zu Beginn erfolgte eine national und international ausgerichtete Literaturrecherche zum aktuellen Forschungsstand (s. dazu Kapitel 4). Ziel war es hierbei, Substanzen für die Analytik auszuwählen, die für einen Eintrag in das Grundwasser relevant sind. Die Recherche war auf die folgenden Schwerpunkte gerichtet:

- Angaben zu Art und Menge der in Deutschland - und hier vor allem in den Regionen mit hoher Viehbesatzdichte in Nordrhein-Westfalen und Niedersachsen - eingesetzten Tierarzneimittel;

- Darstellung der Eintragswege und -Ursachen, sowie substanzspezifische Besonderheiten, die für die Ausbreitung in der Umwelt relevant sind;
- Dokumentation bereits vorhandener Forschungstätigkeiten zur Antibiotika- und Antiparasitikabelastung des Grundwassers (speziell auf bisher untersuchten Standorten mit Intensivtierhaltung);
- Methoden der laborchemischen Analytik und die Festlegung von Repräsentanzkriterien.

Obwohl Tierärzte die Medikamentenabgabe in Form von Arzneimittelanwendungs- und -abgabeberechnungen bereits seit einigen Jahren dokumentieren und Landwirte die Behandlungen in ihre Stallbücher eintragen müssen, sind verlässliche und genaue Zahlen zu Verschreibungs- und Anwendungsmengen von TAM in Deutschland selten und schwer erhältlich. Eine erste Erfassung der in Deutschland abgegebenen Antibiotikamengen wurde 2012 vom Deutschen Institut für medizinische Dokumentation und Information (DIMDI) durchgeführt. Ältere Studien - auf Bundes- oder regionaler Ebene durchgeführt - beruhen auf Schätzungen.

Die Auswertung der Ergebnisse der in Europa und in den Untersuchungsregionen in Deutschland mit sehr hoher Viehbesatzdichte in Niedersachsen (NI) und Nordrhein-Westfalen (NW) eingesetzten Wirkstoffe zeigt, dass in der Intensivtierhaltung ein breites Wirkungsspektrum eingesetzt wird. Die wichtigsten Wirkstoffgruppen Makrolide, Tetrazykline,  $\beta$ -Lactame und Sulfonamide kommen in allen Tiergruppen und Ländern zur Anwendung. Es ist nicht möglich, einen Wirkstoff klar und ausschließlich einer Tierart zuzurechnen.

Eine Studie aus Nordrhein-Westfalen (LANUV 2011) dokumentiert, dass in der Hähnchenmast bei den Wirkstoffkombinationen die Kombinationen Sulfamethoxazol/ Trimethoprim und Lincomycin/ Spectinomycin am häufigsten eingesetzt wurden. Sulfamethoxazol wird bisher in der Literatur (Loos et al. 2010, Hanke et al. 2007) als Humanarzneimittel geführt und konnte bereits mehrfach im Grundwasser nachgewiesen werden. An einer Bodendauerbeobachtungsfläche in NI wurde in Proben des Sickerwassers das TAM Sulfadimidin nachgewiesen. Im Grundwasser konnte es jedoch nicht detektiert werden. Um die Sicherheit der Angaben zum Einsatz von Wirkstoffen zu erhöhen, wurden die Verbraucherschutzbehörden der Landkreise kontaktiert und um Informationen zum gebietsspezifischen Einsatz der Wirkstoffe gebeten. Hierdurch konnte der Informationsstand optimiert werden.

Für die Beurteilung des Gefährdungspotenzials von TAM sind vor allem die toxikologischen Eigenschaften der Substanzen und Transformationsprodukte von Bedeutung. Literaturangaben über Löslichkeit, Abbaubarkeit, Abbaugeschwindigkeit unter aeroben und anaeroben Bedingungen sowie Sorptionseigenschaften von diesen und weiteren TAM wurden zur Abschätzung herangezogen, ob eine Substanz das Risikopotenzial hat, in das oberflächennahe Grundwasser zu gelangen.

Neben dem Einsatz in der Veterinärmedizin sind dokumentierte Funde von TAM im Grundwasser ein Indiz für deren Verlagerungsrelevanz. Es wurde daher die nationale und internationale Literatur hinsichtlich positiver Befunde von TAM im Grundwasser untersucht. Ziel war es, diejenigen Stoffe zu identifizieren, die bereits im Grundwasser nachgewiesen wurden und daher für die vorliegende Untersuchung prinzipiell relevant sein könnten. Im Ergebnis der Literaturstudie wurden insgesamt 23 Veterinär-Einzelwirkstoffe sowie zusätzlich das Antiepileptikum Carbamazepin, das als Tracer für Humanpharmaka gilt, für die Analytik ausgewählt (s. dazu Kap. 5).

Die Konzentrationen in den entnommenen Grundwasserproben wurden laboranalytisch mit Multimethoden, basierend auf Festphasenextraktion sowie der Kopplung von Flüssigchromatographie und Massenspektrometrie bestimmt. Die Nachweis- bzw. Bestimmungsgrenzen lagen bei allen Stoffen im Konzentrationsniveau von wenigen ng/l, und somit deutlich niedriger im Vergleich zur ausgewerteten Literatur der vergangenen Jahre.

Die Auswahl der Standorte der Messstellen, die alle anhand des zur Verfügung stehenden Pools von Messstellen der behördlichen Grundwasserüberwachung ausgewählt wurden, erfolgte nach den folgenden Kriterien im Sinne eines „worst-case“-Ansatzes im Hinblick auf den Eintrag von TAM in das oberflächennahe Grundwasser in Deutschland (s. dazu Kap. 6):

- sehr hohe gemeindebezogene mittlere Viehbesatzdichte ( $> 1,75$  GVE/ha LF) und daraus resultierende intensive Gülleaufbringung auf die landwirtschaftlichen Nutzflächen,
- primär sandiger und in geologischen Schichtenverzeichnissen dokumentierter Aufbau der Versickerungszone mit geringen summarischen Feldkapazitäten der gesamten ungesättigten Zone des Untergrundes oberhalb des Grundwassers,
- dadurch bedingte geringe natürliche Schutzfunktion der Überdeckung des oberflächennahen Grundwassers im ersten Grundwasserstockwerk,
- geringe Flurabstände des Grundwassers ( $< 5$  Meter) sowie daraus resultierend geringe Verweilzeiten des Sickerwassers in der ungesättigten Zone (durchschnittlich liegen die Verweilzeiten bei 32 Monaten Sickerpassage von der Erd- bis zur Grundwasseroberfläche),
- oberflächennaher Filterausbau der Messstellen möglichst nahe unterhalb der Grundwasseroberfläche (wenige Meter),
- sehr hohe Stickstoffgehalte im Grundwasser (Nitrat- und/oder Ammonium) oberhalb der EU-Schwellenwerte (Wasserrahmen- und Grundwasser-Richtlinie).

In den Zielgebieten mit besonders hoher Viehbesatzdichte in Nordrhein-Westfalen und NI wurden im hydraulischen Anstromgebiet der Messstellen unter Nutzung von Daten der Behörden zur Grundwasserdynamik und zur landwirtschaftlichen Nutzung Flächen mittels eines Geografischen Informationssystems (GIS) ausgewiesen, die als „Zustromgebiete“ für die Messstellen interpretiert werden können. Von hier strömen die mit dem Sickerwasser verfrachteten Stoffe relativ schnell zu den Messstellen und damit zu den Probenahmehorizonten. Zu diesen Zustromgebieten wurden von den zuständigen Institutionen (Landwirtschaftskammer und Wasserwirtschaftsamt) in den beiden Ländern Informationen zur tatsächlichen Gülleausbringung in den letzten drei Jahren übermittelt, die für die Interpretation der laboranalytischen Befunde genutzt werden konnten.

In Nordrhein-Westfalen wurden bereits in den Jahren 2008 und 2009 Untersuchungen auf Rückstände von Tierarzneimitteln im oberflächennahen Grundwasser durchgeführt. An einer Messstelle bei Nordick im Landkreis Borken lagen die Konzentrationen eines TAM-Wirkstoffes aus der Gruppe der Sulfonamide (Sulfamethoxazol, SMX) bereits damals wiederholt mit hohen Werten vor. Diese Messstelle wurde daher im vorliegenden Projekt erneut mehrfach beprobt.

Innerhalb der Zielgebiete in den vier Bundesländern wurden zur Untersuchung der TAM im Grundwasser jeweils 20 Grundwassermessstellen in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen sowie sechs Quellfassungen in Bayern und zwei Messstellen in Sachsen an insgesamt 48 Standorten ausgewählt. 39 der Standorte repräsentieren unverfestigte Lockergesteins- und neun Standorte Festgesteinsgrundwasserleiter (s. dazu Kap. 7).

Den 48 Messstellen wurden 2012 und 2013 je zweimal Proben entnommen. Die Probenentnahme wurde im Rahmen des routinemäßigen behördlichen Grundwasser-Monitorings realisiert, sie war also in die Messkampagnen der Landesbehörden integriert. Diese führten neben der Probenahme auch die Laboranalytik auf die Hauptinhaltsstoffe (salzbildenden Ionen) des Grundwassers durch, mit denen u. a. Plausibilitätskontrollen der analysierten Konzentrationen durchgeführt werden konnten. Diese zeigten durchweg eine hohe Qualität der Laboranalytik mit geringen Abweichungen der berechneten Ionenbilanzen. Insgesamt liegen pro Probe jeweils 64 Einzelwerte der chemischen Laboranalytik zzgl. der Daten der Probenahme vor Ort vor (s. dazu Kap. 8).

Am Standort Nordick im Kreis Borken in Nordrhein-Westfalen mit einer bereits vorab bekannten hohen Belastung des Grundwassers durch den Wirkstoff SMX wurden darüber hinaus in einem engeren zeitlichen Raster Proben entnommen. In einem Zeitraum von 15 Monaten (August 2012 bis Oktober 2013) wurde diese Messstelle fünfmal beprobt. Damit sollten hier mögliche saisonale Varianzen des hohen TAM-Eintrags in das Grundwasser untersucht werden, die sich ggf. lokal durch eine zusätzliche Bewässerung der Nutzflächen am Standort ergeben könnten.

Überdies wurden alle Grundwasserproben auf das Antiepileptikum Carbamazepin untersucht. Dieser Stoff wird aufgrund der seit vielen Jahren hohen Einsatzmengen und des mobilen Verhaltens im Untergrund aktuell weitverbreitet im oberflächennahen Grundwasser in Deutschland nachgewiesen, er gilt quasi als Tracer für den Eintrag von kommunalem Abwasser. Sollte er in den Proben nicht detektierbar sein, kann das als Beleg für den tatsächlichen Eintrag von TAM über die Gülle von Tieren gewertet werden. Diese Strategie war vor dem Hintergrund des Projektziels notwendig, da einige Einzelwirkstoffe (z. B. SMX) sowohl in der Human- als auch in der Tiermedizin eingesetzt werden.

### 1.3 Ergebnisse

Die insgesamt im Projekt gewonnenen 100 Grundwasserproben repräsentieren überwiegend relativ junges, neu gebildetes Grundwasser mit einer für die Standortverhältnisse typischen Gesamtmineralisierung. Die anhand einer genetischen Grundwassertypisierung ermittelten hydrochemischen Befunde stehen damit in Übereinstimmung mit den bekannten Stammdaten der Messstellen. Die für den Abbau und / oder die Metabolisierung zur Verfügung stehende Zeit, die mindestens die durchschnittlich berechneten 32 Monate umfasst - zuzüglich der nicht bekannten Aufenthaltszeit im Grundwasser -, kann im Vergleich zu oft mehreren Jahren bis Jahrzehnten umfassenden Aufenthaltszeiten des Wassers im Untergrund als kurz bewertet werden. Die Wahrscheinlichkeit des Auftretens der TAM im Grundwasser ist damit vergleichsweise hoch. Dies entspricht dem o. g. „worst case“-Ansatz der Standort- und Messstellenauswahl.

Bei der ersten Beprobung im Jahr 2012 konnte die aus den Daten der Behörden vorab abgeleitete hohe Stickstoffbelastung des Grundwassers bestätigt werden. Jede Probe führte Stickstoff in Konzentrationen, die entweder über dem EU-Schwellenwert für Nitrat (50 mg/l) oder für Ammonium (0,5 mg/l) lag. Die Sauerstoffgehalte und die Redoxzustände der Grundwässer schwankten erheblich, in der Mehrzahl der Proben handelte es sich jedoch um sauerstoffarmes und reduziertes Grundwasser, vor allem in den Messstellen mit sandigem und/oder lehmigem Aufbau der ungesättigten Zone. In den neun Proben aus den Festgesteinsgrundwasserleitern dominieren dagegen oxidierte Milieus mit entsprechend hohen Nitratgehalten. Auch andere Inhaltsstoffe (Kalium, ortho-Phosphat) deuten auf die deutliche Beeinflussung der Grundwasserbeschaffenheit durch die landwirtschaftliche Nutzung der Flächen im Zustrom der Messstellen hin.

Bei den 48 Grundwasserproben des Jahres 2012 wurden 20 der 23 TAM-Einzelwirkstoffe in keiner Probe oberhalb der jeweiligen Nachweisgrenze analysiert. Die drei nachgewiesenen Wirkstoffe verteilen sich auf vier Messstellen (also etwa 8 % der untersuchten Messstellen) in Nordrhein-Westfalen und Niedersachsen. In Bayern und Sachsen gab es gar keine Funde, auch nicht 2013. Alle drei nachgewiesenen Einzelwirkstoffe gehören den Sulfonamiden an. Tetrazykline sowie alle anderen Wirkstoffe konnten im Grundwasser nicht nachgewiesen werden (s. dazu Kap. 9).

Zwei der drei nachgewiesenen Sulfonamide (Sulfadiazin und Sulfadimidin) wurden in drei Proben (zwei davon in Niedersachsen, eine in Nordrhein-Westfalen) mit einer maximalen Konzentration von 11 ng/l knapp oberhalb der jeweiligen Nachweisgrenze (2 bzw. 1 ng/l) gefunden. Diese Werte liegen fast immer deutlich unterhalb der in den vergangenen Jahren in der Literatur dokumentierten Konzentrationen im Grundwasser weltweit. Ermöglicht wurden diese Ergebnisse

durch die sehr niedrigen Nachweisgrenzen des Labors. Bei einer der drei Messstellen handelt es sich um einen karbonatisch geprägten Festgesteinsgrundwasserleiter. Das ist der erste dokumentierte Fund eines TAM-Wirkstoffes in diesen Bildungen.

Die im August 2012 entnommene Probe der Messstelle Nordick in Nordrhein-Westfalen enthielt den TAM-Wirkstoff SMX mit einer Konzentration von 230 ng/l, zugleich enthielt die Probe Carbamazepin, jedoch nur in einer extrem geringen Konzentration (0,35 ng/l) knapp oberhalb der Bestimmungsgrenze. Damit wurden die bereits 2008 und 2009 vom LANUV Nordrhein-Westfalen nachgewiesenen Konzentrationen von SMX an diesem Standort in der Größenordnung bestätigt. Andere Stoffe wurden in der Probe nicht nachgewiesen.

Die Wiederholungsbeprobung im Jahr 2013 bestätigte in hydrochemischer Hinsicht die 2012 gewonnenen Informationen zur allgemeinen Charakterisierung der Grundwasserbeschaffenheit. Insgesamt wurden 2013 von den 48 Messstellen 52 Proben analysiert. Zusätzlich zu den von den Partnerinstitutionen entnommenen Proben wurden in Nordick im März, August und Oktober drei weitere und in Bösel im September eine weitere Probe entnommen. Bei sechs der 48 Messstellen (= 13 %) gab es 2013 Funde > Bestimmungsgrenze. Bei drei der sechs gab es bereits 2012 Funde.

Bei den Wirkstoffen handelte es sich auch 2013 ausschließlich um Sulfonamide, und zwar die gleichen wie bereits 2012 (SMX, Sulfadiazin und Sulfadimidin). In zwei der acht Messstellen in Niedersachsen wurde Sulfadimidin zwischen der Nachweis- und der Bestimmungsgrenze (< 3 ng/l) detektiert. Bei vier weiteren Messstellen (in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen) lagen die Konzentrationen wie bereits 2012 sehr niedrig, maximal 6 ng/l Sulfadimidin. Bei den übrigen beiden Messstellen jedoch wurde SMX in hohen Konzentrationen nachgewiesen: in Nordick in Nordrhein-Westfalen wiederholt (vier Proben 2013 von März bis September) im Bereich bzw. oberhalb von 200 ng/l (maximal 228 ng/l) und bei der Messstelle Bösel I in Niedersachsen („I“ steht für den oberen Ausbau einer Messstelle) mit 138 bzw. 950 ng/l im Mai und September 2013. In Nordick wurde erneut Carbamazepin, diesmal jedoch unterhalb der Bestimmungsgrenze von 0,3 ng/l detektiert. In Bösel wurde zudem Sulfadimidin (4 ng/l), Carbamazepin jedoch nicht nachgewiesen.

Funde gab es nur in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen, in Bayern und Sachsen waren alle 16 entnommenen Proben frei von allen 23 untersuchten Wirkstoffen. Über beide Jahre hinweg betrachtet wurden in sieben der 48 wiederholt untersuchten Messstellen TAM-Wirkstoffe oberhalb der Bestimmungsgrenze nachgewiesen, das sind 15 %. Fundbezogen sind es 12 %, da bei 12 der insgesamt 100 entnommenen Grundwasserproben der Jahre 2012 und 2013 Wirkstoffe oberhalb der Bestimmungsgrenze nachgewiesen wurden.

#### 1.4 Interpretation der Ergebnisse

Insgesamt betrachtet kann man die Messstellen in drei Gruppen einteilen:

- bei 39 Messstellen wurden gar keine TAM nachgewiesen,
- bei sieben Messstellen wurden Sulfonamide in sehr niedrigen und
- bei zwei Messstellen wurden Sulfonamide in sehr hohen Konzentrationen nachgewiesen.

Die o.g. niedrigen Nachweise können nach dem derzeitigen Informationsstand nicht eindeutig bewertet werden, da hier Wiederholungsuntersuchungen über mehrere Jahre hinweg notwendig wären, um einen eindeutigen und hydrochemisch signifikanten Befund konstatieren zu können. Vermutet werden hier jedoch stoffspezifische Besonderheiten der beiden betroffenen Wirkstoffe der Sulfonamide, von denen bekannt ist, dass sie gut an Bodenpartikel sorbieren, von diesen aber auch periodisch wieder abgegeben werden können.

Auch die in nur 3 Meter Tiefe in Feinsanden verfilterte Messstelle in Niedersachsen mit einem einmalig sehr hohen, aber anhand der vorhergehenden beiden Beprobungen nicht eindeutig bestätigten Nachweis, müsste häufiger beprobt werden, um die bisher drei vorliegenden, heterogenen Befunde sicher interpretieren zu können.

In Nordick jedoch ist die Befundlage nach inzwischen sieben gleichbleibend hohen Nachweisen von SMX über einen Zeitraum von sechs Jahren eindeutig. Der Standort zeichnet sich durch einige Besonderheiten aus, die eine Übertragung auf naturräumlich vergleichbare Standorte in Deutschland erschweren. Die durch Rinderhaltung geprägte Viehbesatzdichte liegt mit 2,3 GVE/ha\*LF mehr als doppelt so hoch wie im Bundesdurchschnitt. Zudem besteht im unmittelbaren Zustrom zur Messstelle eine Bewässerungsanlage, welche die hier bereits sehr hohe natürliche Grundwasserneubildungsrate - 436 mm/a, das sind mehr als doppelt soviel wie der Bundesdurchschnitt - vermutlich noch deutlich erhöht. Das mit Rückständen aus der Gülle belastete Sickerwasser von den landwirtschaftlichen Nutzflächen, die in den vergangenen drei Jahren vor allem mit Rindergülle und Biogasgärresten beaufschlagt wurde, könnte dann noch rascher ins Grundwasser gelangen, als es sich aus den bekannten Untergrundparameter mit sieben Monaten derzeit berechnen lässt. Das kann hier vor allem deshalb von Bedeutung sein, weil das Bohrprofil bis zur Filtertiefe von 6 Meter unter Gelände ausschließlich Sande und Kiese unterschiedlicher Körnung der kretazischen „Halturner Sande“ zeigt. Diese besitzen sehr niedrige Gehalte an organischem Kohlenstoff und damit sehr geringe natürliche Sorptions- und Abbaupotenziale für SMX.

Eindeutig ist die Befundlage vor dem Hintergrund der Recherche im Hinblick auf die nachgewiesenen Wirkstoffsubstanzen, da Sulfonamide bisher die am häufigsten im Grundwasser analysierten Antibiotikawirkstoffe weltweit sind und auch in den Zielregionen eingesetzt werden.

Bei den sieben Messstellen mit Funden von Sulfonamiden (Sulfadimidin und Sulfadiazin) im niedrigen Konzentrationsbereich nahe der Bestimmungsgrenzen konnten keine standortbezogenen Auffälligkeiten festgestellt werden, die sie von den übrigen 39 Standorten ohne Funde signifikant unterscheidet. Bei den beiden Messstellen mit hohen Funden hingegen deuten sich standortspezifische Eigenschaften des Untergrundes an - vor allem geringe pedologisch und lithologisch bedingte Sorptionskapazitäten sowie eine gute Belüftung mit resultierenden hohen Redoxpotentialen -, die den Eintrag der Wirkstoffe in das Grundwasser ermöglichen.

## **1.5 Schlussfolgerungen und Empfehlungen**

Insgesamt und vor dem Hintergrund des gewählten worst-case-Ansatzes kann auf Basis der Ergebnisse des Projektes geschlussfolgert werden, dass der Eintrag von Tierarzneimitteln in das oberflächennahe Grundwasser unter den naturräumlichen und hydrogeologischen Bedingungen in Deutschland zwar nicht ubiquitär stattfindet, dennoch bei besonders ungünstigen Standortbedingungen nachgewiesen wurde. Dort kann er dann auch sehr deutlich ausgeprägt sein, jedoch mit einer hohen zeitlichen Variabilität.

Die betroffenen Standorte mit Funden in den beiden Ländern sollten in zeitlich höherer Auflösung (monatliche oder quartalsweise Beprobungen) weiter beprobt werden. Empfohlen wird zudem eine integrale Untersuchung aller Umweltkompartimente von der eingetragenen Gülle über den Boden, das Sickerwasser bis zum Grundwasser, um ein Systemverständnis zum Eintrag von Wirkstoffen, zu deren Umwandlung oder Abbau sowie zum Eintrag - ggf. auch von Transformationsprodukten - in das Grundwasser zu erlangen.

Inwiefern auch bereits wasserwirtschaftlich genutzte Trinkwasservorkommen in den betroffenen Regionen betroffen sind, kann mit den Ergebnissen des Projektes nicht bewertet werden. Dazu müssten für den TAM-Eintrag geeignete Vorfeldmessstellen oder Trinkwasserbrunnen in besonders gefährdeten Regionen untersucht werden.

Ein Defizit besteht bei präzisen Informationen zu den eingesetzten Wirkstoffen und bei Daten zu den Verbrauchsmengen. Hier wird auch aktuell kein Fortschritt durch die in Entstehung befindlichen Datenbanken erreicht. Unzureichend ist hier die räumliche Auflösung, da nur die Postleitzahlen bis zur 2. Stelle erfasst wird und damit kein Gemeindebezug herstellbar ist.

Defizite und Wissenslücken bestehen auch im Hinblick auf die Probengewinnung. Im Projekt wurden ausschließlich vorhandene Grundwassermessstellen verwendet, die den Nachteil haben, dass ihre räumliche Lage und ihre vertikale Verfilterung oft nicht hinreichend an die Fragestellung angepasst sind. Variable Grundwassersondierungen mit der Möglichkeit der tiefendifferenzierten Beprobung des Sicker- und Grundwassers würden hier eindeutiger interpretierbare Daten liefern. Dazu bieten sich die Zustromgebiete der Standorte mit bisherigen Funden an. Ebenso ist es sinnvoll, zukünftige Untersuchungen zum TAM-Eintrag in das Grundwasser auf weitere Regionen in Deutschland (z. B. mit höheren Grundwasserneubildungsraten) auszudehnen und die Kriterien der Standortauswahl breiter zu fassen, z. B. die Nähe von Biogasanlagen. Auch die Kooperation mit der Landwirtschaft sollte weiterhin gesucht werden, um möglichst präzise Informationen zur eingetragenen Gülle und den enthaltenen Wirkstoffen zu erlangen.

## **2 Extended summary**

### **2.1 Background and aims**

For intense cattle breeding the use of medications is widely spread. Today's animal husbandry which is strongly based on division of labor - e.g. the segregation of upbringing and mast - leads to frequent change of location for the animals and configuration of new animal groups by purchasing beasts of different domestic and foreign breeders. Stress caused by the transport or regrouping of the animals increases their liability to infections and leads to ascending ratios of diseases. These are mostly treated with drugs (antibiotics) or antiparasitics.

Animal drugs are currently considerably more applied than antibiotics in human medicine. In 2012 about 1619 tons of antibiotics were yielded from pharmaceutical companies to carriers of veterinary dispensaries. Compared to the disposal portions in human medicine (around 630 tons per year) this corresponds to the triple amount. For each antibiotic application the risk of developing resistance is increasing. The treatment of an infection with multi-resistant bacteria (e.g. ESBL and MRSA) is now hardly feasible. According to WHO 25,000 people in Europe die of an infection with multi-resistant germs every year. Just a small amount of the administered antibiotics remain in the animals' organisms. The majority of the substances (around 60 to 80%) and their transformation products are discarded. Parts of the antibiotics or their residues and transformation products (metabolites) reach the agricultural area as turnout of excrement in farm fertilizer (slurry or manure). After percolating through the soil and unsaturated zone, there is a risk that they might be flushed out into the near-surface water and/or groundwater with hydrological domestic use. There is no threshold value in the German drinking water directive for antibiotics.

The aim of this study is to research, if the entry of specific veterinary drugs into near-surface groundwater could be significantly verified respectively excluded for unfavorable local conditions and representative sampling terms on the basis of a worst-case scenario. Thus we can convey a further need of action for ecology and health care respectively need for additional research. The actual disposition of the veterinary drugs in the different subsurface strata is barely explored neither in Germany nor internationally. The current contamination of near-surface groundwater with veterinary medical substances in Germany is entirely unknown and therefore it is the center of this project's investigations.

## 2.2 Methods

In the beginning, a literature research on the current state of research on a national and international basis was carried out (see also Chap. 4). The aim in this working group was to choose substances for analytics, which are relevant on groundwater input. The research was focused on the following key aspects:

- Information on type and amount of the applied veterinary drugs in Germany, especially for the areas with high cattle density in North Rhine-Westphalia (NW) and Lower Saxony;
- Description of routes and reasons of input as well as specific characteristics of the substance that are relevant for the environmental dispersion;
- Documentation of already existing research work on groundwater contamination with antibiotics and antiparasitics (especially already analyzed sites of factory farming);
- Methods of clinical and laboratory analysis as well as the definition of representation criteria.

Although veterinaries have to document the medical dispensing in terms of medical application and hand over receipts, farmers have to record the treatment in their stable books for some years now, reliable and exact numbers on prescription and application amounts of veterinary medicals in Germany are hardly available. In 2012, the German Institute of Medical Documentation and Information (Deutsches Institut für medizinische Dokumentation und Information, DIMDI) held a first compilation of the used amounts of antibiotics in Germany. Prior studies - which were carried out on federal or local level - are based on estimations.

The analysis of the results of the applied substances within Europe and the German research areas with a high cattle density shows, that a wide range of active substances is applied within factory farming. The major groups of active agents are Macrolides, Tetracyclines,  $\beta$ -Lactames and sulfonamides. They are applied over all animal groups and countries. The precise and exclusive allocation of an active substance on a specific species is not possible.

According to a current study from North Rhine-Westphalia (LANUV 2011) the most commonly adopted combinations of active agents in chicken mast appear to be the combinations of Sulfamethoxazol/ Trimethoprim and Lincomycin/ Spectinomycin. Up to now, literature is specifying Sulfamethoxazol as part of the human medicine and was identified several times in groundwater samples. In an area of permanent soil observation in Lower Saxony the veterinary drug Sulfadimidin was proven in samples of infiltration water. However, it couldn't be detected in groundwater. To enhance the certainty on record of the application of active substances, the food standards agencies of the rural districts were contacted and asked for further information on use of active substances specified in the areas. Thus the level of information was optimized.

For estimations on the risk potential of veterinary drugs, the toxicological characteristics of the substances and transformation products are most important. To consider the potential danger of attaining near-surface groundwater references on solubility, degradability, degradability rate under aerobic and anaerobic conditions, as well as sorption qualities were used as a basis for comparison for these and other veterinary drugs.

Apart from the general use of veterinary drugs in veterinary medicine the documented occurrence in groundwater provide another evidence for the relevance of relocation of these substances. Thus, national and international literature was analyzed for further information on positive results of veterinary medicine in groundwater. The aim was to identify the substances, which were already verified in groundwater and could be relevant for the present study. As a result of the literature research a total of 23 single active substances were chosen for the analytics (see also Chap. 5).

The concentrations of these substances within the gathered groundwater samples were analytically analyzed with multi-methods, based on solid phase extraction as well as linking fluid chromatography and mass spectrometry. The detection respectively quantification limits were on a concentration level of a few ng/l for all substances, which is considerably lower compared to data from literature of previous years.

The choice of groundwater measurement points, which were chosen from the available control points of the governmental groundwater monitoring. It is based on a realistic worst-case scenario with regards to deposition of veterinary medicals in near-surface groundwater in Germany by addressing the following criteria (see also Chap. 6):

- Very high, community related average cattle density ( $>1.75$  livestock units/hectare utilized agricultural area (GV/ha\*LF)) and resulting intense slurry application to the agricultural land;
- Primary sandy and in geological soil profile documented structure of the infiltration zone with low summarized field moisture capacity of the total unsaturated subsurface zone above groundwater;
- Thus resulting low natural protective function of the near-surface groundwater covering on first groundwater story;
- Little distance from ground to groundwater ( $< 5$  meters) as well as low dwells of the soakage in the unsaturated zone (the average dwells are around 32 months of seeping passage from ground- to groundwater surface) as a result of that;
- Construction of well screens for the monitoring points near to ground level and possibly close to groundwater surface (few meters);
- Very high nitrogen contents in groundwater (Nitrate and/or Ammonium) above EU thresholds (after Water Framework Directive and Groundwater Directive).

In the destination areas with an especially high cattle density in NW and Lower Saxony, areas, which are in the hydraulic upstream flow of the measurement points, were disclosed with a geographic information system (GIS) using regulatory data with regards to the groundwater dynamics and agricultural use. They can be regarded as “influx areas” of the measurement points. Coming from these areas the slurry-transporting soakage flows considerable quickly to the measurement points and accordingly to the sampling levels. For these two influx areas information on the actual slurry turnout over the last three years was given by the responsible institutions (Chamber of Agriculture and Water Board) from the two federal states, which could be used for the interpretation of the analytical results.

In 2008 and 2009, studies on residues of veterinary medicals in near-surface groundwater were carried out in NW. At the measurement point close to Nordick, in the rural district of Borken, NW, an active substance out of the group of sulfonamides (SMX) occurred several times in high concentrations. Thus samples were taken several times during this project.

Concerning all in all 48 sites, 20 groundwater measurement points were chosen within the destination areas of the two federal states Lower Saxony and NW to study on veterinary drugs in groundwater as well as two additional points in Saxony and six blow wells in Bavaria. 39 locations represent aquifers with unconsolidated sediments whilst nine sites are composed of consolidated rock (see also Chap. 7).

In 2012 and 2013 two samples were taken from each of the 48 measurement points. The sampling was carried out during the routine regulatory groundwater monitoring, as part of the authority’s field campaign. Apart from drawing samples they also realized the laboratory analytics on the main substances (saliferous ions) of the groundwater, which were used to carry out

plausibility checks of the analyzed concentrations. They throughout revealed a high quality of the laboratory analytics with slight variations of the computed ion balance. In total 64 single values are available per groundwater sample from laboratory analytics plus data of the field sampling process (see also Chap. 8).

With a previously known high groundwater contamination with the active substance Sulfamethoxazol, samples were taken in short time intervals at the Nordick site. Within a period of 15 months (August 2012 to October 2013) the measurement point was sampled five times. Thus any possible seasonal variations of the high substance values were analyzed, which could locally be caused by additive irrigation activities of the site's utilized agricultural area.

Additionally all groundwater samples were tested for the anticonvulsant Carbamazepine. It could be classified more or less as a tracer for the input of human medication as it can currently be detected in near-surface groundwater widely spread all over Germany for its' high input and mobile behavior in subsoil. In case that it can't be verified in the samples this can be assessed as a proof for the actual input of sewage water. This strategy was necessary against the background of the project's aim since several individual active substances (e.g. SMX) are applied to both human and veterinary medicine.

## 2.3 Results

The total of 100 groundwater samples which were gained during the project represent quite young, recently developed groundwater with a site-typical total mineralization. The hydrochemical results, which were established by a genetic standardization, are in accordance with the known master file data of the measurement points. The available time for degradation and metabolism, which comprises at least the mean computed time of 32 months additional the unknown residence time in groundwater, can be put down as short compared to average residence time of water in deeper basement of several years up to decades. The possibility of active agents occurring in groundwater can hence be evaluated as quite high. This correlates with the above-mentioned worst-case scenario for site and measurement point selection.

For the first sampling operation in 2012 the formerly from authority data derived high load of nitrogen deposition in groundwater was confirmed. Every sample contained nitrate concentrations which exceeded either nitrate (50 mg/l) or ammonium (0,5 mg/l) thresholds of the EU. The oxygen contents and the redox conditions of groundwater deviated considerably; the majority of samples however concerned deoxidized oxygen-poor groundwater, especially the wells with sandy and/or loamy composition of the unsaturated zone. In contrast, oxidized environments with correspondingly high nitrate levels dominated the nine samples from aquifers in consolidated rock. Other substances (potassium, ortho-phosphate) indicate the obvious influence of groundwater characteristics by the agricultural land use within the measurement point influx.

In the 48 groundwater samples from 2012, 20 of the 23 veterinary active substances could not be verified within detection and quantification limit as well as above the detection limit. The three detected active substances are distributed over four measurement points in NW and Lower Saxony (approx. 8% of all wells). In Bavaria and Saxony, no agents could be identified in groundwater. The three detected active substances form part of the sulfonamide-group. Tetracycline and all other substances couldn't be verified in groundwater samples (see also Chap. 9).

Two out of the three detected sulfonamides (Sulfadiazine and Sulfadimidin) could be found slightly above the detection limit (2 respectively 1 ng/l) with a maximum concentration of 11 ng/l in three samples (two from Lower Saxony, one from NW). For most cases, these values considerably underlie the documented concentrations in groundwater worldwide of the past years. These results were enabled by the extremely low detection limits of the laboratory. One out of

the three measurement points affected a consolidated aquifer of carbonate rocks. This is the first documented case within such formations with proof of an active agent.

Sulfamethoxazol was detected in a sample from the measurement point Nordick, NW with the concentration of 230 ng/l. Simultaneously the sample contained also Carbamazepin, but in a very low concentration just above the quantification limit (0,35 ng/l). This was a confirmation of Sulfamethoxazol findings in similar concentrations by the LANUV NW in 2008 and 2009 at the same measurement point. Other veterinary compounds were not detected in this sample.

The repeated sampling in 2013 confirmed the 2012 obtained data regarding the general characterization of the groundwater quality. In 2013, overall 51 samples from 48 measurement points were analyzed. In addition to the samples, taken by authorities, three further samples were taken in Nordick in March, August and October. There were positive findings > LOQ in six of the 48 measurement points (13 %) in 2013. Three of the eight had already findings in 2012.

In 2013 only sulfonamides were detected which have been already identified in 2012 (SMX, Sulfadiazin, Sulfadimidin). Two of the eight measurement points in Lower Saxony showed Sulfadimidin concentrations between the detection and the quantification limit. Four further measurement points (in Lower Saxony and NW) showed very low concentrations of Sulfadimidin with maximum concentrations of 6 ng/l. However, the remaining two measurement points showed very high concentrations: in Nordick repeated measurements showed concentrations within the range or above 200 ng/l (maximum 228 ng/l) and concentrations of 138 ng/l and 950 ng/l were measured at the measurement points Bösel I (in Lower Saxony) in May and September, respectively. In Nordick Carbamazepin was detected again, this time however below the quantification limit. At the measurement point Bösel I Sulfadimidin was detected (4 ng/l) but no Carbamazepin.

There were only positive findings in Lower Saxony and NW, in contrast none of the analyzed substances could be detected in the 16 samples obtained from the measurement points in Saxony and Bavaria. In 2012 and 2013 veterinary drugs were repeatedly detected in seven of the 48 measurement points, which represent about 15 % of all observed measurement points. Concerning all individual samples active substances could be identified in 12 % of all obtained samples in 2012 and 2013.

## 2.4 Interpretation

We can divide into three kinds of different results:

- At 39 measurement points there are no detections of veterinary drugs,
- At seven measurement points sulfonamides are detected in low concentrations and
- At two measurement points Sulfonamides are detected in very high concentrations.

The positive findings of low concentrations cannot be clearly evaluated, repeated measurements over several years would be necessary to confirm the result. The same holds true for the measurement points in Lower Saxony, which has its well screen depth in only 3 m below the ground level and is located in fine sands. At this well a very high concentration has been measured, which could not yet be confirmed. However, in Nordick the results of constant high levels of SMX during a period of six years have been confirmed. This site has some particular characteristics, which do not allow a direct transfer to sites with similar lithological and hydrogeological conditions in Germany.

This area has a high cattle density of about 2.3 GV/ha\*LF, which is two-fold higher than the German average. Furthermore, there is an irrigation in close vicinity leading to an influx, which

significantly increases the natural groundwater recharge rate of 436 mm/a, this is twice of the average in Germany.

Due to irrigation the soakage, which has been contaminated by beef manure and by residuals of fermentation plants over the last three years, could penetrate into groundwater much more rapidly as calculated for seven months based on the known underground parameters. This might be of an importance as the well logs of the measurement points contain mostly sands and gravel in different grain sizes of the cretaceous formation "Halterner Sande" down to the well screen at 6 m below ground surface. These sands have very low levels of organic carbon, and therefore a low potential for the sorption and degradation for SMX.

With the background that sulfonamides are the most detected single active substances in groundwater worldwide and are used in the area of interest, findings of the research is clear.

At seven measuring points on which sulfonamides (Sulfadimidin and Sulfadiazine) have been identified with concentrations close to the limit of detection and quantification no extinct natural characteristics could be found. However, the locations with high concentrations of sulfonamides show characteristic conditions of the underground, as low buffering- and degradation capacities, resulting from the lithology and hydrochemistry.

## 2.5 Recommendations

All in all, with the background of the chosen worst-case-approach, the project outcome can be reasoned, that the entry of veterinary drugs in near-surface groundwater is not ubiquitous in Germany by the criteria of natural landscapes and hydrogeological terms. However, unfavorable conditions of single locations show an, partly high, input of active substances with a high seasonal variability. Measurement points with positive findings both, in NW and Lower Saxony, should be further investigated over a longer period with short sampling intervals (e. g. monthly). It is recommended to accomplish an integral investigation of all environmental systems, beginning with the irrigation slurry to the soil, the soakage to groundwater, to gain a better understanding of the processes involved in the entry of active substances into the groundwater-system, its transformation, degradation and if applicable of its transformation products.

The scope of the project, however, does not involve an evaluation of veterinary drugs in drinking water resources, which are currently used for human consumption in the study area. To emphasis on this, an additional examination in vulnerable areas on measurement points in the influx of the water works or on the drinking water wells itself should take place. At the moment, there are no specific data available for the used active substances and their consumption rate. The nationwide data base, which is currently in development, is gathering information on a regional scale based on zip-codes up to the second number. Therefore no detailed data on a community level can be gained.

Knowledge gaps and shortages also exist with regards to the groundwater sampling. Within this project prior existing measurement points were used. The downside is, the location and vertical well screens are fix and often not optimal of this issue. Variable groundwater probing could be used to distinguish water characteristics of soakage and groundwater in different depths. These would be especially useful at the influx of the locations with positive results on veterinary drugs.

It might be sensible as well to extent future investigations with regards to the input of veterinary active substances into groundwater to further areas in Germany (e.g. with high groundwater recharge) and widen the criteria to determine the research locations, e.g. vicinity of fermentation plants. To gain more detailed information for the slurry and its active substances, the co-operation with local farmers should be further established.

### 3 Veranlassung und Zielstellung

In der intensiven landwirtschaftlichen Tierhaltung ist der Einsatz von Medikamenten wie Antibiotika weit verbreitet. Die heutige stark arbeitsteilige Tierhaltung (Trennung von Aufzucht und Mast) führt zu häufigen Ortswechseln der Tiere bzw. auch zur Zusammenstellung neuer Tiergruppen durch den Kauf von Tieren von unterschiedlichen Züchtern aus dem In- und Ausland. Stress im Zusammenhang mit dem Transport der Tiere bzw. der „Neugruppierung“ von Tieren kann ihre Infektionsanfälligkeit erhöhen und führt dann zu steigenden Erkrankungsraten. Diese müssen dann häufig mit antibakteriell wirksamen Arzneimitteln (Antibiotika) behandelt werden.

Bei bekanntem Infektionsdruck werden Antibiotika auch metaphylaktisch eingesetzt. In diesen Fällen sind die pathogenen Erreger in einem Tierbestand nachgewiesen und die Antibiotika werden zur Vermeidung einer klinischen Erkrankung eingesetzt. Dies gilt auch für die Verabreichung von Antiparasitika.

Tierarzneimittel (TAM) werden aktuell deutlich häufiger eingesetzt als Antibiotika in der Humanmedizin. Im Jahr 2012 wurden nach Angaben des BVL rund 1619 Tonnen Antibiotika von pharmazeutischen Unternehmen und Arzneimittelgroßhändlern an Betreiber tierärztlicher Hausapotheken abgegeben. Gegenüber den Abgabemengen in der Humanmedizin (jährlich rund 630 Tonnen) entspricht dies etwa der zwei- bis dreifachen Menge. Antibiotika sind Stoffe, die von Pilzen oder Bakterien produziert werden und das Wachstum von Bakterien hemmen (bakteriostatische Wirkung) oder diese abtöten (bakterizide Wirkung). Chemotherapeutika, zu denen die Sulfonamide gehören, sind synthetisch hergestellte Stoffe mit vergleichbarer Wirkung. Zur sprachlichen Vereinfachung wird in der Regel nur der Begriff Antibiotika verwendet. Sie werden sowohl in der Human- als auch Veterinärmedizin angewendet (Löscher et al. 2006).

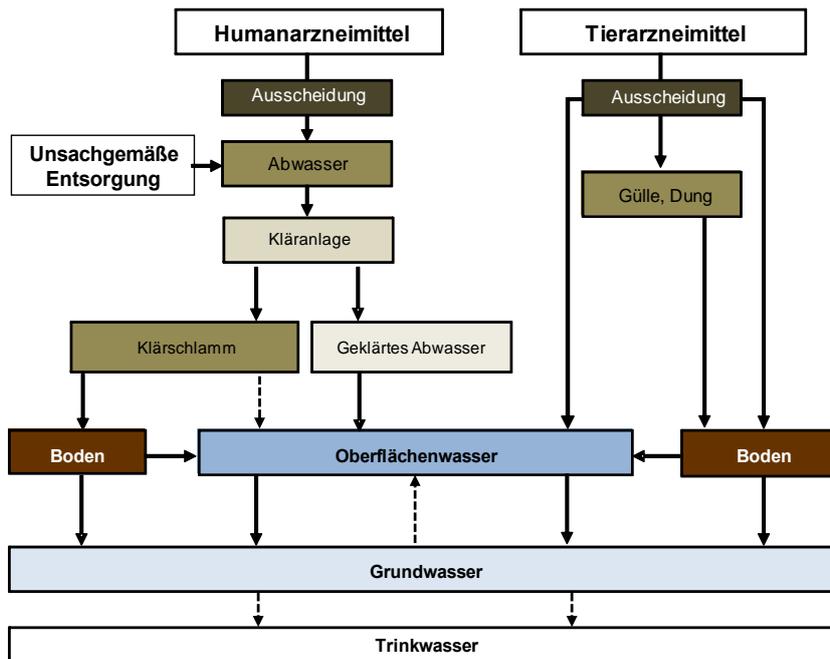
Mit jeder Antibiotika-Anwendung steigt die Gefahr der Resistenzbildung. Eine Infektion mit multiresistenten Keimen (z.B. ESBL und MRSA) kann häufig nur noch sehr schwer behandelt werden. Laut WHO sterben in Europa jährlich 25.000 Menschen an einer Infektion mit multiresistenten Keimen. Der massive Einsatz von Tierarzneimitteln kann zur Bildung von Multiresistenzen beitragen. Diese können nicht nur über belastetes Fleisch, Stallstäube oder durch direkten Kontakt übertragen werden. Auch ihr Eintrag in die Umwelt, z.B. in den Boden oder das Grundwasser, kann die Entstehung multiresistenter Keime begünstigen.

Antibiotika können die Struktur der mikrobiellen Gemeinschaft und damit Bodenfunktionen verändern. Sie können die Häufigkeit des Auftretens von Resistenzgenen beeinflussen. Nach Eintrag in den Wasserkreislauf können Antibiotika bzw. Antiparasitika und deren Rückstände in weitere Umweltkreisläufe gelangen. Mit der Aufnahme durch Pflanzen und Tiere besteht die Gefahr, dass diese in die Nahrungskette gelangen. Abbildung 1 zeigt die Eintragspfade von Arzneimitteln und deren Rückstände in über- und unterirdische Umweltkompartimente. Während der Eintrag von Humanarzneimitteln in die Umwelt bereits seit den 1990er Jahren Gegenstand vieler Untersuchungen und Studien (Kern 2012, Zippel et al. 2010, Massmann et al. 2009, Kümmerer 2004, Heberer et al. 2008, Heberer et al. 2004, Hirsch et al. 1999) war, besteht zum Verbleib und zum Gefährdungspotenzial von Arzneimitteln, die umfangreich in der Tiermedizin eingesetzt werden (Boxall et al. 2004), noch erheblicher Forschungsbedarf. Die an die Tiere verabreichten Antibiotika verbleiben nur zu einem geringen Teil im Organismus. Ein Großteil (60 bis 80 %) der Wirkstoffe und deren Umwandlungsprodukte werden wieder ausgeschieden.

Untersuchungen zur Belastung der Gülle mit TAM wurden 2009 in einer Überblicksuntersuchung in Nordrhein-Westfalen (NW) an insgesamt 34 Gülle- und 35 Gärrestproben mit den mengenmäßig wichtigsten Veterinärantibiotika durchgeführt (Ratsak et al. 2013). Die Proben stammten aus Güllelagern in landwirtschaftlichen Betrieben und Gärrestlagern bei Biogasanlagen und wurden

auf verschiedene Einzelsubstanzen der Stoffgruppen der Tetracycline, Sulfonamide und Fluorchinolone untersucht. In 71% aller untersuchten Proben waren Antibiotikarückstände nachweisbar (Gärrestproben 80%, Gülleproben 62%). Das nachgewiesene Stoffspektrum und die Höhe der Stoffkonzentrationen unterschieden sich teilweise. Tendenziell waren die Schweine- und Geflügelgülle stärker belastet als die Rindergülle. Bei den Gärresten gab es diese Tendenz nicht, u. a. weil viele Gärreste aus der Vergärung von Gülle verschiedener Tierarten stammten.

Abbildung 1: Schematische Darstellung der Einträge von Arzneimitteln und deren Rückstände in ober- und unterirdische Umweltkompartimente (UBA 2014)



Mit der Ausbringung der Ausscheidungsprodukte als Wirtschaftsdünger (Gülle, Jauche, Stallmist) gelangt ein Teil der Antibiotika bzw. der Antibiotikarückstände auf die Felder und kann von hier in den Boden eingetragen werden. Über die Bodenpassage und durch Niederschläge können sie in oberflächennahes Grundwasser und oberirdische Gewässer ausgeschwemmt werden.

Grundwasser ist in Deutschland eine der wichtigsten Quellen für die Trinkwasserversorgung. Durch landwirtschaftliche und agroindustrielle Bodennutzung sind jedoch viele oberflächennahe

Grundwasservorkommen durch Fremdstoffeinträge belastet. Der Boden wiederum hat aufgrund seiner exponierten Lage und seiner Filter- und Pufferfunktion eine besondere Bedeutung für den Schutz des Grundwassers. Er ist darüber hinaus der wichtigste Produktionsfaktor für die Herstellung von Nahrungs- und Futtermitteln.

Der Verbleib von Tierarzneimitteln im Untergrund ist bisher erst wenig untersucht und der tatsächliche Belastungszustand des Grundwassers durch TAM ist unbekannt. Dieser steht daher im Mittelpunkt des Projektes, das im Dezember 2011 begann und von einer Arbeitsgemeinschaft, bestehend aus dem hydrogeologischen Büro HYDOR Consult GmbH, dem Forschungszentrum Jülich (IBG 3) und dem INFU-Labor der Technischen Universität Dortmund durchgeführt wurde.

Im Vorfeld der Analyse erfolgte eine ausführliche Recherche zum aktuellen Forschungsstand (national und international). Diese richtete sich auf die Schwerpunkte bereits vorhandener Forschungstätigkeiten zur Antibiotika- und Antiparasitikabelastung des Grundwassers allgemein und speziell auf Standorten mit Intensivtierhaltung. Eintragswege und -Ursachen, substanzspezifische Besonderheiten, die bei der Probenahme, Messung und Interpretation und die für die Ausbreitung in der Umwelt relevant sind, wurden berücksichtigt. Die Art und Menge der in Deutschland und speziell im Untersuchungs- und Einzugsgebiet eingesetzten Tierarzneimittel sowie die verwendete Analytik und die Festlegung von Repräsentanzkriterien wurden ebenfalls aus der Literaturstudie abgeleitet. Weiterhin erfolgte eine Analyse der bestehenden nationalen und internationalen Gesetzeslage. Die rechtliche Handhabung der zu untersuchenden Wirkstoffe wurde abschließend in die Interpretation der eigenen Forschungsergebnisse einbezogen und gibt Anstoß für die Beurteilung des weiteren umweltpolitischen Handlungsbedarfs. Die Ergebnisse der

Literaturauswertung wurden als Grundlage für die Festlegung der zu untersuchenden Wirkstoffgruppen, für die Auswahl der Kriterien für die Standortwahl und für die Festlegung des Analysekonzepts verwendet.

Die Analytik erfolgte anhand etablierter, ausreichend sensitiver und selektiver Methoden der Flüssigchromatographie mit gekoppelter Massenspektrometrie (LC-MS/MS) entsprechend anerkannter Normen und Vorschriften und nach einschlägigen Qualitätssicherungsverfahren. Das angewendete Untersuchungsverfahren wurde für das Untersuchungsziel validiert und die Bestimmungsgrenze lag für die ausgewählten TAM und Transformationsprodukte im unteren ng/L-Bereich. Messunsicherheiten, Wiederfindungsraten, Nachweis- und Bestimmungsgrenzen werden angegeben.

2012 und 2013 wurden zu zwei sich saisonal unterscheidenden Zeiträumen an insgesamt 48 Grundwassermessstellen in den Bundesländern Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen in Regionen mit ausgesprochen hoher Viehbesatzdichte sowie in Bayern und Sachsen in Regionen mit erhöhter Viehbesatzdichte, jedoch anderem Untergrundaufbau (Festgesteine) Grundwasserproben entnommen und laboranalytisch auf relevante Tierarzneimittelstoffe untersucht.

Ziel des Forschungsvorhabens war es, anhand eines „worst case“-Ansatzes zu untersuchen, ob bei ungünstigen Standortbedingungen, also:

- hoher lokaler (gemeindlicher) Viehbesatzdichte und daraus resultierender intensiver Gülleaufbringung,
- gut durchlässigem Untergrund,
- hoher Grundwasser-Neubildungsrate,
- geringem Grundwasser-Flurabstand und
- hohem Stickstoff-Gehalt im Grundwasser

unter repräsentativen Probenahmebedingungen der Eintrag ausgewählter TAM in das oberflächennahe Grundwasser signifikant nachgewiesen bzw. ausgeschlossen werden kann, um daraus den weiteren umwelt- oder gesundheitspolitischen Handlungsbedarf bzw. weiteren Forschungsbedarf ableiten zu können. Das Grundwasser ist das ausschließlich in dem Projekt zu untersuchende Umweltkompartiment.

Im Rahmen dieses Forschungsvorhabens sollen folgende zentrale Fragestellungen geklärt werden und im Rahmen der Ergebnispräsentation Beantwortung finden:

1. Welche Standorteigenschaften begünstigen den Eintrag von TAM in das Grundwasser?
2. Welche TAM sind aufgrund ihrer regions- und artspezifischen Anwendung sowie ihrer inhärenten Stoffeigenschaften für den Eintrag und Nachweis im Grundwasser relevant?
3. Welche Begleitparameter sind für die Bewertung der Ergebnisse relevant und müssen bei der Beprobung, Untersuchung und Interpretation dokumentiert und berücksichtigt werden (z.B. Viehbesatzdichte, Gehalt von N, P, K, Mg und Ca, pH-Wert, Bodenart, DOC-Gehalt, Grundwasserflurabstand, artspezifische Anwendungshäufigkeit und -menge bestimmter Wirkstoffe)?
4. Können ausgewählte TAM und ihre Transformationsprodukte an den ausgewählten Standorten in Konzentrationen nachgewiesen werden, die 0,1 µg/l überschreiten?
5. Lassen sich Zusammenhänge zwischen den Standorteigenschaften, Begleitparametern und dem Vorkommen und der Konzentration der untersuchten Wirkstoffe herstellen?
6. Geben die Ergebnisse Anlass zu weitergehenden Untersuchungen, Monitoring-Aktivitäten und/oder zu ergreifender Minderungsmaßnahmen?

## 4 Literaturrecherche zum Stand der Forschung

Im Anschluss an die Analyse gesetzlicher Regelungen (Kap. 4.1) wurden aus der Vielzahl eingesetzter Wirkstoffe diejenigen identifiziert, die für den Eintrag in das Grundwasser relevant sind (Kap. 4.2) und nach denen daher gezielt gesucht werden sollte. Voraussetzung ist ihr tierartenspezifischer Einsatz in der Untersuchungsregion (Kap. 4.3). Die Auswertung durchgeführter Forschungstätigkeiten zur Antibiotika- und Antiparasitikabelastung des Grundwassers (Kap. 4.4) und die Betrachtung stoffspezifischer Eigenschaften (Kap. 4.5) sind für die Auswahl der Wirkstoffe, für die eine prinzipielle Verlagerung in das Grundwasser möglich ist und die daher Gegenstand der Untersuchung sind, entscheidend.

### 4.1 Analyse gesetzlicher Regelungen zum Umgang mit Tierarzneimitteln

Es gibt in Deutschland klare Vorschriften, die den Einsatz von Antibiotika regeln: nach dem Arzneimittelgesetz in der Fassung der Bekanntmachung vom 12. Dezember 2005, das durch Artikel 4 Absatz 11 des Gesetzes vom 7. August 2013 (BGBl IS 3154) geändert worden ist, dürfen Antibiotika nur zur Behandlung von kranken Tieren eingesetzt werden, keinesfalls zur Wachstumsförderung. Antibiotika dürfen nur im Rahmen einer ordnungsgemäßen Behandlung durch den Tierarzt verschrieben oder von ihm abgegeben werden. Der Tierhalter darf sie nur vom Tierarzt oder einer Apotheke auf tierärztliche Verschreibung erwerben und muss die Behandlungsanweisungen des Tierarztes strikt befolgen.

Seit Inkrafttreten der 11. AMG-Novelle 2002 ist die abzugebende Menge von Antibiotika für Tiere, die der Lebensmittelgewinnung dienen, auf den Bedarf für längstens sieben Tagen im Falle der systemisch wirksamen Antibiotika beschränkt worden. Antibiotika, die ausschließlich zur lokalen Anwendung bei diesen Tieren vorgesehen sind, dürfen in einer Menge abgegeben werden, die längstens den Bedarf von 31 Tagen abdeckt.

Bereits seit dem 1. Januar 2006 gilt EU-weit das Verbot, Antibiotika als leistungsfördernde Futtermittelzusatzstoffe einzusetzen (EU-Verordnung Nr 183/2003 Artikel 11 Absatz 2). Seit Jahren sind in Deutschland alle antibiotisch wirksamen Tierarzneimittel zur Anwendung bei Lebensmittel liefernden Tieren verschreibungspflichtig. Bei der Abgabe von Tierarzneimitteln durch den Tierarzt an den Tierhalter sorgen strenge Fristenregelungen dafür, dass ein enger Zusammenhang zwischen Diagnose und Behandlung der Tiere bestehen bleibt.

Das AMG wurde auch bezüglich der Tierarzneimittel ständig novelliert (1. Novelle 1983, 11. Novelle 2002 und 13. Novelle 2005). In der Neufassung des AMG von 1998 z. B. wird im § 22 "Zulassungsunterlagen" sowohl für Human- als auch für Veterinärarzneimittel die Bewertung der Umweltrisiken eines neu zuzulassenden Wirkstoffs verlangt. Wird ein Umweltrisiko identifiziert, so kann die Zulassung des Arzneimittels nach § 28 "Auflagenbefugnis" mit Auflagen zum Schutz der Umwelt versehen werden. Die zuständige Bundesoberbehörde, das Bundesamt für Verbraucherschutz und Lebensmittelsicherheit (BVL) entscheidet dies gemeinsam mit dem Umweltbundesamt. Die erforderlichen Auflagen hatten bisher vorwiegend die Reduzierung der Umweltexposition zum Ziel, z. B. durch Beschränkung des direkten Zugangs von Weidetieren zu oberirdischen Gewässern und des Umgangs mit Gülle und Festmist während der Lagerung und Ausbringung (Koschorreck et al. 2002, EMA 2011).

In der Phase I der Umweltprüfung wird aus der Verbrauchsmenge und den Abbauraten eines Wirkstoffs im Gülletank seine zu erwartende Umweltkonzentration im Boden (predicted environmental concentration = PEC) ermittelt. Übersteigt der ermittelte Pec 1000 µg/kg, dann ist eine vertiefte Umweltprüfung (Phase II) durchzuführen, bei der auf der Basis unterschiedlicher ökotoxikologischer Testverfahren die Konzentration ermittelt wird, bei der keine schädigenden

Effekte auf das Ökosystem zu erwarten ist (predicted no-effect concentration = PNEC). Der Quotient aus PEC und PNEC charakterisiert das Risiko der Substanz für die Umwelt. Ergibt der Vergleich PEC/PNEC Werte  $< 1$ , so ist davon auszugehen, dass von der betreffenden Substanz nach dem gegenwärtigen Stand kein Risiko für die Umwelt ausgeht. Ist der Wert  $> 1$ , ist entweder eine Verfeinerung der beiden Eingangsgrößen PEC und PNEC nötig oder es werden Maßnahmen zur Risikovermeidung und Risikominderung erforderlich (Koschorrek et al. 2002, EMA 2008<sup>1</sup>).

Besondere Regelungen für Tierarzneimittel enthält das Arzneimittelgesetz beispielsweise für die Verschreibung, Abgabe und Anwendung durch Tierärzte, ferner für Fütterungsarzneimittel und insbesondere auch für die Anwendung von Arzneimitteln bei Tieren, die der Gewinnung von Lebensmitteln dienen. Mit dem am 2. Dezember 2011 veröffentlichten Referentenentwurf zur 16. AMG-Novelle soll der rechtliche Rahmen für Vorgaben beim Einsatz von Antibiotika in der Tiermedizin weiter verschärft werden. Dazu soll unter anderem die Möglichkeit für den Aufbau einer bundeseinheitlichen amtlichen Datenbank (DIMDI-Arzneimittelverordnung von 2010) geschaffen werden, die den zuständigen Überwachungsbehörden der Länder erstmals eine umfassende Einsichtnahme in die Daten über den Antibiotika-Einsatz bei landwirtschaftlichen Nutztieren ermöglicht. Ziel des Gesetzesvorhabens ist es, den rechtlichen Rahmen für Vorgaben beim Einsatz von Antibiotika in der Tiermedizin zu verschärfen<sup>2</sup>.

Der Entwurf wurde breit in der Fachöffentlichkeit diskutiert, so auch auf der „Grünen Woche 2012“ in Berlin (BPT 2012). Der Bundesverband praktizierender Tierärzte z. B. unterstützt die grundsätzliche Intention des Gesetzentwurfes, nämlich den sorgfältigen Einsatz von Antibiotika in der Tierhaltung zu fördern, um die Entstehung und Ausbreitung von Antibiotikaresistenzen zu begrenzen (BTK 2010). Kritik wird jedoch darin geübt, dass die ausschließliche Konzentration auf Maßnahmen des Arzneimittelverkehrs mit den zum Teil erheblichen Einschränkungen der tierärztlichen Therapiefreiheit nicht geeignet sei, dieses Ziel zu erreichen. Auch die Erschwerung der sog. „Umwidmung“ wird kritisiert, da hierdurch die Behandlung erkrankter Tiere mit verlässlicherem Antibiotikaeinsatz deutlich schwieriger werden könne.

Der Entwurf zur 16. AMG-Novelle wurde am 27.06.2013 vom Bundestag als 16. Gesetz zur Änderung des Arzneimittelgesetzes angenommen (Drucksache 543/13).

Im Wesentlichen beinhaltet das neue Gesetz eine Mitteilungspflicht für Tierhalter an die zuständige Behörde über die Haltung von Mastschweinen, Mastrindern, Masthühnern und Mastputen. Die Behörde muss zudem halbjährig über den Einsatz (Bezeichnung, Dauer des Einsatzes, Tierart) von antibakteriell wirksamen Stoffen seitens der Tierhalter unterrichtet werden. Auf Grund der Therapiehäufigkeit ermittelt die Behörde daraus bundesweit für jeden Betrieb eine Kennzahl. Liegt diese Kennzahl über 1, hat der Tierhalter unter Hinzuziehung eines Tierarztes zu prüfen, welche Gründe zu dieser Überschreitung geführt haben und wie der Einsatz von Antibiotika verringert werden kann. Oberhalb der Kennzahl 2 hat der Tierhalter unter tierärztlicher Beratung innerhalb von zwei Monaten einen schriftlichen Plan mit Maßnahmen vorzulegen, die zu einer Verringerung des Einsatzes von Antibiotika führen. Bei Nicht-Einhaltung kann die Behörde die Stilllegung des Betriebes anordnen. Darüber hinaus teilt die zuständige Behörde dem Bundesinstitut für Risikobewertung jeweils auf dessen Verlangen hin in anonymisierter Form die ermittelte halbjährige Therapiehäufigkeit mit.

---

<sup>1</sup> Revised guideline on environmental impact assessment for veterinary medical products in support of the VICH guidelines GL 16 and GL 38, [www.ema.europa.eu/docs/en\\_GB/document\\_library/Scientific\\_guideline/2009/10/WC500004386.pdf](http://www.ema.europa.eu/docs/en_GB/document_library/Scientific_guideline/2009/10/WC500004386.pdf)

<sup>2</sup>[http://www.bmelv.de/SharedDocs/Standardartikel/Landwirtschaft/Tier/Tierarzneimittel/Dossier\\_Antibiotika/Gesetz\\_Antibiotikaresistenzen.html](http://www.bmelv.de/SharedDocs/Standardartikel/Landwirtschaft/Tier/Tierarzneimittel/Dossier_Antibiotika/Gesetz_Antibiotikaresistenzen.html)

Europaweit wurde ein Verfahren zur Umweltprüfung erstmals mit der Richtlinie 81/852/EWG (Novelle 18, 1992) für Veterinärarzneimittel eingeführt. Bei Veterinärarzneimitteln wird das Umweltrisiko in die Risiko-Nutzen-Abwägung seit der Novellierung des EU-Arzneimittelrechts von 2004 mit einbezogen. Eine Zulassungsverweigerung aus Umweltgründen ist grundsätzlich möglich (Kolossa-Gehring et al. 2004), wenn durch die Anwendung des Arzneimittels ein unvertretbares Risiko für die Umwelt zu erwarten ist. Von dieser Regelung wurde in der bisher mehr als zehnjährigen Praxis jedoch noch nie Gebrauch gemacht.

In der EU wird derzeit ebenfalls an einer Überarbeitung der Richtlinien gearbeitet, Beechinor (2011)<sup>3</sup>. Die Vorlage des Kommissionsvorschlags für die Neufassung des EU-Arzneimittelrechts wurde für 2013 erwartet. Die Zielvorstellungen sind nach Beechinor (2011):

- Anreize zu schaffen, damit die Industrie neue, innovative Arzneimittel für den jetzigen und zukünftigen Bedarf entwickelt;
- die Verfügbarkeit der existierenden Tierarzneimittel zu verbessern;
- das Funktionieren der jetzigen Systeme zu verbessern;
- behördliche Auflagen zu reduzieren und
- wichtige Punkte wie Arzneimittelüberwachung und antimikrobielle Resistenzen anzusprechen.

Die wichtigste zu treffende Entscheidung der Europäischen Kommission betrifft die Frage, ob eine radikale Änderung des bestehenden Systems vorgenommen, oder das bestehende System verbessert werden soll. In Anbetracht der unterschiedlichen Zulassungsverfahren und Zulassungen (zum Teil für ein und dasselbe Produkt) in den Mitgliedsstaaten und den vielen Regierungen, Behörden, Firmen und Verbraucherorganisationen wird nicht damit gerechnet, dass es noch in dieser Legislaturperiode (bis Juni 2014) zu einem Kompromissvorschlag kommen wird.

Beechinor (2011) kommt zu der Schlussfolgerung, dass es sinnvoll wäre, eine zentrale Zulassungsbehörde oder ein virtuelles System basierend auf existierenden Netzwerken zu haben, das eine verbindliche und überall in der EU anwendbare Auskunft liefert. Egal für welches Modell entschieden wird, bleibt es bei der Notwendigkeit, dass die Behörden der Mitgliedsstaaten Beiträge für den regulativen Prozess und zweckentsprechende Befürwortungen der Anwendung und Überwachung von Tierarzneimitteln liefern.

## 4.2 Tierarzneimittel und deren mögliche Eintragswege in das Grundwasser

Weltweit wird eine Vielzahl von Medikamenten in der Tiermedizin verschrieben, Tabelle 1 dokumentiert die häufigsten Wirkstoffe der eingesetzten Medikamente und die zugehörigen Wirkstoffgruppen. Ebenfalls in der Tabelle enthalten sind Substanzen, die in der EU verboten sind bzw. seit 2006 nicht mehr als sogenannte Leistungsförderer eingesetzt werden dürfen.

---

<sup>3</sup> <http://connection.ebscohost.com/c/articles/86200559/pending-eu-review-regulatory-framework-veterinary-medicines>

Tabelle 1: Gruppen veterinärmedizinisch bedeutender Antiinfektiva und Antiparasitika (kursiv: Transformationsprodukte)

Wirkstoffgruppe	Wirkstoff	Wirkstoffgruppe	Wirkstoff	
<b>Antiinfektiva</b>				
β-Lactame			Tetrazyklin	
Penicilline	Amoxicillin	Tetrazykline	Oxytetrazyklin	
	Ampicillin		Chlortetrazyklin	
	Ceftiofur		Bacitracin*	
	Cefquinone		Tyrothricin	
Glycopeptide	Ardacin*	Polypeptide	Colistin (= Polymyxin E)	
	Avoparcin*		Polymyxin B	
	Teicoplanin		Enrofloxacin	
	Vancomycin		Danofloxacin	
Glycolipide	Flavomycin*	Chinolone	Difloxacin	
	Bambermycin*		Marbofloxacin	
	Moenomycin*		Orbifloxacin	
Aminoglykoside	Streptomycin		Quinoxaline	Ciprofloxacin
	Spectinomycin			Olaquinox*
	Neomycin			Carbadox*
Amphenicole	Chloramphenicol			Sulfonamide
	Thiamphenicol*	Sulfadoxin		
	Florfenicol (Florfenicolamin)	Sulfadimethoxin		
Elfamycin	Eftromycin*	Sulfadimidin/Sulfamethazin (synonym: im Folgenden Sulfadimidin)		
Makrolide	Erythromycin	Trimethoprim	Sulfothiazol	
	Tylosin*		Trimethoprim	
	Spiramycin*	Nitrofurane	Nitrofurantoin**	
	Tilmicosin		Nitrofurantoin**	
	Roxythromycin		Furaltadon**	
	Tulathromycin		Furazolidon**	
Lincosamide	Lincomycin	Nitroimidazole	Dimetradazol**	
	Clindamycin		Ronidazol**	
Orthosomycine	Avilamycin*		Metronidazol**	
	Everminomycin			
Streptogramine	Virginiamycin*	Pleuromutiline	Tiamulin	
Ionophore	Monensin*		Valnemulinhydroch	
Salinomycin*	(als coccidiostatika eingesetzt bei der Hühnermast)			
<b>Antiparasitika</b>				
Benzimidazole	Flubendazol	Triazine	Toltrazuril (Toltrazurilsulfon)	
	Fenbendazol	Avermectine	Ivermectin	
Pyrethroide	Deltamethrin	Phenylpyrazol	Fipronyl	

\* in der EU als Leistungsförderer verboten, \*\*In der EU verboten

Tabelle 2 zeigt die in der Veterinärmedizin am Häufigsten angewendeten Antibiotika-Wirkstoffgruppen mit ihren Einsatzgebieten.

Tabelle 2: In der Veterinärmedizin eingesetzte Wirkstoffgruppen, sortiert nach Anwendungshäufigkeit ( Küster et al. 2013)

Wirkstoffgruppe	Wirkungsmechanismus	Indikation
<b>1. Tetrazykline</b> (Tetrazyklin, Chlortetracyclin, Oxytetracyclin, Doxycyclin)	bakteriostatisch	Breitspektrumantibiotika, Infektionen des Atmungs-, Verdauungs- und Urogenitalsystems, starker Einsatz bei Masttieren
<b>2. <math>\beta</math>-Lactame</b> -Benzylpenicillin, -Amoxicillin, Ampicillin, -Cephalosporine der 1., 2. und 3. Generation (3. Generation: Cefovectin, Ceftiofur)	bakterizid	<b>Benzylpenicilline:</b> Atemwegsinfektionen, eitrige Infektionen <b>Aminopenicilline (Amoxicillin, Ampicillin):</b> Breitspektrumpenicilline, an erster Stelle bei Mastgeflügel, Mastschwein und Mastkalb bei Infektionen des Atmungs- und Verdauungstraktes, eitrige Infektionen, Euterentzündung, spezielle Infektionen (Rotlauf, Listeriose) <b>Cephalosporine:</b> Reserveantibiotika in der Humanmedizin
<b>3a. Sulfonamide</b> (Sulfadimidin, Sulfadiazin, Sulfamethoxazol, u.a.)	bakteriostatisch	Breitspektrumantibiotika, starker Einsatz bei Masttieren gegen Infektionen des Atmungs- und Verdauungstraktes, Listeriose, das einzige Antibiotikum mit einer Wirkung gegen Protozoen (Kokzidien bei Geflügel, Kalb)
<b>3b. Trimethoprim</b>	bakterizid	Eingesetzt in Kombination mit Sulfonamiden
<b>4. Makrolidantibiotika</b> (Erythromycin, Tulatromycin, Tylosin, Tilmicosin, u.a.)	bakteriostatisch	Atemwegsinfektionen, Euterentzündung Nachteil: gewebsreizend nach Injektion
<b>5. Aminoglycoside</b> (Streptomycin, Gentamicin C, Spectinomycin)	bakterizid	Infektionen des Atmungs-, Verdauungs- und Urogenitalsystems,
<b>6. Polypeptidantibiotika</b> (Colistin)	bakterizid	Vor allem bei Infektionen des Verdauungstraktes mit Enterobakterien wie z.B. <i>E. coli</i> , Salmonellen,
<b>7. Lincosamide</b> (Lincomycin, Clindamycin)	bakteriostatisch	Vor allem bei Infektionen des Atmungssystems, stark eingesetzt in der Geflügelmast
<b>8. Pleuromutiline</b> (Tiamulin)	bakteriostatisch	Breitspektrumantibiotika, Wirkung bei Infektionen des Atmungs- und Verdauungssystems
<b>9. Phenicole</b> (Florfenicol)	vorwiegend bakteriostatisch	Breitspektrumantibiotika, Infektionen des Atmungstraktes
<b>10. Fluorchinolone</b> (Enrofloxacin, Marbofloxacin)	bakterizid	Breitspektrumantibiotika, Infektionen des Atmungs- und Verdauungstraktes

Antibiotika und sonstige pharmazeutische Produkte gelangen nach der jeweiligen Anwendung bei Menschen und Tieren auf unterschiedlichen Wegen in die Umwelt.

Humanpharmaka werden nach der Ausscheidung überwiegend mit dem Abwasser in Kläranlagen behandelt. Das geklärte Wasser wird hauptsächlich in oberirdische Gewässer eingeleitet und zum geringen Anteil für Irrigationszwecke genutzt. Defekte Abwasserrohre können dazu führen, dass Grundwasser durch Abwasser belastet wird. Da nicht alle Pharmaka effektiv in den Kläranlagen entfernt werden, wurden bereits verschiedene Substanzen in oberirdischen Gewässern (Flüssen und Seen) nachgewiesen (Loos et al. 2010). Wenn dieses Wasser direkt oder als Uferfiltrat zur Trinkwassergewinnung genutzt wird, besteht die Gefahr der Kontamination des Trinkwassers mit den entsprechenden pharmazeutischen Produkten. Arzneimittelrückstände finden sich auch in Klärschlämmen. Werden diese landwirtschaftlich verwertet, können sie zu einer Belastung des Grundwassers führen. Zahlreiche in den letzten Jahren durchgeführte Studien und Monitoringprogramme belegen den Nachweis von Humanarzneimitteln in oberirdischen Gewässern, im Grund- und im Trinkwasser (Bergmann 2011, Loos et al. 2010, Massmann et al. 2009).

TAM können über die Ausbringung der Wirtschaftsdünger oder über die Weidehaltung in die Umwelt gelangen. Wirtschaftsdünger werden nach unterschiedlicher Lagerungsdauer (zunehmend nach alkalischer Gärung in Biogasanlagen) auf Äckern und Wiesen ausgefahren. Während der Lagerung kann bereits ein Um- oder Abbau der Arzneimittel erfolgen. Durch Ausschwemmung können Arzneimittelrückstände während und nach der Ausbringung der Gülle unmittelbar in oberirdische Gewässer eingetragen werden. Möglich ist auch ein indirekter Eintrag durch Infiltration mit dem Sickerwasser bzw. durch Drainage in die Gewässer.

Die TAM können über zwei Wege in das Grundwasser gelangen, falls sie nicht vorher biologisch abgebaut wurden: einerseits über den Matrixfluss und andererseits über den Makroporenfluss. Für den Matrixfluss sind die Sorptionseigenschaften der TAM von großer Bedeutung. Zur näheren Charakterisierung von Substanzen in Hinblick auf ihre Mobilität im Untergrund kann der Sorptionskoeffizient ( $K_d$ ) herangezogen werden. Er beschreibt das Verhältnis der Konzentration eines Stoffes im Boden zu seiner Konzentration im Wasser. Der Sorptionskoeffizient gibt somit einen Anhaltspunkt dafür, wie stark ein Stoff durch Anlagerung an die Feststoffmatrix im Untergrund zurückgehalten bzw. wie stark er in seiner Ausbreitung verzögert werden kann.

Entsprechend werden Arzneimittelwirkstoffe mit niedrigen  $K_d$ -Werten (z. B. Sulfonamide) häufiger im Grundwasser gefunden als Substanzen mit höheren  $K_d$ -Werten wie z. B. Tetrazykline.

Ein großer Teil des Niederschlagswassers wird durch Grobporen an der Bodenmatrix vorbei rasch in den Unterboden abgeleitet. Makroporen entstehen durch biogene Aktivität (Maulwürfe, Mäuse, Regenwürmer, Pflanzenwurzeln), durch die Quell-Schrumpf-Dynamik austrocknender tonhaltiger Böden oder durch Verwitterungsprozesse. An den meisten Standorten werden über 60 % der Stofffrachten auf diesen sog. „präferenziellen Flüssen“ bewegt. Sie ist eine wichtige Einflussgröße für die Auswaschung von Nährstoffen, Pestiziden und Mikroorganismen in das oberflächennahe Grundwasser, insbesondere bei stark sorbierenden Substanzen (LfU 2008<sup>4</sup>).

### 4.3 Art und Menge der in Deutschland und Europa eingesetzten Tierarzneimittel

Obwohl Tierärzte die Medikamentenabgabe in Form von Arzneimittelanwendungs- und -abgabebelegen bereits seit einigen Jahren dokumentieren und Landwirte die Behandlungen in ihre Stallbücher eintragen müssen („Tierhalter-Arzneimittel-Nachweisverordnung vom 20. Dezember 2006 (BGBl. I S. 3450, 3453“<sup>5</sup>)), sind verlässliche und genaue Zahlen zu Verschreibungs- und Anwendungsmengen von Tierarzneimitteln in Deutschland selten und schwer erhältlich. Eine erste Erfassung der in Deutschland abgegebenen Antibiotikamengen wurde erstmalig 2012 vom Deutschen Institut für medizinische Dokumentation und Information (DIMDI) durchgeführt<sup>6</sup>. Ältere Studien, auf Bundes- oder regionaler Ebene durchgeführt, beruhen auf Schätzungen. Die Ergebnisse zeigen dementsprechend große Unterschiede (s. Kap. 4.2.1). In Kap. 4.2.2 werden für einige europäische Länder die verfügbaren Daten vorgestellt. In Spelsberg (2013) sind darüberhinaus auch für weitere Länder in der Welt Daten zu Verbrauchsmengen von TAM vorgestellt, u. a. zu den USA, in denen 2009 13.067 t Antibiotika in der Tiermast eingesetzt wurden. Stoob et al. 2005 führt Informationen für die Schweiz auf.

---

<sup>4</sup> [http://www.lfu.bayern.de/analytik\\_stoffe/tierarzneimittel\\_im\\_sickerwasser/doc/abschlussbericht.pdf](http://www.lfu.bayern.de/analytik_stoffe/tierarzneimittel_im_sickerwasser/doc/abschlussbericht.pdf)

<sup>5</sup> <http://www.gesetze-im-internet.de/bundesrecht/anthv/gesamt.pdf>

<sup>6</sup> [http://www.bvl.bund.de/SharedDocs/Downloads/07\\_Bundesamt/Veranstaltungen/Infotag\\_vortrag\\_schneiderei.pdf?\\_\\_blob=publicationFile&v=2](http://www.bvl.bund.de/SharedDocs/Downloads/07_Bundesamt/Veranstaltungen/Infotag_vortrag_schneiderei.pdf?__blob=publicationFile&v=2)

### 4.3.1 Abgabemengen von Tierarzneimitteln in Deutschland

In einer Hochrechnung für den Gesamtverbrauch von TAM bei den Tiergruppen Rind, Schwein, Schaf und Geflügel - basierend auf der Auswertung von Fragebögen an Tierärzte über eingesetzte Präparate und Verbrauchsmengen - kommt Klein-Goedicke (2005)<sup>7</sup> zu einer annähernd gleichen Reihenfolge für die am häufigsten eingesetzten Antibiotika wie in der weiter unten aufgeführten LANUV-Studie (2007). Spitzenreiter ist Chlortetrazyklin mit über 1000 t/Jahr, gefolgt von Tetrazyklin > Sulfadiazin > Amoxicillin > Sulfadimidin. Alle Verbrauchsmengen liegen in der Größenordnung von 100 t/a. Daneben wurden 21,76 t/a an Antiparasitika ermittelt (14 Wirkstoffe in Mengen kleiner als 9 t/a, nur Proxim lag darüber mit 9,2 t/a). Bei den sonstigen Wirkstoffen war Acetylsalicylsäure mit 147,43 t/a Spitzenreiter. Für weitere 19 Wirkstoffe ergab die Hochrechnung 69,93 t/a mit u. a. Dihydrostreptomycin, Erythromycin und Ceftiofur (UBA 2005).

Basis der Ermittlung von Klein-Goedicke (2005) war jedoch eine Schätzung. Die Daten dazu stammen aus den Antworten von nur 60 der 670 befragten Tierärzte, also einer Rücklaufquote von weniger als 10 %. Sie wurden auf den Gesamtbestand der einzelnen Tiergruppen hochgerechnet. Das Ergebnis der Hochrechnung fällt mit 2.096 t etwa dreifach höher aus als Berechnungen des Veterinärpanels der Gesellschaft für Konsumforschung (GfK, Schneiderei 2005). Die Zahlen der GfK basieren ebenfalls auf einer Stichprobenuntersuchung des Einkaufsverhaltens der niedergelassenen Tierärzte, die dann auf die Gesamtheit der niedergelassenen Tierärzte hochgerechnet wurde. Die Daten wurden später von Kools et al. (2007, 2008) übernommen, um die Menge der TAM in der EU abzuschätzen. In Berichten über den Antibiotikaverbrauch und die Verbreitung von Antibiotikaresistenzen in der Human- und Veterinärmedizin in Deutschland, erstellt auf Initiative des BVL, wurden die 2005 erhobenen Zahlen 2008 veröffentlicht (Germap 2008<sup>8</sup> und 2010<sup>9</sup>).

Seit 2011 sind pharmazeutische Unternehmen und Großhändler verpflichtet die Abgabemengen von TAM zu erfassen und zu melden. Grundlage dafür sind das Arzneimittelgesetz und die DIMDI-Arzneimittelverordnung. Im Juli 2013 wurden vom Bundesamt für Verbraucherschutz und Lebensmittelsicherheit (BVL) die Zahlen veröffentlicht<sup>10</sup>. Die Auswertung der Daten des Jahres 2011 zeigten, dass insgesamt 1.706 Tonnen Antibiotika an Tierärzte und Landwirte abgegeben worden sind (siehe Abbildung 2). Die Abgabemengen lagen damit wesentlich höher als vermutet.

Tetrazykline waren mit rund einem Drittel (564 Tonnen) die am Häufigsten verkauften Antibiotika, gefolgt von Aminopenicillinen (501 Tonnen), Makroliden (173 Tonnen), Sulfonamiden (185 Tonnen) und Polypeptidantibiotika (127 Tonnen). Die Abgabemengen von Cephalosporinen der III. und IV. Generation betrug 3,5 Tonnen. Dies ist insbesondere deshalb bedenklich, da diese Wirkstoffe in der Humanmedizin als sogenannte Reserveantibiotika eingesetzt werden. Darunter werden solche Substanzen verstanden, die der Behandlung von schwerwiegenden Infektionen vorbehalten sein sollten, bei denen die Standardantibiotika, wie zum Beispiel Tetrazykline oder Aminopenicilline, wegen Resistenz nicht mehr eingesetzt werden können. Mit dem Einsatz in der Tiermedizin steigt die Gefahr der Bildung weiterer Resistenzen.

---

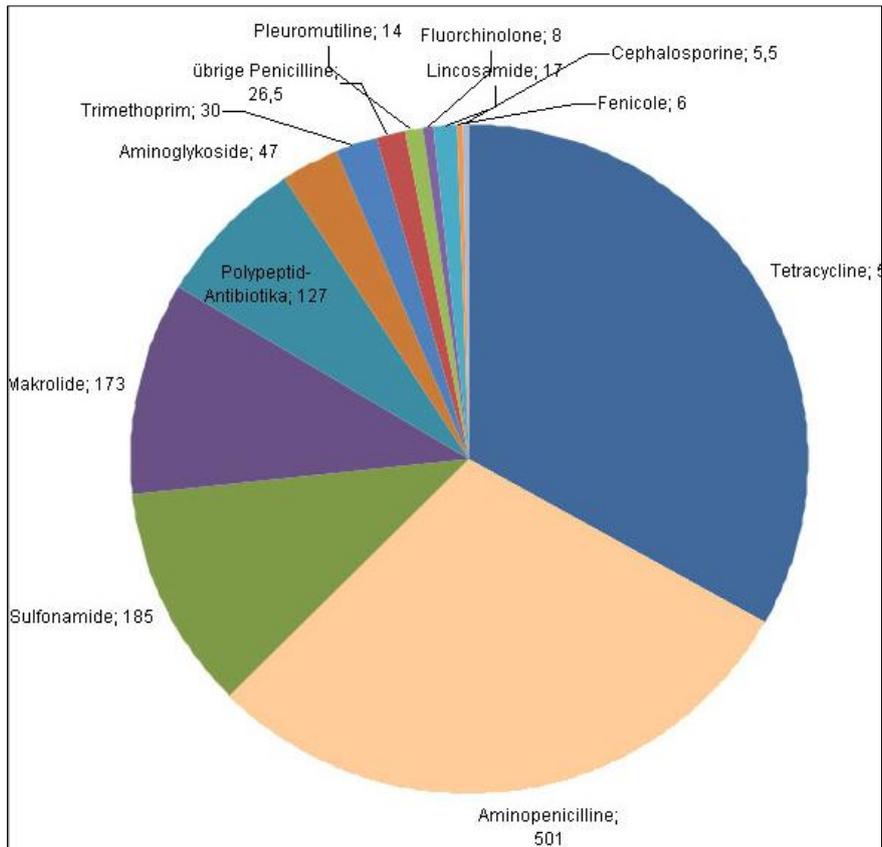
<sup>7</sup><http://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/publikation/long/2976.pdf>

<sup>8</sup> [http://www.bvl.bund.de/SharedDocs/Downloads/08\\_PresseInfothek/Germap\\_2008.pdf?\\_blob=publicationFile&v=2](http://www.bvl.bund.de/SharedDocs/Downloads/08_PresseInfothek/Germap_2008.pdf?_blob=publicationFile&v=2)

<sup>9</sup> [http://www.bvl.bund.de/SharedDocs/Downloads/08\\_PresseInfothek/Germap\\_2010.pdf?\\_blob=publicationFile&v=2](http://www.bvl.bund.de/SharedDocs/Downloads/08_PresseInfothek/Germap_2010.pdf?_blob=publicationFile&v=2)

<sup>10</sup>[http://www.bvl.bund.de/DE/08\\_PresseInfothek/01\\_FuerJournalisten/01\\_Presse\\_und\\_Hintergrundinformationen/05\\_Tierarzneimittel/2013/2013\\_07\\_30\\_hi\\_Antibiotikaabgabe.html?nn=1401276; Zugriff am 24.10.2013](http://www.bvl.bund.de/DE/08_PresseInfothek/01_FuerJournalisten/01_Presse_und_Hintergrundinformationen/05_Tierarzneimittel/2013/2013_07_30_hi_Antibiotikaabgabe.html?nn=1401276; Zugriff am 24.10.2013)

Abbildung 2: Erfassung der 2011 verkauften Antibiotika in Deutschland nach DIMDI, Angaben in Tonnen (BVL<sup>10</sup>)



Im Jahr 2012 ist die Menge der abgegebenen Tierarzneimittel um 87 Tonnen auf 1.619 Tonnen gegenüber 2011 gesunken (s. Tabelle 3). Die zweite Erhebung zur Abgabemenge<sup>8</sup> ergab eine leichte Zunahme der Tetracycline (2 Tonnen) und Fluorchinolone (2 Tonnen), jedoch eine Abnahme von Penicillinen (um 29,5 Tonnen), von Makroliden (28 Tonnen) und von Sulfonamiden (23 Tonnen) gegenüber dem Vorjahr.

Wie aus der deutschlandweiten Karte der abgegebenen Tierarzneimittelmengen in 2012 (s. Abbildung 3) hervorgeht sind im Westen Niedersachsens und im Nordwesten von Nordrhein-Westfalen, dem Postleitzahlbereich 48 und 49 eine starke Konzentration hoher Abgabemengen von Tierarzneimitteln zugeordnet worden. Der Postleitzahlbereich Osnabrück (49) verzeichnete Abgabemengen von 500 bis 800 Tonnen in 2012, der südlich davon liegende Bereich um Münster (48) von 100 bis 500 Tonnen. Die regionale Abgabemengenverteilung von Tierarzneimitteln in Deutschland entspricht in etwa der in 2011 ermittelten Verteilung.

In den Jahren 2007 und 2008 startete das Projekt *VetCab* (Veterinary Consumption of Antibiotics) als Machbarkeitsstudie zur Erfassung von Antibiotikaeinsatz in der deutschen Tierzucht.

Im Rahmen des Pilotprojektes (VetCab Pilot) wurden 2011 deutschlandweit 810 Rinderzucht- 500 Schweinemast- sowie 33 Hühnermastbetriebe nach ihrem Verbrauch und der Art der eingesetzten Antibiotika befragt und die Ergebnisse auf die gesamte deutsche lebensmittelerzeugende Tierhaltung hochgerechnet. Die nun vorliegenden Zahlen<sup>11</sup> geben einen Eindruck zum Status quo, der als Basis für ein aufzubauendes Sentinel zur weiteren Erfassung von Angaben, z. B. zur Betrachtung von Hygienemaßnahmen, dienen soll.

<sup>11</sup> [http://www.vetcab.de/fachinformation\\_vetcab\\_20130709.pdf](http://www.vetcab.de/fachinformation_vetcab_20130709.pdf)

Tabelle 3: Erfassung der in 2011 und 2012 abgegebenen Mengen von Antibiotika in Deutschland nach DIMDI, Angaben in Tonnen (BVL<sup>12</sup>)

Wirkstoffklasse	Abgegebene Menge 2011 (t)	Abgegebene Menge 2012 (t)	Differenz (t)
Tetrazykline	564	566	+2
Penicilline	527,5	498	-29,5
Sulfonamide	185	162	-23
Makrolide	173	145	-28
Polypeptid- Antibiotika	127	124	-3
Aminoglykoside	47	40	-7
Trimethoprim	30	26	-4
Lincosamide	17	15	-2
Pleuromutiline	14	18	+4
Fluorchinolone	8	10	+2
Fenicole	6	6	0
Cephalosporine, I.+II. Gen.	2	5	+3
Cephalosporine, III. Gen.	2	2,5	+0,5
Cephalosporine, IV. Gen.	1,5	1,5	0
Fusidinsäure	< 1	< 1	0
Nitrofurane	< 1	< 1	0
Nitroimidazole	< 1	< 1	0
<b>Gesamt</b>	<b>1.706</b>	<b>1.619</b>	<b>87</b>

Aus einer (unveröffentlichten) Fachinformation mit Stand vom 09.07.2013 („Repräsentative Verbrauchsmengenerfassung von Antibiotika in der Nutztierhaltung - Kurzbericht über die Ergebnisse der Studie "VetCAB-Pilot"“) geht hervor, dass bei der Tiergruppe Schwein die größten Mengen von den Wirkstoffgruppen Tetrazykline und Beta-Laktame verabreicht wurden. Gefolgt werden diese von der Kombination Trimethoprim/Sulfonamid. Makrolide und Polypeptide folgen in ähnlichen Mengenverhältnissen wie in Abbildung 2 dargestellt. Quantitativ wurden auffällig wenig Cephalosporine und Fluorchinolone angewandt. Bei der Behandlung von Rindern stehen die Beta-Laktame an erster Stelle, gefolgt von Tetrazyklinen und der Kombination Trimethoprim / Sulfonamid. Auffallend ist eine häufigere Anwendung von Cephalosporinen und Fluorchinolinen als bei den Schweinen. Bei Masthähnchen (Broiler) werden die Polypeptide mengenmäßig am häufigsten eingesetzt, gefolgt von Beta-Laktamen und Makroliden. Tetrazykline kommen kaum zum Einsatz.

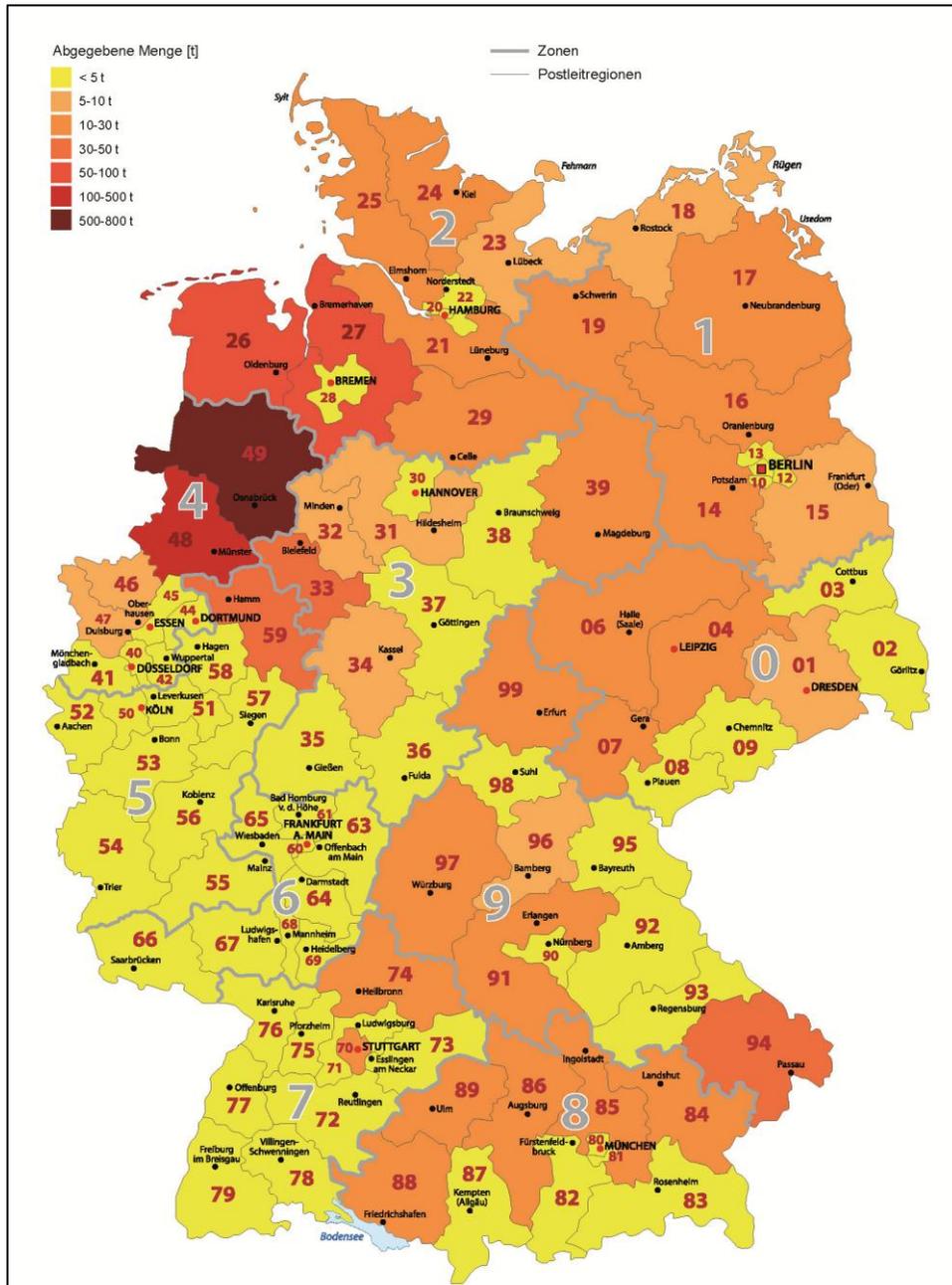
#### 4.3.2 Abgabemengen von Tierarzneimitteln in anderen europäischen Ländern

Vorhandene Informationen zu Art und Menge der eingesetzten Tierarzneimittel in anderen europäischen Ländern zeigen, dass z. B. 2005 die Verkaufszahlen für Tierarzneimittel in Dänemark 110 t, in Frankreich 1322 t, in Großbritannien 403 t und in den Niederlanden 508 t betragen. 2009 waren es in Dänemark 128 t, in Frankreich 1064 t, in Großbritannien 403 t und in den Niederlanden 514 t (EMA 2011<sup>13</sup>). Interessant ist ein Vergleich der Angaben für Deutschland mit den Zahlen Dänemarks.

<sup>12</sup>[http://www.bvl.bund.de/DE/08\\_PresseInfothek/01\\_FuerJournalisten/01\\_Presse\\_und\\_Hintergrundinformationen/05\\_Tierarzneimittel/2013/2013\\_11\\_11\\_pi\\_Abgabemengen.html?nn=1401276](http://www.bvl.bund.de/DE/08_PresseInfothek/01_FuerJournalisten/01_Presse_und_Hintergrundinformationen/05_Tierarzneimittel/2013/2013_11_11_pi_Abgabemengen.html?nn=1401276), Zugriff 11.12.2013

<sup>13</sup> Reflexion paper on risk mitigations measures related to the environmental risk assessment of veterinary medical products. [http://www.ema.europa.eu/docs/en\\_GB/document\\_library/Other/2012/03/WC500124186.pdf](http://www.ema.europa.eu/docs/en_GB/document_library/Other/2012/03/WC500124186.pdf)

Abbildung 3: Regionale Abgabemengen von Tierarzneimitteln in 2012 nach Postleitzahlregionen<sup>12</sup>

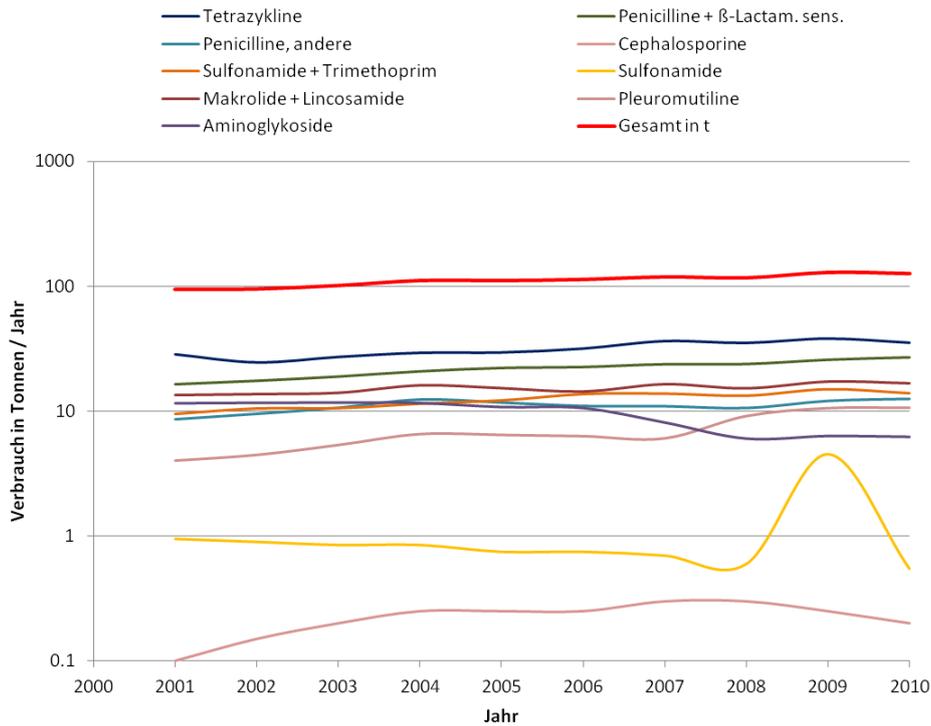


Für Dänemark gibt es Erhebungen über einen längeren Zeitraum (siehe Abbildung 4), so dass daraus möglicherweise ein Trend in der Produktwahl und den eingesetzten Mengen abgeleitet werden kann.

Insgesamt zeigt sich eine Zunahme des Antibiotikaverbrauchs in Dänemark im Zeitraum von 2001 bis 2009, mit einem leichten Rückgang 2010. Der Verbrauch der Wirkstoffgruppen nimmt - mit Ausnahme der Cephalosporine und der Aminoglykoside - zu. Insbesondere nahm der Verbrauch an Cephalosporinen in der zweiten Jahreshälfte 2010 um 50 % ab, nachdem ein freiwilliges Verbot für den Einsatz bei der Tierproduktion eingeführt wurde (Danmap 2010<sup>14</sup>). Der Verbrauch an Pleuromutilinen stieg in 2008 sprunghaft an, nachdem Tiamulin preisgünstiger wurde.

<sup>14</sup> [http://www.danmap.org/Downloads/-/media/Projekt%20sites/Danmap/DANMAP%20reports/Danmap\\_2010.ashx](http://www.danmap.org/Downloads/-/media/Projekt%20sites/Danmap/DANMAP%20reports/Danmap_2010.ashx)

Abbildung 4: Geschätzter Verbrauch von TAM in der Tiermast in Dänemark (logarithmische Darstellung, Danmap 2010)



In Dänemark waren Tetracykline, Penicilline, Makrolide und Pleuromutiline die meist angewandten Antibiotika in der Schweinemast (siehe Tabelle 4). Bei Rindern ist in Dänemark im Zeitraum von 2005 bis 2010 ein Anstieg im Verbrauch von Penicillinen zu verzeichnen, bei gleichzeitigem Rückgang des Verbrauchs von Tetracyklinen und Makroliden (außer in der Kälbermast). Sowohl 2009 als auch 2010 ging der Verbrauch an Cephalosporinen erheblich zurück (Danmap 2010). In der Hähnchenmast wird primär Amoxicillin eingesetzt. Amoxicillin war bis 2007 mit 70 bis 99 % auch in der Putenmast das primär eingesetzte Antibiotikum. 2010 betrug die Menge nur noch 3 % der eingesetzten Antibiotika. Makrolide und Tetracykline sind jetzt die wichtigsten Substanzgruppen in der Putenmast. Der Einsatz von Fluorchinolonen ging von 2006 bis 2010 von 7 % auf 0 % zurück. Der Antibiotikaeinsatz und die Resistenzentwicklung wurde in Dänemark schon frühzeitig dokumentiert und zunächst damit begonnen, die Nutzung von Antibiotika einzuschränken, die für die Humanmedizin wichtig sind (u. a. Cephalosporine und Fluorchinolone).

Tabelle 4: Verkaufte Antibiotika in Tonnen Wirksubstanz in Dänemark in 2010 nach Tiergruppen (Danmap 2010)

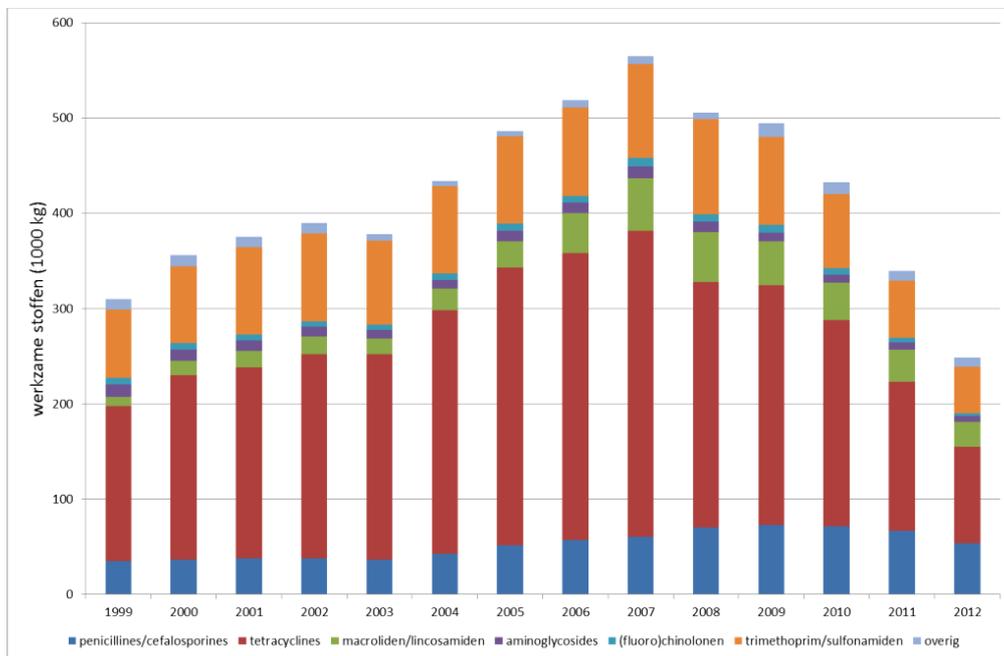
Antibiotikagruppe	Schwein	Rind	Hähnchenmast	Pute
Amphenicol	0.15	0.39	0	0.005
Aminoglycoside	4.95	0.83	0	0
Cephalosporine	0.05	0.12	0	0
Fluorchinolone	0	0.001	0	0
Quinolone	0	0	0	0
Lincosamide	2.66	0.03	0	0
Makrolide	12.98	0.22	0.04	0.14
Pleuromutiline	10.66	0.02	0	0
Penicilline (β-Lactam. sens.)	18.32	7.76	0.02	0.004
Penicilline (Amoxicillin. Cloxacillin)	9.01	1.36	0.19	0.004
Sulfonamide +TMP (inkl. Sulfaclosin)	8.91	2.06	0.01	0.005
Tetracykline	32.32	1.85	0.08	0.094

Nachdem der geschätzte Verbrauch 2009 immer weiter anstieg, wurde das sog. „Yellow-Card-Prinzip“ gesetzlich eingeführt. Um den Verbrauch in kg für 2013 im Vergleich zu 2009 um 10 % zu senken, wurden Schweinehaltern mit hohen Antibiotikaverbrauch Strafmaßnahmen auferlegt (Danmap 2010).

Auch für die Niederlande liegen Daten von 1999 bis 2012 vor (siehe Abbildung 5). Tendenziell ist eine Zunahme im Verbrauch der therapeutischen Antibiotika erkennbar, die ihren Höhepunkt in 2007 (Maran 2009<sup>15</sup>) erreicht. Weiterhin zeigt sich, dass der über die Jahre zunehmende Verbrauch an neueren Antibiotika - wie den Makroliden, Fluorchinolonen und den Cephalosporinen der 3. und 4. Generation - seit 2009 einen Wendepunkt erreicht hat. Der Trend zu einem abnehmenden Verbrauch an Antibiotika konnte durch Untersuchungen der Universität Wageningen (LEI Wageningen UR 2012<sup>16</sup>) bestätigt werden. Der Vergleich von Verkaufszahlen an Antibiotika der ersten Jahreshälfte 2009 mit denjenigen aus der ersten Jahreshälfte 2011 zeigt für alle untersuchten Wirkstoffgruppen z.T. erhebliche Abnahmen. Alarmierende Berichte in der Presse über den Einsatz von Antibiotika und die zunehmende Verbreitung von Antibiotika-resistenten Keimen in den Niederlanden führten dazu, dass im Jahr 2009 klare gesetzliche Vorgaben zur Reduzierung des Antibiotika-Verbrauchs eingeführt wurden. Schon bis 2011 muss der Antibiotikaverbrauch um 20 % und bis 2013 um 50 % reduziert werden. Dieses Ziel wurde bereits 2012 erreicht. Die größte Abnahme erfolgte bei den Tetracyclinen. Allerdings wird jetzt vermehrt Doxycyclin eingesetzt. Von diesem Wirkstoff muss nur etwa 2 bis 3mal weniger im Vergleich zu den Tetracyclin eingesetzt werden, um den gleichen Effekt zu erreichen.

In Europa liegt Deutschland beim Verbrauch von TAM pro produzierter Fleischmasse auf Platz 4 - nach Zypern, Italien und Spanien, aber vor den Niederlanden (European Medicines Agency 2013).

Abbildung 5: Verkaufszahlen von TAM in den Niederlanden von 1999 bis 2012 (FIDIN 2013<sup>17</sup>)



<sup>15</sup> <http://edepot.wur.nl/165958>

<sup>16</sup> [www.maran.wur.nl](http://www.maran.wur.nl)

<sup>17</sup> <http://www.autoriteitdiergeenmiddelen.nl/Userfiles/sda-rapportage-het-gebruik-van-antibiotica-bij-landbouwhuisdieren-in-2012---19-juli-2013.pdf>

### 4.3.3 Regionalspezifische Einsatzmengen

Ziel des Projektes ist es, ausgewählte Standorte auf Rückstände relevanter Wirkstoffe zu untersuchen. Voraussetzung für den Eintrag in das Grundwasser ist der Einsatz dieser Medikamente in der Veterinärmedizin. Eine tierartenspezifische Aufschlüsselung nach Verschreibungen von Einzelwirkstoffen wurde von Winckler & Grafe (2000) veröffentlicht (s. Tabelle 5). Dazu wurden die verabreichten Tierarzneimittelmengen und die dem Futter zugesetzten pharmakologisch wirksamen Futterzusatzstoffmengen anhand tierärztlicher Herstellungsaufträge und von Befragungen erfasst bzw. abgeschätzt. Diese Studie ist einer der wenigen Berichte, in dem einzelne Wirkstoffe und nicht nur Wirkstoffgruppen genannt werden.

Aktuelle Angaben zu Art und Menge eingesetzter Tierarzneimittel in der avisierten deutschen Untersuchungsregion (s. Kap. 6) können Berichten über den Antibiotikaeinsatz bei Masthähnchen in Nordrhein-Westfalen (LANUV 2011) und der landwirtschaftlichen Nutztierhaltung in Niedersachsen (LAVES 2011) entnommen werden. Dort diente die im Rahmen des Projektes VetCab<sup>18</sup> entwickelte Datenbank zur pharmakologisch-epidemiologischen Erfassung des Einsatzes von Antibiotika in der Nutztierhaltung als Datenbasis.

Leider finden sich in der NW-Studie keine Angaben zu Wirksubstanzmengen. Die Wirkstoffe, die zum Einsatz kamen, waren: Amoxicillin, Ampicillin, Colistinsulfat, Difloxacin, Doxycyclin, Enrofloxacin, Lincomycin, Phenoxymethylpenicillin, Spectinomycin, Sulfamethoxazol, Tiamulin, Trimethoprim und Tylosin. In der Studie wurden insgesamt 962 Mastdurchgänge erfasst und ausgewertet.

Nur 163 davon fanden ohne Behandlung statt, bei 799 Mastdurchgängen (83%) erfolgte mindestens eine Behandlung. Bei diesen Mastdurchgängen mit Arzneimitteleinsatz erfolgten aufgrund von Mehrfachbehandlungen insgesamt 1748 unterschiedliche Behandlungen, was rechnerisch durchschnittlich 2,2 Behandlungen entspricht. Pro behandelten Mastdurchgang fanden durchschnittlich 3 verschiedene Wirkstoffe Verwendung, bei einer Bandbreite von einem bis acht Wirkstoffen.

Tabelle 6 zeigt, dass die Kombinationen Lincomycin/Spectinomycin und Trimethoprim / Sulfamethoxazol mit 42 % bzw. 51 % am häufigsten zur Anwendung kamen. Arzneimittel mit dem Wirkstoff Sulfamethoxazol sind in Deutschland nur zur Anwendung bei Schweinen und Hühnern zugelassen, nicht bei Rindern (frdl. mdl. Mitt. E. Kleiminger, LAVES NI).

In dem Bericht über den Antibiotikaeinsatz in der landwirtschaftlichen Nutztierhaltung in Niedersachsen (LAVES, 2011<sup>19</sup>) wurden die Tiergruppen Masthühner, Puten, Mastschweine, sowie Mastkälber und Fresser (Jungbullenaufzucht) untersucht. Aus dem Bericht wurden Angaben über die Wirkstoffgruppen und der prozentuale Anteil der Durchgänge übernommen (siehe Tabelle 7).

Die Zahlen in Tabelle 8 zeigen eine breite Anwendung der verschiedenen Wirkstoffgruppen in Niedersachsen.  $\beta$ -Lactame (z. B. Amoxicillin) spielen eine wichtige Rolle in der Hühner- und Putenmast. Addiert man Sulfonamide und Sulfonamide + Trimethoprim, beträgt deren Anteil 28 %, und wird somit am Häufigsten in der Hühnermast eingesetzt. Bei der Anwendung von TAM in der Schweinemast, Kälbermast und bei der Jungbullenaufzucht wird ein breites Spektrum der verschiedenen Wirkstoffgruppen eingesetzt. Nach Einsatzhäufigkeit führen bei diesen Tiergruppen die Tetrazykline, die  $\beta$ -Lactame, die Makrolide und die Sulfonamide.

---

<sup>18</sup> vetcab.de

<sup>19</sup> www.ml.niedersachsen.de/download/62481

Tabelle 5: Verschreibungsmengen von Reinwirkstoffen in tierärztlichen Herstellungsaufträgen und Verschreibungen in Niedersachsen (Winckler &amp; Grafe 2000); Einheit: Tonnen/Jahr

	Wirkstoffgruppe	Wirkstoff	Gesamt	Rind	Schwein	Geflügel
<b>Antibiotika</b>	Tetrazykline	Tetrazyklin-HCl	14,07	0,04	11,57	2,47
		Chlortetrazyklin	14,59	0,04	10,84	3,71
		Chlortetrazyklin-HCl	9,55	0,04	7,70	1,81
		Oxytetrazyklin	0,88	0	0,73	0,15
		Oxytetrazyklin-HCl	0,75	0,06	0,44	0,30
	Sulfonamide	Sulfadiazin	6,22	0,35	5,85	0,02
		Sulfadimidin	5,86	0,41	5,16	0,30
		Sulfamerazin	0,62	0,34	0,29	0
		Sulfathiazol	0,27	0	0,26	0
		Sulfaquinoxalin	0,07	0	0,003	0,07
		Sulfadimethoxin	0,02	0,004	0,02	0
		Sonstige	0,11	0	0,11	0
		Trimethoprim	1,26	0,005	1,22	0,04
	Aminoglykoside	Neomycin	6,79	0,002	1,50	5,29
		Spectinomycin	0,18	0	0,12	0,06
		Apramycin	0,11	0	0,07	0,04
	β-Lactame	Amoxicillin	3,39	0	3,37	0,02
		Procain-Penicillin-G	0,32	0,003	0,31	0,003
		Ampicillin	0,06	0	0,05	0,01
	Polypeptide	Colistin	1,91	0	1,66	0,25
	Makrolide	Tylosintartrat	0,10	0	0,09	0,01
		Tylosinphosphat	0,07	0	0,07	0,003
		Erythromycin	0,01	0	0,0001	0,01
	Lincosamide	Lincomycin	0,29	0	0,223	0,07
	Chinolone	Enrofloxacin	0,005	0	0,005	0
	Pleuromutiline	Tiamulin	0,97	0	0,95	0,02
	Nitroimidazole	Metrodinazol (nicht mehr zugelassen)	0,73	0	0,63	0,10
<b>Antiparasitika</b>	Benzimidazole	Flubendazol	0,42	0	0,27	0,16
		Fenbendazol	0,18	0	0,18	0,002
	Avermectine	Ivermectin	0,01	0	0,001	0
	Tetrahydro-imidazole	Levamisol	0,0002	0,1	0,0001	0
	Sonstige	Cholinchlorid	5,43	0	0,18	5,25
		Acetylsalicylsäure	0,49	0	0,49	0
		Arsanilsäure	0,15	0	0,04	0,12
		Diaveridin	0,11	0	0,11	0
		Bromhexinhydrochlorid	0,01	0,0004	0,01	0,0005
	<b>Gesamtwirkstoffmenge</b>			<b>75,99</b>	<b>1,23</b>	<b>5,45</b>

Tabelle 6: Häufigkeit der Anwendungen mit Wirkstoffkombinationen bei der Hähnchenmast in NW (LANUV 2011)<sup>20</sup>

Wirkstoffkombination	Anzahl Anwendungen in allen Durchgängen
Colistinsulfat/ Amoxicillin	11
Colistinsulfat/ Ampicillin	18
Colistinsulfat/ Phenoxymethylpenicillin	1
Colestinsulfat/ Tylosin	10
Enrofloxacin/ Tylosin	1
Lincomycin/ Spectinomycin	362
Trimethoprim/ Sulfomethoxazol	354
Lincomycin/ Spectinomycin/ Colistin	2
Sonstige	19
<b>Summe</b>	<b>778</b>

Um die anfangs gestellte Frage zur regions- und artenspezifischen Anwendung von TAM zu erörtern, wurden wegen des geringen Informationsstandes die Niederlande und Dänemark mit Niedersachsen verglichen. Wie Tabelle 9 zeigt, werden im Vergleich zu den Niederlanden und Dänemark bei der Hähnchenmast in Niedersachsen eine große Anzahl unterschiedlicher Antibiotika eingesetzt. In Dänemark wird überwiegend Amoxicillin eingesetzt, gefolgt von Tetrazyklinen und Makroliden. In den Niederlanden fällt der hohe Anteil an Quinolonen auf. Bei den Mastschweinen in Niedersachsen (siehe Tabelle 10) ist der relativ niedrige Verbrauch an Sulfonamiden auffällig, in Winckler & Grafe (2000) lagen die zur Anwendung nur bei Hühnern und Schweinen in Deutschland zugelassenen Sulfonamide noch klar an zweiter Stelle. Jetzt spielen Makrolide und vor allem die Tetrazykline eine wichtigere Rolle (70 % in den Niederlanden). In der Putenmast (siehe Tabelle 11) war in Dänemark bis 2009 Amoxicillin noch das am häufigsten eingesetzte Antibiotikum. Jetzt sind es Makrolide und Tetrazykline. In Deutschland sind Sulfonamide,  $\beta$ -Lactame und Tetrazykline bedeutsam, neben dem Antiinfektivum Colistin.

Die Auswertung der Ergebnisse eingesetzter Wirkstoffe in Deutschland, Europa und in den Untersuchungsregionen in NI und NW zeigt, dass in der Intensivtierhaltung ein breites Wirkungsspektrum eingesetzt wird. Die wichtigsten Wirkstoffgruppen Makrolide, Tetrazykline,  $\beta$ -Lactame und Sulfonamide kommen in allen Tiergruppen und Ländern zur Anwendung. Es ist nicht möglich, einen Wirkstoff klar und ausschließlich einer Tierart zuzurechnen.

Tabelle 7: Anteil (in %) der Durchgänge pro Wirkstoffgruppe bei Hühnern und Puten in Niedersachsen (LAVES 2011)

Wirkstoffgruppe	Masthühner	Puten (Aufzucht & Mast)	Puten (Mast)
Makrolide (z. B. Tylosin)	5,43	13,36	6,22
Tetrazykline	1,94	12,44	12,44
Aminoglykoside (z. B. Spectinomycin)	13,47	12,44	4,66
$\beta$ -Lactame (z. B. Amoxicillin)	15,70	20,74	28,50
Lincosamide (z. B. Lincomycin)	13,86	3,69	3,11
Fenikole	-	-	-
Fluorchinolone (z. B. Enrofloxacin)	4,84	6,45	8,81
Pleuromutiline (z. B. Tiamulin)	0,10	3,23	3,11
Polypeptide (z. B. Colistin)	16,67	15,21	16,06
Sulfonamide	13,57	7,37	9,84
Sulfonamide + Trimethoprim	14,44	5,07	7,25

20 [http://www.umwelt.NW.de/verbraucherschutz/pdf/antibiotika\\_masthaehnen\\_abschlussbericht.pdf](http://www.umwelt.NW.de/verbraucherschutz/pdf/antibiotika_masthaehnen_abschlussbericht.pdf)

Tabelle 8: Anteil (in %) der Durchgänge pro Wirkstoffgruppe bei Schweinen, Kälbern und Fressern in NI (LAVES 2011)

Wirkstoffgruppe	Mastschweine	Mastkälber	Fresseraufzucht
Makrolide	15,94	6,85	11,54
Tetrazykline	16,56	12,77	17,31
Aminoglykoside	6,56	10,90	4,49
Cephalosporine	0,63	4,05	1,92
$\beta$ -Lactame	21,25	12,77	14,10
Lincosamide	5,00	6,85	0,64
Fenikole	4,06	6,32	7,69
Fluorchinolone	7,19	8,10	5,13
Pleuromutiline	3,44	-	-
Polypeptide	7,50	9,35	9,62
Sulfonamide	5,94	11,21	13,46
Sulfonamide + Trimethoprim	5,49	10,90	14,10

Tabelle 9: Wirkstoffgruppen und prozentualer Anteil der Durchgänge in Hühnermastbetrieben in Niedersachsen (LAVES 2011), in Dänemark (Danmap 2011) und in den Niederlanden (LEI Wangeningen UR 2012<sup>13</sup>)

Wirkstoffgruppe	Masthühner NI	Masthühner DK	Masthühner NL
Makrolide (z. B. Tylosin)	5,43	11,6	5,0
Tetrazykline	1,94	24,3	15,0
Aminoglykoside (z. B. Spectinomycin)	13,47	0	0,0
Cephalosporine	-	0	0
$\beta$ -Lactame (z. B. Amoxicillin)	15,70	61,7	28,0
Lincosamide (z. B. Lincomycin)	13,86	0	k.A.
Fenikole	-	k.A.	k.A.
Fluorchinolone, Quinolone (z. B. Enrofloxacin)	4,84	0	20,5
Pleuromutiline (z. B. Tiamulin)	0,10	0	k.A.
Polypeptide (z. B. Colistin)	16,67	k.A.	13,0
Sulfonamide	13,57	k.A.	k.A.
Sulfonamide + Trimethoprim	14,44	2,4	13,0

Tabelle 10: Wirkstoffgruppen und prozentualer Anteil der Durchgänge in Schweinemastbetrieben in Niedersachsen (2011), in Dänemark (2011) und in den Niederlanden (LEI Wangeningen UR 2012)

Wirkstoffgruppe	Mastschweine NI	Mastschweine DK	Mastschweine NL
Makrolide/ Lincosamide	20,94	12,9	13,00
Tetrazykline	16,56	32,3	70,00
Aminoglykoside	6,56	5,0	0
Cephalosporine	0,63	0,1	0
$\beta$ -Lactame	21,25	18,3	k.A.
Fenikole	4,06	k.A.	k.A.
Fluorchinolone	7,19	0	0
Pleuromutiline	3,44	-	2,00
Polypeptide	7,50	k.A.	k.A.
Sulfonamide	5,94	k.A.	k.A.
Sulfonamide + Trimethoprim	5,49	8,90	7,00

Tabelle 11: Wirkstoffgruppen und prozentualer Anteil der Durchgänge in Putenmastbetrieben in Niedersachsen (die Angaben in Tonnen beziehen sich jeweils auf das Jahr 2011)

Wirkstoffgruppe	Putenmast NI	Putenmast DK
Makrolide (z. B. Tylosin)	6,22	56,3
Tetrazykline	12,44	36,7
Aminoglykoside (z. B. Spectinomycin)	4,66	0
Cephalosporine	-	0
β-Lactame (z. B. Amoxicillin)	28,50	3,6
Lincosamide (z. B. Lincomycin)	3,11	0
Fenikole	-	-
Fluorchinolone (z. B. Enrofloxacin)	8,81	0
Pleuromutiline (z. B. Tiamulin)	3,11	0
Polypeptide (z. B. Colistin)	16,06	k.A.
Sulfonamide	13,57	k.A.
Sulfonamide + Trimethoprim	14,44	2,0

Auf eine Vorauswahl zu untersuchender Wirkstoffe aufgrund ihres tierartenspezifischen Einsatzes in der Veterinärmedizin wird daher verzichtet. Für die Untersuchung auszuwählender Grundwasserproben auf TAM-Rückstände wurden somit zunächst alle hier betrachteten Wirkstoffgruppen potenziell für die Analytik als relevant bewertet.

#### 4.4 Dokumentierte Untersuchungen zu Tierarzneimitteln im Grundwasser

Neben dem Einsatz in der Veterinärmedizin sind dokumentierte Funde von TAM im Grundwasser ein Indiz für deren Verlagerungsrelevanz. In diesem Kapitel wird daher die nationale und internationale Literatur hinsichtlich positiver Befunde von TAM im Grundwasser untersucht. Ziel ist es, diejenigen Stoffe zu identifizieren, die bereits im Grundwasser nachgewiesen wurden und daher für die vorliegende Untersuchung prinzipiell relevant sein könnten. Eine bundesweit aktuelle Zusammenstellung zu Monitoringdaten von Arzneimitteln in verschiedenen Umweltkompartimenten wurde vom Umweltbundesamt vorgenommen<sup>21</sup>.

In der Literaturstudie zum „Eintrag von Arzneimitteln und deren Verhalten und Verbleib in der Umwelt“ (LANUV 2007) werden die in Tabelle 12 aufgeführten Substanzen und Konzentrationen aufgeführt. Aus der aktuellen Studie aus Nordrhein-Westfalen (LANUV 2011) geht hervor, dass bei den Wirkstoffkombinationen die Kombinationen Sulfamethoxazol/Trimethoprim und Lincomycin / Spectinomycin am häufigsten eingesetzt wurden. Sulfamethoxazol wird bisher in der Literatur (Loos et al. 2010, Hanke et al. 2007) primär als Humanarzneimittel geführt und konnte bereits mehrfach im Grundwasser (Heberer et al. 2008) sowie in Kläranlagenabläufen (Hein 2011, Baumgarten 2013) nachgewiesen werden. Aus diesem Grund werden diese Befunde über das Vorkommen von Sulfamethoxazol im Grundwasser hier mit dargestellt, obwohl dabei die Herkunft aus häuslichem Abwasser überwiegt.

Die Bund/Länder-Arbeitsgemeinschaft für Chemikaliensicherheit (BLAC 2003) berichtet ebenfalls über Nachweise von Sulfadimidin mit Konzentrationen von 0,01 bis 0,21 µg/l im „oberflächennahen“ Grundwasser. Die Proben wurden jedoch mittels Saugsonden in 1,4 m Tiefe gewonnen, so dass davon ausgegangen wird, dass es sich hier um Sickerwasser handelt. Untersucht wurden

<sup>21</sup> [http://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/377/dokumente/compilation-pharmaceuticalsintheenvironment\\_uba.pdf](http://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/377/dokumente/compilation-pharmaceuticalsintheenvironment_uba.pdf)

Tetrazykline, Tylosin, und Sulfonamide im Grundwasser unter begüllten landwirtschaftlich genutzten Flächen. In Grundwasserproben ohne Kontakt mit Abwässern wurde in einer von 44 Proben Sulfadimidin gefunden, allerdings unter der Nachweisgrenze von 0,01 µg/l. In zwei von 44 Proben wurde Sulfamethoxazol mit max. 0,03 µg/l gefunden. Amoxicillin wurde in einer von 16 Proben mit max. 0,1 µg/l nachgewiesen. Unter der Bestimmungsgrenze von <0,02 µg/l lagen einige Arzneimittel, die auch in der Tierhaltung eingesetzt werden (Ampicillin, Chlortetrazyklin, Monensin, Penicillin, Spiramycin, Sulfadiazin, Sulfamerazin, Tylosin und Virginiamycin).

Tabelle 12: In der Literatur dokumentierte Einträge von Arzneimitteln in die Umwelt (LANUV 2007<sup>22</sup>)

Einsatzgebiet des Arzneimittels	Wirkstoffgruppe	Konzentrationen in µg/l	Quelle
Humanarzneistoffe	Sulfamethoxazol	>0,1 µg/l max. 0,13 µg/l	Lilienblum et al. 1988, Hirsch et al. 1999
	Trimethoprim	>0,1 µg/l max. 0,16 µg/l	Lilienblum et al. 1998
Tierarzneimittel	Tetrazyklin	>0,1 µg/l max. 0,13 µg/l	Hamscher et al. 2005
	Sulfadimidin	0,1 µg/l max. 0,16 µg/l	Hirsch et al. 1999
	Sulfadiazin	0,1 µg/l max. 0,16 µg/l	Alexy & Kümmerer 2005

Sulfamethoxazol wird häufig im Grundwasser gemessen. Loos et al. (2010) berichten über das Vorkommen von Sulfamethoxazol in 24 % der 164 untersuchten Grundwasserbrunnen in 23 europäischen Ländern, die Konzentrationen lagen ausnahmslos unter 100 ng/l. In Israel wurde Sulfamethoxazol mit einer Konzentration von 20 ng/l, bei einer Bestimmungsgrenze von 8 ng/l und einer Nachweisgrenze von 5 ng/l, in einer Tiefe von 109 m gefunden (Avisar et al. 2009). Das Gebiet wird seit über 50 Jahren mit geklärtem Abwasser bewässert

Im Rahmen einer Untersuchung in Niedersachsen wurde 2001 und 2004 62 Grundwasserproben auf Rückstände aus Tierarzneimitteln analysiert (OOWV 2005). 2001 wurden bis auf einen Einzelfund (Sulfadimidin) einer flach verfilterten Messstelle keine Rückstände von Tierarzneimitteln nachgewiesen. Untersucht wurden sechs Trinkwasserproben sowie acht Grundwasserproben von Vorfeldmessstellen. Auch 2004 wurden - bei allerdings deutlich höheren Nachweisgrenzen im Vergleich zu den hier durchgeführten Analysen - keine Rückstände von TAM im Rohwasser festgestellt. Heberer et al. 2008 berichten über Konzentrationen von Sulfamethoxazol in einem Berliner Wasserwerksbrunnen von 1- 4 ng/l. Hierbei handelt es sich jedoch sicher nicht um landwirtschaftlich, sondern um siedlungsbedingte Einträge von Humanpharmaka.

In der Schweiz wurde Sulfamethoxazol in Konzentrationen bis 27 ng/l in 20 % der Messstellen gefunden. Sulfadimidin, Sulfadiazin und Sulfathiazol wurden ebenfalls nachgewiesen, allerdings unter der Bestimmungsgrenze von 10 ng/l. Überraschend war der vereinzelt Nachweis der Fluorchinolone Enoxacin (4 Messstellen) und Norfloxacin (zwei Messstellen) in Konzentrationen zwischen 24 und 80 bzw. 23 und 37 ng/l. Allerdings wurde keiner der Befunde durch die Zweitmessung bestätigt (Hanke et al. 2007).

In den USA (Idaho) wurden die Sulfonamide Sulfadimidin und Sulfadimethoxin in sechs Grundwasserbrunnen mit Tiefen zwischen 4, 6 und 16 m in der Nähe eines Rindermastbetriebes gemessen (Batt et al. 2006). Die Konzentrationen von Sulfadimidin betragen zwischen 0,076 und 0,215 µg/l und von Sulfadimethoxin zwischen 0,046 und 0,068 µg/l. Nicht nachgewiesen wurden die Sulfonamide Sulfachloropyridazin und Sulfamethoxin. Barnes et al. (2008) untersuchten in den USA 47 Grundwassermessstellen, die wahrscheinlich durch menschliche oder tierische Abwässer kontaminiert waren. Untersucht wurden unter anderem Tier- und Humanarzneimittel. Nicht

<sup>22</sup> <http://www.lanuv.NW.de/veroeffentlichungen/fachberichte/fabe2/fabe2.pdf>

nachweisbar waren: Carbodox, Chlortetrazyklin, Ciprofloxacin, Doxycyclin, Enrofloxacin, Norflxacin, Oxytetrazyklin, Roxythromycin, Sarafloxacin, Sulfamethoxazin, Sulfamerazin, Sulfamethizol, Sulfathiazol, Tetrazyklin, Trimethoprim, Tylosin, Virginiamycin. Von den 37 untersuchten Proben wurde in 5,4 % der Proben Lincomycin mit einer max. Konzentration von 0,32 µg/l detektiert, in 23,4% wurde Sulfamethoxazol mit einer max. Konzentration von 1,11 µg/l und in 2,7 % der Fälle Sulfadimidin mit einer Konzentration von max. 0,36 µg/l gemessen.

Stuart et al. (2011<sup>23</sup>) fanden in Großbritannien 6 belastete Messstellen mit Diazinon mit max. 152 µg/l (Diazinon wird in Schafsbädern eingesetzt und ist ein Pestizid), Dimitridazole (Coccidostat und Pestizide) in einer Probe mit 0,964 µg/l, Permethrin (Schafsbäder und Pestizid) mit 0,02 µg/l in zwei Proben und Piperonylbutoxid (für Schafsbäder) in 5 Proben mit 32 µg/l.

Bartelt-Hunt et al. (2011) untersuchten an zwei großen Rindermast- (siehe Tabelle 13) und an zwei Schweinemastbetrieben (siehe Tabelle 14

Tabelle 14) in den USA das Vorkommen ausgewählter Antibiotika sowohl in den Gülleteichen (wastewater lagoons) als auch in oberflächennahem Grundwasser in der Nähe der jeweiligen Betriebe und zu verschiedenen Jahreszeiten. Bei allen Betrieben wurden die lagoons und die Brunnen auf folgende Antibiotika untersucht:

- Die Sulfonamide Sulfachloropyridazin, Sulfadimethoxin, Sulfamerazin, Sulfadimidin, Sulfamethazol, Sulfamethoxazol, und Sulfathiazol;
- Die Makrolide Erythromycin und Tylosin (letzterer als Leistungsförderer verboten);
- Das Lincosamid Lincomycin;
- Das Streptogramin Virginiamycin (in der EU als Leistungsförderer verboten);
- Das Ionophor Monensin (coccidiostatisches Mittel und Leistungsförderer);
- Ractopamin (als Leistungsförderer in der EU verboten) und das
- Pleuromutilin Tiamulin (die Nachweisgrenzen lagen bei 100 ng/l für die Abwasserproben und bei 20 ng/l für die Grundwasserproben).

Tabelle 13: Antibiotika in Gülleteichen und Brunnen von Rindermastbetrieben in den USA mit Beprobung der Brunnen in 2 m Tiefe; Angaben in µg/l (in Klammern die Anzahl der Messungen mit positiven Befunden, Bartelt-Hunt et al. 2011)

Antibiotikum	Gülleteich	Brunnen
Sulfamerazin	-	0,05 (1)
Sulfadimidin	-	0,03 - 0,61 (7)
Sulfamethazol	-	0,04 (1)
Sulfathiazol	0,44 - 0,53 (2)	0,03 - 0,17 (4)
Erythromycin	0,31 - 0,47 (4)	0,06 - 0,24 (14)
Monensin	0,98 - 13,00 (4)	0,02 - 2,08 (17)
Tiamulin	-	0,03 (1)

Tiamulin wurde in einem der Brunnen in der Nähe eines Rindermastbetriebes gefunden, aber nicht im Gülleteich. Erythromycin kam sowohl in den Rindergülleteichen als auch in den Brunnen häufig vor. Tylosin wurde einmal im Schweinegülleteich gemessen, nicht jedoch im Grundwasser. Von den Sulfonamiden wurde Sulfadimidin in den Brunnen in der Nähe der Rinder- und Schwei-

<sup>23</sup> nora.nerc.ac.uk/16560/1/Emerging\_contaminants\_risk\_NORA\_version.pdf

nemastbetriebe nachgewiesen. Bedenklich ist auch, dass Lincomycin in den Schweinegülleteichen und in den Schweinebrunnen vorkam. Monensin und Ractopamin sind als Leistungsförderer in der EU verboten.

Tabelle 14: Antibiotika in Gülleteichen und Brunnen von Schweinemastbetrieben in den USA mit Beprobung der Brunnen in 8 bzw. 15 m Tiefe in µg/l (Bartelt-Hunt et al. 2011)

Antibiotikum	Gülleteich	Brunnen
Sulfadimethoxin	0,392(1)	-
Sulfadimidin	0,401 - 2,30 (2)	0,06 - 0,08 (2)
Sulfathiazol	0,33 - 1,00 (3)	-
Erythromycin	-	0,05(1)
Lincomycin	0,17 - 0,42 (3)	0,05 - 0,21 (3)
Ractopamine	0,14 - 0,52 (4)	0,05 (1)
Tylosin	0,21 (1)	-

Auch Watanabe et al. (2010) berichtet unter anderem von dem Vorkommen von Lincomycin in oberflächennahem Grundwasser (2 - 5 m) in der Nähe von Rinderfarmen (siehe Tabelle 15). Auch sie untersuchten Lagoons und oberflächennahes Grundwasser.

Neben Lincomycin finden Watanabe et al. (2010) zwei Sulfonamide im Grundwasser. Von den in den Lagoons gemessenen Tetrazyklinen wird keine einzige Verbindung im Grundwasser nachgewiesen. Das Grundwasser wurde noch auf zahlreiche andere Wirkstoffe untersucht, die in ihrer Konzentration alle unter der Bestimmungsgrenze lagen: Carbamazapine, Azithromycin, Erythromycin, Roxithromycin, Tylosin, Virginiamycin, Ciprofloxacin, Lomefloxacin, Norfloxacin, Ofloxacin, Sarafloxacin, Enrofloxacin, Sulfachloropyridazin, Sulfadiazin, Sulfathiazol, Doxyzyklin, Chloramphenicol und Ormetoprim.

In Nordrhein-Westfalen wurden Proben aus oberflächennahem Grundwasser im Einflussbereich von mit Gülle und Mist gedüngten landwirtschaftlichen Nutzflächen auf Tetrazykline (Tetrazyklin, Oxytetrazyklin, Chlortetrazyklin), Sulfonamide (Sulfadiazin, Sulfathiazol, Sulfamerazin,

Tabelle 15: Antibiotika in µg/l in Lagoons und im Grundwasser im Abstrom von Rinderfarmen in den USA (Watanabe et al. 2010)

Antibiotikum	Lagoon	Grundwasser
Sulfadimethoxin	0,04 - 9,0	0,005 - 0,01
Sulfadimidin	0,61 - 14,0	0,007 - 0,11
Sulfamethoxazol	0,43 - 4,9	-
Iso-Chlortetrazyklin	0,99 - 1,5	-
Epi-Chlortetrazyklin	0,12 - 1,5	-
Epi-Iso-Chlortetrazyklin	0,68 - 1,0	-
Oxytetrazyklin	0,093 - 0,66	-
Tetrazyklin	0,02 - 0,11	-
Epi-Tetrazyklin	0,035 - 0,38	-
Lincomycin	0,012 - 0,054	0,23 - 1,9
Trimethoprim	0,024 - 0,23	-

Sulfadimidin, Sulfamethoxyppyridiazin, Sulfamethoxazol, Sulfadioxin, Sulfaethoxyppyridiazin, Sulfamethoxin, Sulfaquinolin und Trimethoprim) sowie Fluorchinolone (Marbofloxacin, Ciprofloxacin, Danofloxacin, Enrofloxacin, Orbifloxacin, Difloxacin und Sarafloxacin) untersucht. Die Bestimmungsgrenze lag bei 0,05 µg/l (Hembrock-Heger et al. 2011).

Lediglich Sulfamethoxazol wurde in einer Konzentration von 0,30 µg/l (Wiederholung 0,37 µg/l) in einer von 21 Grundwassermessstellen nachgewiesen. Bodenproben wurden ebenfalls analysiert, Sulfonamide und Fluorchinolone waren nicht nachweisbar. Tetrazykline waren dagegen in vielen der untersuchten Böden nachweisbar: Die maximalen Konzentrationen betragen bei Oxytetracyclin 13,6 µg/kg, bei Chlortetracyclin 44,4 µg/kg und bei Tetrazyclin 38,6 µg/kg. Tetrazyclin war noch in 30 bis 60 cm Bodentiefe nachweisbar, in 60 bis 90 cm Tiefe jedoch nicht mehr.

Dass Tetrazykline noch weiter im Boden nach unten verlagert werden können und dadurch ggf. auch das Grundwasser erreichen können, zeigten Hamscher et al. (2002 und 2005) und Höper et al. (2002). Unterhalb der Bodendauerbeobachtungsfläche (BDF) Dinklage in Niedersachsen, in deren Umgebung in der landwirtschaftlichen Nutzfläche regelmäßig Gülle beaufschlagt wird, wurden aus 140 cm Tiefe mittels Nylon-Saugsonden Sickerwasserproben entnommen und auf Tetrazykline sowie Sulfonamide mit folgenden Ergebnissen untersucht:

- Alle 140 Proben hatten Chlortetracyclin-Werte unter der Nachweisgrenze von 0,05 µg/l,
- Bei Tetrazyclin lagen von 140 Proben eine Probe bei 0,05 und 3 Proben > 0,1 µg/l,
- Bei Sulfadiazin lagen von 140 Proben alle unter der Nachweisgrenze,
- Bei Sulfadimidin lagen von 140 Proben 22 oberhalb der Nachweisgrenze (NWG), 48 Proben lagen bei der Bestimmungsgrenze (BG), 61 Proben wiesen Konzentrationen oberhalb der BG, aber unterhalb von 0,1 und 9 Proben lagen oberhalb von >0,1 µg/l,
- In Lysimeterproben wurden Tetrazyclin, Chlortetracyclin und Sulfadimidin nachgewiesen. Nicht nachweisbar waren Oxytetracyclin, Sulfadiazin, Sulfathiazol, Sulfamerazin, Sulfamethoxyipyridazin, Sulfamethoxazol, Sulfadimethoxin und Tylosin.
- Im Sickerwasser der Lysimeter wurden Sulfadimidin mit einer Konzentration von > 0,1 µg/l und Sulfamethoxazol nachgewiesen.
- In der darunter folgenden Grundwassermessstelle des NLWKN mit einem Filterausbau von 9 bis 13 m Tiefe (unter lehmigen Zwischenschichten) wurden keine Tetrazykline und keine Sulfonamide gefunden.

In Perkolaten von Lysimetern, die wiederholt mit Gülle und drei verschiedenen Sulfonamiden beaufschlagt wurden, fanden Aust et al. (2010) Sulfadiazin in Konzentrationen von 0,09 bis 19,8 µg/l, Sulfadimidin von 0,08 bis 56,7 µg/l und Sulfadimethoxin von 0,11 bis 53 µg/l.

Kay et al. (2004) untersuchten den Transport von Oxytetracyclin, Sulfachloropyridazin und Tylosin. Dazu wurde Gülle von Schweinen, die zuvor mit den drei Substanzen behandelt worden waren, in zwei aufeinander folgenden Jahren ausgebracht und die Konzentrationen der Substanzen im Boden und im Abfluss der in 0,65 m Tiefe verlegten Drainagerohre gemessen. Im Abfluss der Drainagerohre wurden Peaks von 1691 µg/l Oxytetracyclin und 365 µg/l Sulfachloropyridazin gefunden. Tylosin konnte weder im Boden noch im Drainagewasser nachgewiesen werden (NWG Boden 10 µg/kg, Wasser 0,35 µg/l). Diese Ergebnisse scheinen im Widerspruch zu solchen zu stehen, die aus Bayern bekannt sind (Weiß et al. 2008, LfU 2008<sup>24</sup>). Im Rahmen eines Forschungsvorhabens wurde die Verlagerung von fünf Arzneimittelwirkstoffen und deren Transformationsprodukte in der Bodenpassage unter Einbeziehung des Standorttyps und der Bewirtschaftungsform auf 300 m<sup>2</sup> großen Flächen quantifiziert. Getestet wurden das Sulfonamid Sulfadimidin, das Makrolid Tylosin, das Fluorchinolon Enrofloxacin, das Tetrazyclin Chlortetracyclin sowie das Antiparasitikum Flubendazol. Die Untersuchungen zur Auswaschung

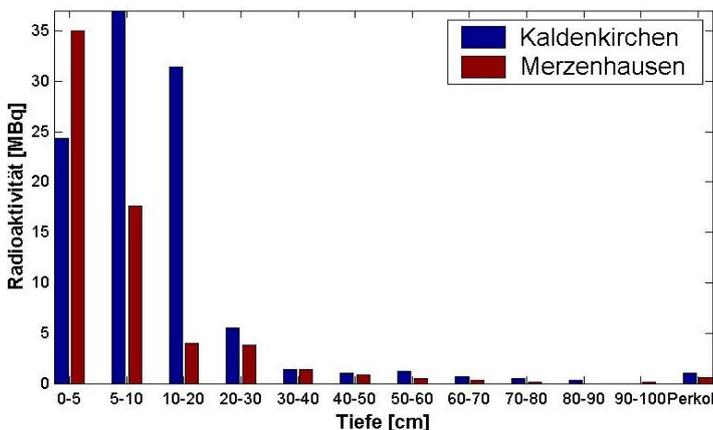
---

<sup>24</sup> [http://www.lfu.bayern.de/analytik\\_stoffe/tierarzneimittel\\_im\\_sickerwasser/doc/abschlussbericht.pdf](http://www.lfu.bayern.de/analytik_stoffe/tierarzneimittel_im_sickerwasser/doc/abschlussbericht.pdf)

der mit Gülle ausgebrachten Tierarzneimittel in das oberflächennahe Grundwasser wurden auf gedrähten Flächen und einem Halbschalen-Lysimeter unter Simulierung eines Starkregens durchgeführt. Die höchsten Auswaschungsraten wurden bei Tylosin ermittelt, gefolgt von Sulfadimidin, Enrofloxacin und Flubidazol. Chlortetrazyklin wurde mit dem Sickerwasser nicht verfrachtet. Die Grünlandflächen wiesen aufgrund der fehlenden Bodenbearbeitung ein ausgeprägtes Makroporensystem bis zur Grasnarbe auf. Dies hatte im Vergleich zu Ackerflächen höhere Frachten und Konzentrationen an TAM im Sickerwasser zur Folge. Das Sulfonamid Sulfadimidin erreichte von allen untersuchten Wirkstoffen mit 16 µg/l die höchsten Konzentrationen im Sickerwasser. Daneben wurde auch das Transformationsprodukt Acetyl-Sulfadimidin in Gülle und Sickerwasser gemessen. Enrofloxacin und der im Schwein entstandene Metabolit Ciprofloxacin wurde offenbar stark an Bodenpartikel sorbiert. Enrofloxacin konnte nur im Sickerwasser von gut durchlässigen Wiesenstandorten nachgewiesen werden. Ciprofloxacin wurde dagegen in keiner Wasserprobe gefunden. Im Gegensatz zu den Befunden von Kay et al. (2004) wurde Tylosin in der Gülle und im Sickerwasser (primär als Tylosin A und B) gemessen. Der Grund für diese Diskrepanz liegt u. U. an der Lagerdauer der Gülle. Bei Weiß et al. (2008) betrug die Lagerungsdauer 6 bis 13 Tage, in der Studie von Kay et al. (2004) war die Gülle wahrscheinlich noch länger gelagert worden.

Ingerslev und Halling-Sørensen (2001) berichten von einer Halbwertszeit für Tylosin in Gülle von 3 bis 8 Tagen. Das Antiparasitikum Flubendazol mit seinen Transformationsprodukten Aminofluben-dazol und Hydroxyfluben-dazol wurde in der Gülle und im Sickerwasser nachgewiesen, wobei Hydroxyfluben-dazol die höchste Mobilität aufwies. Allerdings wird das Antiparasitikum samt Transformationsprodukten in der Gülle während der Lagerung rasch abgebaut (Weiß et al. 2008), was im Gegensatz zu den Befunden von Kreuzig et al. (2007a) steht, die nach 102 Tagen noch 72 % der Anfangsmenge fanden. In Untersuchungen des FZ Jülich wurden monolithisch gefüllte Lysimeter mit Gülle beaufschlagt, die von Schweinen stammte, welche entweder mit <sup>14</sup>C (radioaktiv) markiertem Sulfadiazin oder mit <sup>14</sup>C markiertem Difloxacin behandelt wurden (siehe Abbildung 6). In der Gülle wurden neben Sulfadiazin die Transformationsprodukte Acetylsulfadiazin und 4-Hydroxysulfadiazin und neben Difloxacin ungefähr 10 % als Sarafloxacin gemessen (Deivasigamani et al. 2009, Lamshöft 2010a).

Abbildung 6: Verteilung der Radioaktivität in 1 m<sup>2</sup> großen Lysimetern nach Applizierung von Schweinegülle (Kaldenkirchen- lehmiger Sand, Merzenhausen- schluffiger Lehm)



Die Böden in den Lysimetern waren ein schluffiger Lehm (Parabraunerde aus Jülich-Merzenhausen) und ein lehmiger Sand (aus Kaldenkirchen). Abbildung 6 zeigt die Verteilung der Radioaktivität, nachdem die Lysimeter nach drei Jahren schichtweise beprobt worden waren. Ungefähr 1 % der applizierten Radioaktivität (100 Megabequerel) wurde im Perkolat des Kaldenkirchener Lysimeters gemessen, im Perkolat des Merzenhausener Lysimeters waren es lediglich 0,5 %. Sulfadiazin und die beiden Transformationsprodukte konnten im Perkolat des

Merzenhausener Lysimeters nicht nachgewiesen werden. Im Perkolat des Kaldenkirchen Lysimeters wurde einmalig Sulfadiazin in einer Konzentration von 7,6 ng/L gemessen. Zusätzlich wurde jedoch 2-Aminopyrimidin, ein weiteres Transformationsprodukt identifiziert. Wie man weiter aus der Verteilung der Radioaktivität sehen kann, ist diese im sandigen Boden tiefer verlagert worden als in der Parabraunerde. Immerhin war Sulfadiazin nach drei Jahren im

Oberboden noch messbar und zwar mit 13 bis 55 µg/kg Boden. In den Lysimetern, die mit Difloxacin-Gülle beaufschlagt wurden, fand sich fast die gesamte applizierte Radioaktivität nach drei Jahren in den obersten 30 cm wieder.

Erst kürzlich berichteten Kroghæ et al. (2012) über das Vorkommen von Toltrazuril (Antiparasitikum) und den Metaboliten Toltrazurilsulfoxid und Toltrazurilsulfon im oberflächennahen Grundwasser in Konzentrationen von 200 bis 2580 pg/l. Zusammenfassend wurden folgende Substanzen in oberflächennahem Grundwasser gefunden:

- Tetrazyklin, Chlortetrazyklin; Sulfadimidin, Sulfadiazin, Sulfamethoxazol, Sulfathiazol, Sulfamethoxin, Eurofloxacin, Lincomycin, Erythromycin, Tylosin; Tiamulin, Flubendazol und Toltrazuril.

Die Ergebnisse der Literaturstudie zu TAM-Funden im Sicker- bzw. Grundwasser enthält Tabelle 16 in aggregierter Form.

Tabelle 16: Dokumentierte Funde von Tierarzneimitteln im Grundwasser (HA: häusliches Abwasser)

Wirkstoff	Quelle HA/Gülle	Land	Wert in µg/l	Literaturzitat
Acetyl-Sulfadimidin	Gülle	D	0,3	Weiß et al. 2008
Amino-Flubendazol	Gülle	D	0,1	Weiß et al. 2008
Amoxicillin	HA/Gülle	D	0,1	BLAC 2003
Anhydrozyklin	Gülle Schwein	USA	0,1	Krapac et al. 2005, Sarmah et al. 2006
Anhydrochlorotetrazyklin	Gülle Schwein	USA	0,3	Krapac et al. 2005, Sarmah et al. 2006
β-Apoxytetrazyklin	Gülle Schwein	USA	0,3	Krapac et al. 2005, Sarmah et al. 2006
Diazinon	Schafsbäder	GB	max. 152,0	Stuart et al. 2011
Dimitridazol	Schafsbäder	GB	0,96	Stuart et al. 2011
Enoxacin	HA	CH	0,02 - 0,1	Hanke et al. 2007
Erythromycin	Gülle Rind	USA	0,1 - 2,4	Bartelt-Hunt et al. 2011
Erythromycin	Gülle Schwein	USA	0,5	Bartelt-Hunt et al. 2011
Lincomycin	Gülle	USA	max. 0,3	Barnes et al. 2008
Lincomycin	Gülle Schwein	USA	<0, 5	Kuchta et al. 2009
Lincomycin	Gülle Rind	USA	0,2 - 1,9	Watanabe et al. 2010
Lincomycin	Gülle Schwein	USA	0,5 - 0,2	Bartelt-Hunt et al. 2011
Monensin	Gülle Rind	USA	0,02 - 2,1	Bartelt-Hunt et al. 2011
Norfloxacin	HA	CH	0,02 - 0,04	Hanke et al. 2007
Oxytetrazyklin	Gülle Schwein	USA	0,1	Krapac et al. 2005
Permethrin	Schafsbäder	GB	0,2	Stuart et al. 2011
Piperonylbutoxid	Schafsbäder	GB	32,0	Stuart et al. 2011
Raktopamin	Gülle Schwein	USA	0,05	Bartelt-Hunt et al. 2011
Sulfadiazin	Gülle	D	0,1 - 0,16	Alexy & Kümmerer 2005 / LANUV 2007)
Sulfadiazin	HA	CH	< 0,1	Hanke et al. 2007
Sulfadimethoxin	Gülle	USA	0,05 - 0,07	Barnes et al. 2008
Sulfadimethoxin	Gülle Rind	USA	0,005 - 0,01	Watanabe et al. 2010
Sulfadimidin	Gülle	D	0,1 - 0,2	Hirsch et al. 1999
Sulfadimidin	Gülle	D	max. 4,0	Weiß et al. 2008
Sulfadimidin	HA/Gülle	D	0,01 - 0, 21	BLAC 2003
Sulfadimidin	Gülle	D	max. 0,01	BLAC 2003
Sulfadimidin	HA	CH	< 0,01	Hanke et al. 2007

Wirkstoff	Quelle HA/Gülle	Land	Wert in µg/l	Literaturzitat
Sulfadimidin	Gülle	USA	max. 0,36	Barnes et al. 2008
Sulfadimidin	Gülle Rind	USA	0,03 - 0, 61	Bartelt-Hunt et al. 2011
Sulfadimidin	Gülle Schwein	USA	0,06 - 0,08	Bartelt-Hunt et al. 2011
Sulfadimidin	Gülle	USA	0,08 - 0,22	Batt et al. 2006
Sulfadimidin	Gülle Rind	USA	0,001 - 0,11	Watanabe et al. 2010
Sulfadimidin	Gülle	D	0,12	Höper et al. 2003 Zitiert in Weiß et al. 2007
Sulfamerazin	Gülle Rind	USA	0,05	Bartelt-Hunt et al 2011
Sulfamethazol	Gülle Rind	USA	0,04	Bartelt-Hunt et al 2011
Sulfamethoxazol	Gülle	USA	max. 1,11	Barnes et al. 2008
Sulfamethoxazol	Gülle	D	0,3 - 0,04	Hembrock-Heger et al. 2011
Sulfamethoxazol	HA	CH	0,03	Hanke et al. 2007
Sulfamethoxazol	HA	IL	0,02	Avisar et al. 2009
Sulfamethoxazol	HA	Europa	< 0,10	Loos et al. 2010
Sulfamethoxazol	HA	D	max. 0,13	LANUV 2007
Sulfamethoxazol	Gülle	D	max. 0,03	BLAC 2003
Sulfamethoxazol	Gülle	D	max. 0,47	Hirsch et al 1999
Sulfathiazol	HA	CH	< 0,01	Hanke et al. 2007
Sulfathiazol	Gülle Rind	USA	0,03 - 0,17	Bartelt-Hunt et al. 2011
Tetrazyklin	Gülle Geflügel	USA	0,2	Campagnolo et al. 2002
Tetrazyklin	Gülle Schwein	USA	0,4	Krapac et al. 2005 Zitiert in Sarmah et al. 2006
Tiamulin	Gülle Rind	USA	0,03	Bartelt-Hunt et al 2011
Toltrazurilsulfon	Gülle	DK	0,0005	Krogh et al. 2012
Tylosin	Gülle	D	max. 0,1	Weiß et al. 2008
Trimethoprim	HA	D	max .0,16	BLAC 2003

#### 4.5 Für den Eintrag in das Grundwasser relevante Substanzeigenschaften

Für die Beurteilung des Gefährdungspotenzials von TAM sind vor allem die toxikologischen Eigenschaften der Substanzen und Transformationsprodukte von Bedeutung. Für die Abschätzung, ob eine Substanz das Risikopotenzial hat, in das Grundwasser zu gelangen, sind Abbaugeschwindigkeit und Sorptionseigenschaften entscheidend. Das hat zur Folge, dass Substanzen beim Ranking eine andere Bedeutung bekommen als in einer Umweltrisikoaanalyse (Kools et al. 2008, Capleton et al. 2006). Die Wasserlöslichkeit ist für den Transport in der ungesättigten Zone mit dem Sickerwasser wichtig. In Wasser nicht oder kaum lösliche Substanzen werden nicht mit dem Sickerwasser vertikal nach unten transportiert. Die Abbaubarkeit bzw. die Abbaugeschwindigkeit, angegeben als  $DT_{50}$  (disappearance time, die Zeit, in der eine Substanz um die Hälfte abgebaut wird) ist ein wichtiger Parameter zur Abschätzung der Persistenz (kein Abbau, Anreicherung in Boden) einer Substanz. Dabei wurde nach Hollis (1991) klassifiziert:

- $DT_{50} < 5$  Tage: sehr leicht abbaubar;
- $DT_{50} 5 - 21$  Tage: leicht abbaubar;
- $DT_{50} 22 - 60$  Tage: mäßig abbaubar und
- $DT_{50} > 60$  Tage: schwer abbaubar.

Die Sorptionseigenschaften werden durch den  $K_d$ -Wert charakterisiert. Der Sorptionskoeffizient  $K_d$  ist das Verhältnis zwischen der Konzentration einer Substanz im Boden zu der Konzentration

im Wasser nachdem ein Gleichgewicht erreicht wurde. Der  $K_d$ -Wert ist die Summe einer ganzen Reihe von Sorptionsmechanismen und deshalb für eine bestimmte Substanz für unterschiedliche Böden sehr variabel. Trotzdem kann man (nach Mensink et al. 1995) davon ausgehen, dass Werte

- < 0,03 l/kg auf eine sehr hohe Mobilität,
- 0,03 bis 0,15 l/kg auf eine hohe Mobilität,
- 0,15 bis 0,53 l/kg auf eine mittlere Mobilität,
- 0,53 bis 2,6 l/kg auf eine mäßige Mobilität und
- > 2,6 l/kg auf Immobilität

schließen lassen. Eine Reduktion in der Variabilität der  $K_d$ -Werte wird erreicht, wenn die Sorptionskoeffizienten auf den organischen Kohlenstoffgehalt des Bodens  $K_{oc}$  bezogen werden.  $K_{oc} = K_d \times 100 / C_{org}\%$ . Für das Auswaschungspotenzial von Pestiziden ergeben sich Wahrscheinlichkeiten  $d$  (McCall 1981):

- 0 - 50 l/kg: sehr hoch;
- 50 - 150 l/kg: hoch;
- 150 - 500 l/kg: mäßig;
- 500 - 2000 l/kg: niedrig;
- 2000 - 5000 l/kg: sehr niedrig und
- 5000 l/kg: kein Auswaschen.

Für viele chemische Verbindungen wurde eine direkte Beziehung des  $K_{oc}$ -Wertes und dem sog. Oktanol/Wasser-Verteilungskoeffizient ( $K_{ow}$ ) gefunden, ein Maß für die Lipophilie. Tolls (2001) zeigt aber deutlich, dass für Tierarzneimittel ermittelte  $K_{oc}$ -Werte, die aus  $K_{ow}$ -Werten errechnet wurden, zu einer Unterschätzung führen.

Im Folgenden werden die bedeutendsten Wirkstoffe (jeweils fett gedruckt) der Antibiotika und Antiparasitika auf verlagerungsrelevante Parameter nach Literaturangaben untersucht.

**Amoxicillin** ist ein häufig verschriebenes Penicillin. Die Substanz ist gut wasserlöslich mit 3,4 g/l, wird allerdings schnell abgebaut mit einer Halbwertszeit ( $DT_{50}$ ) von vier Tagen in Gülle und zwischen 0,16 und 0,29 Tagen in Böden<sup>25</sup>. Boxall (2008) gibt in seinem Review für Amoxicillin in Böden eine  $DT_{50} < 1$  Tag an. Amoxicillin wird von Capleton et al. (2006) als „high priority“ TAM eingestuft, aber bedingt durch den schnellen Abbau in den Böden besteht keine Verlagerungsgefahr für das Grundwasser.

Für die Makrolide **Tylosin** und **Erythromycin** gibt Boxall (2008)  $DT_{50}$ -Werte in Gülle von < 2 bzw. 41 Tagen an. Die  $K_d$ -Werte für Tylosin liegen mit 8,3 bis 240 l/kg (Kolz et al. 2005) teilweise in einem Bereich, der von Tolls (2001) als niedrig bis etwas mobil (zwischen 5 und 50 l/kg) angesehen wird.  $K_{oc}$ -Werte werden zwischen 553 und 7990 angegeben. Tylosin und Oxytetracyclin werden unabhängig vom Bodentypus stark an Böden sorbiert (Rabølle & Splitt 2000). Liu et al. (2010) berichten über  $DT_{50}$ -Werte für Tylosin von 8 Tagen in aeroben Böden und 16 Tagen unter anoxischen Bedingungen. Eine Sterilisation der Böden hatte keinen Einfluss auf das Sorptionsverhalten. Tylosin wurde zwar in Bayern (LfU 2008) im Lysimetersickerwasser gefunden, aber - wie in der Studie betont -: die Lagerdauer der Gülle war kurz und bei sachgemäßer Lagerung der

---

<sup>25</sup> <http://sitem.herts.ac.uk/aeru/vsdb/Reports/1741.htm>

Gülle kann von einem Transport des Tylosins ins Grundwasser nicht ausgegangen werden. Auch Zilles et al. (2005) berichten über den subtherapeutischen Einsatz von Tylosin in einem amerikanischen Schweinemastbetrieb. Sie fanden von den errechneten Konzentrationen im Gülleteich (4526 µg/l) und im Boden (290 ng/g) im Gülleteich nur <2 µg/l und im Boden nur < 2 ng/g wieder. Erythromycin wird in Boxall (2008) mit einer DT<sub>50</sub> von 20 angegeben und ist nach Kreuzig et al. (2007a) mit K<sub>d</sub>-Werten zwischen 14 und 24 l/kg als etwas mobil eingestuft. Die Wasserlöslichkeit von Erythromycin ist mit 2 mg/ml gut und bildet als Base (mit Dissoziationskonstante p<sub>Ka</sub> 8) in Verbindung mit Säuren leicht Salze. Sorptions-/Desorptions-Tests zeigten, dass Erythromycin in Lehm und sandigem Lehm relativ mobil, immobil dagegen in schluffigem Lehm war. Die K<sub>oc</sub>-Werte waren 256 für Lehm, 145 für sandigen Lehm und 8724 für schluffigen Lehm<sup>26</sup>. Die Migration von Erythromycin in Böden mit viel Montmorillonit und Illit wird als vernachlässigbar eingestuft. In anderen Böden besteht Gefahr für die Verlagerung in das Grundwasser. Die Mineralisierung ist langsam mit Halbwertszeiten von über 64 Tagen.

Allerdings wird Erythromycin in saurem Milieu schnell hydrolysiert (pH 5, Halbwertszeit 0,8 Tage). Im neutralen Bereich beträgt die Halbwertszeit 63 Tage und im basischen Milieu 35 Tage (die Gülle von Rindern und Schweinen ist meist alkalisch).

Da Erythromycin in den USA in Brunnen häufig nachgewiesen wurde, sollte diese Substanz in das Untersuchungsprogramm aufgenommen werden. Allerdings fehlen in Deutschland bzw. in der Untersuchungsregion konkrete Daten dazu, ob Erythromycin häufig verschrieben wird. Nach Winckler & Grafe (2000) ist das nicht der Fall. Eine Anfrage beim LAVES Niedersachsen ergab, dass erythromycinhaltige Arzneimittel in Deutschland zugelassen sind und auch eingesetzt werden. Über den Umfang ihres Einsatzes liegen derzeit keine Erkenntnisse vor.

Das Makrolid **Tulathromycin** ist eine relativ neue für die Veterinärmedizin hergestellte Substanz. Sie ist unter pH 8 gut wasserlöslich und photostabil. In einem Bericht von Howard und Muir (2011) über die Identifikation von neuen persistenten und bioakkumulativen Pharmaprodukten wird Tulathromycin - es befindet sich unter den 300 meistverkauften Pharmaprodukten - als „noch nicht in der Umwelt nachgewiesen“ erwähnt. Sie geben ein log K<sub>ow</sub> von 4,08 an, damit ist es potenziell bioakkumulativ. Nach dem Biodegradation Probability Programm BIOWIN ist Tulathromycin potenziell persistent (Howard und Muir 2011). Weitere Daten über Anwendungsmengen und Vorkommen oder Verhalten in der Umwelt sind nicht bekannt. Auch hier ergab die Anfrage beim LAVES, dass tulathromycinhaltige Arzneimittel in Deutschland zugelassen sind. Über den Umfang ihres Einsatzes liegen derzeit allerdings noch keine Erkenntnisse vor.

**Tilmicosin** ist sehr gut wasserlöslich bei pH 7, DT<sub>50</sub> > 64 bis hin zu keiner Abnahme über ein Jahr. Die K<sub>d</sub>-Werte liegen in Bereichen zwischen 129 und 318 ml/g (Einzelwert 2800 ml/g<sup>27</sup>). Die Wasserlöslichkeit ist 7,7 mg/ml bei pH 9, bei pH 7 566 mg/ml, und bei pH 5 so gut, dass eine pastöse Flüssigkeit entsteht. Der K<sub>oc</sub>-Wert liegt bei pH 5 und 7 < 10. Tilmicosin ist biologisch schwer abbaubar<sup>28</sup>. Damit kann sich Tilmicosin potenziell in das Grundwasser verlagern. Auch hier war die Auskunft des LAVES zum aktuellen Einsatz in Niedersachsen positiv. Zilles et al. (2005) berichten über den subtherapeutischen Einsatz in der Schweinemast und finden von der zu erwartenden Konzentration im Gülleteich von 3014 µg/l nur 67 µg/l wieder. Von der berechneten Tilmicosin-Konzentration im Boden von 193 ng/g wurden nur < 10 ng/g gemessen. Entweder reicht die angewandte Methode nicht aus, oder Tilmicosin wird gut sorbiert. Tilmicosin und Tulathromycin

---

<sup>26</sup> [www.fda.gov/AnimalVeterinary/DevelopmentApprovalProcess/EnvironmentalAssessments/UCM071889](http://www.fda.gov/AnimalVeterinary/DevelopmentApprovalProcess/EnvironmentalAssessments/UCM071889)

<sup>27</sup> <http://sitem.herts.ac.uk/aeru/vsdb/Reports/1856.htm>

<sup>28</sup> <http://www.fda.gov/downloads/AnimalVeterinary/DevelopmentApprovalProcess/EnvironmentalAssessments/UCM072361.pdf>

werden in Niedersachsen eingesetzt und wurden deshalb in die Liste der zu untersuchenden Substanzen aufgenommen.

Das Lincosamin **Lincomycin** wird sowohl in Europa als auch in den USA häufig eingesetzt. Aus den USA wird über das Vorkommen von Lincomycin in Gülleteichen, Böden und Grundwasserbrunnen berichtet (Kümmerer 2004, Zilles et al. 2005, Barthelt-Hunt et al. 2011, Watanabe et al. 2010). Lincomycin hat einen  $\log K_{ow}$ -Wert von 0,56, als Lincomycin-Hydrochlorid 0,29 und ist besser löslich als Lincomycin (Kuchta & Cessna 2009). Die Autoren berichten, dass Lincomycin nach einer anfänglich schnellen Dissipation in der Gülle langsamer verschwand und nach 160 Tage immer noch messbar war (die Nachweisgrenze lag bei 5  $\mu\text{g/l}$ ). Im Boden hatte  $^{14}\text{C}$  markiertes Lincomycin eine  $DT_{50}$  zwischen 2 und 9 Tagen unter Bildung der Transformationsprodukte Lincomycin Sulfoxid, Lincomycin Sulfon und 14 weiteren Substanzen (Kümmerer 2004). Hohe Einsatzmengen und das Vorkommen im Grundwasser wurden als hinreichender Grund angesehen, Lincomycin in die Liste der zu untersuchenden Substanzen aufzunehmen. Für Streptomycin sieht die Österreichische Agentur für Gesundheit und Ernährungssicherheit GmbH -bedingt durch den relativ schnellen Abbau im Boden mit  $DT_{50}$ -Werten von 14 bis 21 Tagen und  $K_{oc}$ -Werte zwischen 1700 und 3450  $\text{l/kg}$  - keine Gefahr für eine Kontaminierung des Grundwassers<sup>29</sup>.

Die **Chinolone**, vor allem die **Floxacine**, sorbieren mit ihren recht hohen Sorptionskoeffizienten ( $K_d$ : Ciprofloxacin 61.000; Enrofloxacin 496 - 3037; Ofloxazin 44100) sehr gut (Pico und Andreu 2007) und sind im Boden sehr persistent. Boxall et al. (2006) gibt für Danofloxacin  $DT_{50}$ -Werte von 87 bis 143, für Enrofloxacin > 152 und für Sarafloxacin > 65 Tage an. Für Difloxacin fanden Rosendahl et al. (2012)  $DT_{50}$ -Werte > 217 Tage und eine schnelle Bildung von nicht extrahierbaren Rückständen. Radioaktiv ( $^{14}\text{C}$ ) markiertes Difloxacin und als Metabolit 10 % Sarafloxacin in der Gülle verlagerte sich kaum in Lysimetern (eigene Untersuchungen). Es ist somit recht unwahrscheinlich, dass Floxacine ins Grundwasser gelangen.

**Enrofloxazin** hingegen (nicht der Metabolit Ciprofloxacin) wird in Weiß et al. (2008) mit gutem Versickerungsverhalten beschrieben. Daher wurde dieser Wirkstoff mit untersucht. Ciprofloxacin und Enrofloxazin wurden in China in den Abwässern von Schweine-, Rinder- und Geflügelmastbetrieben sowie im Abstrom von Teichen und Flüssen gemessen, im Abwasser bis 3,35  $\mu\text{g/l}$  Ciprofloxacin und 1,09  $\mu\text{g/l}$  Enrofloxazin. Enrofloxazin wurde häufiger detektiert als Ciprofloxacin (Wei et al. 2012).

**Florfenicol** wird im Verhältnis zu den mengenmäßig häufig eingesetzten Tetracyklinen, Makroliden und Sulfonamiden zwar seltener, in den Untersuchungsregionen nach Angaben der Veterinärämter der Landkreise dennoch eingesetzt. Nach der US Food and Drug Administration (FDA) (2011)<sup>30</sup> ist Florfenicol gut wasserlöslich mit 1320  $\text{mg/l}$ , mobil im Boden mit einem  $K_d$ -Wert von 0,07 bis 0,59  $\text{l/kg}$  und einem  $K_{oc}$ -Wert von 10 bis 27  $\text{l/kg}$ , außerdem ist er relativ persistent im Boden mit einer  $DT_{50}$  von 27 Tagen unter aeroben Bedingungen. In der Gülle von Schweinen befinden sich nach Anwendung von Florfenicol 41 % Florfenicol, 17 % unbekannter Metabolit, 15% Fluorfenicolamid und sechs weitere Metabolite. Die anaerobe Halbwertszeit für Florfenicol und den primären Metabolit Monochlorofenicol in Gülle beträgt 1 bis 2,4 Tage. Florfenicol wurde in China in den Abwässern von Schweine-, Rinder- und Geflügelmastbetrieben sowie in Teichen und Flüssen gemessen. Die Werte im Abwasser lagen bei bis zu 1,53  $\mu\text{g/l}$  und in Teichen bei bis zu 2,84  $\mu\text{g/l}$  (Wei et al. 2012). Auf Grund der Tatsache, dass Florfenicol noch nicht im Grundwas-

---

<sup>29</sup> [www.ages.at/uploads/media/Bewertung\\_des\\_Einsatzes\\_von\\_Streptomycin\\_im\\_Obstbau\\_09\\_05\\_2008\\_03.pdf](http://www.ages.at/uploads/media/Bewertung_des_Einsatzes_von_Streptomycin_im_Obstbau_09_05_2008_03.pdf)

<sup>30</sup> <http://www.fda.gov/downloads/AnimalVeterinary/DevelopmentApprovalProcess/EnvironmentalAssessments/UCM299435.pdf>

ser gemessen wurde und samt Metaboliten nach sachgemäßer anaerober Lagerung gut abgebaut werden, wurde diese Substanz nicht für die Untersuchungen vorgeschlagen.

Die Verkaufszahlen für **Pleuromutiline** und der Einsatz in der Schweinemast sind in Dänemark in den letzten Jahren gestiegen. Schlüsener et al. (2006) fanden keine Abnahme der Konzentration in der Gülle für einen Lagerungszeitraum von 180 Tagen. Für Böden geben Schlüsener & Bester (2006) eine  $DT_{50}$  von 16 Tagen an. In einer anderen Studie wird berichtet, dass **Tiamulin** ein hohes Bindungspotential im Boden hat und die Mobilität entsprechend gering ist. Mit  $DT_{50}$ -Werten von 43 bis 300 Tagen ist die Substanz relativ persistent. Nach Verabreichung an Schweine oder Ratten entstehen 14 bis 40 Metabolite, jedoch macht kein einziger mehr als 6 % von der Gesamtmenge aus. Letzteres war der Grund, Tiamulin nicht ins Messprogramm aufzunehmen<sup>31</sup>. Obwohl es in den USA einmal nachgewiesen wurde, ist es höchst unwahrscheinlich, dass eine Verlagerung in das Grundwasser stattfindet.

Es gibt sehr wenige Befunde über das Vorkommen von **Tetrazyklinen** im Grundwasser. Zum einen werden in Campagnolo et al. (2002) Tetrazykline zweimal in Quellen („spring“) und einmal in einem Brunnen („field well“) auf dem Gelände von Geflügelhöfen mit 1 bzw. 2 µg/l nachgewiesen. Zum anderen fand Krapac et al. (2005, zitiert in Sarmah et al. 2006), Tetrazyklin mit 0,4 µg/l, Oxytetrazyklin mit 0,13 µg/l, Anhydrozyklin mit 0,1 µg/l, B-Apoxytetrazyklin mit 0,3 µg/l sowie Anhydrochlortetrazyklin mit 0,3 µg/l im Grundwasser; Chlortetrazyklin wurde nicht nachgewiesen. Bei den Funden von Hamscher et al. (2002 & 2005) handelt es sich um Sickerwasser, dass mit Saugsonden aus 140 cm Tiefe gewonnen wurde. Bei Sarmah et al (2006) werden von einigen Tetrazyklinen  $K_d$ - und  $K_{oc}$ -Werte in verschiedenen Umweltmatrizen genannt.

- Oxytetrazyklin in (lehmigem) Sand  $K_d$  417 - 1026 l/kg,  $K_{oc}$  42506 - 93317 l/kg,
- Oxytetrazyklin in Gülle  $K_d$  83,2/77,6 l/kg,  $K_{oc}$  195 l/kg,
- Tetrazyklin in Lehmboden  $K_d > 400$  l/kg,
- Tetrazyklin in Lehm bzw. sandigem Lehm  $K_d$  1147 - 2370 l/kg und
- Chlortetrazyklin in Lehm bzw. sandigem Lehm  $K_d$  1280 - 2386 l/kg.

$DT_{50}$ -Werte für Tetrazyklin in Gülle betragen 4,5 bis 9 Tage und 48 Tage für Chlortetrazyklin in Rindergülle, auf sandigem Lehm 30 Tage und für Oxytetrazyklin 18 bis 79 Tage. Es findet kein Abbau in Böden mit Rindergülle (Sarmah et al. 2006) statt.

Für **Oxytetrazyklin** sind  $DT_{50}$ -Werte von 16 bis 18 unter Entstehung von Transformationsprodukten dokumentiert. Ein Transformationsprodukt von Tetrazyklin ist das mobilere Anhydrotetrazyklin (Boxall 2008). Chlor-, Oxy- und Tetrazykline sind in den Böden lange nachweisbar (Boxall 2008). Oxytetrazyklin hat unter aeroben Bedingungen  $DT_{50}$ -Werte von 29 bis 56 Tagen (steril 99 bis 120 Tage) und unter anaeroben Bedingungen 43 bis 62 Tagen (steril 69 bis 104 Tage). Yang (2009) interpretierte das als biologischen Abbau mit einer starken Sorption.

Für **Sulfonamide** und **Trimethoprim** gibt Boxall (2008) folgende Halbwertszeiten für Böden an: Trimethoprim  $DT_{50}$ -Werte  $< 103$ , Sulfachloropyridazin 2,8 - 3,5, Sulfachloropyridin 21,3 und Sulfadimidin 18,6. Sarmah (2006) gibt  $DT_{50}$ -Werte für Sulfonamide in Böden und Gülle von 3,5 bis 127 an. Das „Verschwinden“ bzw. die Abnahme der Konzentration von Sulfonamiden im Boden ist in den seltensten Fällen auf eine Mineralisierung, also kompletten Abbau, zurückzuführen. Mit Hilfe von radioaktiv markiertem Sulfadiazin konnten Kreuzig & Höltge (2005), Wehrhan (2006) und Förster et al. (2009) eine Mineralisierung von maximal 2 % messen.

---

<sup>31</sup> [www.fda.gov/AnimalVeterinary/DevelopmentApprovalProcess/EnvironmentalAssessments/UCM072206](http://www.fda.gov/AnimalVeterinary/DevelopmentApprovalProcess/EnvironmentalAssessments/UCM072206)

Demgegenüber stehen die Mittel- und Langzeitstudien von Tappe et al. (2013) mit drei Jahren und Topp et al. (2013) mit 12 Jahren. Diese konnten für **Sulfadiazin** und **Sulfadimidin** nachweisen, dass sich bei wiederholtem Auftrag der Antibiotika Bakterienkolonien anreichern, die das Sulfadiazin bzw. Sulfadimidin mineralisieren. Nach einem Feldversuch von 11 Jahren kommt Topp et al. (2013) zu dem Ergebnis, dass je höher die aufgebrauchte Konzentration des Antibiotikums ist und je länger der Boden diesem ausgesetzt wird, es umso schneller zum biologischen Abbau der Substanz kommt. Dies gilt - wenn auch in nicht so hohem Ausmaß - auch für das beobachtete Tylosin. Trotz diesem Ergebnis weist er darauf hin, dass Resistenzgene sowohl im Boden als auch im Klärschlamm nachgewiesen werden können und diese eine wachsende Gefahr bedeuten.

Sulfadiazin geht relativ schnell in den nicht extrahierbaren Rückstand (NER) über. Nach 102 Tagen fanden Kreuzig & Höltge (2005) 96 % in der NER-Fraktion. Mit einer härteren Extraktionsmethode fanden Förster et al. (2009) nach 218 Tagen 50 % der Radioaktivität in der NER-Fraktion. Sulfadiazin und 4-Hydroxysulfadiazin waren noch zu je 25 % im Boden messbar. Sogar drei Jahre nach der Applikation von Schweinegülle auf Lysimeter, die mit radioaktiv markiertem Sulfadiazin behandelt worden war, konnte nach Extraktion noch Sulfadiazin nachgewiesen werden (Schulte-Hunsbeck 2009). Die  $K_d$ -Werte variieren von 0,6 bis 7,4 l/kg, die  $K_{oc}$ -Werte von 34 bis 308 l/kg (Sarmah 2006), was auf eine schwache Sorption in Böden hinweist (Baran et al. 2011).

Wei et al. (2011) untersuchten Tetrazykline und Sulfonamide in Abwässern und in Gewässern im Abstrom von Schweine-, Rinder- und Geflügelmastbetrieben in China. Die am häufigsten nachgewiesenen Antibiotika waren: Sulfadimidin (75 %), Oxytetrazyklin (64 %), Tetrazyklin (60 %), Sulfadiazin (55 %) und Sulfamethoxazol (51 %) mit maximalen Konzentrationen von 211, 72,9, 10,3, 17,0 und 63,3 µg/l.

Für **Sulfamethoxazol** und die beiden im menschlichen Körper entstandenen Metabolite N4-Acetyl-Sulfamethoxazol und Sulfamethoxazol-N1-Glucoronid geben Radke et al. (2009) im Wasser-Sediment-Test  $DT_{50}$ -Werte von 3,3 bis 25,6 Tage an.

In der neueren Literatur über die Mobilität von TAM untersuchte Kwon (2011) das Versickern von Sulfonamiden und Tetrazyklinen in 30 cm mächtigen Bodensäulen. Die Konzentrationen im Sickerwasser waren für Sulfathiazol und Sulfadimidin am höchsten, niedriger war Sulfamethoxazol und um den Faktor 10 geringer Chlortetrazyklin bzw. Oxytetrazyklin. Er kommt zu dem Schluss, dass Sulfonamide ein hohes Risiko beinhalten, das Grundwasser zu kontaminieren und Tetrazykline ein großes Potenzial besitzen, in Böden mit bioaktiven Polymeren zu verbleiben.

Tetrazykline und Sulfonamide werden in großen Mengen seit etwa 50 Jahren in der Tiermast eingesetzt. Beide Substanzgruppen reichern sich in Böden an und beide werden im Grundwasser nachgewiesen, allerdings werden Sulfonamide auf Grund der Sorptionseigenschaften weit häufiger gemessen. Bei Tetrazyklinen wurde es daher als ausreichend angesehen, bei der ersten Beprobung 2012 nur Messstellen zu beproben, bei denen bevorzugt ein Makroporenfluss in der ungesättigten Zone erwartet wird, also auf Grünlandstandorten oder bei bindigen Deckschichten in der ungesättigten Zone (siehe Tabelle 22). Im Projektverlauf wurden dennoch - aus analytischen Gründen heraus - alle Proben in beiden Jahren auf Tetrazykline untersucht, genauso wie auf die Einzelsubstanzen der Sulfonamide.

Die **Avermectine** Avermectin B1 und Ivermectin können negative Einflüsse auf andere Organismen (nicht Nutztiere) in Böden haben. Avermectin B1 wird stark sorbiert und ist immobil im Boden.  $DT_{50}$ -Werte für Avermectin B1 werden mit 14 bis 60 Tagen (Horvat et al. 2012) und für Ivermectin mit 14 bis 56 Tagen (Boxall 2008) angegeben. Ivermectin wurde in Wasser-Sediment-Tests schnell sorbiert und zum überwiegenden Teil im NER festgelegt. Als Transformationsprodukte wurden Ivermectin-Monosaccharid und Ivermectin-Aglycon identifiziert (Horvat et al.

2012). In Transportexperimenten mit Bodensäulen von 30 cm Länge wurde über 99 % des Ivermectins zurückgehalten, das meiste in den obersten 5 cm. Die  $K_d$ -Werte von 227 bis 333 und die  $K_{oc}$ -Werte von 12600 bis 15700 l/kg für Ivermectin zeigen starke Sorptionseigenschaften in Böden (Halley et al. 1989).

**Flubendazol** wird nach medikamentöser Behandlung von Schweinen und Geflügel zu über 50 % unverändert ausgeschieden. Die zwei wichtigsten Metabolite mit toxikologischen Eigenschaften sind Amino- und Hydroxyflubendazol (Weiß et al. 2007). Flubendazol wird in Gülle schnell vollständig desintegriert. Da es sehr niedrige Transportraten zeigt, stellt es so gut wie keine Gefahr für eine Grundwasserkontamination dar (Weiß et al. 2007). Kreuzig et al. (2007b) finden fast keinen Abbau in Gülle von Flubendazol und Fenbendazol. Zur Beurteilung der Mobilität wurden die  $K_d$ - und die  $K_{oc}$ -Werte bestimmt, die für Flubendazol bei  $141 \pm 30$  l/kg für einen Lehmboden, bei  $92 \pm 30$  l/kg für einen Sandboden und bei einem  $K_{oc}$ -Wert von 8800 l/kg gültig sind. Für Fenbendazol lagen die  $K_d$ -Werte bei  $63 \pm 7$  und bei  $58 \pm 3$  l/kg, mit einem  $K_{oc}$ -Wert von 1500 l/kg. Kreuzig et al. (2007) schließen hieraus, dass beide Benzimidazole als wenig mobil einzustufen sind. Sie konnten das in einem Feldversuch zur Oberflächenauswaschung bestätigen.

**Deltamethrin** wird stark an Bodenpartikel sorbiert und ist dadurch nicht mobil. Außerdem ist es in Wasser unlöslich und wird - wenn überhaupt - nur in kleinen Mengen eingesetzt<sup>32</sup>. Daten zu **Fipronyl** finden sich auf der Website des California Department of Pesticide Regulation<sup>33</sup>. Es ist ein Insektizid, das als Antiparasitikum z. B. bei Kleintieren eingesetzt wird, und mäßig bis schlecht wasserlöslich (2,4 mg/l) ist. Die  $DT_{50}$  betrug in aeroben Böden 188 Tage, unter anaeroben Bedingungen nur 20 Tage. Die  $K_{oc}$ -Werte variieren von 542 bis 1176, wodurch dieser Stoff als relativ mobil eingestuft werden kann. Die Abbauprodukte sind Fipronil-Amid, welches die höchste Polarität und Wasserlöslichkeit aufweist, Fipronil-Sulfide (überwiegend im Boden), Fipronil-Sulfone und Fipronil-Desulfinyl. Metabolite wurden in Sedimenten von Flüssen nachgewiesen. Daten zu Verkaufsmengen oder zum Vorkommen im Grundwasser waren nicht verfügbar.

**Colistin** ist eine gut wasserlösliche Base mit 2,55 mg/ml bei pH 9<sup>34</sup>. Die Dissoziationskonstante ( $p_{Ka}$ ) liegt bei 11,53, der  $K_{ow}$  Wert bei  $< 10$  in Puffern mit pH-Werten von 5, 7 und 9. Damit ist dieser Stoff in Wasser hoch mobil. Der biologische Abbau bzw. die Mineralisierung verläuft langsam. In 90 Tagen erreicht sie nur 2,4 bis 6,8 % Freisetzung von  $^{14}CO_2$  aus  $^{14}C$ -Colistin in verschiedenen Böden. Die Chemikalie wird an verschiedenen Böden mit  $K_d$ -Werten zwischen 4452 und 11583 stark adsorbiert.  $K_{oc}$ -Werte von  $> 5000$  für alle Bodentypen zeigen, dass Colistin in Böden immobil ist und deshalb nicht untersucht werden musste.

**Diclazuril** ist ein Wirkstoff aus der Gruppe der Triazine und wie Toltrazuril ein Kokzidiostatika. Diclazuril wird stark an Böden sorbiert, ist schwer wasserlöslich ( $< 1$  ng/l) und hat eine  $DT_{50}$  im Boden von  $< 60$  Tagen<sup>35,36</sup>. Es wurde deshalb empfohlen, Diclazuril nicht in die Liste der zu untersuchenden Substanzen aufzunehmen.

Generell sind **Antiparasitika** schlecht wasserlöslich und binden stark an Böden. Damit stellen sie keine Gefahr für das Grundwasser dar. Lediglich Fipronyl und Toltrazuril bilden Ausnahmen. Zu **Fipronyl** sind jedoch zu wenige Daten über Menge und Einsatz bekannt. Für **Toltrazuril** wird von

---

<sup>32</sup> <http://toxipedia.org/display/toxipedia/Deltamethrin>

<sup>33</sup> <http://www.cdpr.ca.gov/docs/emon/pubs/fatememo/fipronilrev.pdf>

<sup>34</sup> [www.fda.gov/AnimalVeterinary/DevelopmentApprovalProcess/EnvironmentalAssessments/UCM072363](http://www.fda.gov/AnimalVeterinary/DevelopmentApprovalProcess/EnvironmentalAssessments/UCM072363)

<sup>35</sup> [http://ec.europa.eu/food/fs/sc/scan/out47\\_en.pdf](http://ec.europa.eu/food/fs/sc/scan/out47_en.pdf)

<sup>36</sup> [www.fda.gov/AnimalVeterinary/DevelopmentApprovalProcess/EnvironmentalAssessments/UCM072299](http://www.fda.gov/AnimalVeterinary/DevelopmentApprovalProcess/EnvironmentalAssessments/UCM072299)

der Irish Medicines Board<sup>37</sup> berichtet, dass der Hauptmetabolit Toltrazurilsulfon (ponazuril) im Boden mit einer  $DT_{50} > 1$  Jahr persistent sowie mobil ist und eine Gefahr für das Pflanzenwachstum darstellt. Wiederholtes Ausbringen von Gülle kann zur Akkumulierung in Böden führen und wegen der Mobilität eine Gefahr für die Verlagerung in das Grundwasser darstellen. Toltrazuril, das bei Schweinen, Geflügel, Schafen und Kälbern eingesetzt wird, wird in Böden rasch ( $DT_{50}$  von 7,5 Tage) in Toltrazurilsulfoxid und Toltrazurilsulfon transformiert ( $DT_{50}$  von 87 - 3285 Tagen)<sup>38</sup>. Toltrazuril ist gekennzeichnet mit  $K_{ow} = 2,8-6,1$ ,  $K_{oc} = 4,2$  und einer Wasserlöslichkeit von 5,9 µg/l. Die Transformationsprodukte Toltrazurilsulfoxid und Toltrazurilsulfon besitzen  $K_{ow}$ -Werte von 1,8 - 5,1 und 1,9 - 5,4 l/kg,  $K_{oc}$ -Werte von 3,9 bzw. 2,8 l/kg und eine Wasserlöslichkeit von 53,4 bzw. 32,6 µg/l. Die niedrigen  $K_{oc}$ -Werte deuten auf eine hohe Mobilität der Substanz und der beiden Transformationsprodukte hin. Alle drei Substanzen wurden sowohl im Dränagewasser als auch im oberflächennahen Grundwasser nachgewiesen - allerdings nur in Konzentrationen bis maximal 2,6 ng/l. Antikozidien wurden in der Studie in Niedersachsen nicht erfasst, sind aber zugelassene Arzneimittel für Huhn, Pute, Rind, Schaf und Schwein. Der Einsatz von Toltrazuril bzw. dessen Metabolit Toltrazurilsulfon erfolgt insbesondere bei Geflügel und Kälbern, so auch in den Untersuchungsregionen. Dennoch wurde aufgrund der bisher bekannten, sehr niedrigen Konzentrationen darauf verzichtet, sie in das Messprogramm mitaufzunehmen.

Die Vergärung von Gülle in Biogasanlagen kann möglicherweise dazu beitragen, dass TAM unter diesen anaeroben Bedingungen abgebaut werden. So fand Mohring (2009), dass Sulfadiazin unter anaeroben Fermentationsbedingungen zu 100 % in 4-Hydroxy-Sulfadiazin transformiert wurde. Trimethoprim und Sulfamethoxazol waren nach acht Tagen und Sulfamerazin nach 14 Tagen nicht mehr nachweisbar. Sulfadimethoxin war nach 34 Tagen nahezu verschwunden und von Sulfamethoxyipyridazin war noch 30 % der zugesetzten Menge vorhanden. Nicht abgebaut wurden Sulfathiazol und Sulfadimidin.

Gans et al. (2010) berichten über ein widersprüchliches Abbauverhalten von Chlor- und Oxytetracyclin unter anaeroben Fermentationsbedingungen, während sich Enrofloxacin als Persistent erwies. Alvarez et al. (2010) fanden heraus, dass Chlor- und Oxytetracyclin samt Metaboliten zunächst relativ schnell abgebaut wurden, danach aber - bedingt durch die Sorption an Festpartikel in der Gülle - sehr langsam. Auch während der anaeroben Lagerung von Gülle werden einige TAM sehr schnell umgewandelt oder abgebaut: wie schon erwähnt Tylosin < 2 Tage, Amoxicillin mit einer  $DT_{50}$  von 4 Tagen und Florfenicol mit einer  $DT_{50}$  zwischen 1 und 2,4 Tagen. Die wenigen Daten zum Verbleib von TAM während der anaeroben Lagerung und in Biogasanlagen zeigen, dass einige TAM verschwinden und somit der Eintrag in die Umwelt reduziert werden kann.

Zusammenfassend zeigt Tabelle 17 die verlagerungsrelevanten Parameter der Wirkstoffe.

Tabelle 17: Zusammenfassung der in der Literatur dokumentierten Angaben zu verlagerungsrelevanten Parametern

Wirkstoff	Löslichkeit mg/l*	$DT_{50}$ [d]	$K_d$ [l/kg]*	$K_{oc}$ [l/kg]	$\log K_{ow}$
Amoxicillin	3.400	< 1	8,3 - 240	553 - 7.990	
Avermectin	0,01 <sup>e</sup>	14 - 60	7 - 134 <sup>e</sup>	5.300 - 30.000	3,19 <sup>e</sup>
Chlortetracyclin	600 <sup>a</sup>	30 3,3 ± 0,5 <sup>d</sup> 2,8 ± 0,4 <sup>dada</sup>	1280 - 2386		
Ciprofloxacin	30.000 <sup>e</sup>		427 <sup>a</sup>	61.000 <sup>a</sup>	0,4 <sup>e</sup>
Colistin	0,0255		4452 - 11583	> 5.000	

<sup>37</sup> [http://www.imb.ie/images/uploaded/swedocuments/LicenseSPC\\_10021-051-001\\_08022012142942.pdf](http://www.imb.ie/images/uploaded/swedocuments/LicenseSPC_10021-051-001_08022012142942.pdf)

<sup>38</sup> Angaben aus Kroghæ et al., University Copenhagen, Denmark Poster SETAC Berlin, 2012

Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte

Wirkstoff	Löslichkeit mg/l*	DT <sub>50</sub> [d]	K <sub>d</sub> [l/kg]*	K <sub>oc</sub> [l/kg]	logK <sub>ow</sub>
Danofloxacin		87 - 143			
Deltamethrin	0				
Diclazuril	< 0,001	< 6	<i>hoch</i>		
Difloxacin		> 217			0,89
Enrofloxacin	13.000 <sup>a</sup>	> 152	260-5.612 <sup>a</sup>	16.510-99.980 <sup>a</sup>	1,1 <sup>e</sup>
Erythromycin	2.000	20 - 41 11 <sup>a</sup> 20 ± 1.2 <sup>c</sup>	14 - 24	145 - 8.724	
Fenbendazol			58 - 63 0,84 - 0,91 <sup>a</sup>	1.500 35 - 57 <sup>a</sup>	
Fipronyl	0,0024	188		542 - 1.176	
Florfenicol	1.300.000	27		10 - 27	
Flubendazol			92 - 140	8.800	
Ivermectin	0	14 - 50	227 - 333	12.600 - 15.700	
Lincomycin		2 - 9			0,56
Olfloxacin			309 <sup>g</sup>	44.140 <sup>g</sup>	0,35 <sup>e</sup>
Oxytetracyclin	1.600 <sup>a</sup>	16 - 79 18 <sup>a</sup>	417 - 1.026	42.506 - 93.317	-1,22 <sup>e</sup>
Sarafloxacin	100 <sup>a</sup>	>65			
Sulfachloropyridin		21,3			
Sulfadiazin	77	2 - 12 <sup>f</sup>	0,6 - 7,4 1,4 - 2,8 <sup>a</sup>	34 - 308 37 - 125 <sup>a</sup>	-0,09 <sup>a</sup>
Sulfadimidin	1.500 <sup>a</sup>	18,6 5,3±2 <sup>d</sup> 1,3±0.3 <sup>d,ada</sup>	0,6-3,5 <sup>a</sup>	80 - 208 <sup>a</sup>	0,84 <sup>a</sup>
Sulfamethoxazol	610	3,3 - 25,6	1,3 - 2,9 <sup>b</sup>	81 - 97 <sup>b</sup>	
Sulfanilamid	7.500 <sup>a</sup>		1,5 - 1,7 <sup>a</sup>	34 - 106 <sup>a</sup>	-0.62 <sup>a</sup>
Sulfapyridin	270 <sup>a</sup>		1,6 - 7,4 <sup>a</sup>	80 - 218 <sup>a</sup>	0.35 <sup>a</sup>
Sulfochloropyridazin		2,8 - 3,5 1,6 - 1,8 <sup>a</sup>	0,9 - 1,8 <sup>a</sup>	129 <sup>g</sup>	
Tetracyclin	1.700 <sup>a</sup>		400 - 2.370	40.000 <sup>a</sup>	-1,19 <sup>e</sup>
Tiamulin	66.000 <sup>a</sup>	43 - 300 16 ± 0,8	<i>hoch</i>		
Tilmicosin	7.500.000	> 64	129 - 318		5,09 <sup>a</sup>
Toltrazuril	0,0059	> 360		4,2	2,8 - 6,1
Toltrazuril Metabolite	0,032 - 0,053	5 - 3285		3,9 - 4,8	1,8 - 5,4
Trimethoprim	< 103	110 <sup>a</sup>		1680-3990 <sup>a</sup>	
Tulathromycin	( <i>gut</i> )				4,08
Tylosin	5.000 <sup>a</sup>	< 2 u. 8 - 16 20 ± 1.0 <sup>d,ada</sup>	5,4 - 6.690 <sup>a</sup>	553 - 95.532 <sup>a</sup>	3,41 <sup>a</sup>

\*: verbale Angaben bedeuten, dass in der Literatur keine quantifizierten Werte dokumentiert sind

a: Sarmah et al 2006

b: Kreuzig in UBA Text 11/05

c: Schlüsener und Bester (2006)

d: Topp et al. (2013); ada: Daten nach Adaption

e: Tolls et al. (2001)

f: Rosendahl et al. (2011)

g: Thiele-Bruhn (2003)

DT<sub>50</sub>- disappearance time, K<sub>d</sub>- Sorptionskoeffizient, K<sub>oc</sub>- Sorptionskoeffizient bezogen auf den organischer Kohlenstoffgehalt des Bodens und log K<sub>ow</sub>-n-Octanol/Wasser-Verteilungskoeffizient

Zu diesen Stoffen wurden die Veterinärämter der Landkreise gebeten, die ihnen vorliegenden Informationen über den Einsatz in ihrem Bereich zu übermitteln. Diese Ergebnisse sowie darauf basierende Empfehlungen bezüglich der Aufnahme in die Liste der zu analysierenden Substanzen sind in Kapitel 5 dokumentiert.

Tabelle 18 dokumentiert zusammenfassend zu allen untersuchten Einzelstoffen ihre Nachweisbarkeit sowie die in der Literatur dokumentierten Funde im Grundwasser aufgrund der Substanzeigenschaften.

Tabelle 18: Zusammenfassung der Nachweisbarkeit und der Funde im Grundwasser aufgrund der Substanzeigenschaften für alle untersuchten Stoffe

Wirkstoffgruppe und Wirkstoff	Nachweisbarkeit aufgrund physikochemischer Eigenschaften	dokumentierte Funde im Grundwasser im Ergebnis der internationalen Literaturrecherche
<b>Sulfonamide und Trimethoprim: hohe Mobilität</b>		
Sulfaethoxyimidazolidin	wahrscheinlich	nein
4-OH-Sulfadiazin	wahrscheinlich	nein
Sulfadiazin	wahrscheinlich	ja
Sulfathiazole	wahrscheinlich	ja
Trimethoprim	wahrscheinlich	ja
Sulfadimidin	wahrscheinlich	ja
Sulfachloropyridin	wahrscheinlich	nein
Sulfadoxin	wahrscheinlich	nein
Sulfamethoxyimidazolidin	wahrscheinlich	nein
N-Ac-Sulfadiazin	wahrscheinlich	nein
Sulfachloropyridazin	wahrscheinlich	ja
Sulfamethoxazol	wahrscheinlich	ja
Sulfadimethoxin	wahrscheinlich	ja
<b>Tetrazykline: Verlagerung ins Grundwasser aufgrund von Stoffeigenschaften unwahrscheinlich, aber in Literatur dokumentiert</b>		
Tetrazyklin	nicht wahrscheinlich	ja
4-epi-Tetrazyklin	nicht wahrscheinlich	nein
Oxytetrazyklin	nicht wahrscheinlich	ja
4-epi-Oxytetrazyklin	nicht wahrscheinlich	nein
Chlortetrazyklin	nicht wahrscheinlich	nein
4-epi-Chlortetrazyklin	nicht wahrscheinlich	nein
<b>Fluorchinolone: Verlagerung ins Grundwasser aufgrund von Stoffeigenschaften unwahrscheinlich, aber in Literatur dokumentiert</b>		
Enrofloxacin	nicht wahrscheinlich	ja
<b>Lincosamide: hohe Einsatzmengen und im Grundwasser nachgewiesen</b>		
Lincomycin	wahrscheinlich	ja
<b>Makrolide: mäßig mobil, aber im Grundwasser nachgewiesen</b>		
Tilmicosin	wahrscheinlich	nein
Tulathromycin	wahrscheinlich	nein
Erythromycin	wahrscheinlich	ja
<b>Antiparasitika:</b>		
Fipronyl	wahrscheinlich	nein
Toltrazuril	wahrscheinlich	Ja
<b>Weitere:</b>		
Florfenicol	wahrscheinlich	nein

## 5 Analyisierte Parameter und Labormethoden

### 5.1 Auswahl von Tierarzneimitteln für die Grundwasserbeprobung

Auf Grundlage der in Kapitel 4 dokumentierten Wirkstoff-Recherche zu den in Deutschland und weltweit bekannten Funden wurden 23 Substanzen für die Analytik ausgewählt. Zu diesen wurden Anfragen an die Veterinärämter der betroffenen Landkreise in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen zum dort bekannten Einsatz der Wirkstoffe gerichtet.

Tabelle 19 dokumentiert die dazu übermittelten Informationen von vier Ämtern vergleichend zu Daten aus Niedersachsen (LAVES 2011<sup>39</sup>) und zur Hähnenmast in NW (LANUV NW<sup>40</sup>).

Da die vorliegenden Daten über die zur Anwendung kommenden Wirkstoffe bei der Schweine-, Rinder und Hühnerzucht in Niedersachsen ein breites Spektrum zeigen und auch der Viehbesatz überwiegend gemischt ist, wurde es verworfen, eine messstellendifferenzierte Unterscheidung der zu untersuchenden Substanzen zu verfolgen.

In Tabelle 19 sind ausserdem die vom INFU-Labor realisierten Nachweis- („LOD“: limit of detection) bzw. Bestimmungsgrenzen („LOQ“: limit of quantification) dargestellt. Diese - sowie die Wiederfindungsraten und die Messunsicherheiten - werden nach einschlägigen Verfahren im Rahmen der Methodvalidierung bestimmt bzw. weiterentwickelt (siehe Kap. 5.2).

Für die Begleitanalytik der Haupt- und Nebeninhaltsstoffe zur Interpretation der Genese des Grundwassers wurde zudem folgendes Stoffspektrum (zusätzlich zur Bestimmung der organoleptischen Parameter bei der Probenahme) ausgewählt: Ca, Mg, Na, K, NH<sub>4</sub>, Fe, Mn, HCO<sub>3</sub>, Cl, SO<sub>4</sub>, NO<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, o-PO<sub>4</sub>, DOC, TOC. Die Spurenelemente Zn und Cu, die beide als Futtermittelzusätze verstärkt Anwendung finden, sollten zusätzlich untersucht werden.

Eine zusätzliche Analytik auf Carbamazepin als Tracer zum eindeutigen Nachweis der Herkunft von TAM-Funden über die Gülle von Tieren wurde ebenfalls durchgeführt, da dieser in der Humanmedizin weitverbreitete Stoff aufgrund der seit vielen Jahren hohen Einsatzmengen und des mobilen Verhaltens im Untergrund (Massmann et al. 2007, Müller et al. 2010) bereits weitverbreitet im oberflächennahen Grundwasser nachgewiesen wurde. Negative Befunde sollten hier die Eintragsvermutung über die Gülle erhärten.

### 5.2 Chemische Laboranalytik auf Tierarzneimittel-Wirkstoff

Drei Multimethoden, basierend auf Festphasenextraktion (SPE; solid phase extraction) sowie der Kopplung von Flüssigkeitschromatographie und Massenspektrometrie wurden zur Bestimmung der Tierarzneimittelrückstände im Grundwasser angewandt.

Da nur geringe Konzentrationen der Rückstände im Grundwasser erwartet wurden (wenige ng/l), waren die Anforderungen an die Analytik besonders groß. Die Extraktion der Zielverbindungen erfolgte aus den homogenisierten Wasserproben. Vor der Extraktion wurde dem genau abgemessenen Probevolumen das Gemisch der internen Referenzverbindungen (IS, interner Standard) zugesetzt.

---

<sup>39</sup> [www.ml.niedersachsen.de/download/62481](http://www.ml.niedersachsen.de/download/62481)

<sup>40</sup> [http://www.umwelt.NW.de/verbraucherschutz/pdf/antibiotika\\_masthaehnchen\\_abschlussbericht.pdf](http://www.umwelt.NW.de/verbraucherschutz/pdf/antibiotika_masthaehnchen_abschlussbericht.pdf)

Tabelle 19: Informationen zum Einsatz der ausgewählten 23 Substanzen für die Grundwasseranalytik im Ergebnis einer Anfrage bei den Veterinärämtern der Landkreise (LK) sowie Angaben zu den verlagerungsrelevanten physiko-chemischen Parametereigenschaften und den Nachweis- (LOD) und Bestimmungsgrenzen (LOQ) des INFU-Labors (n. a. in den Spalten LOD und LOQ: nicht ausgewählt für die Analytik)

Wirkstoffgruppe und Wirkstoff	LAVES NI	LANUV NW*	LK Borken	LK Coesfeld	LK Steinfurt	LK Vechta	LOD ng/l	LOQ ng/l
Sulfaethoxyipyridazin	nein	nein	nein	nein	nein	nein	2	6
4-OH-Sulfadiazin	nein	nein	nein	nein	nein	nein	5	16
Sulfadiazin	ja	nein	ja	ja	nein	nein	2	4
Sulfathiazole	nein	nein	nein	nein	nein	nein	2	6
Trimethoprim	ja	ja	ja	ja	ja	ja	2	6
Sulfadimidin	ja	nein	ja	ja	ja	nein	1	3
Sulfadoxin	ja	nein	ja	ja	ja	nein	2	6
Sulfamethoxyipyridazin	nein	nein	ja	ja	nein	nein	2	6
N-Ac-Sulfadiazin	nein	nein	nein	nein	ja	nein	2	6
Sulfachloropyridazin	nein	nein	nein	nein	ja	nein	6	18
Sulfamethoxazol	ja	ja	ja	ja	ja	ja	4	10
Sulfadimethoxin	ja	nein	ja	ja	nein	nein	2	6
Tetrazyklin	ja	nein	ja	ja	ja	ja	6	18
4-epi-Tetrazyklin	nein	nein	nein	nein	nein	nein	6	18
Oxytetrazyklin	ja	nein	ja	ja	ja	ja	12	30
4-epi-Oxytetrazyklin	nein	nein	nein	nein	nein	nein	12	30
Chlortetrazyklin	ja	nein	ja	ja	ja	ja	15	50
4-epi-Chlortetrazyklin	nein	nein	nein	nein	nein	nein	15	50
Enrofloxacin	ja	ja	ja	ja	ja	ja	3	12
Lincomycin	ja	ja	ja	ja	ja	ja	2	6
Tilmicosin	ja	nein	ja	ja	ja	nein	3	10
Tulathromycin	ja	nein	ja	ja	ja	ja	3	10
Erythromycin	ja	nein	ja	ja	ja	nein	2	6

\*: Angaben nur bezogen auf Hähnchenhaltung

\*\* : die Liste der Einzelwirkstoffe aus der Gruppe der Sulfonamide und Tetrazykline beinhaltet jeweils alle vom INFU-Labor mit einer Methode messbaren Substanzen und umfasst daher z. T. auch bisher nicht im Grundwasser nachgewiesene Stoffe

Aufgrund unterschiedlicher stofflicher Eigenschaften wurden die zu analysierenden Verbindungen in drei große Gruppen zusammengefasst:

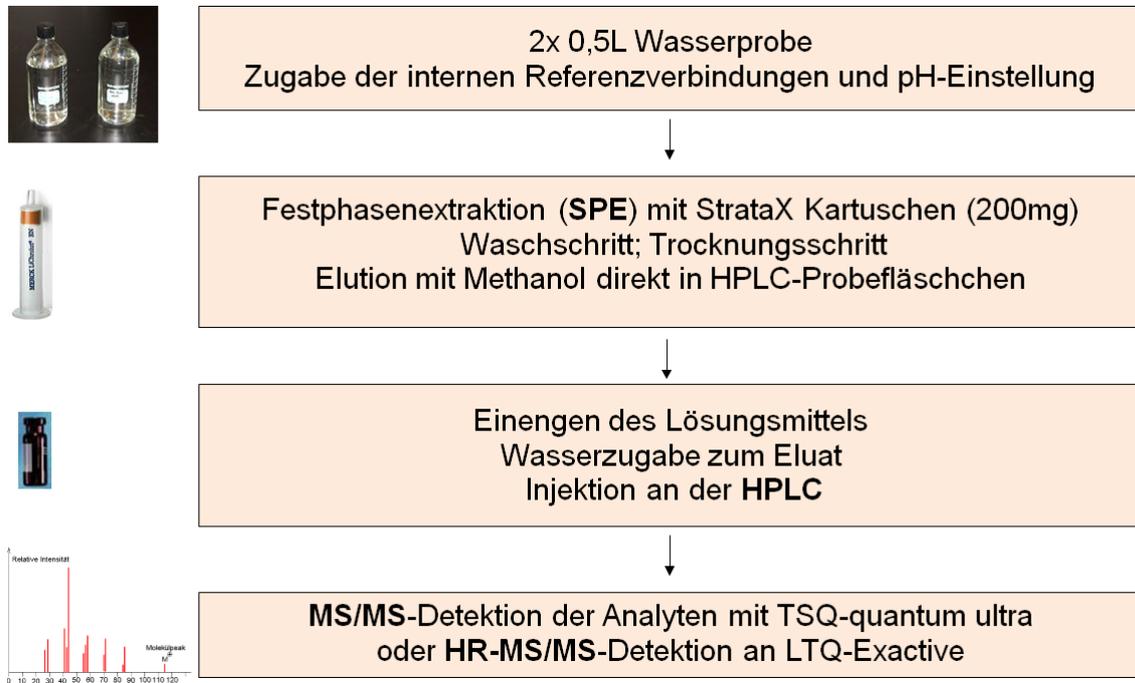
- Sulfonamide und Fluorchinolone
- Tetrazykline
- Makrolide und Sonstige

Bei der Extraktion mittels SPE können nicht alle Verbindungsklassen simultan ausreichend angereichert werden. Dies liegt an unterschiedlich einzustellenden pH-Werten (auf Grund unterschiedlicher pKs-Werte) und unterschiedlicher Löslichkeit der Analyten beim anschließenden Aufkonzentrieren.

Für die dadurch notwendigen drei Methoden konnten jeweils sehr gute Wiederfindungsraten (als Maß für die Effektivität der Probenvorbereitung) erzielt werden. Für diese Art der Spurenanalytik liegen akzeptable Wiederfindungsraten üblicherweise zwischen 70 und 120 %. Es wurde bewusst auf eine weitere Aufreinigung der Extrakte verzichtet, da hierbei die unterschiedlichen physikochemischen Eigenschaften der untersuchten Analyten bei jedem Schritt zu Verlusten bei einzelnen Verbindungen führen könnten. Die Trennung erfolgte mittels Flüssigkeitschromatogra-

fie (HPLC, high performance liquid chromatography) auf einer RP-Phase und die Analyten werden mit massenspektrometrischem Detektor nachgewiesen. Der schematische Ablauf der Probenvorbereitung und Messung ist am Beispiel der Sulfonamide in Abbildung 7 dargestellt:

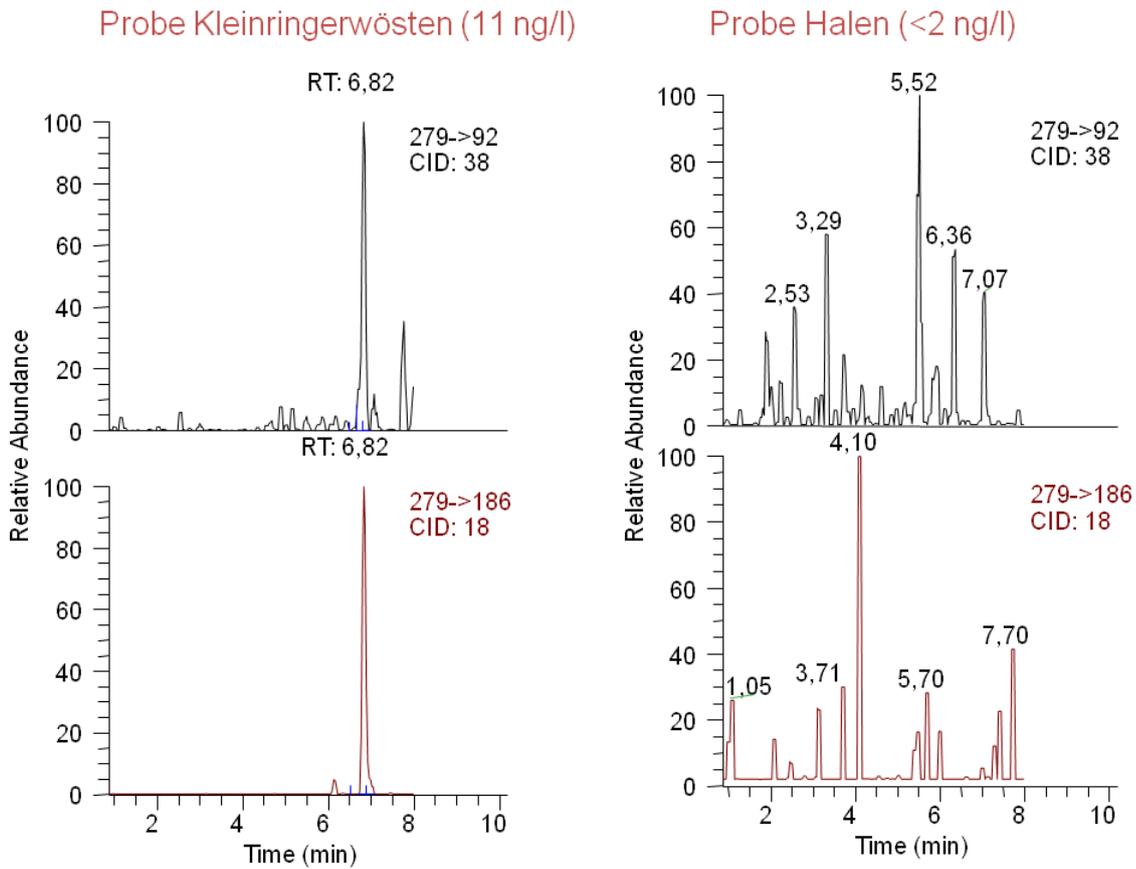
Abbildung 7: Übersicht über die durchgeführte Probenvorbereitung, Trennung und Detektion am Beispiel der Sulfonamide



Die Gehaltsbestimmung der Verbindungen erfolgt immer in Korrelation zu den verwendeten internen Standards. Hierdurch werden sowohl Unregelmäßigkeiten bei der Extraktion (Lösungsmittelverdunstung, Volumenfehler) als auch Probleme der Ionisierung („Matrixeffekt“) minimiert und es werden valide Ergebnisse erhalten. Der Nachweis der Verbindungen erfolgte ab einem Signal/Rausch-Verhältnis von 3:1 (LOD, limit of detection), die Bestimmungsgrenze lag bei einem Signal/Rausch-Verhältnis von 10:1 (LOQ, limit of quantitation). Für die untersuchten Verbindungen liegen die Nachweis- und Bestimmungsgrenzen im unteren ng/l-Bereich (s. Tabelle 19).

Jede der drei Bestimmungsmethoden wurde im Doppelansatz durchgeführt, die Ergebnisse der Doppelbestimmungen variieren auf Grund der geringen Standardabweichung der Methodik nur um wenige Prozent. Sollte eine Verbindung nachgewiesen worden sein (>LOD), kann der Gehalt dennoch unter der Bestimmungsgrenze liegen (<LOQ). In diesem Fall wird auf Grund der Messunsicherheit kein Messwert angegeben. Ein Beispiel für je eine Probe mit Gehalt unter der Nachweisgrenze und dem Gehalt von 11 ng/l Sulfadimidin ist in Abbildung 8 aufgeführt. Zur sicheren Bestimmung werden bei der massenspektrometrischen Detektion jeweils zwei sogenannte Massenübergänge aufgezeichnet, beide ergeben dann im Bezug zur Kalibrierung den gleichen Gehalt der Verbindungen.

Abbildung 8: Beispielchromatogramme einer Probe mit Sulfadimidingehalt über der Bestimmungsgrenze und einer Probe ohne Befund



Die verwendeten Methoden zur Analyse von Arzneimittelrückständen (Wirkstoffe und daraus resultierende Metaboliten) in Umweltproben sind etabliert und am INFU besteht jahrelange Erfahrung. Details zu den angewendeten Methoden können in zahlreichen Publikationen (Ratsak, C. et al. (2013), Lamshöft, M. et al (2010a), Lamshöft, M. et al. (2010b), Förster, M. et al. (2009), Sukul, P. et al. (2008), Lamshöft, M. et al. (2007)) nachgelesen werden. Hier finden sich insbesondere Informationen zu den Bestimmungsmethoden der Sulfonamide und Tetrazykline. Die Bestimmungsmethode der sonstigen Verbindungen wurde zuvor für Grundwasserproben entwickelt und validiert.

## 6 Recherche von Zielgebieten in Nordrhein-Westfalen und Niedersachsen

Ziel des Projektes war es, ausgewählte Grundwassermessstellen auf Tierarzneimittel-Wirkstoffe und deren Transformationsprodukte zu untersuchen. Neben der Auswahl der zu untersuchenden Wirkstoffe (siehe Kapitel 5), ist die sorgfältige Auswahl der Standorte im Sinne des in Kapitel 3 definierten worst-case-Ansatzes von besonderer Bedeutung. In diesem Kapitel wird das für die Standortwahl gewählte Vorgehen dokumentiert. Ziel war es, aus den bestehenden Messnetzen nur solche Messstellen für die Probenahme auszuwählen, bei denen aufgrund der standortspezifischen Ausstattung ein Eintrag von TAM in das oberflächennahe Grundwasser zu erwarten ist.

### 6.1 Definition und regionale Verteilung der Viehbesatzdichte in Deutschland

Zunächst war vorgesehen, die Untersuchungen nur in den Bundesländern Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen durchzuführen. Dies geschah vor dem Hintergrund, dass die Viehbesatzdichten in Deutschland bzw. die diesem Begriff zugrunde liegenden „Großvieheinheiten“ (GV) - dem Umrechnungsschlüssel zum Vergleich verschiedener Nutztiere auf Basis ihres Lebendgewichtes - in Deutschland sehr unterschiedlich verteilt sind (siehe Tabelle 20 und Abbildung 9). Erkennbar ist, dass die 2009 durchschnittlich in Deutschland vorhandene Viehbesatzdichte von etwa 1 GV auf 1 ha landwirtschaftlicher Nutzfläche sehr heterogen verteilt ist.

Tabelle 20: Viehhaltungen in deutschen landwirtschaftlichen Betrieben im Mai 2009 (BMELV 2010<sup>41</sup>)

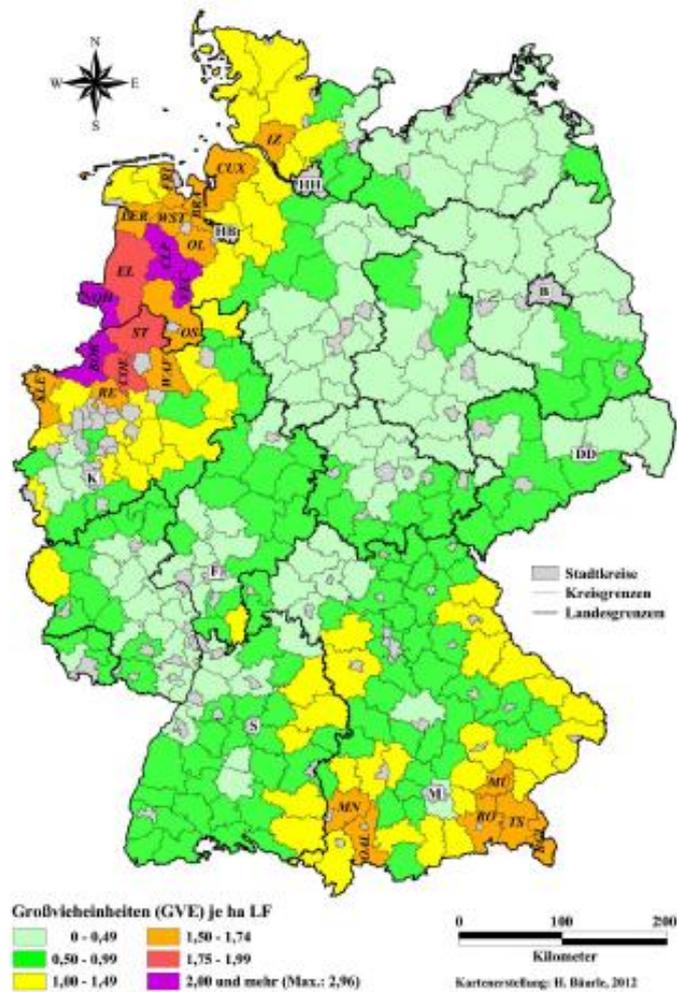
Viehhaltung	Betriebe (*1000)	Tiere (*1000)
Rinder	183,0	12.945
darunter Milchkühe	97,4	4.205
Schweine	67,6	26.887
darunter Zuchtsauen	22,9	2.307
Mastschweine		11.457
Schafe	27,2	2.370
Geflügel	92,2	128.463

In Abbildung 9 ist die Verteilung der Viehbesatzdichte Deutschlands auf Landkreisebene dargestellt (Bäurle 2012). Datengrundlagen sind Auswertungen der Regionaldatenbank Deutschland Genesis 06/2012. Sehr deutlich wird die Konzentration der Landkreise mit Großvieheinheiten von mehr als 1,75 GV/ha\*LF in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen. In keinem anderen Bundesland tritt überhaupt auch nur ein Landkreis mit einer vergleichbaren Viehbesatzdichte auf. Nur vereinzelt sind in Schleswig-Holstein und Bayern ebenfalls Landkreise mit Viehbesatzdichten von mehr als 1,5 GV/ha\*LF erkennbar.

Die Präselektion des UBA auf die beiden Länder NW und NI ist also nachvollziehbar. Im weiteren Verlauf des Projektes wurde die Kulisse der Untersuchungsgebiete dann um ausgewählte Standorte in Bayern und Sachsen erweitert. Dies wurde vor allem auch deshalb als sinnvoll erachtet, da hierdurch auch Festgesteins-Grundwasserleiter mit anderen Eigenschaften des Aufbaus des Untergrundes (Kluft-Grundwasserleiter) in die Untersuchungen einbezogen werden konnten.

<sup>41</sup> <http://www.bmelv.de/cae/servlet/contentblob/430138/publicationFile/>

Abbildung 9: Regionale Verteilung der Viehbesatzdichte in Deutschland (Bäurle & Tamasy 2012<sup>42</sup>)



## 6.2 In die Recherche einbezogene Institutionen

Folgende Institutionen wurden um Übergabe fachbezogener digitaler Daten gebeten:

- Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserhaushalt, Küsten und Naturschutz (NLWKN),
- Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz Nordrhein-Westfalen (LANUV),

(beide im Folgenden als „Partner-Institutionen“ des Projektes bezeichnet)

- Landesbetrieb für Statistik und Kommunikationstechnologie Niedersachsen (LSKN),
- Landesbetrieb Information und Technik Nordrhein-Westfalen (IT.NW),
- Niedersächsisches Landesamt für Verbraucherschutz und Lebensmittelsicherheit (LAVES),
- Geologischer Dienst Nordrhein-Westfalen (GD NW),
- Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LfULG),
- Bayerisches Landesamt für Umwelt (LfU),
- Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie Niedersachsen (LBEG) sowie das

<sup>42</sup> [www.uni-vechta.de/fileadmin/user\\_upload/documents/ISPA/Publikationen/ISPA\\_Mitteilungen/ISPA\\_Mitteilungsheft\\_79.pdf](http://www.uni-vechta.de/fileadmin/user_upload/documents/ISPA/Publikationen/ISPA_Mitteilungen/ISPA_Mitteilungsheft_79.pdf)

Umweltbundesamt (UBA) zur projektbezogenen Überlassung der Rasterdaten Topografie des Bundesamtes für Kartografie und Geodäsie (BKG) sowie der Beschaffenheitsdaten des EUA-Messnetzes des UBA (Hannappel & Wolter 2001). Mit den georeferenzierten Daten konnte ein GIS-Projekt aufgebaut werden, innerhalb dessen die raumbezogenen Auswertungen und Karten-erstellung im Projekt realisiert wurde.

### **6.3 Verfügbare Informationen zur Viehbesatzdichte**

Der regionale Fokus des Projektes liegt aufgrund der hohen Viehbesatzdichte von deutlich über 1,75 GV/ha in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen. In den ergänzend in das Projekt aufgenommenen Gebieten in Bayern und Sachsen war nicht alleine die Viehbesatzdichte das Kriterium zur Untersuchung der Messstellen. Vielmehr wurden die Grundwassermessstellen und Quellen dort beprobt, da die hydrogeologischen Lagerungsverhältnisse in den betroffenen Kluft-Grundwasserleitern sich deutlich von den Gebieten in NW und Niedersachsen unterscheiden.

#### **6.3.1 Regionale Verteilung der Großvieheinheiten in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen**

Von den Landesbetrieben für Statistik wurden Daten der Landwirtschaftszählung 2010 zu Viehhaltungen und Viehbeständen auf Landkreis- und Gemeindeebene (bzw. kreisfreie Städte) digital in Tabellenform übergeben (s. Tabelle 21, LSKN 2011, IT.NW 2011). Diese Daten wurden in die von den Partnerinstitutionen der beiden Länder übergebenen georeferenzierten Polygondaten der Gemeinden eingegeben, so dass anschließend die Informationen kartografisch dargestellt werden konnten. Abbildung 10 zeigt für die gesamte Fläche der beiden Länder die resultierende Karte der aktuellen Viehbesatzdichten in einer leicht modifizierten Skala.

Erkennbar ist - ebenso wie in Abbildung 10 - die Konzentration der Landkreise mit der dichten Tierhaltung im westlichen Niedersachsen sowie im nördlichen Westfalen. Hier liegen die kreisbezogenen Werte höher als 1,75 GV/ha\*LF, was in keinem anderen Landkreis in den beiden Ländern erreicht wird.

#### **6.3.2 Auswahl von Landkreisen mit hoher Viehbesatzdichte in beiden Ländern**

Die sieben in der Karte in Abbildung 10 rot beschrifteten Landkreise (LK) mit einer Viehbesatzdichte von mehr als 1.75 Großvieheinheiten pro Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche im Jahr 2010 wurden für die weiteren Untersuchungen im Sinne eines „Zielgebietes“ zur näheren Identifizierung von Standorten für die Auswahl von Grundwassermessstellen ausgewählt. Tabelle 21 dokumentiert zu diesen Landkreisen anhand der Landwirtschaftszählung des Jahres 2010<sup>43</sup> einige summarische Kenngrößen, die für das Projekt insgesamt von Bedeutung sind.

In Niedersachsen liegen die Viehbesatzdichten zumeist höher als in NW, Ausnahme ist der LK Borken in NW, bei dem die hohen Werte jedoch vorwiegend durch Rinderhaltungen bedingt sind (siehe Kap. 7.3.4). Im LK Vechta ist die mit Abstand höchste Viehbesatzdichte dokumentiert, die landwirtschaftliche Nutzfläche im Vergleich der sieben Kreise ist hier jedoch die zweitgeringste. Der LK Emsland hingegen hat aufgrund seiner Größe die mit Abstand höchsten Tierzahlen, eine deutlich höhere landwirtschaftliche Nutzfläche und damit eine eindeutig geringere Viehbesatzdichte. Diese allgemeinen Kenndaten geben erste Hinweise auf mögliche Schwerpunkte der Untersuchungen, die jedoch durch räumlich höher aufgelöste Daten und möglichst auch durch lokale Informationen näher untersetzt wurden.

---

<sup>43</sup> [http://www.bmelv.de/SharedDocs/Downloads/Broschueren/Agrarbericht2011.pdf?\\_\\_blob=publicationFile](http://www.bmelv.de/SharedDocs/Downloads/Broschueren/Agrarbericht2011.pdf?__blob=publicationFile)

Abbildung 10: Großvieheinheiten je landwirtschaftlicher Nutzfläche in Nordrhein-Westfalen und Niedersachsen auf Ebene der Landkreise (LSKN 2011, IT.NRW 2011)

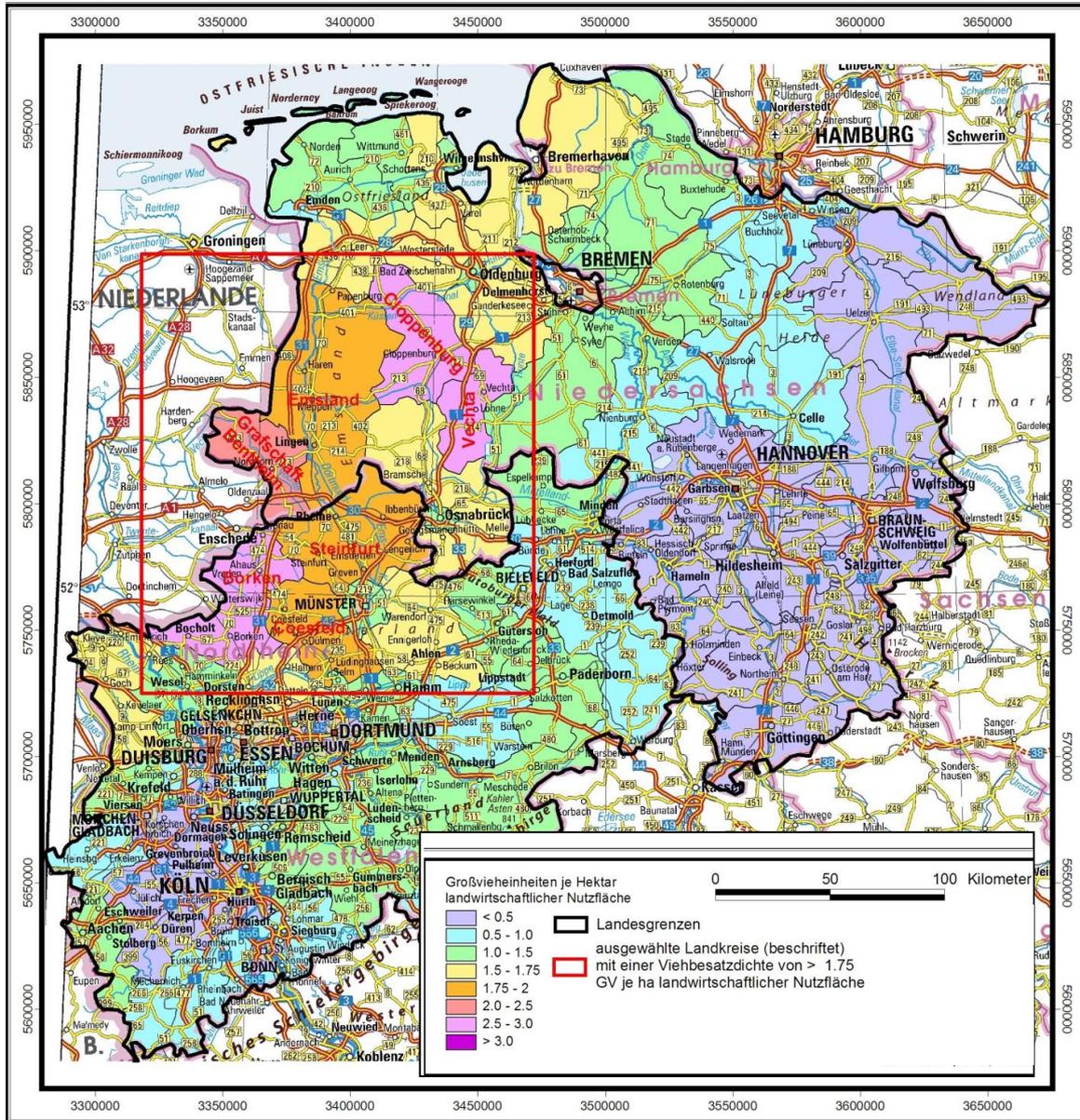


Tabelle 21: Tierartenbezogene Angaben zu den sieben ausgewählten Landkreisen in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen (LSKN 2011, IT.NRW 2011)

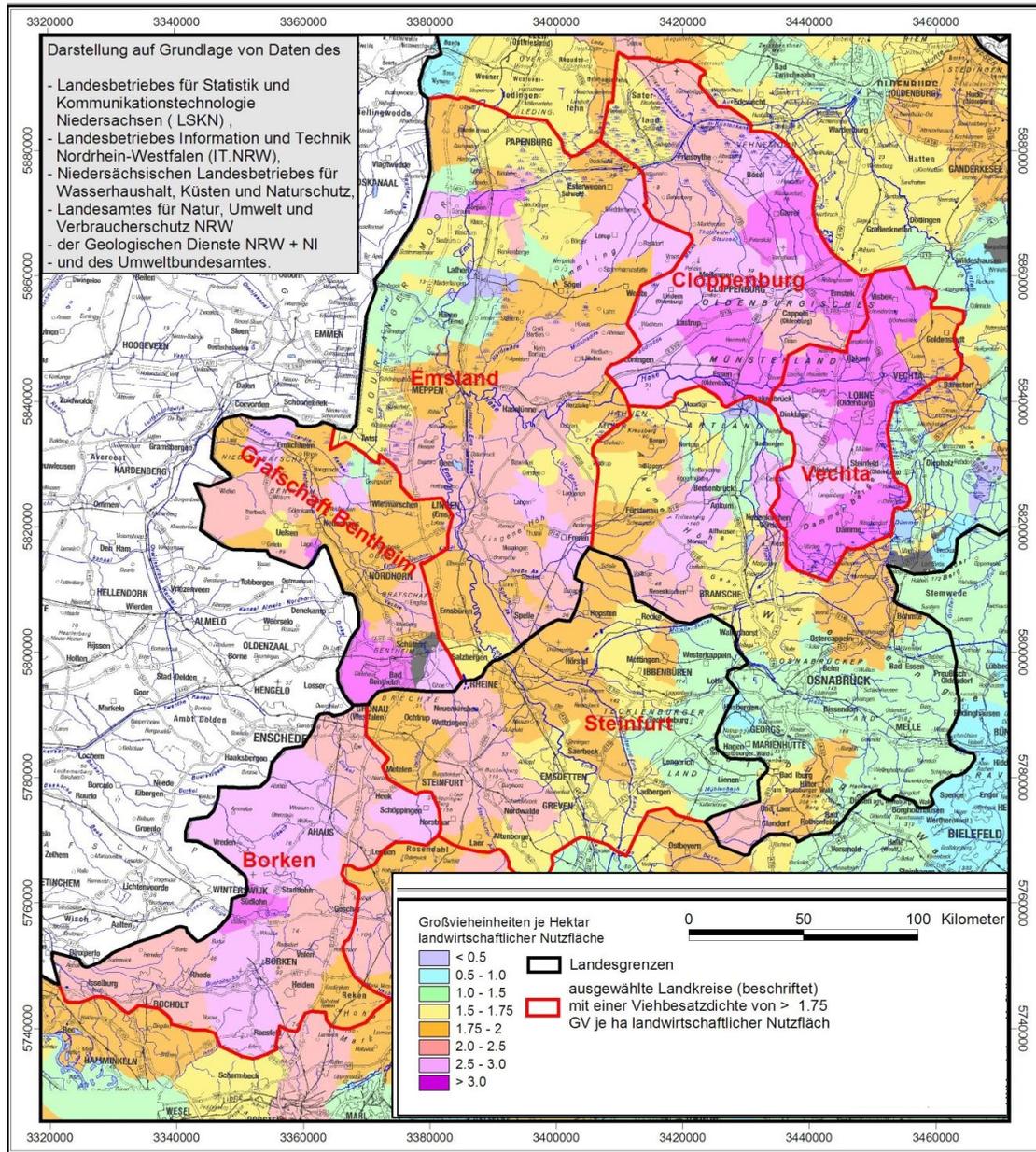
Landkreis	Landwirtschaftsfläche in Hektar	Anzahl Betriebe mit Viehhaltung	Viehbestand gesamt (GV)	Anzahl Tiere gesamt*	Großvieheinheit / ha LF
Borken (NW)	87.818	2.562	221.588	2.583.051	2,52
Steinfurt (NW)	100.721	2.454	179.890	2.054.107	1,79
Coesfeld (NW)	69.229	1.552	136.554	1.696.047	1,97
Vechta (NI)	63.263	1.409	187.175	7.950.932	2,96
Cloppenburg (NI)	93.577	2.109	247.173	6.591.207	2,64
Benthem (NI)	57.410	1.327	125.099	5.195.312	2,18
Emsland (NI)	160.775	3.273	310.193	14.216.395	1,93

\*: ausgewählt wurden hier nur Rinder, Schweine und Hühner

### 6.3.3 Gemeindebezogene Daten zu Großvieheinheiten in Landkreisen hoher Viehbesatzdichte

Die Karte in Abbildung 11 zeigt die entsprechende Verteilung der Viehbesatzdichten auf Gemeindeebene, also der höchsten räumlichen Auflösung, die durch die amtliche Landwirtschaftszählung erfasst wird.

Abbildung 11: Großvieheinheiten je landwirtschaftlicher Nutzfläche in den Gemeinden (LSKN 2011, IT.NRW 2011)



Auch diese von den Statistikbetrieben übergebenen Daten wurden manuell in die georeferenzierten GIS-Daten zur Kartenerstellung für die insgesamt 340 Gemeinden in den beiden Ländern eingegeben. Hier sind nun innerhalb der sieben Kreise z. T. erhebliche Differenzierungen der Werte erkennbar. In insgesamt 14 Gemeinden liegen die Werte  $> 3.0$  Viehbesatzdichten/ha\*LF.

In der Gemeinde Südlohn im LK Borken wird dabei der maximale Wert von 3,97 GV/ha erreicht, die übrigen 13 Gemeinden mit Werten  $> 3$  GV/ha liegen alle in Niedersachsen. Viehbesatzdichten  $< 1$  - dem bundesweiten Durchschnitt - sind nur in 25 Gemeinden erkennbar, das entspricht etwa 7 % der Gemeinden.

In den LK Borken, Vechta und Cloppenburg sind recht homogene Verteilungen der Viehbesatzdichten mit durchgängig hohen Werten erkennbar, in den übrigen vier Landkreisen dagegen zeigen sich deutliche Unterschiede zwischen den Gemeinden. Im LK Emsland z. B. liegen die Werte im Süden zumeist deutlich höher im Vergleich zum Norden, nur in der Gemeinde Dörpen wiederum befindet sich ein regionaler „Ausreißer“. Im LK Grafschaft Bentheim zeigt sich ein ähnliches Bild mit zumeist hohen Werten im Süden an der Landesgrenze zu den Niederlanden bzw. zu Nordrhein-Westfalen.

### **6.3.4 Tierartenbezogene Daten in Landkreisen hoher Viehbesatzdichte**

Zusätzlich zu den allgemeinen, auf die Flächen und die Viehbesatzdichten bezogenen Angaben werden im Rahmen der Landwirtschaftszählungen auch Angaben zur Anzahl der in den Gemeinden gehaltenen Tierarten erfasst. Diese Informationen wurden für das Projekt zunächst als wertvoll eingeschätzt, da anhand der Literaturrecherche (siehe Kap. 4) zwar nicht direkt nachgewiesen werden konnte, dass der Einsatz und die Verbrauchszahlen der TAM pro Tierart sehr unterschiedlich ist und damit die zu erwartenden Funde im Grundwasser von der in den Gemeinden gehaltenen Tierarten direkt abhängig sein werden. Dennoch gibt es Hinweise auf tierartenspezifische Anwendungen (z. B. SMX primär bei Hühnern, untergeordnet bei Schweinen und gar nicht bei Rindern), so dass diese Daten für die weitere Auswertung vorgehalten wurden.

Die in Daten der Landwirtschaftszählung enthaltenen Tierarten-Differenzierungen wurden wiederum mit den GIS-Daten zusammengeführt. Die Karten in Abbildung 12, Abbildung 13 und Abbildung 14 zeigen für die drei Haupt-Tierarten Rinder, Schweine und Hühner die regionalen Verteilungen der jeweiligen Tieranzahl pro Gemeindegebiet.

Die Daten der Landwirtschaftszählung enthalten darüber hinaus auch Informationen zu anderen Tierarten (z. B. Schafe, Ziegen, Puten, Enten, Einhufer), die aber nicht weiter berücksichtigt wurden, da sie für das Zielgebiet nicht von Relevanz sind. Zudem enthalten die Daten auch Differenzierungen innerhalb der Tierarten (z. B. Milchkühe, Kälber, Jungrinder, Rinder unter bzw. über 2 Jahren). Diese wurden zunächst für die weitere Auswertung nicht verwendet, da sie auf Gemeindeebene als zu unspezifisch für die standortbezogene Entscheidung der Analytik von Tierarzneimitteln eingeschätzt werden mussten. Lagen hingegen im Zuge der Recherche bei den Landwirtschaftskammern, zur Art der Gülleverbringung in den Zuflussgebieten der ausgewählten Messstellen nähere Informationen dazu vor, wurden diese verwendet.

Die regionale Verteilung der gehaltenen Rinder-Anzahlen (siehe Abbildung 12) zeigt einen deutlichen Schwerpunkt im Landkreis Borken in Nordrhein-Westfalen, hier werden fast in allen Gemeinden sehr viele Rinder gehalten, während dies mit Ausnahme vereinzelter Gemeinden (z. B. in der kleinen Gemeinde Lage in der Grafschaft Bentheim) in den sechs übrigen Landkreisen in beiden Ländern nicht der Fall ist. Der Anteil der Milchkühe ist in allen 7 Landkreisen eher gering ausgeprägt. Bei der Schweinezucht (siehe Abbildung 13) ist eine deutliche Konzentration in den LK Vechta und Cloppenburg erkennbar, auch im LK Coesfeld zeigen sich durchgehend hohe Haltungen, während in den übrigen 4 LK fast ausnahmslos relativ wenige Schweine, bezogen auf die landwirtschaftliche Nutzfläche, gezüchtet werden.

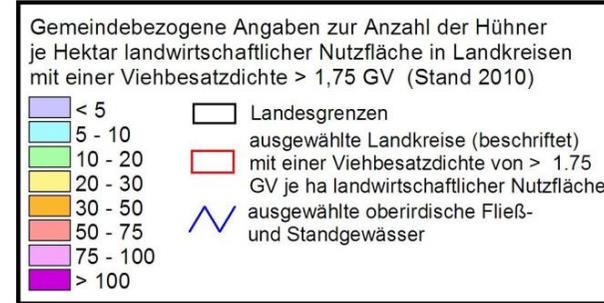
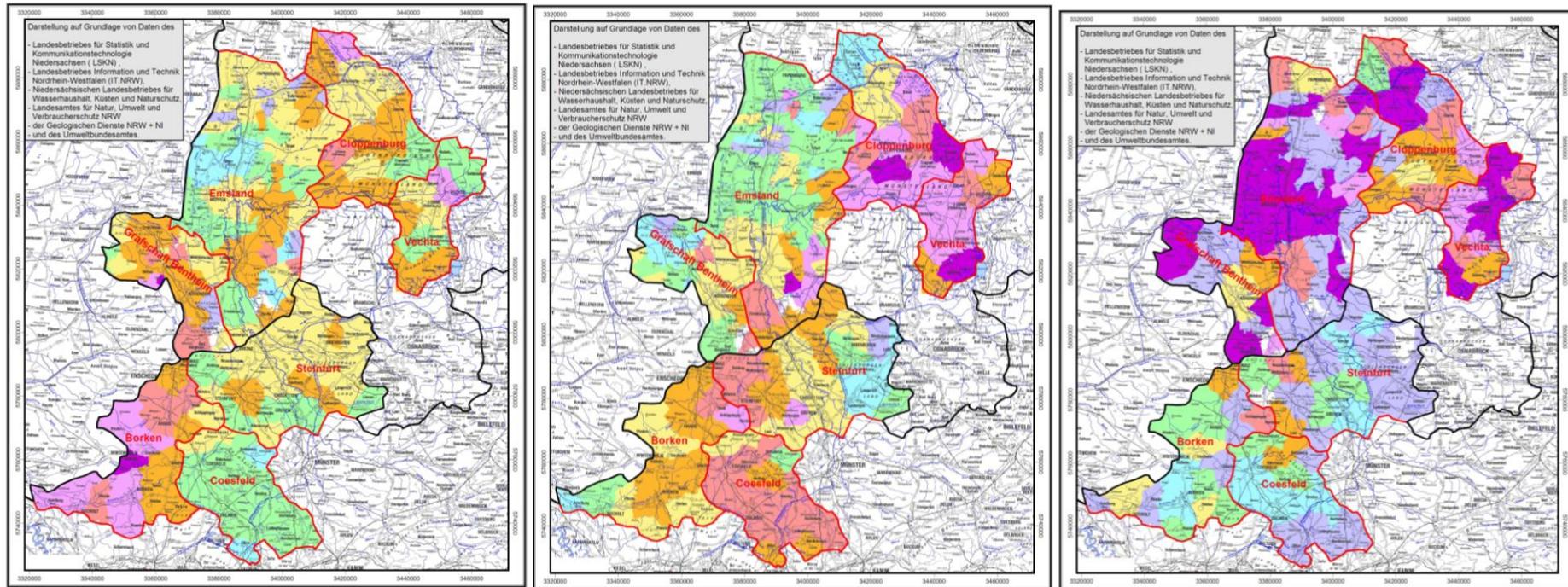
Bei der Hühnerhaltung (Abbildung 14) bestehen zwischen den Landkreisen in den beiden Ländern sehr große Unterschiede: in NW sind relativ niedrige Tieranzahlen dokumentiert, während in allen vier LK Niedersachsens hohe Haltungen erkennbar sind. In den Kreisen Emsland, Cloppenburg und der Grafschaft Bentheim handelt es sich hauptsächlich um Hühner- und Hähnchenmast, in Vechta überwiegt die Legehennenhaltung. Auch in Nordrhein-Westfalen herrscht der Mastbetrieb vor, mit Ausnahme des Landkreises Coesfeld.

Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte

Abbildung 12: Gemeindebezogene Angaben zur Anzahl der Rinder je Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche in den ausgewählten Landkreisen (links)

Abbildung 13: Gemeindebezogene Angaben zur Anzahl der Schweine je Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche in den ausgewählten Landkreisen (Mitte)

Abbildung 14: Gemeindebezogene Angaben zur Anzahl der Hühner je Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche in den ausgewählten Landkreisen (rechts)



## 6.4 Naturräumliche Charakterisierung der Landkreise hoher Viehbesatzdichte

### 6.4.1 Vorbemerkungen

Gegenstand der Untersuchungen ist das oberflächennahe Grundwasser innerhalb der sieben ausgewählten Landkreise hoher Viehbesatzdichte. Die Unterscheidung zum Sickerwasser, das sich über der Grundwasseroberfläche in der ungesättigten Zone unterhalb der Geländeoberkante befindet, ist maßgeblich für das Projekt. Für die laboranalytischen Untersuchungen wurden ausschließlich Grundwassermessstellen ausgesucht, an denen möglichst nahe unterhalb der Grundwasseroberfläche Proben entnommen werden können. Nicht untersucht wurden Proben oberhalb der Grundwasseroberfläche oder aus Grundwasserleitern, in denen zumeist das Trinkwasser für die öffentliche Versorgung aus Brunnen entnommen wird. Mit dieser Herangehensweise wird dem worst case-Szenario entsprochen: innerhalb des Umweltmediums Grundwasser setzen die Untersuchungen dort an, wo mit der größten Wahrscheinlichkeit ein Nachweis eines aus dem Boden- bzw. dem Sickerwasser eingetragener TAM-Wirkstoff zu erwarten ist. In Kap. 8.1 wird dies im Zusammenhang mit der ortskonkreten Auswahl der Messstellen nochmals aufgegriffen.

Im Folgenden wurden die auf das Grundwasser wirkenden, naturräumlichen und anthropogen beeinflussten Randbedingungen der Untersuchungsgebiete, vornehmlich in den sieben Landkreisen hoher Viehbesatzdichte in Niedersachsen und NW betrachtet. Grundlage sind die flächenhaft zur Verfügung stehenden, recherchierten und aufbereiteten Daten. Das sächsische und bayerische Untersuchungsgebiet wird im Folgenden ergänzend beschrieben.

Für die Auswahl der Grundwassermessstellen kommt den naturräumlichen Randbedingungen der Region nicht immer die ausschließlich prägende Bedeutung zu, da kleinräumige bzw. lokale Standortverhältnisse von regionalen Bedingungen abweichen können. Dies wurde vor allem durch die sorgfältige Recherche der geologischen Schichtenverzeichnisse der Bohrungen bei den Partnerinstitutionen berücksichtigt, die zu den Messstellen zumeist sehr wertvolle Hinweise zum Aufbau des Untergrundes liefern. Die gründliche naturräumliche Beschreibung der Region in maßgebende Umweltfaktoren ist dennoch für die Einordnung der Ergebnisse und die Interpretation der Übertragbarkeit auf andere Regionen in Deutschland wichtig.

### 6.4.2 Topografische Beschreibung

Die Topographie des Betrachtungsgebietes ist zweigeteilt. Die nördlichen Landkreise Emsland, Clopenburg und Vechta gehören der Norddeutschen Tiefebene an. Die Geländehöhen liegen meist unter 20 m NN. Im Norden des Emslandes und Cloppenburgs befindet sich ein Geestbereich, es handelt sich hierbei um eine glaziale Erhebung, die ausschließlich aus feinem Sand aufgebaut ist. Die Gesteine der norddeutschen Tiefebene sind eiszeitlich überprägt, und somit besteht der Untergrund ausschließlich aus quartären Lockergesteinen (siehe Kap. 7.4.7).

Im südlichen Teil des Betrachtungsgebietes, wie auch im LK Vechta, steigt das Gelände lokal auf kleinere Erhebungen an, die meist durch Stauchendmoränen gebildet sind. Die Kreise Steinfurt, Coesfeld und Borken befinden sich am nördlichen Randbereich des Münsterländer Beckens. Der östliche Teil des LK Steinfurt in NW reicht in den Mittelgebirgsbereich des Eggegebirges hinein. Der LK Coesfeld wird von den Coesfeld-Daruper Höhen geprägt, einem Ausläufer der münsterländischen Baumberge.

Das Untersuchungsgebiet in Sachsen liegt im Mittelsächsischen Hügelland und der Lommeratzschen Pflege, die sich im Norden anschließt. Das Gebiet ist von glazialen Lössablage-

rungen gekennzeichnet, und wird überwiegend landwirtschaftlich genutzt. Das bayerische Beobachtungsgebiet ist ebenfalls mittelgebirgisch geprägt und befindet sich in der Frankenhöhe, dem Nördlinger Ries und dem Hügelland südlich der Fränkischen Alb.

### 6.4.3 Landnutzung

Die aktuelle Landnutzung ist in den sieben Landkreisen ganz überwiegend durch agrarische Nutzung auf Ackerland geprägt. Die Darstellung in der Karte in Abbildung 16 wurde anhand der Corine-Daten der Bodenbedeckung Deutschlands mit dem Stand 2006 (CLC 2006) vorgenommen.

Die darin enthaltene Differenzierung der Landnutzungseinheiten wurde auf die fünf dargestellten Einheiten aggregiert, denen ein sich maßgeblich unterscheidender Einfluss auf die Prägung der Sicker- und Grundwasserbeschaffenheit zugesprochen werden kann.

Abbildung 15: Flächenanteile der 5 aggregierten Landnutzungsklassen in den 7 Kreisen hoher Viehbesatzdichte

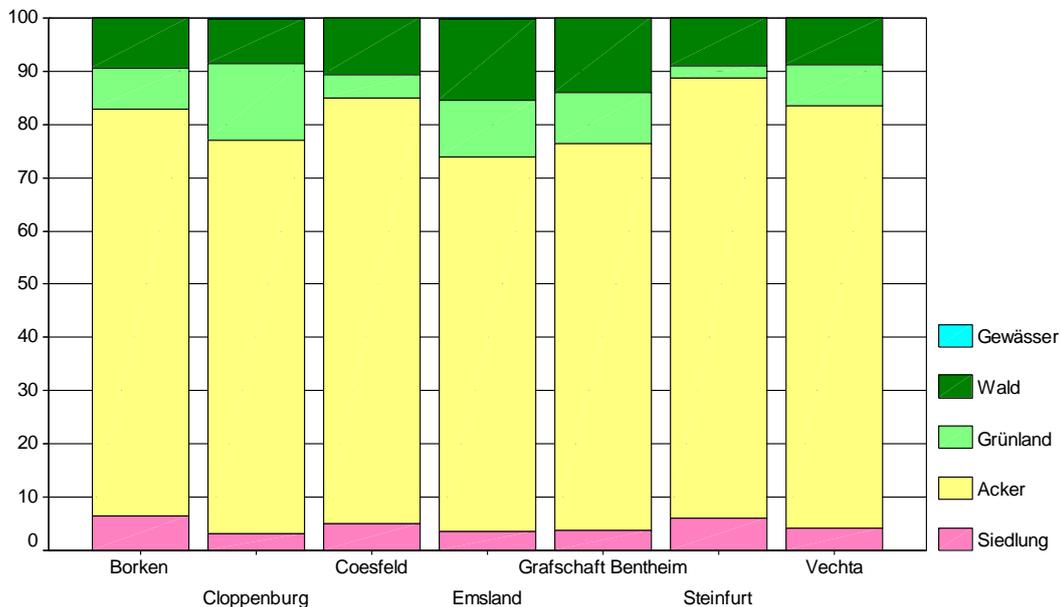
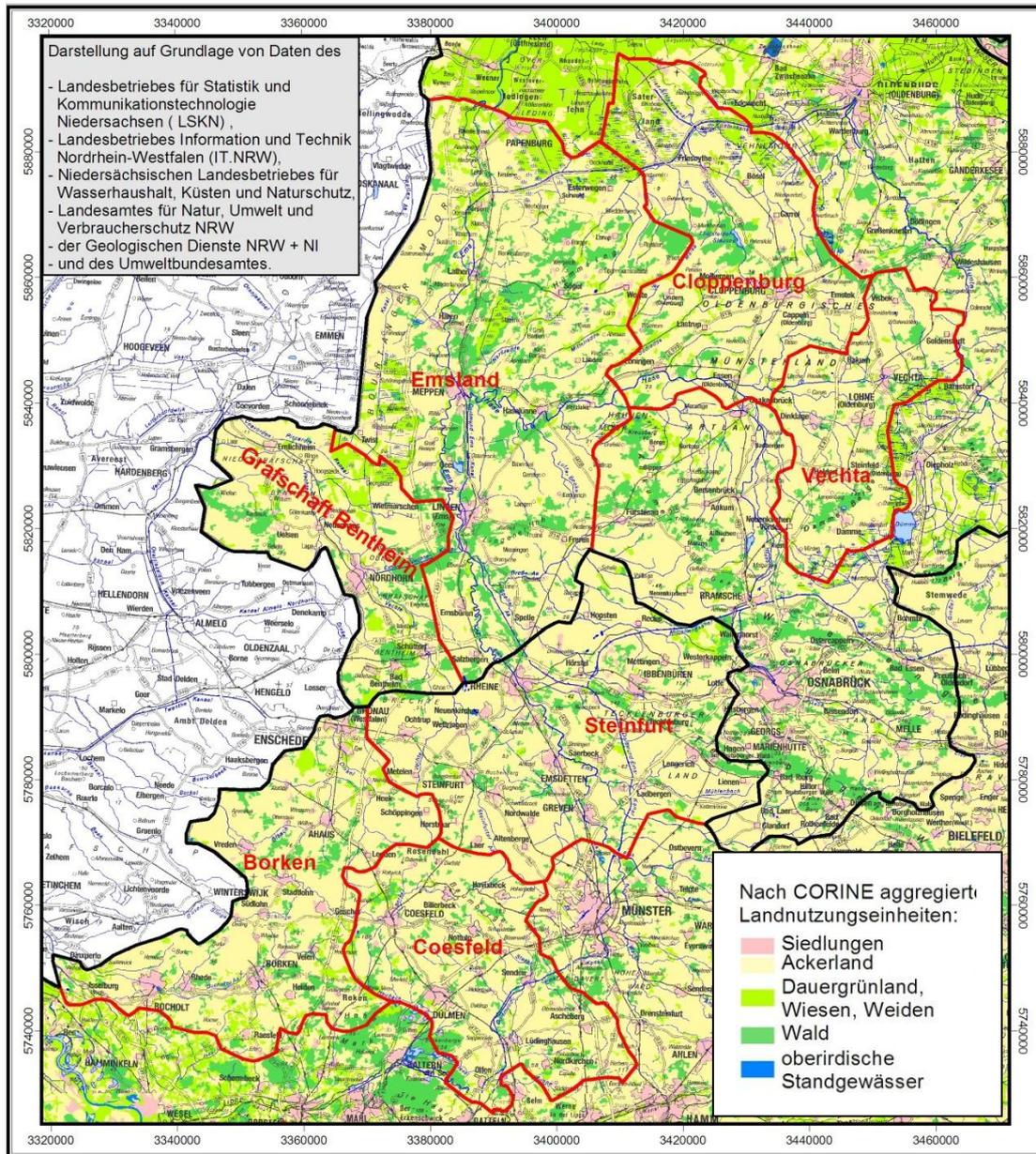


Abbildung 15 zeigt die mit GIS ermittelten Flächenanteile dieser 5 Klassen in den 7 Landkreisen: in allen Kreisen liegt der Anteil der Ackerflächen zwischen 70 und 80 % und damit weit über dem in Deutschland aktuell verbreiteten Anteil von etwa einem Drittel der Fläche. Grünland-Flächen umfassen weitere etwa 5 bis 10 % der Flächen. Die Waldanteile der Flächen sind hingegen in den sieben Kreisen deutlich unterrepräsentiert, sie umfassen zumeist nur etwa 10 % der Flächen. Auch Siedlungs- und Gewässerflächen sind flächenhaft nur wenig ausgeprägt. Es handelt sich um eine intensiv genutzte Agrarlandschaft mit extrem hoher Viehbesatzdichte, innerhalb der von einer nahezu flächendeckenden Verbringung mit organischem Wirtschaftsdünger auf die Flächen ausgegangen werden kann (näheres dazu siehe Kap. 7.5).

In der sächsischen Gemeinde Naundorf werden etwa 97 % der landwirtschaftlichen Nutzfläche für Ackerbau verwendet, lediglich 3 Prozent sind Dauergrünland. Die landwirtschaftliche Nutzfläche in der Gemeinde Hartmannsdorf liegt ebenfalls bei mehr als 70 %, mit wenig Dauergrünflächen und einer sehr geringer Waldfläche von unter 5 %<sup>44</sup>. Auch die Standorte in Bayern liegen in stark landwirtschaftlich, insbesondere von Viehzucht geprägten Gemeinden.

<sup>44</sup> <http://www.umwelt.sachsen.de/umwelt/download/boden/Bodenatlas-Teil2.pdf>

Abbildung 16: Landnutzung innerhalb der sieben ausgewählten Landkreise hoher Viehbesatzdichte



#### 6.4.4 Nutzbare Feldkapazität der Bodenzone

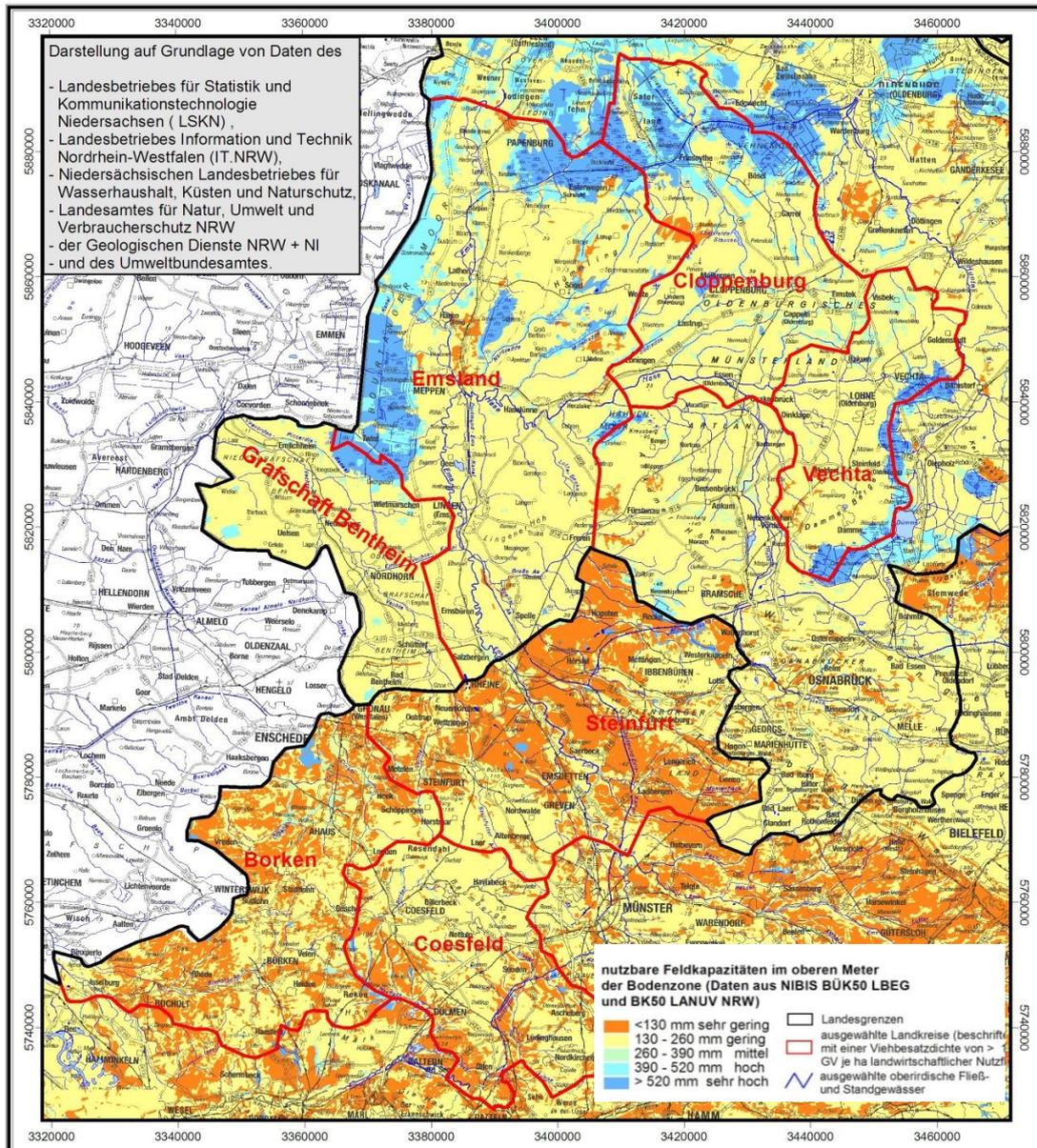
Die nutzbare Feldkapazität der Bodenzone bis 1 m Bodentiefe kennzeichnet die pflanzenverfügbare Bodenwassermenge in Millimeter (mm) und kann als indirektes Maß für das quantitative Rückhaltevermögen des Bodens gegenüber mit dem Sickerwasser eingetragenen Stoffen angesehen werden. Die Karte in Abbildung 17 zeigt die in den beiden Ländern verfügbaren Daten dazu, die sich aufgrund unterschiedlicher Erhebungs- bzw. Auswertemethoden an der Landesgrenze deutlich unterscheiden. In NW entstand die den Daten zugrunde liegende Bodenkarte (BK 50)<sup>45</sup> durch Geländeaufnahmen, während in Niedersachsen die Bodenübersichtskarte 1 : 50 000 (BÜK 50)<sup>46</sup> aus vorhandenen Daten zum Boden aus anderen Kartenwerken aggregiert wurde.

<sup>45</sup> [http://www.gd.NW.de/g\\_bk.php](http://www.gd.NW.de/g_bk.php)

<sup>46</sup> [http://www.lbeg.niedersachsen.de/portal/live.php?navigation\\_id=728&article\\_id=684&psmand=4](http://www.lbeg.niedersachsen.de/portal/live.php?navigation_id=728&article_id=684&psmand=4)

Generell sind die Feldkapazitäten in der Untersuchungsregion gering bzw. sehr gering, das ist mit den zumeist sandigen Substraten des Bodens zu erklären. Die deutlich höheren Werte in Teilbereichen der Kreise in Niedersachsen sind auf lehmige Substrate dort zurückzuführen. Zu erwarten ist, dass unter diesen Bedingungen des erhöhten Wasserrückhaltes auch ein verstärkter Stoffrückhalt in der Boden- bzw. ungesättigten Zone auftritt. Bei der Auswahl der Grundwassermessstellen wurden diese Standorte weniger berücksichtigt.

Abbildung 17: Nutzbare Feldkapazität bis 1 m Bodentiefe in den sieben ausgewählten Landkreisen



In den Festgesteinsbereichen Bayerns variieren die nutzbaren Feldkapazitäten kleinräumig stark. Durch die mächtigen Lößablagerungen in Mittelsachsen dominieren dort hohe Feldkapazitäten.

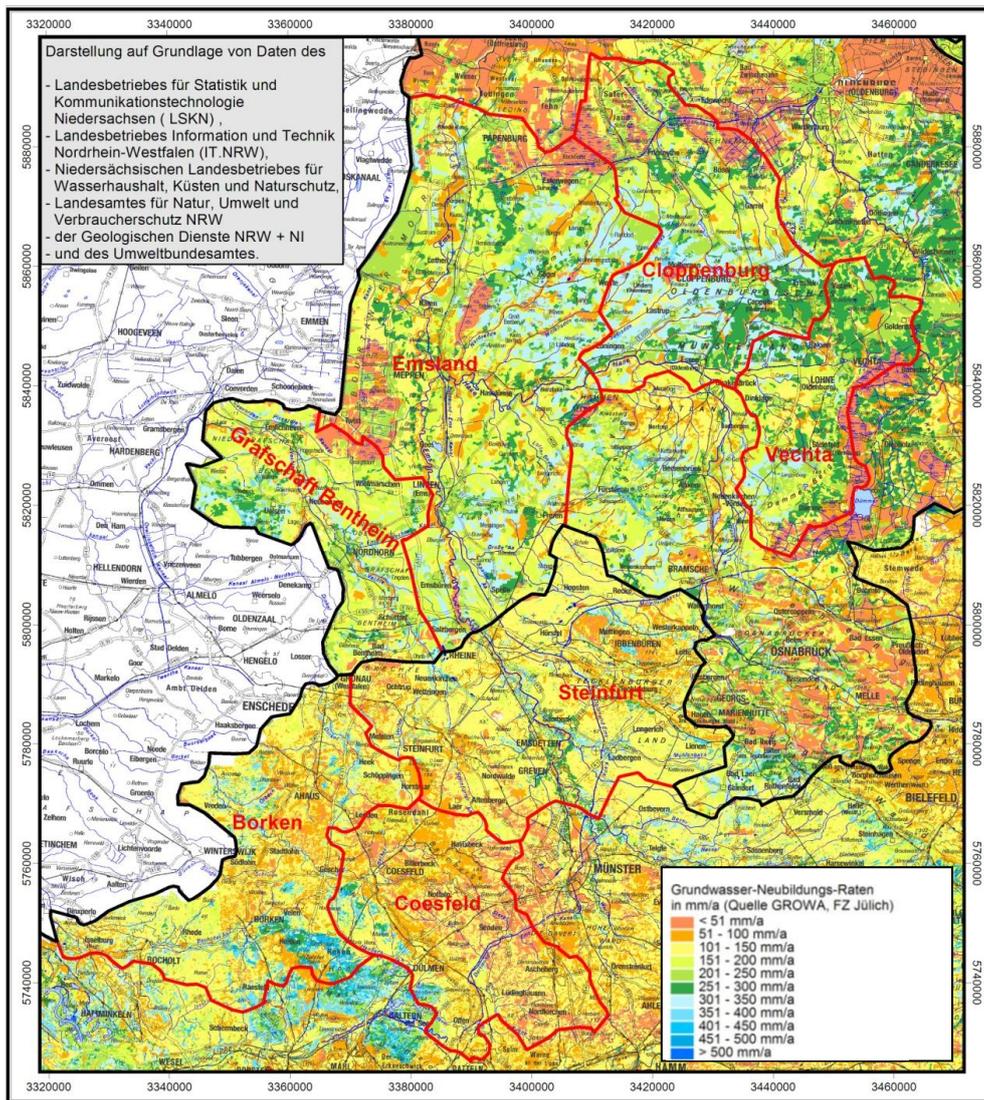
### 6.4.5 Grundwasserneubildungsrate

Zusätzlich zur Feldkapazität als Maß des lithologischen Aufbaus der Bodenzone ist die Grundwasserneubildungsrate ein Maß für die Menge an Wasser, das in den Untergrund bzw. aus dem Boden heraus in die ungesättigte Zone unterhalb des Bodens versickert und anschließend über die ver-

tikale Fließkomponente dem Grundwasser zutrifft. Je höher diese Rate ist, desto schneller kann das Sickerwasser und die in ihm gelösten Stoffe das Grundwasser erreichen und desto geringer ist der zu erwartende biochemisch gesteuerte Abbau solcher Substanzen, also ggf. auch der Tierarzneimittel bzw. der während des Versickerungsprozesses gebildeten Transformationsprodukte.

Maßgeblichen Einfluss auf die Grundwasserneubildungsrate haben klimatische Faktoren wie der Niederschlag und die Verdunstung, die Landnutzung (höhere Werte unter Acker im Vergleich zum Wald) sowie pedologische Kenngrößen wie die Bodenart und der Humusgehalt des Oberbodens. Die Karte in Abbildung 18 zeigt die mit dem Modell GROWA06 des Forschungszentrums Jülich in

Abbildung 18: Grundwasserneubildungsraten innerhalb der sieben ausgewählten Landkreise



beiden Ländern für langjährige Mittelwerte der Einflussfaktoren berechneten Neubildungsrate (FZJ 2003, LBEG 2008<sup>47</sup>). An der Landesgrenze sind nur geringfügige Sprünge zu erkennen, was auf die methodisch einheitliche Berechnung zurückzuführen ist. Die zugrundeliegenden Rasterweiten liegen in Niedersachsen bei 50 Meter und in NW bei 100 Meter. Erkennbar sind überwiegend geringen Neubildungsrate zwischen 100 und 200 mm/a. Der arithmetische Mittelwert liegt für die mehr als 500 000 Einzelrasterzellen in NW bei 152 mm/a (in Niedersachsen

<sup>47</sup> [http://www.lbeg.niedersachsen.de/portal/live.php?navigation\\_id=712&article\\_id=618&psmand=4](http://www.lbeg.niedersachsen.de/portal/live.php?navigation_id=712&article_id=618&psmand=4)

liegen die Daten nur in Form von Spannweiten vor). Im bundesdeutschen Vergleich ist dies ein leicht unterdurchschnittlicher Wert. Nach BMUNR (2008) liegt der bundesdeutsche Mittelwert der Grundwasserneubildung - ermittelt anhand des langjährigen Mittels im „Hydrologischen Atlas von Deutschland“<sup>48</sup> - bei 177 mm/a. In Niedersachsen allerdings liegen die Werte erkennbar höher, hier entspricht der Untersuchungsraum vermutlich etwa den bundesweit mittleren Verhältnissen bzw. liegt sogar etwas darüber.

Die Karte zeigt jedoch große Unterschiede im Detail, die eher auf die pedologischen Einflussfaktoren zurückgeführt werden können, da bei den klimatischen Kenngrößen eine solche Heterogenität nicht zu erwarten ist. Die geringen Neubildungsraten im Norden der LK Emsland und Cloppenburg z. B. korrespondieren mit den dortigen hohen Feldkapazitäten, beides bedingt durch bindige Deckschichten an der Erdoberfläche, vorwiegend Geschiebelehme. Auch organikreiche Böden führen zu solchen Werten, z. B. im Westen an der holländischen Landesgrenze. In NW sind die Daten etwas homogener, hohe Werte (>300 mm/a) sind hier nur an vereinzelt Standorten (z. B. in Nordick) erkennbar.

Im bayerischen und sächsischen Untersuchungsgebiet bestehen ähnliche Neubildungsraten zwischen 100 und 250 mm/a (HAD, Geofachatlas und Bodeninformationssystem Bayern<sup>49</sup> und Staatsministerium für Umwelt und Landwirtschaft Sachsen<sup>50</sup>).

#### **6.4.6 Flurabstände und Schutzfunktion der Deckschichten des oberflächennahen Grundwassers**

Beide Faktoren, der Flurabstand und die überdeckenden Schichten des Grundwassers prägen neben den Neubildungsraten wesentlich die Verweilzeiten des Sickerwassers innerhalb der ungesättigten Zone, bis zum Erreichen der Grundwasseroberfläche. Schematisch ist das in Abbildung 19 für typische hydrogeologische Lagerungsbedingungen im norddeutschen Lockergestein dargestellt. Die Verweilzeiten des Sickerwasser (roter Pfeil) verlängern sich durch z. B. bindige Deckschichten wie Geschiebelehm und hohe Flurabstände maßgeblich, wobei sie bei oberflächennahem Grundwasser recht kurz sein können, wenn diese nicht mit schützende Deckschichten überlagert sind.

Vor allem der Flurabstand des Grundwassers und damit die vertikale Versickerungsstrecke prägt die Verweilzeiten maßgeblich, was anhand der Untersuchungen in Mecklenburg-Vorpommern (Hannappel et al. 2011) gut dokumentiert ist.

Die Karte in Abbildung 20 gibt einen Überblick zu den Flurabständen. In NW liegen diese Daten nur in linienhafter digitaler Form vor, so dass eine Übersicht hierzu nicht aussagekräftig ist. Sie sind jedoch relativ hochaufgelöst und können daher für die Messstellenauswahl verwendet werden. In Niedersachsen zeigen sich zumeist geringe Flurabstände des Grundwassers von weniger als 2 Meter, diese Werte sind typisch für die ausgeprägten Niederungsgebiete. Höhere Werte > 2 Meter bzw. > 5 Meter sind in den Geest-Bereichen zu erkennen, in denen entweder bindige Deckschichten oberhalb des Grundwassers liegen oder auch Grundwasserleiter ohne Schutzschicht höhere Flurabstände aufweisen können. Für den Festgesteinsbereich im Südosten Niedersachsens sind die Flurabstände nicht dargestellt. Diese Differenzierung zeigt zugleich die Karte in Abbildung 21, in der eine dreistufige Einteilung der „Schutzfunktion der Deckschichten“ als günstig, mittel und ungünstig aufgetragen ist. Die Informationen wurden im Zusammenhang

---

<sup>48</sup> [http://www.bgr.bund.de/DE/Themen/Wasser/Projekte/laufend/Beratung/Had/had\\_projektbeschr.html](http://www.bgr.bund.de/DE/Themen/Wasser/Projekte/laufend/Beratung/Had/had_projektbeschr.html)

<sup>49</sup> <http://www.bis.bayern.de>

<sup>50</sup> <https://publikationen.sachsen.de/bdb/artikel/10920>

Abbildung 19: Schematische Darstellung der Verweilzeiten des Sickerwassers in der ungesättigten Zone im norddeutschen Lockergesteinsbereich (verändert aus: Hannappel et al. 2011)

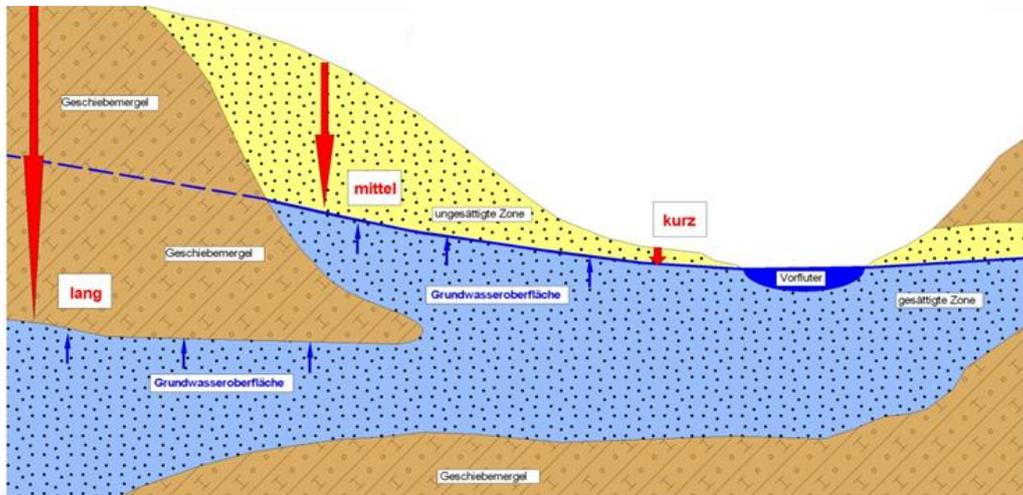
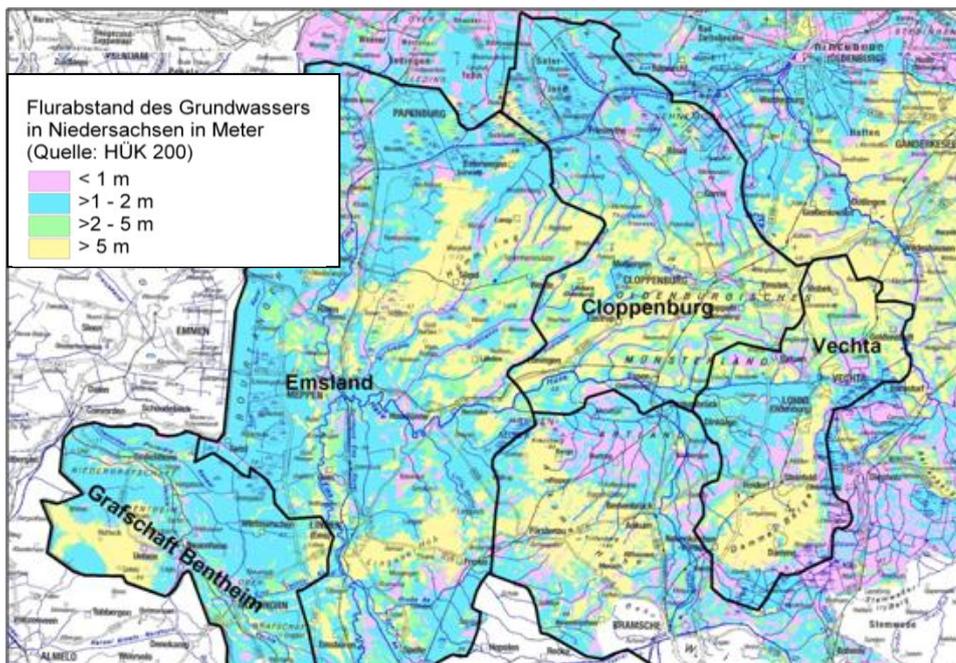


Abbildung 20: Flurabstände des Grundwassers in 4 Landkreisen hoher Viehbesatzdichte in Niedersachsen (n. HÜK 200)



mit der „Hydrogeologischen Übersichtskarte 1 : 200 000“ von den Staatlichen Geologischen Diensten und der BGR erarbeitet (HÜK 200, Dörhöfer et. al. 2001<sup>51</sup>). Sie stellen eine schematische, keine einzelstoffbezogene Bewertungskategorie dar. Hohe Flurabstände korrespondieren zumeist auch mit einer hohen Schutzfunktion und bindig ausgeprägten Deckschichten, erkennbar ist das z. B. im Süden des LK Cloppenburg und im Zentrum des LK Emsland. Im Süden des LK

<sup>51</sup> <http://www.bgr.de/app/huek200/v1/>

Vechta sind auch Bereiche mit ebenfalls hohen Flurabständen und Schutzfunktionen, aber ohne bindige Deckschichten dokumentiert.

Abbildung 21: Schutzfunktion der Deckschichten des Grundwassers in den 7 ausgewählten Landkreisen hoher Viehbesatzdichte in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen (n. HÜK 200)



Hier ist die Versickerungszone ausschließlich sandig ausgebildet. Geringe Flurabstände führen daegen fast immer auch zu gering ausgeprägten Schutzfunktionen, das ist z. B. im östlichen Bereich der Grafenschaft Bentheim erkennbar (siehe Abbildung 21).

Die Flurabstände in Sachsen sind relativ hoch (Hartmannsdorf 8,67 m und mehr als 40 m in Naundorf (s. Tabelle 23), eine schützende Überdeckung besteht durch Lössschichten. In Naundorf fehlt die schützende Überdeckung, das Grundwasser wird lediglich von stark durchlässigen Sanden und Kiesen überlagert.

Bei den bayerischen Quellen handelt es sich um oberflächennahe Quellen, mit jungem Quellwasser und geringem Schutzpotential gegenüber schädlichen Einträgen.

#### 6.4.7 Hydrogeologische Charakterisierung der oberflächennahen Grundwasserleiter

Der oberflächennahe Grundwasserleiter ist der - von der Geländeoberfläche aus betrachtet - erste zusammenhängende, großräumig verbreitete Grundwasserleiter. Dessen Eigenschaften sind in der HÜK 200 digital kartografisch bundesweit dokumentiert (u. a. lithologische Ausprägung des Substrates, Verbreitung der Deckschichten). Zudem enthält die Karte Informationen zur hydraulischen Durchlässigkeit und dem geochemischen Gesteinstyp der grundwasserführenden Gesteinseinheiten.

In allen vier niedersächsischen Landkreisen sind ausschließlich Poren-Grundwasserleiter verbreitet, die zumeist aus quartären Sanden unterschiedlicher Körnung bestehen (Fein-, Mittel- und Grobsande). Untergeordnet können auch Kiese und Schluffe auftreten. Die Körngröße der grundwasserleitenden Schichten beeinflusst die hydraulischen Durchlässigkeiten maßgeblich: Kiese z. B. besitzen eine Durchlässigkeit von  $> 1 \cdot 10^{-3}$  m/s und bewirken damit sehr große Abstandsgeschwindigkeiten innerhalb der Porensedimente. Schluffe hingegen haben Durchlässigkeiten von  $< 1 \cdot 10^{-5}$  m/s, wodurch sich das Grundwasser nur sehr langsam in Richtung der nächsten Vorflut, also dem oberirdischen Gewässer, das durch Grundwasser gespeist wird, bewegen kann.

In den Landkreisen in NW treten neben den Poren- auch Kluft- und Karst-Grundwasserleiter in den Festgesteinsbereichen auf. Es handelt sich um mesozoische Festgesteine (z. B. Sand- oder Tonsteine) bzw. Kalksteine (Kluft-/Karst-Grundwasserleiter). In diesen können die Grundwasserführung und die Durchlässigkeiten jeweils stark herabgesetzt sein, das Grundwasser bewegt sich hier nicht mehr flächendeckend in der Matrix, sondern nur in bevorzugten Kluftsystemen. Im

Kreis Coesfeld, herrschen Durchlässigkeiten von mehr als  $1 \cdot 10^{-5}$  m/s vor. In Borken variieren die hydraulischen Eigenschaften je nach Gesteinseinheit zwischen  $1 \cdot 10^{-9}$  und  $1 \cdot 10^{-4}$  m/s.

Der geochemische Gesteinstyp ist in den Festgesteinen zumeist silikatisch/karbonatisch, während er im Lockergesteinsbereich nahezu ausschließlich silikatisch ist. Bei dieser Art des Korngerüsts bestehen kaum Austauschmöglichkeiten mit der Feststoffmatrix, so dass die im Grundwasser gelösten Inhaltsstoffe nicht sorbiert werden können. Nur bei silikatisch/organischen Gesteinstypen kann dies vereinzelt der Fall sein, diese treten jedoch nur sehr untergeordnet auf (z. B. in der Grafschaft Bentheim). In Sachsen sind die Kluftgrundwasserleiter in der Untersuchungsregion noch von durchlässigen Lockersedimenten überlagert.

#### 6.4.8 Grundwasserdynamik bzw. -fließrichtung

Informationen zur Grundwasserdynamik sind sehr wichtig, um Abschätzungen zur regionalen und lokalen Fließrichtung des Grundwasserleiters und zu den wahrscheinlichen Zustromgebieten der ausgewählten Messstellen ableiten zu können. Neben den an Bohrungen gemessenen Grundwasserständen liegen diese Informationen in Form der sog. „Grundwassergleichen“, also Isohypsen gleichen Grundwasserstandes vor. Diese Daten erlauben die gewünschte Bewertung des Umfeldes im Hinblick auf die schematische Festlegung einer Grundwasserfließrichtung. Berechnet wurden die Grundwassergleichen zumeist anhand von sog. „Stichtagsmessungen“ und anschließenden manuellen oder geostatistischen Regionalisierungsansätzen zur Übertragung der punktuell gemessenen Daten in die Fläche. Sie beinhalten eine von der Datendichte abhängige Unsicherheit, die sich jedoch primär auf die ortskonkrete Höhe des Grundwasserstandes und nur untergeordnet auf die daraus abgeleitete Fließrichtung auswirkt.

Die Grundwassergleichen geben Aufschluss auf die (regionale) Fließrichtung des Grundwassers. Und sind teilweise stark mit der Topographie korrelierbar. Von den Ladesätmern wurden zusätzlich die Grundwasserkörper, in denen sich das Grundwasser großräumig bewegt, ausgewiesen.

Im Jahr 2008 wurden für Nordrhein-Westfalen die Grundwassergleichen im Abstand von einem Meter im Auftrag des LANUV für das Jahr 1998 erstellt. Vor allem im Festgesteinsbereich (z. B. Teutoburger Wald) sind anhand des engräumigen Verlaufs der Linien starke Gefälleunterschiede erkennbar. Die Fließrichtungen sind großräumig einheitlich nach Nordwesten in Richtung Niederlande ausgebildet. Lokal können sie davon natürlich erheblich abweichen, dies kann mit den vorhandenen Daten jedoch ausreichend abgeschätzt werden.

In Niedersachsen wurden Daten verwendet, die im Jahr 2003 für einen landesweiten Grundwassergleichenplan im Auftrag des damaligen NLFb (dem heutigem LBEG) erstellt worden waren (HYDOR 2003). Sie beruhen auf Daten vom Januar 1993<sup>52</sup> und stellen einen mittleren Grundwasserstand der Zeitreihe von 1990 bis 2000 dar. Den Daten zugrunde liegen Grundwasserstandsdaten des Gewässerkundlichen Landesdienstes, die mit Erlaubnis des Niedersächsischen Landesbetriebes für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz (NLWKN) verwendet wurden. Die Grundwassergleichen-Linien liegen in 2 Meter-Abständen digital.

Für jede einzelne der ausgewählten Messstellen wurden die Fließrichtungen am Standort und die sich daraus ergebenden Zustromgebiete ermittelt und kartografisch dargestellt. Diese Informationen sind wichtig zur möglichst genauen Identifizierung der tierartspezifischen Güllefrachten, die innerhalb dieser Bereiche in der Vergangenheit auf den Boden aufgebracht worden sind (sie-

---

<sup>52</sup> [http://www.lbeg.niedersachsen.de/portal/live.php?navigation\\_id=753&article\\_id=638&psmand=4](http://www.lbeg.niedersachsen.de/portal/live.php?navigation_id=753&article_id=638&psmand=4)

he Kap. 7.5.3) und der sich daraus ableitenden Auswahl von Tierarzneimitteln für die Laboranalytik.

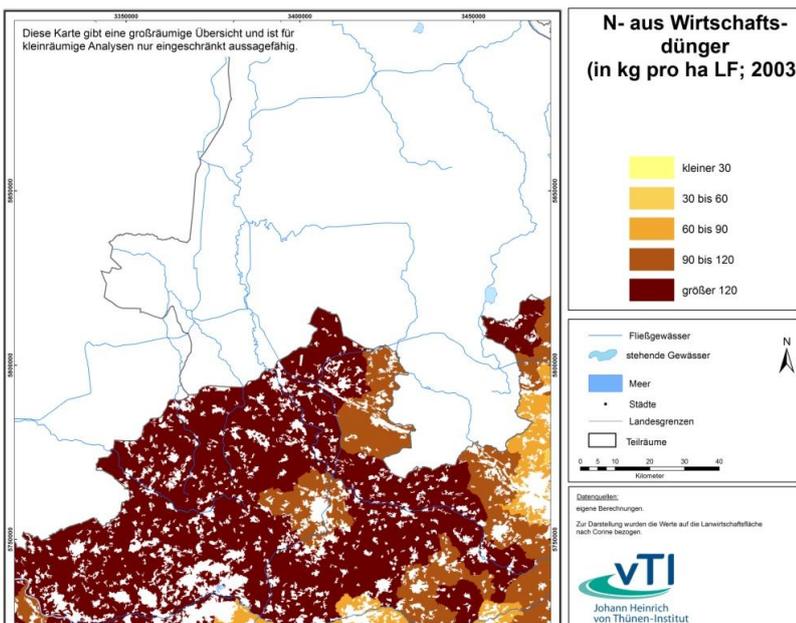
## 6.5 Daten zum Stickstoff- und Gülleeintrag in den Untergrund

### 6.5.1 Stickstoffeinträge

Nach der Düngeverordnung (DüV 2012<sup>53</sup>) können je nach Nutzung der landwirtschaftlichen Fläche bis zu 170 kg/ha Stickstoff im Jahr aufgebracht werden. Stickstoffüberschüsse sollen jedoch seit 2006 bis 2011 graduell von 90 kg/ha auf 60 kg/ha reduziert werden<sup>54</sup>.

Daten zu den Stickstoff-Einträgen und zu daraus resultierenden Stickstoff-Bilanzüberschüssen können in den Untersuchungsgebieten mit sehr hohen Viehbesatzdichten Indikatoren für potentiell mit organischem Wirtschaftsdünger eingetragene Tierarzneimittel sein. Die dazu vorhandenen Daten wurden mit dem Ziel der Verwendung für die Standortauswahl der Beprobung recherchiert. Abbildung 22 zeigt für NW eine Karte zu den modellierten Stickstoffeinträgen aus Wirtschaftsdüngern anhand einer Berechnung des vTI (2003), die projektbezogen digital zusammen mit den Bilanzüberschüssen,

Abbildung 22: Stickstoffeinträge aus Wirtschaftsdüngern in NW (vTI 2003)



mit Genehmigung des LANUV, übergeben wurden. Erkennbar sind die nahezu flächendeckend sehr hohen Stickstoffeinträge aus organischen Wirtschaftsdüngern von mehr als 120 kg Stickstoff pro ha landwirtschaftlicher Nutzfläche. Nur in wenigen Teilbereichen liegen sie unter 100 kg N pro ha, so dass von durchgehend hohen Einträgen und damit auch potentiellen Einträgen von Tierarzneimitteln ausgegangen werden muss. Vergleichbare digital verfügbare Daten für Niedersachsen lagen nicht vor, hier muss jedoch aufgrund der zumeist noch höheren Viehbesatzdichte von zumindest gleich hohen Einträgen ausgegangen werden.

### 6.5.2 Stickstoff-Bilanzüberschüsse

Ein großer Teil der mit Düngemitteln eingetragenen Nährstoffe sollte den Flächen mit dem Erntegut wieder entzogen werden. Um zu bewerten, wie sich die Düngung auf die Umwelt auswirkt, werden Bilanzen aus der Nährstoffzufuhr und -abfuhr erstellt. Ein Bilanzüberschuss bedeutet, dass dem Boden mehr Nährstoffe zugeführt werden, als über die Ernte entzogen wird.

<sup>53</sup> [http://www.gesetze-im-internet.de/bundesrecht/d\\_v/gesamt.pdf](http://www.gesetze-im-internet.de/bundesrecht/d_v/gesamt.pdf)

<sup>54</sup> [http://www.umweltbundesamt-daten-zur-](http://www.umweltbundesamt-daten-zur-umwelt.de/umweltdaten/public/theme.do;jsessionid=D94CB5B284F049607D0784FDA9E08A4D?nodeId=3639)

[umwelt.de/umweltdaten/public/theme.do;jsessionid=D94CB5B284F049607D0784FDA9E08A4D?nodeId=3639](http://www.umweltbundesamt-daten-zur-umwelt.de/umweltdaten/public/theme.do;jsessionid=D94CB5B284F049607D0784FDA9E08A4D?nodeId=3639)

Abbildung 23: Modifizierte Stickstoff-Flächenbilanz (Höper 2011)

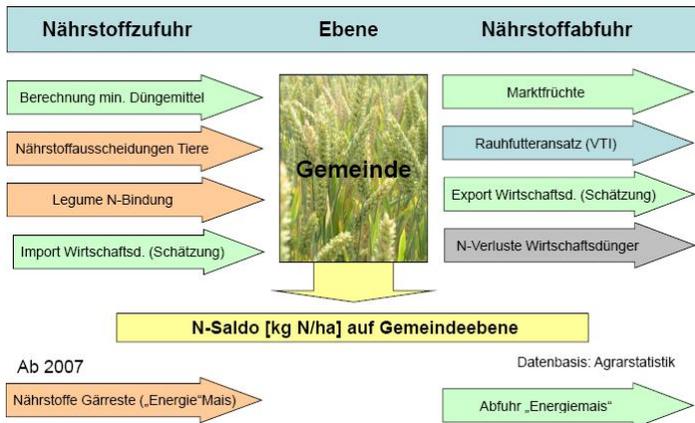


Abbildung 24: N-Bilanzüberschüsse in Niedersachsen (Höper 2011)

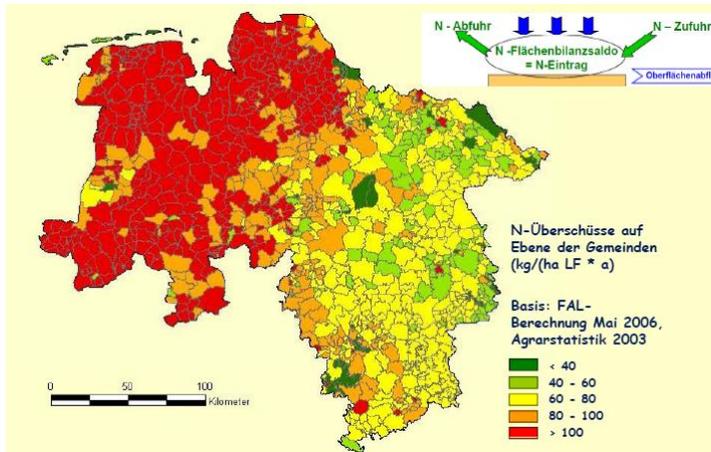
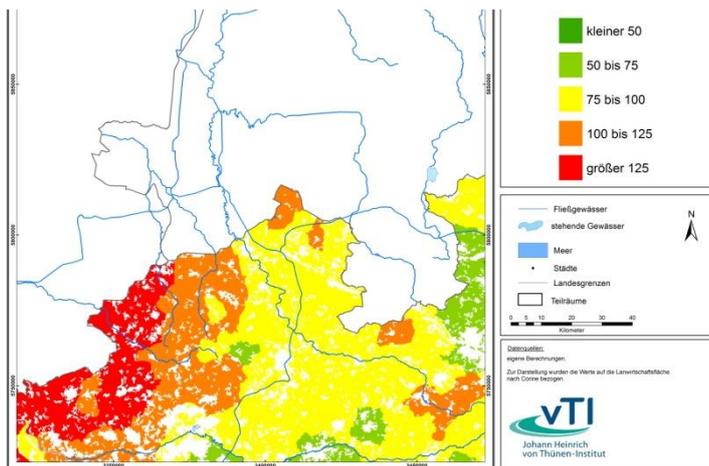


Abbildung 25: N-Bilanzüberschüsse NW in kg N/ha \* LF (vTI 2003)



höheren Stickstoffeinträgen gesucht werden, auch ist die Angabe des Stickstoffeintrags von größer 125 kg/ha in dem Fall relativ unscharf.

Beim Stickstoff ist allerdings ein gewisser Überschuss notwendig, um optimale Erträge zu erzielen. Abbildung 23 zeigt das Schema zur Berechnung der Flächenbilanzen nach Höper 2011<sup>55</sup>.

Abbildung 24 zeigt die für Niedersachsen berechneten N-Bilanzüberschüsse auf Grundlage der Agrarstatistik von 2003. Im Mittel aller Landkreise wurde ein N-Bilanz-Überschuss (ohne Berücksichtigung der atmosphärischen Einträge) von 76 Kilogramm Stickstoff pro Hektar landwirtschaftliche Nutzfläche errechnet (Höper 2011). Die Bilanzüberschüsse haben eine leicht rückläufige Tendenz. Aufgrund der hohen Viehzahlen und den damit verbundenen Mengen an Stickstoff in den Wirtschaftsdüngern wurden die höchsten N-Bilanzüberschüsse in Nordwest- und Westniedersachsen ermittelt, mit Werten bis zu 100 kg pro Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche und Jahr. Niedrige Bilanzüberschüsse von unter 60 kg wurden in Ost-Niedersachsen berechnet

Die Karte des vTI (2010) für NW (siehe Abbildung 25) zeigt für 2003 hohe N-Überschüsse im Westen. Im Vergleich mit Abbildung 22 ist bei flächenhaft hohen Nährstoffeinträgen jedoch eine graduelle Abnahme nach Osten erkennbar. Dies ist nicht auf naturräumliche Gegebenheiten wie der Feldkapazität des Bodens oder der Geochemie des Untergrundes zurückzuführen. Gründe hierfür können in den Gemeinden hoher Viehbesatzdichten und damit resultierende

<sup>55</sup> [http://www.umwelt.sachsen.de/umwelt/wasser/download/15\\_Langzeituntersuchungen\\_in\\_Niedersachsen\\_Hoepfer.pdf](http://www.umwelt.sachsen.de/umwelt/wasser/download/15_Langzeituntersuchungen_in_Niedersachsen_Hoepfer.pdf)

### 6.5.3 Recherche nach Informationen zum Gülleeintrag

Mit den von den statistischen Landesämtern übergebenen Daten der Agrarstatistik liegen gemeindebezogene Angaben zu den Tierzahlen und damit zur tierartenbezogenen Viehbesatzdichte vor. Das ist die beste derzeit verfügbare räumliche Auflösung der Daten. Nach übereinstimmender Auskunft beider Partnerinstitutionen in NW und Niedersachsen (LANUV NW und NLWKN) liegen keine behördlichen ortskonkreten Daten zum tatsächlichen und terminbezogenen Eintrag von organischem Wirtschaftsdüngern (wie Gülle), z. B. in Form eines „Güllekataster“ o. ä. vor. Es kann jedoch davon ausgegangen werden, dass in den ausgewählten Gemeinden mit sehr hoher Viehbesatzdichte ( $> 2.0 \text{ GV/ha*LF}$ ) nahezu jede verfügbare agrarisch genutzte Fläche zur Gülleverbringung genutzt wird. Zusätzlich zu den Landwirtschaftsbetrieben vor Ort findet, zumindest in Niedersachsen, z. T. auch ein Import von Gülle aus den benachbarten Niederlanden statt. Auch nicht ausgeschlossen werden kann ein „Export“ von organischem Festmist (Hühner) in entferntere Regionen, um das Problem der mangelnden Flächenverfügbarkeit für die Verbringung des organischen Wirtschaftsdüngers zu lösen.

Dennoch sind Informationen bzw. Daten zur tatsächlichen Verbringung tierartspezifischer Gülle in der Umgebung bzw. im hydraulischen Zustrom der Standorte, die für die Beprobung des oberflächennahen Grundwassers ausgewählt werden, sehr hilfreich für die möglichst exakte Auswahl von Substanzen für die Laboranalytik. Die Einholung solcher Informationen von den Betrieben selbst wurde aus zeitlichen Gründen und auch dem Datenschutz verworfen.

Daher wurden die zuständigen Bezirksstellen der Landwirtschaftskammern (LWK) in beiden Ländern mit der Bitte um Auskunft zur feldblock- bzw. schlagbezogenen Gülleverbringung kontaktiert. In NW konnte hierzu ein Kontakt genutzt werden, der vom LANUV im Zuge der Beprobung im Jahr 2008 (Hembrock-Heger et al. 2011) geknüpft wurde. Seitens der zuständigen Abteilung der Landwirtschaftskammer wurde zugesagt, flächenscharf die gewünschten Daten für die ausgewählten Standortbereiche zu ermitteln. Daher wurden für diese Gebiete die entsprechenden Lagepläne der LWK übermittelt. Es wurde deutlich herausgestellt, dass es lediglich um anonymisierte Informationen zur tierartenspezifischen Gülleverbringung und um keinerlei betriebs- oder personenbezogene Angaben geht.

In Niedersachsen besteht seitens der LWK nur innerhalb von Trinkwasserschutzgebieten die Möglichkeit, von den landwirtschaftlichen Fachberatern die gewünschten Informationen zu recherchieren. Da die ausgewählten Standorte jedoch nahezu ausnahmslos außerhalb dieser Gebiete liegen, wurden ersatzweise dem NLWKN vorliegende flächenbezogene Informationen zu den von den Betrieben gehaltenen Tierarten genutzt. Diese Daten wurden auf Grundlage der dem NLWKN gesendeten Lagepläne zu den ausgewählten Messstellen erbeten. Sie beinhalten zwar die Unschärfe, ob der Betrieb mit dem bekannten Tierartenspektrum vor Ort auf den gesuchten Flächen diese Gülle in der Vergangenheit (die Daten liegen bis 2010 vor) verbracht hat. Dennoch können die vom NLWKN übersandten Daten sehr hilfreich für die Interpretation der Befunde sein.

## 6.6 Nitratgehalte des Grundwassers

### 6.6.1 Verfügbare Informationen in Niedersachsen

Stickstoffüberschüsse - vor allem Nitrat - können in der Regel nicht im Boden gespeichert werden. Bei wassergesättigten, dränierten oder hängigen Böden kann ein Teil des Stickstoffs direkt in oberirdische Gewässer eingetragen werden. In den meisten Böden wird allerdings der Anteil des Nitrats, der nicht durch die Pflanzen aufgenommen wurde, größtenteils mit dem Sickerwasser ins Grundwasser verlagert. Auf dem Weg in das Grund- oder Oberflächenwasser kann Nitrat in sauerstoffarmen Schichten teilweise zu Luftstickstoff abgebaut werden. Aus den gemittelten

Stickstoffbilanzüberschüssen der Jahre 1999 und 2003 wurden unter Berücksichtigung von Standort- und Klimabedingungen die potenziellen Nitratkonzentrationen im Sickerwasser vom LBEG errechnet. Sie sind in Abbildung 26 dargestellt. Die Werte wurden aus den Stickstoffüberschüssen sowie dem boden-, klima- und nutzungsabhängigen Gesamtabfluss errechnet. Dabei wird auch ein Abbau des Nitrats zu Luftstickstoff im Unterboden berücksichtigt, der regional zu geringeren Nitratreinträgen in das Grundwasser führt.

Abbildung 26: Potenzielle Nitratwerte im Sickerwasser in Niedersachsen (Eisele & Schäfer 2006)

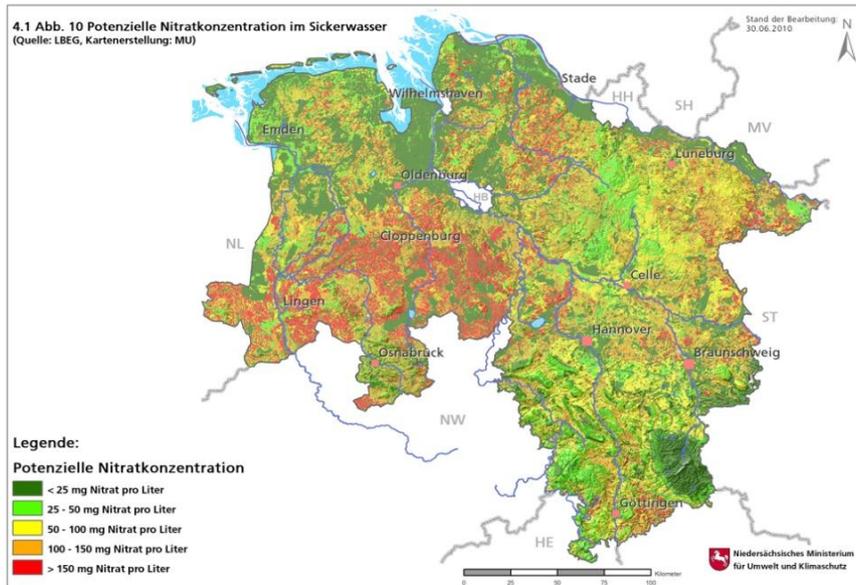
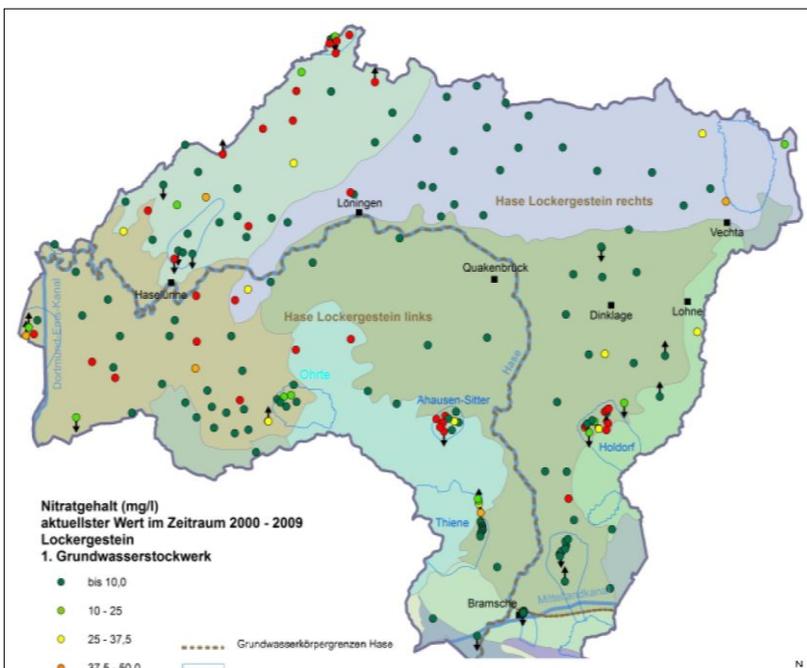


Abbildung 27: Nitratkonzentrationen (aktuellster Messwert von 2000 bis 2009) im Einzugsgebiet der Hase (Federolf et al. 2012, s. auch<sup>6</sup>)



(Kap. 8.2.4). Daten zu TAM-Funden im Grundwasser liegen dem NLWKN, mit Ausnahme der Daten zu den BDF in Dinklage (siehe Kap. 8) nicht vor.

Rein rechnerisch werden im oberflächennahen Grundwasser vor allem im Emsland, Oldenburger Münsterland und Mittelweser verbreitet potenzielle Nitratkonzentrationen deutlich über dem Grenzwert der TrinkwV (50 mg/l) Liter erreicht. Die hohen Nitratwerte sind auf hohe N-Bilanz-Überschüsse und auf ein geringes Abbaupotenzial des Bodens zurückzuführen.

Vor allem im Westen von NI liegen die Nitratwerte oft deutlich über 50 mg/l. Im Einzugsgebiet der Hase z. B. lagen von 56 von 450 probierten Messstellen darüber (Federolf et al. 2012). Dass vielerorts die nachgewiesenen Nitratgehalte deutlich geringer sind (siehe Abbildung 27) wird auf teilweise lange Fließwege und auf standortabhängige, natürliche Nitrat-Abbauprozesse (Denitrifikation) in der ungesättigten Zone und dem oberflächennahen Grundwasser zurückgeführt.

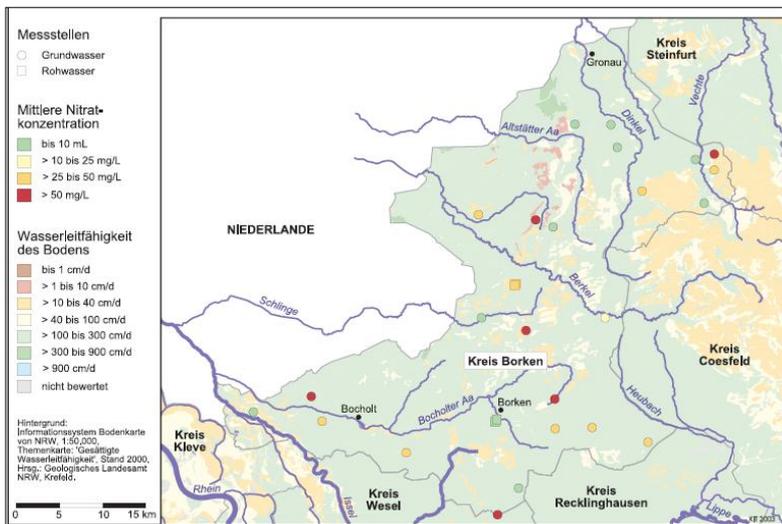
Vom NLWKN wurden zu allen in die Auswahl einbezogenen Messstellen die Nitrat- und Ammoniumwerte der vergangenen Jahre übermittelt, so dass hierzu ein optimaler Datenbestand vorlag

### 6.6.2 Verfügbare Informationen in Nordrhein-Westfalen

Auch vom LANUV wurden zu den in Frage kommenden Messstellen die gemessenen Stickstoffgehalte im Grundwasser aus den vergangenen Jahren komplett digital über die Internet-Plattform „ELWAS-IMS“<sup>56</sup> zur Verfügung gestellt. Hierüber konnten alle weiteren messstellenbezogenen Daten recherchiert werden. Zu den in den Jahren 2008 und 2009 durchgeführten Untersuchungen mit Bezug zu TAM (Hembrock-Heger et al. 2011) wurden vom LANUV die Daten des einzigen Fundes übermittelt. In Grundwasserproben der Messstelle Nordick, wurde im Dezember 2008 Sulfamethoxazol (SMX) in einer Konzentration von 0,3 µg/l nachgewiesen. Eine Wiederholungsbeprobung im November 2009 ergab eine Konzentration von 0,37 µg/l.

Seitens des LANUV wurde zuletzt im Jahr 2003 für den Zeitraum von 1997 bis 2001 eine kreisbezogene Übersicht zur Nitratbelastung des Grundwassers herausgegeben (MUNLV und LUA 2003<sup>57</sup>). Abbildung 28 zeigt exemplarisch die Nitratkonzentrationen im Kreis Borken. Die Messstellen weisen überwiegend Nitratwerte unter 50mg/l auf. Dagegen ist bei 5 der 6 stark belasteten

Abbildung 28: Nitratwerte im Kreis Borken (MUNLV & LUA 2003)



Grundwassermessstellen (> 50 mg/l) eine jeweils höhere mittlere Nitratkonzentration im Vergleich zum von Zeitraum 1993 bis 1997 festzustellen. Die höchste Konzentration wurde an der Grundwassermessstelle Wendfeld mit 148,6 mg/l (vorher 142,9 mg/l), nördlich von Stadtlohn, gemessen. Der höchste Anstieg der mittleren Nitratkonzentration liegt bei der Messstelle östlich von Borken mit 138,2 mg/l gegenüber 24,8 mg/l im vorherigen Zeitraum vor.

### 6.6.3 Verfügbare Daten für Bayern und Sachsen

Die Grundwassermessstellen Naundorf und Hartmannsdorf wurden vom LfULG Sachsen aufgrund hoher lokaler Viehbesatzdichten im direkten Messstellenumfeld ausgewählt. Seit 2002 ist Hartmannsdorf im behördlichen Messprogramm, die maximale Nitratkonzentration liegt bei 88 mg/l. Die maximalen Nitratwerte liegen in Naundorf bei 25 mg/l, bei einem Flurabstand von 32 m. Naundorf wird seit 2006 beobachtet.

Das Bayerische Landesamt für Umwelt (LfU) übermittelte die vorhandenen Informationen der sechs ausgewählten Quellfassungen von Festgesteinsgrundwasserleitern in landwirtschaftlich stark geprägten Gebieten. Die Quelle Burgmagerbein in der Gemeinde Bissingen hat einen maximal gemessenen Nitratgehalt von 158 mg/l. Die Quelle Scharnagl in Unterdumpeltshausen, Gemeinde Illmünster weist die niedrigste Konzentration mit 48 mg/l auf.

<sup>56</sup> <http://www.elwasweb.nrw.de/elwas-web/index.jsf>

<sup>57</sup> <http://www.lanuv.nrw.de/veroeffentlichungen/sondersam/nitratgrundw/nitratgrdwstart.htm>

## 7 Auswahl geeigneter Grundwassermessstellen für die Beprobung

### 7.1 Verwendete Datengrundlagen

Von den Partnerinstitutionen in Niedersachsen und NW wurden die ihnen vorliegenden Daten zu den Grundwasserbeschaffenheitsmessstellen innerhalb der sieben Landkreise mit hoher Viehbesatzdichte digital übermittelt. Ausgewählt wurden Messstellen, die entweder regelmäßig in der sog. „Güteüberwachung“ enthalten sind oder in der Vergangenheit bereits einmal beprobt wurden. Messstellen, an denen bisher ausschließlich der Grundwasserstand beobachtet worden ist, wurden nicht näher betrachtet

Folgende Daten wurden zu den Messstellen als Minimalinformationen erbeten und digital tabellarisch übermittelt (darüber hinaus wurden noch eine Vielzahl weiterer und hier nicht aufgeführter Daten zur Verfügung gestellt):

- Bezeichnung (Name) und Nummer der Messstelle,
- ortskonkrete Lageangaben (Koordinaten in definierten Bezugssystemen),
- technische Angaben zum Bauwerk (Art der Messstelle, Durchmesser, Tiefe),
- Tiefe des Filterausbaus in Meter unter Gelände,
- Betreiber der Messstelle (z.B. Land, Wasserversorger, sonstige),
- Stockwerksbezogene Daten zum Grundwasserleiter oder -horizont,
- Angaben zum Grundwasserkörper oder zur Flussgebietseinheit,
- Zweck der Messstelle (z.B. WRRL-Überwachung, Sondermessnetz)
- Informationen zum Vorhandensein eines geologischen Schichtenverzeichnisses,
- Besonderheiten, Bemerkungen usw., z.B. Zugehörigkeit zu einer Bodendauerbeobachtungsfläche (NLfB 2007).

Nach der Homogenisierung und Integration der Daten in das GIS wurden Präselektionsschritte zur Einengung des Messstellenpools durchgeführt (siehe Kap. 7.3).

Zusätzlich wurden Daten des „EUA“-Messnetzes des Umweltbundesamtes in die Auswertungen einbezogen. Bei diesen Messstellen wurden dem UBA regelmäßig Beschaffenheitsdaten zu definierten Grundwasserparametern (ohne TAM) digital übermittelt. Dies geschieht im Zuge der Berichterstattung an die Europäische Umweltagentur. Das bundesweit etwa 800 Messstellen umfassende Messnetz ermöglicht es, flächenrepräsentative Aussagen zum Zustand des Grundwassers in Deutschland zu treffen. Innerhalb des Zielgebietes in den sieben Landkreisen liegen 29 Messstellen, 14 davon in NW, 15 in Niedersachsen. Zu diesen liegt ein sehr guter Informationsstand zu allen o. g. Daten vor.

### 7.2 Recherche von Grundwassermessstellen im Zielgebiet hoher Viehbesatzdichte

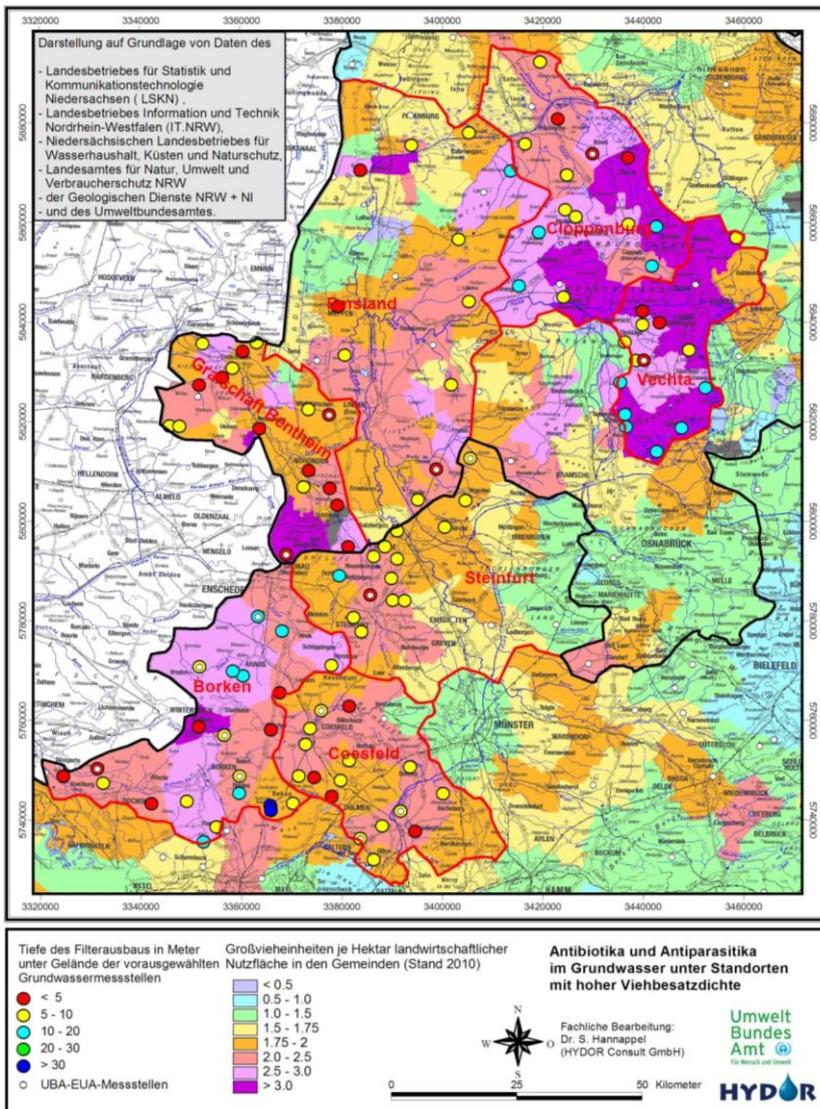
#### 7.2.1 Stammdaten der Grundwassermessstellen des NLWKN und des LANUV

Zu den in Kap. 7.1 aufgeführten Stammdaten wurden von den Partnerinstitutionen zu über 1500 Messstellen (die Mehrzahl davon in Niedersachsen) Informationen übermittelt. Mit diesen Daten wurde eine erste Präselektion von Messstellen nach folgenden Prämissen vorgenommen:

- Lage innerhalb einer Gemeinde mit einer hohen Viehbesatzdichte ( $> 1.75 \text{ GV/ha*LF}$ ),

- oberflächennaher Filterausbau der Messstelle (< 50 Meter unter Geländeoberkante),
- die Messstelle sollte Bestandteil der behördlichen Grundwasserüberwachung sein und
- die mittleren Stickstoffgehalte (Nitrat, Ammonium) an der Messstelle sollten in den vergangenen Jahren deutlich erhöht sein (> 50 mg/l NO<sub>3</sub> bzw. > 0.5 mg/l NH<sub>4</sub>)

Abbildung 29: Lage der 111 Grundwassermessstellen in Nordrhein-Westfalen und Niedersachsen nach einer ersten Präselektion



Die Karte in Abbildung 29 zeigt die mit diesen Kriterien ausgewählten 111 Messstellen innerhalb der mit Farbflächen unterschiedenen Gemeinden mit hohen Viehbesatzdichten, 57 davon liegen in Niedersachsen, 54 in NW.

Die Farben der Messstellensymbole enthalten die Informationen zur mittleren Tiefe des Filterausbaus (zwischen Filterober- und -unterkante). 15 davon sind Bestandteil des EUA-Messnetzes, die übrigen EUA-Messstellen sind ebenfalls in der Karte verzeichnet (weiße Kreise).

In NW konnten zumeist sehr oberflächennah ausgebaute Gütemessstellen ausgewählt werden (< 10 Meter unter Gelände, rote und gelbe Kreise), diese liegen zumeist in den Kreisen Borken und Coesfeld sowie im westlichen Bereich des Kreises Steinfurt mit jeweils einer guten Flächenabdeckung. Nur sehr wenige Messstellen sind tiefer ausgebaut, diese wurden im Zuge der weiteren Präselektion ei-

ner kritischen Prüfung unterzogen.

In Niedersachsen ist ebenfalls eine gute Flächenrepräsentanz mit den vorausgewählten Messstellen gegeben, insbesondere in den Gemeinden mit einer sehr hohen Viehbesatzdichte (> 2.0 GV/ha\*LF). Die Tiefe des Filterausbaus variiert regional. In der Grafschaft Bentheim konnten überwiegend sehr flach ausgebaute Messstellen ausgewählt werden, in den Kreisen Vechta und Cloppenburg mit den sehr hohen Viehbesatzdichten wurden darüber hinaus einige Messstellen berücksichtigt, die tiefer als 10 Meter unter Gelände ausgebaut sind. Das hat meist natürliche Ursachen, da auf den Geeststandorten der obere Grundwasserleiter erst in der Tiefenlage (z. T. unter bindiger Bedeckung) ausgebildet ist bzw. die Flurabstände entsprechend hoch liegen. Zu den 111 Messstellen wurden anschließend von den Partnerinstitutionen für die endgültige Auswahl die in den Kap. 7.2.2 bis 7.2.4 aufgeführten Daten angefordert.

### 7.2.2 Bohrungsbezogene Daten in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen

Große Bedeutung wurde der Berücksichtigung geologischer Schichtenverzeichnisse der Messstellen beigemessen, da diese Dokumente wichtige Informationen zum standortkonkreten Aufbau des Untergrundes und damit dem potenziellen Versickerungsverhalten des Wassers sowie von Wechselwirkungsprozessen der im Sickerwasser gelösten Stoffe mit der Feststoffmatrix beinhalten. Bei einem rein sandigen Substrat der Versickerungszone unterhalb des Bodens bis zur Grundwasseroberfläche z. B. muss von deutlich kürzeren Verlagerungszeiten eingetragener Stoffe und damit geringen Möglichkeiten des mikrobiellen Abbaus gelöster organischer Substanzen ausgegangen werden, als bei einer ungesättigten Zone mit höheren Anteilen bindiger Zwischenlagen. In solchen Fällen kann es auch zu lateralen Verfrachtungen von den mit dem Sickerwasser mitgeführten Stoffen im Zusammenhang mit der sog. „schnellen Abflusskomponente“ (Interflow) in Richtung des nächsten Vorfluters kommen, ohne dass das Grundwasser, also die gesättigte Zone, durch die vertikale Versickerung erreicht wird.

Diese Informationen können nur den Original-Bohrungs-Schichtenverzeichnissen entnommen werden. Die Partnerinstitutionen wurden daher gebeten diese Dokumente zu den vorausgewählten Messstellen zur Verfügung zu stellen. Zu allen Messstellen wurden daraufhin die Schichtenverzeichnisse der für die Beprobung ausgewählten Grundwassermessstellen in Nordrhein-Westfalen, Niedersachsen und Sachsen übergeben. In Bayern wurden ausschließlich Quelfassungen ausgewählt, zu denen es keine Schichtenverzeichnisse gibt.

Beispielhaft zeigt Abbildung 30 auf der linken Seite das geologische Schichtenverzeichnis und rechts den Ausbauplan der Grundwassermessstelle Itterbeck I. Erkennbar ist eine etwa 5 Meter mächtige, schluffige und stark mergelige Schicht oberhalb des Feinsandes, in dem die Messstelle mit ihrem Filter ausgebaut ist. Hier wird das Grundwasser entnommen. Zu erwarten ist hier eine starke Verzögerung der Sickerwasserverlagerung bei gleichzeitig lateralem Abfluss des Sickerwassers über der Schluffschicht. Da zudem die Beschaffenheitsdaten der Messstelle in den letzten Jahren Stickstofffreiheit zeigte, wurde die Messstelle nicht ausgewählt.

Abbildung 30: Schichtenverzeichnis der Messstelle Itterbeck I in Niedersachsen (zur Verfügung gestellt vom NLWKN)

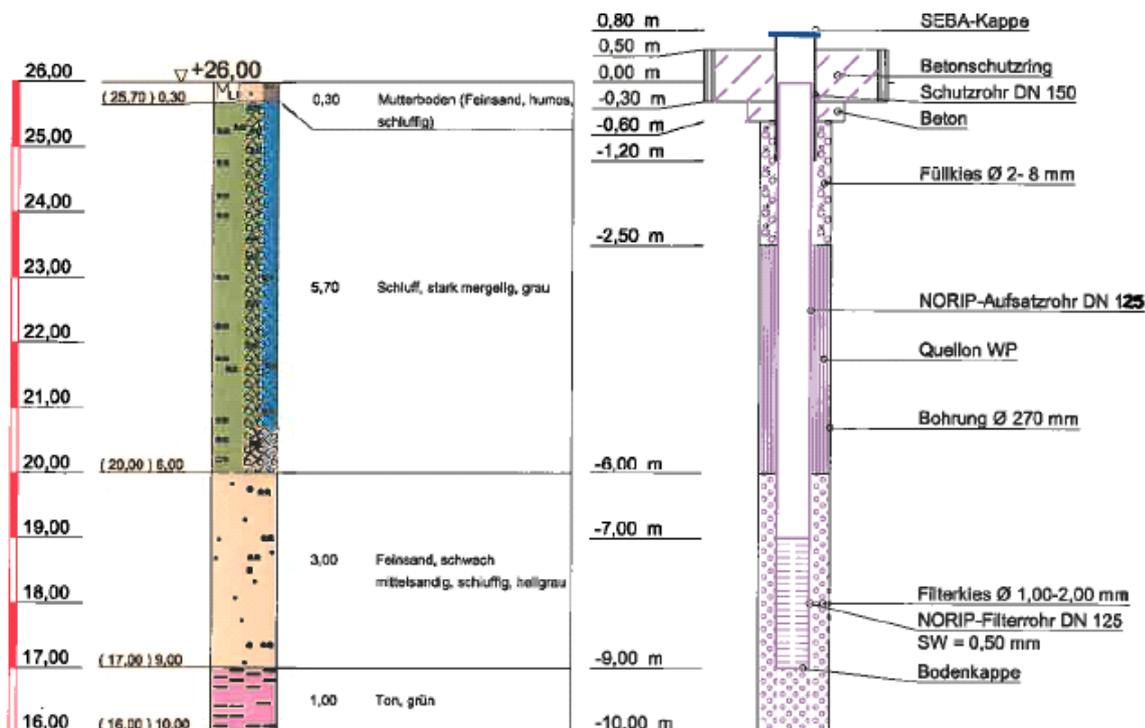


Abbildung 31: Foto der Bodendauerbeobachtungsfläche Dinklage (unten) und Schichtenverzeichnis der dazugehörigen Grundwassermessstelle GWM 033-L (oben)

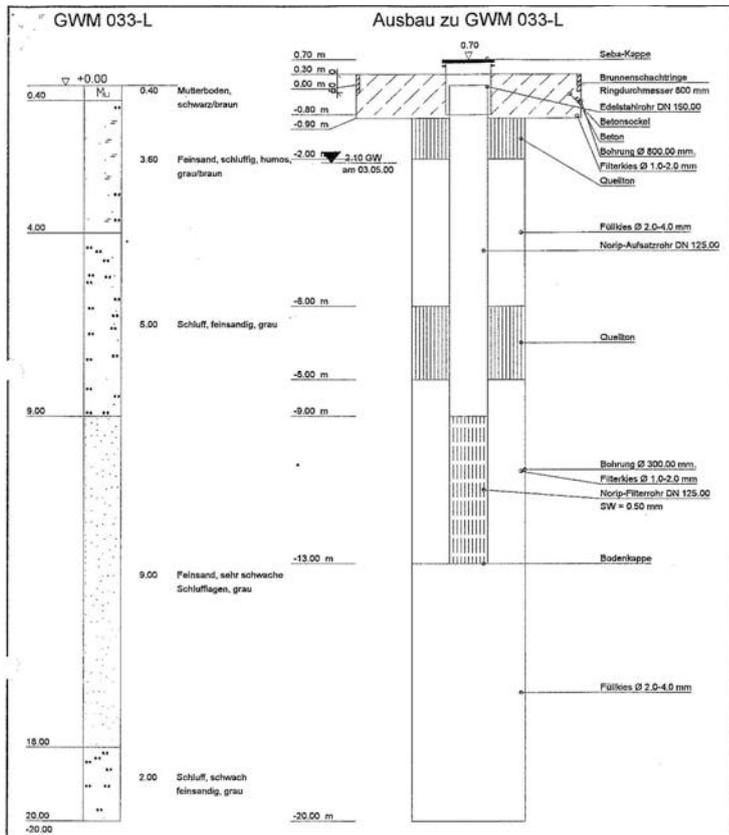


Abbildung 31 zeigt das Schichtenverzeichnis und ein Foto der Grundwassermessstelle des NLWKN an der Boden-Dauerbeobachtungsfläche (BDF) in Dinklage. An diesem Standort wurde seit vielen Jahren die Beschaffenheit des oberflächennahen Grundwassers regelmäßig untersucht und Sonderbeprobungen auf Tierarzneimittel seitens des NLWKN und des LBEG durchgeführt (Höper 2011).

Die Messstelle ist unter einer 5 m mächtigen, feinsandigen Schluff-Schicht ausgebaut, die wiederum von einer etwa 4 Meter mächtigen feinsandigen Schicht überlagert wird. Der Ruhewasserspiegel des gespannten Grundwasserleiters befindet sich etwa 2 Meter unterhalb der Geländeoberkante, oberhalb der Schluffschicht. Die feinsandige Schicht selber ist Teil der ungesättigten Zone, hier kann sich nur nach starken Niederschlägen temporär Sickerwasser bilden und mit dem Interflow abtransportiert werden.

Das an der Messstelle beprobte Grundwasser war im Durchschnitt der letzten 10 Jahre extrem stark mit Ammonium belastet (8 mg/l). Die Messstelle liegt zudem in einer Gemeinde mit einer sehr hohen Viehbesatzdichte (2,9 GV/ha LF) und wurde daher für die Beprobung ausgewählt. Zu der BDF in Niedersachsen liegen außerdem sehr gute Informationen zum

Umfeld bzw. zur landwirtschaftlichen Nutzung vor.

Die von Höper (2011) an der BDF dokumentierten Konzentrationen des TAM Sulfadimidin (siehe Abbildung 32), wurden aus Proben gemessen, die an Saugsonden in 1,4 Meter Tiefe gewonnen wurden. Diese Proben entstammen nicht dem Grundwasser, sondern dem darüber liegenden Sickerwasser. An der zugleich mehrfach beprobten Grundwassermessstelle des NLWKN wurden bisher keine TAM bei einer Nachweisgrenze von 0,05 µg/l nachgewiesen.

Abbildung 32: Sulfadimidin-Konzentrationen an der BDF in Dinklage in 1,4 m Tiefe (links) sowie Einbau der 4 Saugsonden in den Boden (rechts, Höper 2011)

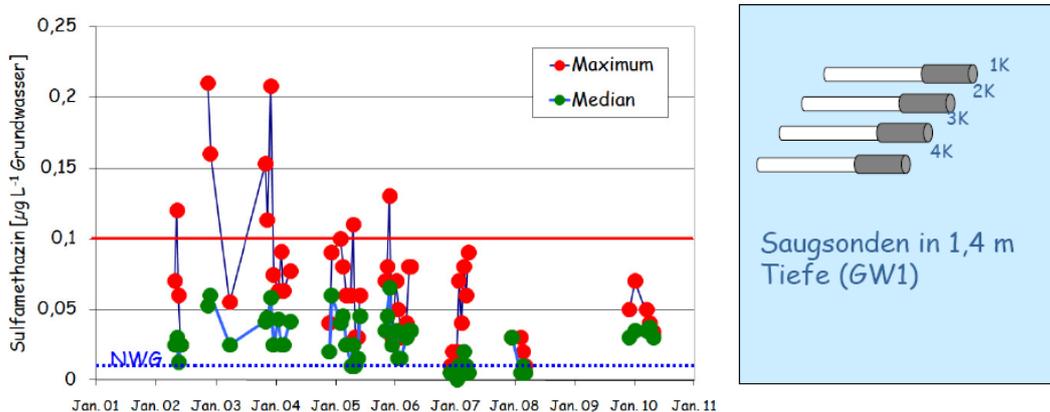


Abbildung 33 und Abbildung 34 zeigen exemplarisch die Schichtenverzeichnisse von zwei weiteren Messstellen des NLWKN, die jeweils aufgrund ihres ausschließlich sandigen Profils und der Eignung aufgrund der übrigen Kriterien für die Beprobung ausgewählt wurden. Die Filterausbauten befinden sich hier alle sehr oberflächennah.

Abbildung 33: Schichtenverzeichnis der Messstelle Markhausen BDF (zur Verfügung gestellt vom NLWKN)

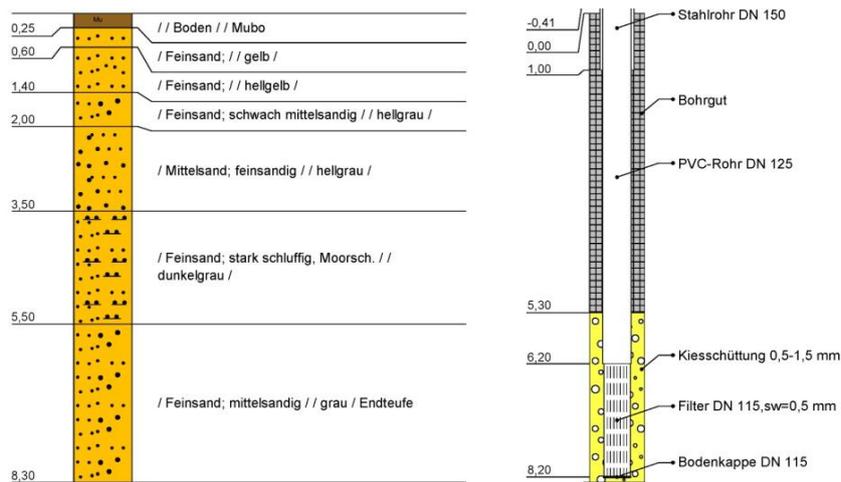


Abbildung 34: Schichtenverzeichnis der Messstelle Dwertge (zur Verfügung gestellt vom NLWKN)

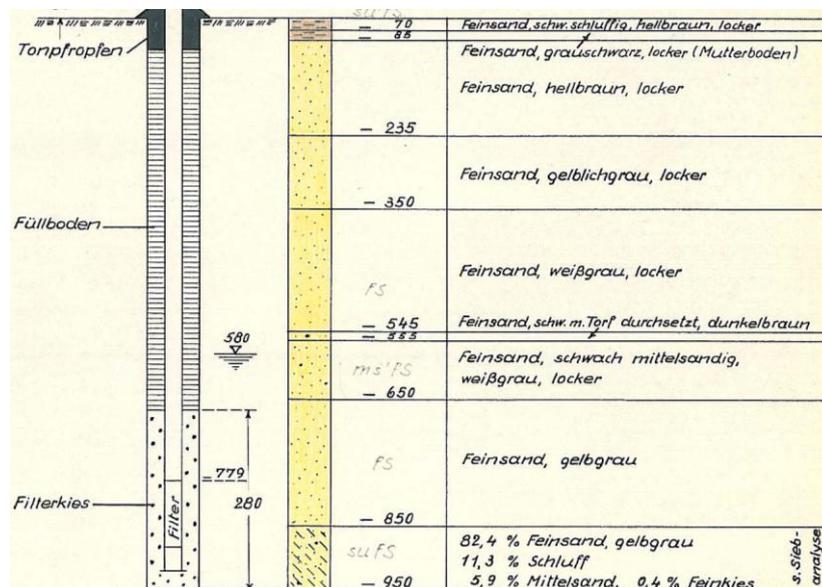


Abbildung 35 zeigt das Schichtenverzeichnis der Messstelle des LANUV NW in Nordick im Kreis Borken, die in einer Gemeinde mit einer Viehbesatzdichte von 2,3 GV/ha\*LF liegt. Hier wurden durch das LANUV 2008 und 2009 Untersuchungen mit positiven Befunden auf TAM durchgeführt (siehe Kap. 9.5.1). Der Filterausbau der Messstelle befindet sich in den mittelsandigen Schichten bis 10 Meter Tiefe. Oberhalb des Filters dokumentiert das Schichtenverzeichnis ausschließlich sandig-kiesige Schichten, zudem ist sie sehr stark mit Stickstoff belastet, so dass die Messstelle erneut und in Einklang mit den worst-case-Kriterien für die Beprobung ausgewählt wurde.

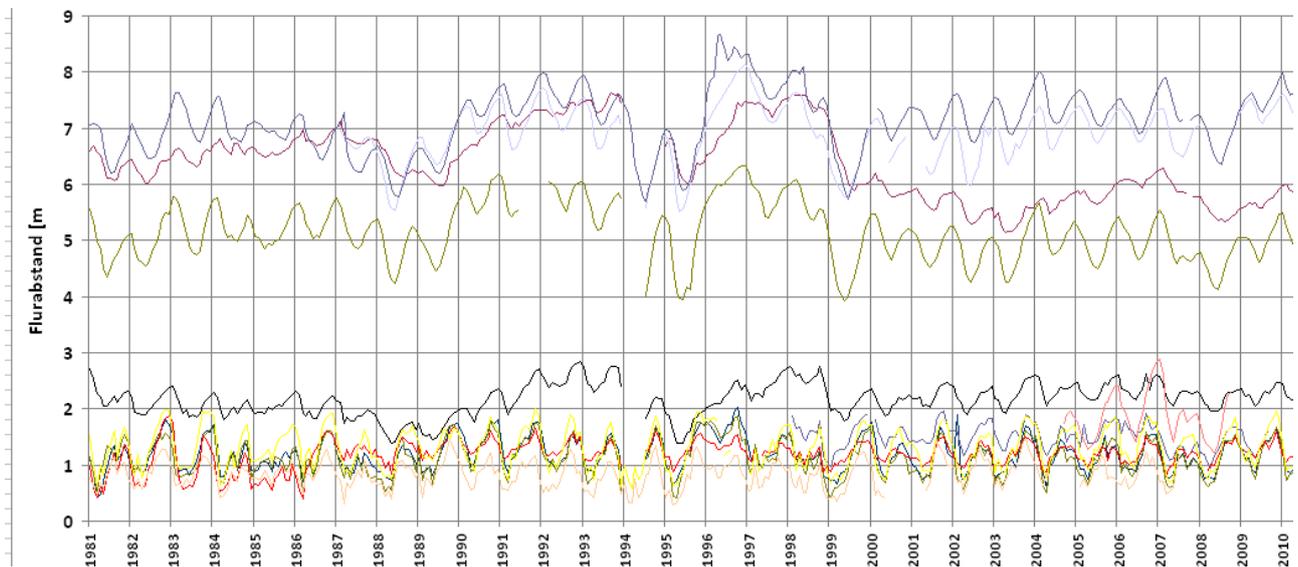
Abbildung 35: Schichtenverzeichnis der für die Beprobung ausgewählten Messstelle Nordick (GD NRW 2012)

Schichtdaten - 2566/ 5747/ 5 - Bnum: 41001 Vt		
Tiefe	Beschreibung	Stratigraphie
- 0.30m	Mittelsand, Feinsand, (mittel) humos	Holozän
- 1.90m	Mittelsand, Feinsand, hellgrau	Nicht eingestuft
- 2.90m	Mittelsand, Feinsand, hellgrau	Nicht eingestuft
- 5.00m	Mittelsand, Feinsand, grau, braun Lagen aus Kies	Nicht eingestuft
- 6.00m	Mittelsand, Feinsand, rotbraun, Bemerkung: besonders Quarze	Nicht eingestuft
- 6.50m	Feinkies, Mittelsand, schwach feinsandig, schwach schluffig, Bemerkung: Kiese (Fliege) fast durchweg Quarze	Nicht eingestuft
- 10.00m	Mittelsand, Feinsand, rotbraun Lagen aus Feinkies	Nicht eingestuft
- 11.20m	Mittelsand, Feinsand, rotbraun Lagen aus Grobkies	Nicht eingestuft
- 20.00m	Mittelsand, Feinsand, rotbraun wechsellaugerd mit Feinsand, schluffig, schwach feinkiesig, schwarz	Kreide

### 7.2.3 Terminbezogene Grundwasserstände der Messstellen

Zusätzlich zu den geologischen Schichtenverzeichnissen mit einem nur einmaligen Wasserstand zum Zeitpunkt der Bohrung geben die an den Messstellen in der Vergangenheit gemessenen Abstände Auskunft über das zeitliche Bewegungsverhalten des Grundwassers. Diese Daten wurden ebenfalls von den Landesämtern angefordert, um Informationen darüber zu erlangen, wie lange die vertikale Sickerstrecke des Wassers von der Erdoberfläche her ist, woraus Schlussfolgerungen zu den Verweilzeiten des Sickerwassers in der ungesättigten Zone gezogen werden können. Abbildung 36 zeigt für 12 vorausgewählte Messstellen in NW die zeitliche Entwicklung der Grundwasserstände in Form der (umgerechneten) Flurabstände der vergangenen 30 Jahre.

Abbildung 36: Flurabstände des Grundwassers von 1981 bis 2010 von 12 vorausgewählten Messstellen in NW



Bei 9 der 12 Messstellen ist über den gesamten Zeitraum hinweg ein oberflächennaher Flurabstand des Grundwassers von etwa 1 bis 2 Meter unter Gelände erkennbar, es handelt sich durchweg um eine ungespannte Grundwasseroberfläche innerhalb von sandigen Bildungen. Der Ganglinienverlauf zeigt das für solche Lagerungsbedingungen typische Schwankungsverhalten des Grundwassers, mit Amplituden von zumeist 1,0 bis 1,5 Meter und saisonale Einflüsse mit erhöhten Flurabständen im Sommer- bzw. erniedrigten Flurabständen im Winterhalbjahr. Langfristig wirksame zeitliche Trends zeigen keine dieser Messstellen. Die Aufenthaltszeiten des Sickerwassers in der ungesättigten Zone liegen bei diesen Messstellen, grob abgeschätzt nach der DIN 19732 (Hannappel et al. 2011), vermutlich bei nur einigen Monaten bis zu einem Jahr.

Bei den 3 Messstellen mit tieferen Flurabständen liegen die Schwankungsamplituden etwas höher, eindeutige zeitliche Trends sind aber auch hier nicht erkennbar. Diese Messstellen führen zumeist auch ungespanntes Grundwasser mit natürlich erhöhten Flurabständen, bei der Messstelle in Erle z. B. (lilafarbene Linie) ist der Filterausbau in 13 Meter Tiefe in einer pleistozänen Hauptterrasse ausgebaut, in der die Flurabstände zwischen 5,5 und 7,5 m schwanken. Hier liegen die Verweilzeiten des Sickerwassers sicher bei mehreren Jahren. Vom NLWKN wurden die Daten zu den Wasserständen der vorausgewählten Messstellen ebenfalls digital übergeben.

#### 7.2.4 Terminbezogene Beschaffenheitsdaten der Messstellen

Beide Landesämter wurden gebeten, zu den vorausgewählten Messstellen Daten zur chemischen Analytik zu übergeben. In NW können diese Daten zu den Gütemessstellen über das ELWAS IMS-Portal<sup>58</sup> online bezogen werden, vom NLWKN wurden sie digital tabellarisch übergeben. Diese Daten geben wertvolle Informationen zur hydrogeochemischen Charakteristik der Messstellen. Zur Interpretation der TAM-Analytik wurden sie als Randbedingungen herangezogen. Mit den Hauptinhaltsstoffen des Grundwassers (Kationen und Anionen) lassen sich z. B. Schlussfolgerungen zur Genese und/oder anthropogenen Beeinflussung der Grundwässer ableiten, die ggf. auch außerhalb der diffus wirksamen landwirtschaftlichen Beeinträchtigung liegen kann.

Für die Auswahl der Messstellen für die Beprobungen 2012 und 2013 wurden zunächst primär die Stickstoff-Konzentrationen verwendet. Die folgenden Abbildungen zeigen dazu einige Beispiele. Abbildung 37 dokumentiert für 12 Messstellen in NW die Nitrat- und Abbildung 38 für die gleichen Messstellen die Ammonium-Konzentrationen der vergangenen Jahre.

Mit Ausnahme von drei Messstellen zeigen diese stark bis sehr stark erhöhte Nitratgehalte, die Mittelwerte liegen zwischen 45 mg/l und 230 mg/l. Bei einigen Messstellen ist auch ein ansteigender Trend der Konzentrationen erkennbar. Auffällig ist, dass die Konzentrationen der zumeist zweimal jährlich beprobten Messstellen stark schwanken. Das ist durchaus typisch für den Parameter Nitrat, dessen Lösungs- und Abbaubedingungen von dem Redoxpotential abhängig sind. Bei niedrigen bzw. erniedrigten Konzentrationen kann zudem nicht automatisch auf einen fehlenden oder zurückgehenden Stickstoffeintrag geschlossen werden, da die Denitrifikation zu einem Abbau der Nitrate oder die Nitrifikation zu einem Umbau zu Ammonium geführt haben kann (Eschenbach 2013). Anhand der Abbildung 38 ist erkennbar, dass die 3 Messstellen mit den niedrigen Nitrat- diejenigen mit den hohen Ammoniumkonzentrationen sind. Diese führen also reduziertes Grundwasser mit ebenfalls hohem Stickstoffpotential, das als Indikator für den Eintrag von organischem Wirtschaftsdünger und damit auch potenziellem TAM-Eintrag gewertet wird. Die Abbildung 39 dokumentiert ergänzend dazu für die beiden Messstellen in Nordick und Flamschen die Gegenüberstellung der beiden N-Komponenten.

---

<sup>58</sup> <http://www.elwasweb.NW.de/elwas-web/index.jsf>

Abbildung 37: Nitratwerte des Grundwassers von 2000 bis 2011 von 12 ausgewählten Messstellen in NW

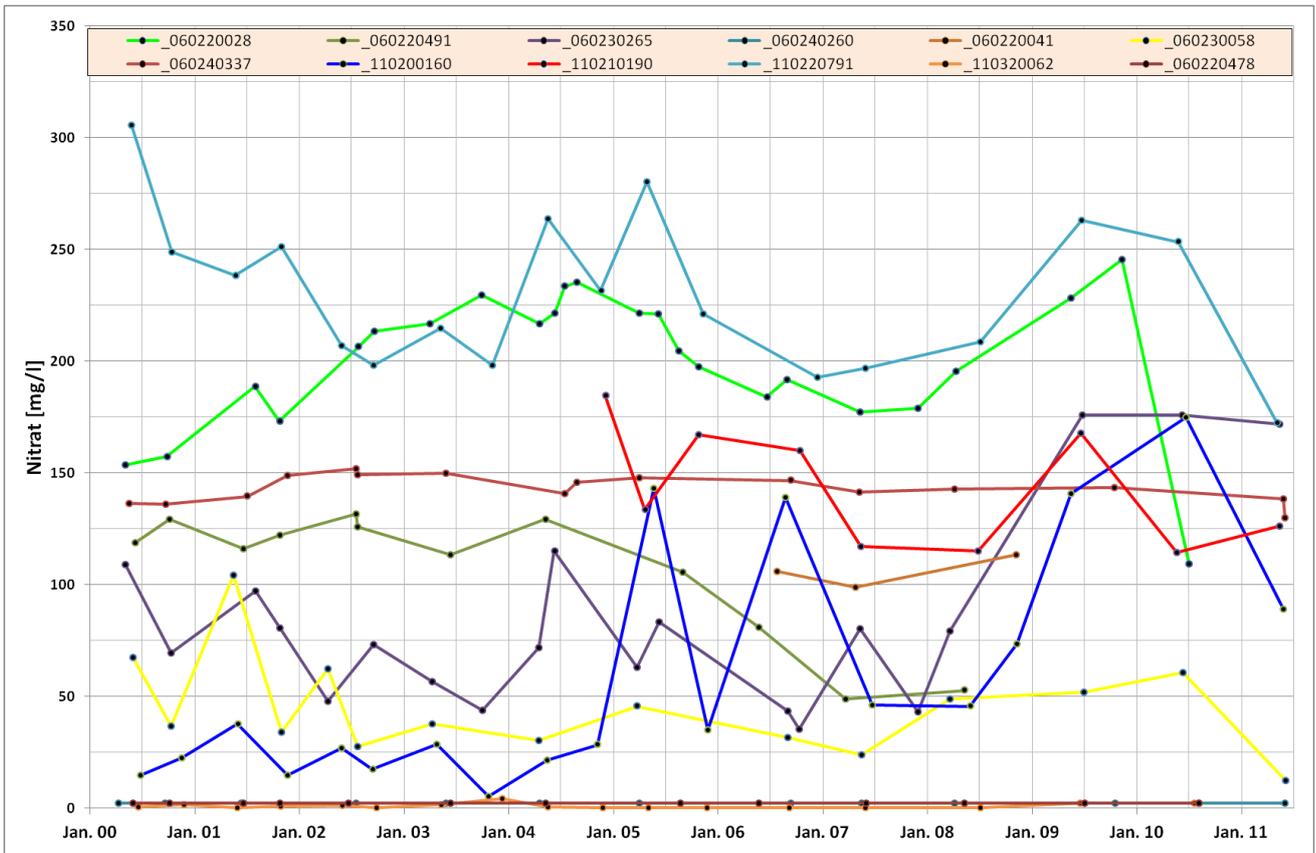


Abbildung 38: Ammoniumwerte des Grundwassers von 2000 bis 2011 von 12 ausgewählten Messstellen in NW

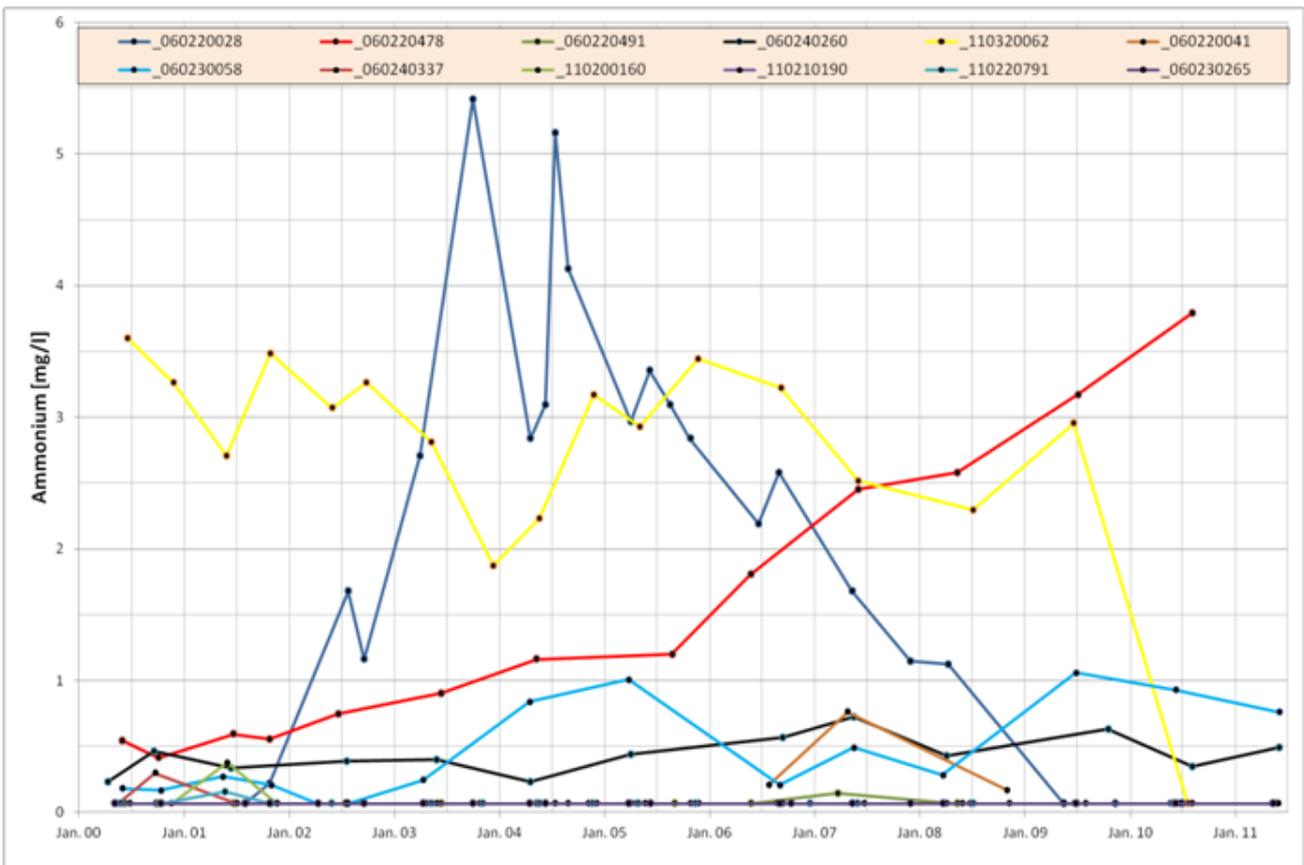


Abbildung 39: Nitrat- und Ammoniumwerte von zwei ausgewählten Messstellen in NW



In Nordick handelt es sich um ein noch sehr junges Grundwasser, das wechselnden Redoxbedingungen in der ungesättigten und gesättigten Zone ausgesetzt sein kann. Das ist anhand der temporär gleichzeitig hohen Nitrat- und Ammonium-Werte erkennbar (Zeitraum 2003 bis 2005). In Flamschen dagegen liegen oxidierte Zustände mit extrem hohen Nitratwerten vor.

### 7.3 Auswahl geeigneter Messstellen für die Beprobung

Auf Grundlage der zur Verfügung stehenden Daten und unter Einbeziehung der Expertise der regionalen Bearbeiter in den jeweiligen Dienststellen der Landesämter bzw. -betriebe wurde die endgültige Auswahl der insgesamt 42 Grundwassermessstellen und sechs Quellfassungen in den vier Ländern für die Beprobung in den Jahren 2012 und 2013 und Analytik auf TAM vorgenommen.

Folgende Prämissen wurden bei der Auswahl angewendet:

- die Messstelle liegt innerhalb einer Gemeinde mit einer hohen bis sehr hohen Viehbesatzdichte ( $>1.75 \text{ GW/ha*LF}$ ; Ausnahme: Sachsen mit lokal hohen Viehbesatzdichten im Umreis der Messstellen))
- keine der Messstellen liegt in einem Trinkwasserschutzgebiet,
- die bisher bekannten Stickstoffgehalte der Messstellen sind hoch bis sehr hoch (bei Nitrat und/oder Ammonium  $>$  Grenzwert der TrinkwV),
- im abgeschätzten hydraulischen Zustromgebiet der Messstelle (bis zu 500 m im Grundwasseranstrom) besteht landwirtschaftliche Nutzung auf Acker- oder Grünlandflächen,
- der Filterausbau der Messstellen ist im oberen Grundwasserleiter bei möglichst geringen Flurabständen positioniert,
- das geologische Schichtenverzeichnis der Bohrung ist bekannt, zeigt überwiegend sandige Substrate ohne mächtige bindige Deckschichten und damit eine geringe Schutzfunktion der Deckschichten und geringe Verweilzeiten des Sickerwassers an,
- das lokale Expertenwissen zu der Messstelle (Umfelderfahrung) empfiehlt den Standort als potenziell geeignet für den TAM-Eintrag durch Gülle.

In NW wurden von den 20 Messstellen, die bereits 2008 und 2009 untersucht worden waren, acht Messstellen erneut ausgewählt, u. a. die Messstelle mit den positiven Befunden in Nordick. Zu sieben der 20 Messstellen liegen keine Schichtenverzeichnisse vor, die HÜK 200 zeigt jedoch hier zumeist keine bindigen Deckschichten an. In Niedersachsen wurden von den 20 Standorten zwei an Bodendauerbeobachtungsflächen berücksichtigt (Dinklage und Markhausen), zu denen im NLWKN umfangreiche Kenntnisse zum Umfeld und zur landwirtschaftlichen Nutzung vorliegen. Schichtenverzeichnisse wurden vom NLWKN zu allen Messstellen übermittelt.

Die Karte in Abbildung 40 zeigt die Standorte der ausgewählten 40 Messstellen innerhalb der sieben Landkreise Niedersachsens und Nordrhein-Westfalens. In Kap. 8.4 werden die wichtigsten Stammdatenparameter der ausgewählten Messstellen dokumentiert und kurz beschrieben.

Für die Quellen und Grundwassermessstellen in dem bayerischen und sächsischen Untersuchungsgebiet galten die gleichen Auswahlkriterien. Durch die signifikant anderen Versickerungspotentiale bzw. Lagerungsbedingungen der Grundwassermessstellen im kristallinen Festgestein in Sachsen und dem oberflächennahen Grundwasser aus Quellfassungen der Festgesteinsgrundwasserleiter in Bayern konnte die regionale Aussagekraft der Daten deutlich erhöht werden.

## 7.4 Relevante Stammdaten der ausgewählten Messstellen

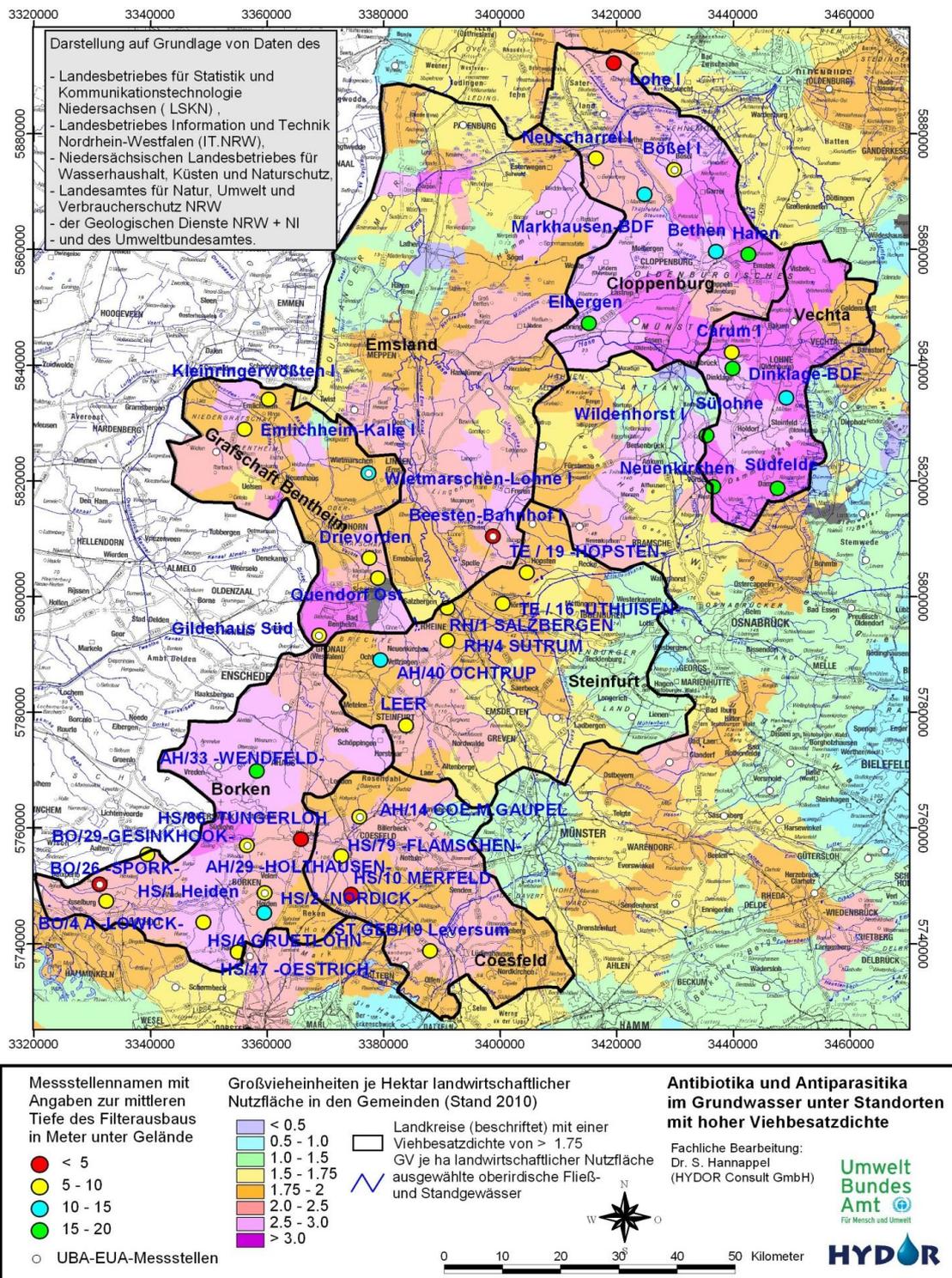
Die Tabelle 22 dokumentiert für die 40 in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen ausgewählten Messstellen die als relevant eingestuften Stammdatenparameter zusammen mit den jeweiligen Mittelwerten (in der letzten Zeile). Folgende Erläuterungen seien dazu gegeben:

- Die Filterlagen der Messstellen liegen im Durchschnitt bei 6 bis 11 Meter unter Gelände; bei der am tiefsten ausgebauten Messstelle (Gesinkhook in NW, hier ist allerdings die Filteroberkante nicht bekannt) liegen die mittleren Nitratwerte dennoch bei 76 mg/l und zeigen damit auch in dieser Tiefe noch die deutliche anthropogene Beeinflussung durch den Wirtschaftsdüngereintrag an;
- Die Flurabstände liegen im Mittel bei 2,7 Meter unter Gelände und lassen damit überwiegend nur sehr geringe Verweilzeiten des Sickerwassers (einige Monate bis wenige Jahre) erwarten, was als günstig für den worst-case-Ansatz bewertet wird (siehe auch Kap. 7.6);

Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte

- Bei 32 der 40 Messstellen liegen zumeist stark erhöhte Nitratgehalte mit einem Mittelwert von 90 mg/l vor; bei den übrigen 11 trifft das gleiche auf Ammonium mit einem Mittelwert von 2.8 mg/l zu. Alle Messstellen sind also deutlich beeinflusst durch Stickstoff-Einträge;

Abbildung 40: Regionale Verteilung der 40 ausgewählten Messstellen in Niedersachsen und NW



- Bei den 33 Messstellen, zu denen Schichtenverzeichnisse vorliegen, ist der Untergrund zumeist rollig mit unterschiedlichen Sandfraktionen ausgebildet. Bindige Lagen kommen nur sehr untergeordnet und geringmächtig vor. Bei einer Messstelle in NW gibt es gesi-

cherte Kenntnisse dazu, dass der Filterausbau in klüftigen, kreidezeitlichen Festgesteinen realisiert ist (Sutrum); bei drei weiteren (Östrich, Holthusen, Gaupel) ist der Festgesteins-Grundwasserleiter von Sanden überlagert;

- Bei 39 der 40 Messstellen liegt im hydraulischen Zustromgebiet der Standorte ausschließlich Acker- bzw. Acker-/Grünlandnutzung vor, bei der verbleibenden Messstelle Grünlandnutzung (Wiese). Waldstandorte wurden grundsätzlich nicht verwendet;
- Weitergehende Informationen bzw. Daten zum (möglichst) tierartenspezifischen Eintrag von Gülle auf die Feldblöcke bzw. Schläge im Anstrom wurden bei den Landwirtschaftskammern mit Lieferung der ortskonkreten Lagepläne übersendet;
- Die Grundwasserneubildungsrate liegt am Standort der ausgewählten Messstellen im Durchschnitt bei 175 mm/a, das ist fast der bundesweite Durchschnitt, die Spannweiten reichen von 40 bis 436 mm/a und variieren damit sehr deutlich;
- Die gemeindebezogene Viehbesatzdichte liegt im Durchschnitt bei 2,45 GV/ha\*LF und damit etwa 2,5fach so hoch wie im Bundesdurchschnitt. Die Spannweite reicht von 1,76 bis 3,42 GV/ha\*LF;
- Die letzten drei Spalten der Tabelle 22 beinhalten tierartenbezogene Daten zur Anzahl der Tiere pro Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche in den betroffenen Gemeinden. Dies sind relative Angaben, die im Vergleich zu den Mittelwerten (Rinder: 1.6/ha, Schweine: 11.4/ha, Hühner: 56.54/ha) Hinweise auf die Tierartenkonzentrationen an den Messstellenstandorten und damit ggf. auf das zu erwartende Güllespektrum geben können;
- Informationen zum Grundwasserschutz werden aus den vorhandenen Daten zum Überdeckungsschutz entnommen und liegen nur für Niedersachsen vor;

Tabelle 23 und Tabelle 24 zeigen die Daten der Messstellen in Sachsen und Bayern

- Für die zwei sächsischen Messstellen liegen die geologischen Schichtenverzeichnisse vor;
- Der Filterausbau der sächsischen Grundwassermessstelle Naundorf liegt bei 32 m unter Geländeoberkante. Die Messstelle Hartmannsdorf wurde bei 12 m unter GOK verfiltert;
- Grundwasser wurde bei 32 m Flurabstand in Naundorf angetroffen. Der Grundwasserleiter ist mit stark durchlässigen Sedimenten überlagert. Trotz langer Versickerungsstrecke wurde im Grundwasser 25 mg/l Nitrat gemessen;
- Hartmannsdorf weist einen Flurabstand von 8,67 m auf. Das Grundwasser wird von einer Lösschicht überdeckt. Der Nitratgehalt liegt bei 88 mg/l, trotz bindiger Überdeckung;
- Die Grundwassermessstellen befinden sich in unmittelbarer Nähe zu Viehzuchtanlagen (Rinderstall in Naundorf und Schweinezuchtanlage in Hartmannsdorf). Die gemeindlichen Viehbesatzdichten sind dem LfULG zu den beiden Standorten nicht bekannt;
- Die Grundwasserneubildungsraten liegen im sächsischen und bayerischen Untersuchungsgebiet bei 100 bis 250 mm/a;
- Die sechs ausgewählten Quellfassungen der Festgesteinsgrundwasserleiter in Bayern liegen in unmittelbarer Nähe zu Viehzuchtanlagen mit hohen gemeindlichen Viehbesatzdichten von im Durchschnitt 2,77 GV/ha;
- Die bisherigen Quellschüttungen liegen im Durchschnitt bei 0,3 l/s. Nur die Quelle am Kreuzweg in Herrnbechtheim weist eine deutlich höhere Ergiebigkeit von auf; hier ist jedoch mit saisonal großen Unterschieden zu rechnen (s. auch die aktuellen Schüttungen bei den beiden Probenentnahmen 2012 und 2013 im Anhang).

Tabelle 22: Stammdaten- und Beschaffenheitsparameter der ausgewählten Messstellen (die Kürzel in der Spalte „Geologie“ in den Tab. 22 bis 24 symbolisieren die unterschiedlichen Körnungsarten primär von Sanden, z. B. „fS“: Feinsand; n. b.: nicht bekannt, Kluft: klüftiger Festgesteins-GWL, \*: Meter unter Gelände)

Messstellename bzw. Lokation	Bundesland	Filteroberkante *	Filterunterkante *	Nitrat mg/l	Ammonium mg/l	Flurabstand *	Geologie aus SVZ	Nutzung Anstrom	bindige Deckschicht	Grundwasserent- dung mm/a	Viehbesatzdichte	Anzahl Rinder/ha *LF	Anzahl Schwein/ha *LF	n-Hühner/ha *LF
Beesten-Bhf. I	NI	2	4	40	0,1	>1-2	mS	Acker	keine	151 - 200	2,2	0,3	19	0,1
Bethen	NI	7	9	104	0,1	3,5	U, fS	Acker	mineral.	151 - 200	2,6	1,8	14	50
Bösel I	NI	3	5	148	1,0	1,7	fS	Acker	keine	151 - 200	2,9	1,4	16	0,1
Carum I	NI	3	4	11	2,5	0,6	fS	Acker	keine	101 - 150	3,0	1,4	18	85
Dinklage-BDF	NI	9	13	0,4	8,9	2,1	U, fS	Acker	keine	151 - 200	2,9	1,7	16	90
Drievorden	NI	3	10	11	0,8	>2 - 5	fS, mS	Acker	keine	301 - 350	2,3	0,1	12	122
Elbergen	NI	15	17	84	2,1	9,9	Lg, fS	Acker	mineral.	201 - 250	2,8	1,6	16	41
Emlichheim- I	NI	4	5	0,4	6,3	>1 - 2	mS	Acker	Keine	151 - 200	2,0	1,9	4,7	0,1
Gildehaus Süd	NI	3	6	69	0,1	1,9	fS	Acker	keine	151 - 200	3,2	2,2	7,0	259
Halen	NI	18	20	128	0,1	>5	Lg,ms	Acker	mineral.	251 - 300	3,4	0,9	21	96
Kleinringerwö. I	NI	5	6	182	0,5	>1 - 2	S	Acker	keine	151 - 200	1,8	1,8	5,7	0,1
Lohe I	NI	3	4	221	0,2	1,4	fS, mS	Acker	keine	151 - 200	2,1	2,6	2,7	58
Markhausen	NI	7	9	36	0,1	>1 - 2	fS, mS	Acker	keine	151 - 200	2,3	1,5	8,0	114
Neuenkirchen	NI	15	17	97	0,1	>1 - 2	mS	Acker	keine	151 - 200	3,0	2,0	12	170
Neuscharrel I	NI	5	7	0,4	2,2	>1 - 2	fS	Acker	keine	151 - 200	2,3	1,5	8,0	114
Quendorf Ost	NI	3	13	97	0,1	0 - 1	mS	Acker	keine	301 - 350	2,0	0,1	8,8	0,1
Südfelde	NI	19	21	158	0,1	>1 - 2	mS	Acker	mineral.	< 51	3,4	1,6	22,	38
Südlohne	NI	9	10	38	0,1	>5	fs, mS	Acker	keine	251 - 300	3,2	1,2	17	176
Wiet. Lohne I	NI	9	17	0,4	2,7	>1 - 2	fS	Acker	keine	151 - 200	1,8	1,3	9,9	31
Wildenhorst I	NI	13	15	0,4	1,6	0 - 1	fs, mS	Acker	keine	101 - 150	3,0	2,0	12	170
Nordick	NW	5	8	200	2,0	2,2	mS, fS	Acker	keine	436	2,3	1,9	8,4	23,2
Gruetloh	NW		8	106	0,4	1,2	mS	Acker	keine	151	2,6	2,5	12,3	8,9
Oestrich	NW	7	10	4,4	1,5	5,1	mS, fS	Acker	mineral.	137	2,8	2,9	8,7	12,3
Heiden	NW	11	15	44	0,1	6,6	fS, mS	Acker	n. b.	n.b	2,3	1,9	8,4	23,2
Tungerloh	NW	3	5	62	0,1	1,2	n.b.	Wiese	Keine	143	2,3	1,6	1,2	4,4
Lowick	NW	2	15	45	0,5	1,5	mS, fS	Acker	keine	101	2,4	2,7	5,8	21,9
Spork	NW	2	5	86	0,1	1,1	mS, fS	Wiese	keine	329	2,4	2,7	5,8	21,9
Gesinkhook	NW	n.b	n.b	76	0,1	1,4	n.b.	Acker	mineral.	150	2,4	2,7	5,8	21,9
Holthausen	NW	1	11	62	0,1	2,6	mS, fS	Acker	keine	138	2,3	1,8	11,6	14,4
Wendfeld	NW	7	25	143	0,1	6,9	n.b.	Acker	keine	137	2,8	2,7	10,4	25,4
Uthuisen	NW	6	7	58	0,1	1,3	fS,mS	Acker	keine	122	1,8	1,1	11,3	6,7
Hopsten	NW	3	9	1,1	2,3	1,0	fS,mS	Acker	keine	104	1,9	1,4	11,3	0,5
Leversum	NW		6	143	0,1	1,9	n.b.	Acker	keine	90	2,1	0,8	15,0	7,0
Merfeld	NW	2	6	79	0,4	1,2	mS	Acker	keine	144	2,0	0,9	12,5	8,6
Flamschen	NW	6	12	230	0,1	7,1	n.b.	Acker	keine	76	2,0	0,7	14,4	9,1
Gaupel	NW	2	10	72	0,2	2,5	fS	Acker	Organ.	197	2,0	0,7	14,4	9,1
Ochtrup	NW	6	16	55	0,2	2,7	n.b.	Wiese	keine	123	1,9	1,0	13,6	13,3
Salzbergen	NW		6	79	0,1	1,7	n.b.	Acker	keine	110	1,9	1,5	10,3	0,1
Sutrum	NW		9	68	0,1	2,1	Kluft	Acker	keine	125	2,1	1,3	11,2	35,4
Leer	NW	8	10	1,4	2,8	0,8	mS	Acker	keine	138	2,0	0,8	14,0	43,1
<b>Mittelwert (gerundet)</b>		<b>6</b>	<b>11</b>	<b>76</b>	<b>1.0</b>	<b>2.7</b>					<b>2,4</b>	<b>1.6</b>	<b>12</b>	<b>49</b>

Tabelle 23: Stammdaten und Beschaffenheitsparameter der zwei Grundwassermessstellen des LfULG Sachsen

Messstellenname bzw. Lokation	Filteroberkante	Filterunterkante	Nitrat mg/l	Flurabstand	Geologie aus SVZ	bindige Deckschicht	VB Dichte	n Rinder/ha	n Schweine/ha
Stallanlage Naundorf NfOs1/2002	32	49	25,0	32,0	gS, Sst, Tst, Kst	keine	0,15	0,15	0
Hartmannsdorf, HY 1/2002	12	33	88,0	8,7	U, Granulit	mineralisch	n. b.	0	59

Tabelle 24: Stammdaten und Beschaffenheitsparameter der sechs vom LfU Bayern beprobten Quelfassungen

Messstellenname bzw. Lokation	Quellschüttung [l/s]	Nitrat mg/l	Geologie aus SVZ	bindige Deckschicht	VB Dichte	n Rinder/ha	n Schweine/ha
Unterdumeltshausen Quelle Scharnagl	k.A.	48,0	Tertiär	mineralisch	3,7	1,02	8,94
Quelle Langenmoosgraben	0,2	95,0	Tertiär	mineralisch	2,54	1,29	4,18
Quelle Burgmagerbein	0,2	158,0	Nördlinger Ries	keine	2,3	1,47	2,75
Weidenbrunnen Ermetzhofen	0,25	54,0	Muschelkalk/ Unterer Keuper	keine	3,83	0,41	11,39
Quelle Am Kreuzweg, Hermberchtheim	2,5	68,0	Muschelkalk/ Unterer Keuper	keine	2,46	1,0	4,88
Kreuzhofquelle	0,5	90,0	Nördlinger Ries	keine	1,78	1,34	1,45

### 7.5 Abschätzung der Verweilzeiten des Sickerwassers der ausgewählten Messstellen

Im Sinne einer pauschalen Abschätzung der Verweilzeiten des Sickerwassers in der Grundwasserüberdeckung inkl. der durchwurzelten Zone wurde mit den recherchierten Daten für die ausgewählten 40 Messstellen die Methode der DIN 19732 („Bestimmung des standörtlichen Verlagerungspotenzials von nichtsorbierbaren Stoffen“) in vereinfachter Form angewendet, die im norddeutschen Lockergestein bereits mehrfach Anwendung fand (Heinkele et al. 2001, Hannappel et al. 2011).

Einschränkend gilt, dass aus methodischen Gründen die Bestimmung der Verweilszeiten des Sickerwassers nur für Messstellen vorgenommen werden kann, bei denen die ungesättigte Zone komplett aus Lockergesteinen besteht. Das sind aus der Gesamtheit der insgesamt 48 beprobten Messstellen in den vier Ländern 32 Messstellen in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen. Folgende Parameter gehen ein:

- die Mächtigkeit der Grundwasserüberdeckung bzw. der Flurabstand des Grundwassers,
- die Feldkapazität der Grundwasserüberdeckung sowie
- die Grundwasserneubildungsraten.

Die Verweilzeit des Sickerwassers wird aus der Verlagerungsgeschwindigkeit des Sickerwassers und der Mächtigkeit der Grundwasserüberdeckung berechnet:

$$t_s = M/v_s$$

oder

$$t_s = \sum M_i \cdot FK_i / GWNB = (M_1 \cdot FK_1 + M_2 \cdot FK_2 + \dots + M_n \cdot FK_n) / GWNB$$

dabei ist:

$t_s$	Verweilzeit des Sickerwassers
$v_s =$	GWNB/FK (Verlagerungsgeschwindigkeit des Sickerwassers, in $\text{dm} \cdot \text{a}^{-1}$ )
GWNB	Grundwasserneubildungsrate in $\text{mm} \cdot \text{a}^{-1}$
FK	durchschnittliche Feldkapazität der gesamten Grundwasserüberdeckung in $\text{mm} \cdot \text{dm}^{-1}$
$FK_i$	Feldkapazität der n-ten Schicht des Bodens bzw. der Grundwasserüberdeckung in $\text{mm} \cdot \text{dm}^{-1}$
M	Mächtigkeit der gesamten Grundwasserüberdeckung in dm
$M_i$	Mächtigkeit der n-ten Schicht des Bodens bzw. der tieferen Grundwasserüberdeckung in dm

Die Verlagerungsgeschwindigkeit des Sickerwassers ist der Quotient aus der Sickerwasser- bzw. der Grundwasserneubildungsrate und dem Volumenanteil an Wasser im Boden bzw. der tieferen Grundwasserüberdeckung. Zur Charakterisierung des Wassergehaltes wird die Feldkapazität als Volumenanteil eingesetzt. Die Verlagerungsgeschwindigkeit beschreibt den Massenschwerpunkt einer Verlagerungsfront. Der durch hydrodynamische Dispersion verursachte voraus- oder nachfolgende Stofffluss wird dabei nicht berechnet. Bevorzugte Fließwege (z. B. Makroporenfluss) können je nach Aufenthaltsort des Stoffes die Geschwindigkeit erhöhen (wenn der Stoff direkt an der Oberfläche von Poren vorliegt) oder verringern (wenn der Stoff in der Bodenmatrix vorliegt).

Tabelle 25 dokumentiert die in die Berechnung eingegangenen Daten und das Ergebnis (letzte Spalte), ausgedrückt in Monaten. Vereinfacht wurde von nur einer Lithologie der Deckschicht (Spalte: „Geologie aus SVZ“) ausgegangen und somit inhomogene Lagerungsverhältnisse bis zur Grundwasseroberfläche vernachlässigt. Die Feldkapazitäts-Werte wurden aufgrund der Lithologie nach der bodenkundlichen Kartieranleitung KA 5 (ad-hoc-AG Bodenkunde 2005) vergeben. Die Flurabstände wurden den Schichtenverzeichnissen der Bohrungen entnommen und Grundwasserneubildungsraten anhand der GIS-Daten des FZ Jülich zugeordnet.

Die Messstelle Sutrum befindet sich im Festgestein, deshalb kann eine Verweildauer nicht berechnet werden. Ebenso nicht berechnet werden konnten die Verweilzeiten bei den sieben Messstellen in NW ohne Schichtenverzeichnis, da hier die Unsicherheiten wegen fehlender Daten zu den Feldkapazitäten zu hoch sind.

Die Spanne der berechneten Verweilzeiten reicht von 2 bis 144 Monate, der Mittelwert liegt bei 28 Monaten. Verweilzeiten von mehr als 5 Jahren kommen nur bei 4 Messstellen in Niedersachsen mit bindigen Deckschichten vor, da hier die Feldkapazitäten sehr hoch sind. Verweilzeiten von weniger als einem Jahr wurden bei 12 Messstellen berechnet, hier sind entweder die Flurabstände sehr gering oder die Neubildungsraten des Grundwassers hoch.

## 7.6 Ausweisung von unterirdischen Zustromgebieten der Messstellen

Mit den recherchierten Daten zu den Isolinien der Grundwasseroberfläche des oberen Grundwasserleiters (siehe Kap. 5.4.8) wurden für die ausgewählten Messstellen in Nordrhein-Westfalen und Niedersachsen unterirdische Zustromgebiete ermittelt, um hierzu Informationen zur Gülleverbringung bzw. zum Viehbestand recherchieren zu können (siehe Kap. 8.8).

Ein Zustromgebiet (siehe exemplarisch dazu Abbildung 41) repräsentiert den Bereich, aus dem das Grundwasser innerhalb kurzer Zeit der Messstelle zufließt. Es wurde bewusst darauf verzichtet, das gesamte Einzugsgebiet auszugrenzen, da die entsprechenden Fließzeiten im Grundwasser dort sehr lange (mehrere Jahre bis Zehner Jahre) sein können, und aufgrund der Abbauvorgänge im Untergrund dann keine Beziehung zum Eintrag mehr zu erwarten wäre. Innerhalb der gebildeten Zustromgebiete mit einem maximalen Abstand zur Messstelle von 1 Kilometer ist zumeist mit einer geringeren Fließzeit des Grundwassers im Vergleich zu den berechneten Verweilzeiten des Sickerwassers in der ungesättigten Zone (siehe Tabelle 25) zu rechnen. Beide zusammen ergeben die gesamte Dauer des Transports von eingetragenen Stoffen durch die Gülle von der Erdoberfläche bis zur Entnahmetiefe am Standort der Messstelle

Tabelle 25: Abgeschätzte Verweilzeiten des Sickerwassers nach DIN 19732 zu den 40 ausgewählten Messstellen in Niedersachsen und NW („FOK“: Filteroberkante, „SVZ“: Schichtenverzeichnis, „FK“: Feldkapazität, GWN: Grundwasserneubildung, n.b. nicht berechenbar wegen fehlender SVZ oder Ausbau im Festgestein)

Messstellenname	Land	FOK m u. Gelände	FUK m u. Gelände	Geologie aus SVZ	bindige Deck-schicht	Flurab-stand [m]	GWN mm/a	FK mm/dm	Verweil-zeit [Monate]
Nordick	NW	5	8	mS, fS	keine	2,2	436	12	7
Gruetloh	NW		8	mS	keine	1,2	151	10	9
Oestrich	NW	7	10	mS, fS	mineralisch	5,1	137	12	54
Heiden	NW	11	15	fS, mS	keine	6,6	n.b.	n.b.	n.b.
Tungerloh	NW	3	5	n.b.	keine	1,2	143	n.b.	n. b.
Lowick	NW	2	15	mS, fS	keine	1,5	101	14	25
Spork	NW	2	5	mS, fS	keine	1,1	329	11	5
Gesinkhook	NW	n.b.	n.b.	n.b.	mineralisch	1,4	150	n.b.	n. b.
Holthausen	NW	1	11	mS, fS	keine	2,6	138	12	27
Wendfeld	NW	7	25	n.b.	keine	6,9	137	n.b.	n. b.
Uthuisen	NW	6	7	fS,mS	keine	1,3	122	12	15
Hopsten	NW	3	9	fS,mS	keine	1,0	104	12	14
Leversum	NW		6	n.b.	keine	1,9	90	n.b.	n. b.
Merfeld	NW	2	6	mS	keine	1,2	144	10	10
Flamschen	NW	6	12	n.b.	keine	7,1	76	n.b.	n. b.
Coesfeld-Gaupel	NW	2	10	fS	organisch	2,5	197	14	22
Ochtrup	NW	6	16	n.b.	keine	2,7	123	n.b.	n. b.
Salzbergen	NW		6	n.b.	keine	1,7	110	n.b.	n. b.
Sutrum	NW		9	Kalkstein	mineralisch	2,1	125	n.b.	n.b.
Leer	NW	8	10	mS	keine	0,8	138	10	7
Beesten-Bahnhof I	NI	2	4	mS	keine	1,5	175	10	10
Bethen	NI	7	9	4 U, fS	mineralisch	3,5	175	30	82
Bösel I	NI	3	5	fS	keine	1,7	175	14	16
Carum I	NI	3	4	fS	keine	0,6	125	14	8
Dinklage-BDF	NI	9	13	5 U, fS	keine	2,1	175	30	103
Drievorden	NI	3	10	fS, mS	keine	3,5	325	12	16
Elbergen	NI	15	17	9 Lg, fS	mineralisch	9,9	225	30	144
Emlichheim-Kalle I	NI	4	5	mS	keine	1,5	175	10	10
Gildehaus Süd	NI	3	6	fS	keine	1,9	175	14	18
Halen	NI	18	20	6 Lg, ms,fS	mineralisch	5,8	275	30	79
Kleinringerwösten I	NI	5	6	S	keine	1,5	175	11	11
Lohe I	NI	3	4	fS, mS	keine	1,4	175	12	11
Markhausen-BDF	NI	7	9	fS, mS	keine	1,5	175	12	12
Neuenkirchen VEC	NI	15	17	mS	keine	1,5	175	10	10
Neuscharrel I	NI	5	7	fS	keine	1,5	175	14	14
Quendorf Ost	NI	3	13	mS	keine	0,5	325	10	2
Südfelde	NI	19	21	mS	mineralisch	1,5	40	10	45
Südlohne	NI	9	10	fs, mS	keine	6,0	275	12	31
Wietmarschen-Lohne I	NI	3	17	fS	keine	1,5	175	14	14
Wildenhorst I	NI	13	15	fs, mS	keine	1,3	125	12	15

In NW wurden zur Ausgrenzung der Zustromgebiete die im Luftbild erkennbaren Konfigurationen der landwirtschaftlich genutzten Schläge berücksichtigt, um damit die nachfolgende Recherche der Gülledaten durch die Landwirtschaftskammer (LWK) NW zu erleichtern. In Niedersachsen wurden die Zustromgebiete unter Mithilfe des NLWKN in Abhängigkeit von der

Abbildung 41: Zustromgebiete (rot umrandet) zu zwei Messstellen in Niedersachsen (links) und NW (rechts); die Legende hat für beide Abbildungen Gültigkeit



Tiefenlage des Filterausbaus bis zu einem Abstand von 500 m (Filter < 10 m Tiefe) bzw. 1 km Abstand in die Zustromrichtung des Grundwassers zur Messstelle in Form einer Ellipse mit einem festen Öffnungswinkel und einer maximalen Breite der Ellipse von 150 m ausgerichtet (siehe Abbildung 41). Da dem NLWKN die Betriebsdaten zu allen Flächen vorlagen und diese digital übermittelt wurden, war eine Ausrichtung auf bestimmte Schläge nicht notwendig.

## 7.7 Recherche von Daten zum Tierbestand und zur Gülleverbringung

Abbildung 41 dokumentiert zu einer sehr oberflächennah ausgebauten Messstelle in Niedersachsen das ausgewiesene Zustromgebiet zusammen mit den darin enthaltenen landwirtschaftlich genutzten Schlägen.

Vom NLWKN wurden anschließend zu den in den Zustromgebieten selektierten Schlägen Informationen zum Tierbestand aus der Agrarstatistik des Jahres 2010 übermittelt. Tabelle 26 zeigt diese Daten exemplarisch für die elf Schläge im Zustromgebiet der Messstelle Beesten-Bahnhof.

Die vierte bis sechste Spalte der Tabelle 26 enthält Angaben zur Größe der betroffenen Schläge insgesamt und zur Größe im hier insgesamt etwa 15 ha großen Zustromgebiet. Die weiteren Spalten beinhalten Angaben zur spezifischen Tierhaltung auf den Flächen. Ersichtlich wird z. B. dass auf der mit Abstand größten Fläche im Gebiet (anonymisierte Schlag-ID 7) vorwiegend Mastschweine gehalten werden, auf der zweitgrößten dagegen Rinder.

Diese Informationen können wichtige Hinweise für die Bewertung der an den Messstellen analysierten Konzentrationen der Tierarzneimittel geben. Es handelt sich bei den Daten aus Niedersachsen um von den Landwirten im Rahmen der Agrarstatistik gemeldete Daten und keine im direkten Kontakt ermittelte Daten zum tierartenspezifischen Gülleeintrag auf den Flächen.

In Nordrhein-Westfalen hingegen nahm die Landwirtschaftskammer direkt mit den Landwirten Kontakt auf und befragte sie zur in den letzten Jahren durchgeführten tierartenspezifischen Begüllung und weiteren Besonderheiten innerhalb der Zustromgebiete.

Diese Daten wurden projektbezogen seitens der LWK NW zur Verfügung gestellt. Tabelle 27 zeigt die Ergebnisse exemplarisch für zwei Messstellen pro Feldblock und Zustromgebiet. Insgesamt wurden Daten zu 47 Feldblöcken in den 20 Zustromgebieten der Messstellen übermittelt. Zusätzlich wurde von der LWK NW auch eine summarische Einschätzung pro Zustromgebiet übermittelt, und zwar als grobe Schätzung, da in vielen Fällen Mischgülle verwendet wird (s. Tabelle 28).

Tabelle 26: Exemplarische Darstellung der schlagbezogenen Informationen zum Tierbestand innerhalb der 11 Schläge eines Zustromgebietes zur Messstelle Beesten-Bahnhof in Niedersachsen (ZuStrG- Zustromgebiet)

Messstellenname	Schlag-ID (anonym.)	Schlagbezeichnung	ha Schlag	ha im ZuStrG	% im ZuStrG	Tierhaltung	Kalb	Rind	Ferkel	Läufer	Mast-schwein	Zucht-schwein
Beesten I	1	Esch	2,49	0,43	17,27	1	40	125	0	0	480	0
Beesten I	2	Harten, Mia	2,83	0,26	9,19	1	0	0	0	0	275	0
Beesten I	3	Stroothook	7,33	0,19	2,59	0	0	0	0	0	0	0
Beesten I	4	Esch	4,75	2,29	48,21	1	40	125	0	0	480	0
Beesten I	5	Hackm./St.	3,49	2,56	73,35	1	0	0	0	250	850	0
Beesten I	6	Stroothook	3,06	0,54	17,65	1	0	0	0	0	800	0
Beesten I	7	Striet-Beesten	7,93	4,78	60,28	1	6	45	0	0	850	0
Beesten I	8	Röttering	4,03	3,28	81,39	1	20	60	0	0	0	0
Beesten I	9	Duisen-Backskamp	4,27	0,38	8,9	1	0	0	500	300	0	200
Beesten I	10	Stroothook	7,33	0,06	0,82	0	0	0	0	0	0	0
Beesten I	11	Stroothook	3,06	0,06	1,96	1	0	0	0	0	800	0

Tabelle 27: Ergebnisse der von der LWK NW übermittelten Daten zur feldblockbezogenen Einschätzung der Begüllung der Jahre 2007 bis 2011 (SM-Gülle: Schweinemast-, B-Gülle: Bullenmastgülle) getrennt nach Schlägen

Messstellen bzw. Lokationen	Schlagnummer (anonymisiert)	Wirtschaftsdünger				
		2007	2008	2009	2010	2011
Nordick	Nordick 1	SM-Gülle		SM-Gülle	SM-Gülle	
	Nordick 2	Milchviehgülle		Milchviehgülle		Milchviehgülle
	Nordick 3	Rindergülle	Rindergülle	Rindergülle	Biogasgärreste	Biogasgärreste
	Nordick 4	Rindergülle	SM-Gülle	Rindergülle	Biogasgärreste	Biogasgärreste
	Nordick 5	Rindergülle	Rindergülle	Rindergülle	Biogasgärreste	Biogasgärreste
Lowick	Bocholt-Lowick 1	50%Rindergülle /50 SM-Gülle	50%Rindergülle/50 SM-Gülle	50%Rindergülle/50 SM-Gülle	50%Rindergülle/50 SM-Gülle	50%Rindergülle/50 SM-Gülle
	Bocholt-Lowick 2	Bullen-Gülle(50%)/SM-Gülle(50%)	Bullen-Gülle(50%)/SM-Gülle(50%)	Bullen-Gülle(50%)/SM-Gülle(50%)	Bullen-Gülle(50%)/SM-Gülle(50%)	Bullen-Gülle(50%)/SM-Gülle(50%)
	Bocholt-Lowick 3	Milchgülle	Milchgülle	Milchgülle	Milchgülle	Milchgülle

Tabelle 28: Ergebnisse der von der Landwirtschaftskammer Nordrhein-Westfalen übermittelten Informationen zur summarischen Einschätzung der Begüllung aller Zustromgebiete

Messstellen-Nr.	Messstandort	Anteile an Wirtschaftsdüngern von 2007 bis 2011
60220028	Heiden	ca. 40 % Schweinegülle und 60 % Rindergülle/Biogasgärreste
60220041	Bor-Grütlohn	ca. 2/3 Rindergülle und auf 1/3 Mastschweinegülle
60220478	Oestrich	Nur Rindergülle
60220491	Raesfeld-Erle	ca. 1/3 Mastschweinegülle und 2/3 Rindergülle
60220867	Gescher-Tungerloh	ca. 80 % Rindergülle und 20 % Mastschweinegülle
60230058	Bocholt-Lowick	ca. 60 % Rindergülle und 40 % Mastschweinegülle
60230265	Bocholt-Spork	90% Rindergülle
60230290	Gesinkhook	ca. 2/3 Mastschweinegülle und 1/3 Rindergülle
0.060240295	Velen-Ramsdorf	ca. 90 % Mastschweinegülle
0.060240337	Stadtlohn Wendfeld	ca. 80 % Rindergülle
110220791	Flamschen	Rinder- und Schweinegülle zu etwa gleichen Anteilen
110220109	Merfeld	Schweinegülle und Rindergülle zu gleichen Anteilen
110210190	Leversum	ca. 70 - 80 % Mastschweinegülle
110240145	Gaupel	ca. 80-90 % Mastschweinegülle
110200196	Hopsten	Hier werden 3 Schläge landwirtschaftlich genutzt. Auf den überwiegenden Flächen (ca. 70 -80 %) wird langjährig zur Düngung Rindergülle eingesetzt
110200160	Hörstel	Hier werden 4 Schläge landwirtschaftlich genutzt. Auf ca. 70 % der Flächen wurde in den letzten 5 Jahren Gülle aus der Mastschweinehaltung aufgebracht. Auf den übrigen Flächen wurde regelmäßig eine Mischgülle (Rindermast-Milchvieh-Schweine) verwendet
110240406	Ochtrup	Hier werden 4 Schläge landwirtschaftlich genutzt. Auf den Flächen wurde in den vergangenen Jahren zur Düngung Sauengülle eingesetzt.
110320062	Horstmar	Hier wurden in den dargestellten Einzugsbereichen 4 Schläge ausgewertet. Auf ca. 50 - 60 % der Flächen wurde in den letzten Jahren regelmäßig Gülle aus der Sauenhaltung aufgebracht. Die übrigen Flächen wurden mit einer Mischgülle (Rindermast, Schweinemast) gedüngt.
110290045	Neuenkirchen	Hier wurden 6 Flächen ausgewertet Auf ca. 70 -80 % der landwirtschaftlichen Bewirtschaftungsfläche wurde langjährig zur Düngung Gülle aus einer Mastschweinehaltung verwendet
110290010	Rheine	In der kartenmäßigen Darstellung liegen zwei landwirtschaftlich genutzte Schläge. Hier wird auf der dominierenden Ackerfläche seit mehreren Jahren zur Düngung Substrat aus einer Biogasanlage (Mais etc mit Rindergülle) verwendet

Trotz der mit den vorhandenen und digital verfügbaren Daten zur Grundwasserdynamik sorgfältig ausgewiesenen Zustromgebiete und der zu diesen Gebieten recherchierten Informationen zur Güllerverbringung kann aufgrund der in der Natur unvermeidbaren zeitlichen Spanne zwischen Güllaustrag und Messung im Grundwasser nicht automatisch von den Eigenschaften der Gülle auf die festgestellten Konzentrationen von Tierarzneimitteln im Grundwasser geschlossen werden.

Ebenso kann nicht in allen Fällen davon ausgegangen werden, dass durch die landwirtschaftliche Bewirtschaftung der Feldblöcke und Schläge in der Umgebung oder im Zustromgebiet der Messstelle die Funde der Tierarzneimittel im Grundwasser dort verursacht worden sind. In beiden Fällen sind weitere Untersuchungen im Detail notwendig.

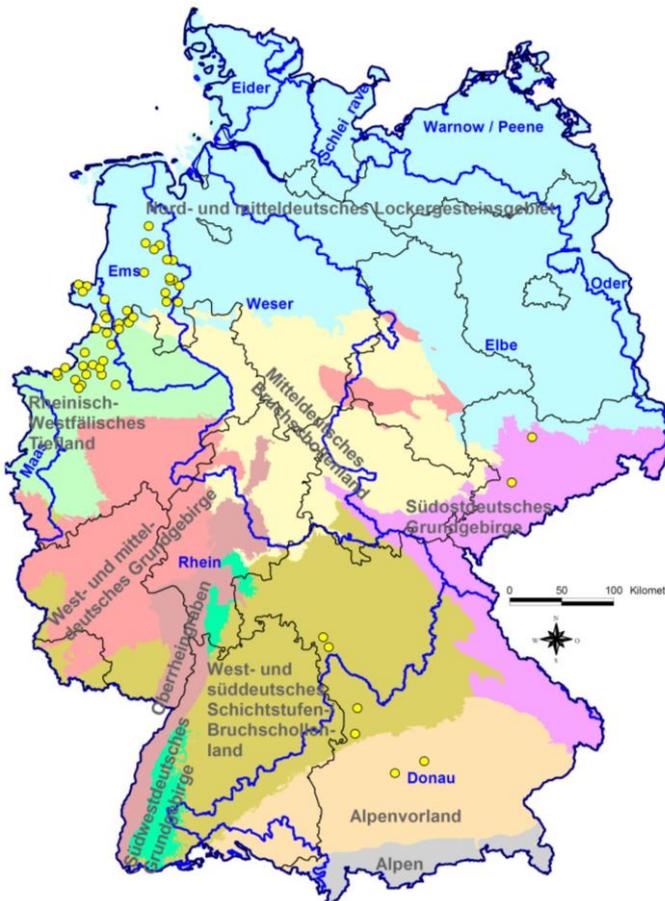
Große Bedeutung kommt hierbei vor allem der lokalen Fließrichtung des oberflächennahen Grundwassers am Standort zu, die zumeist auf Basis der landesweit berechneten Daten nicht hinreichend genau bekannt ist und durch standortkonkrete Untersuchungen verifiziert werden muss.

## 8 Durchführung und Ergebnisse der Probenahmen

### 8.1 Beprobung 2012

Die Beprobung 2012 erfolgte vom 13.08 bis zum 23.11.2012 in den vier Bundesländern Nordrhein-Westfalen, Niedersachsen, Bayern und Sachsen (siehe Abbildung 42). Nicht realisieren ließ sich aus organisatorischen Gründen die ursprüngliche Planung der Probenentnahmen als „Frühjahrs“- und „Herbstbeprobung“. Da die Probenentnahmen fast ausschließlich in die regulären und langfristig geplanten Monitoring-Kampagnen der Partnerinstitutionen eingebunden waren, bestanden hier nicht überwindbare Restriktionen in Bezug auf den Zeitpunkt der Probenentnahmen. Vor den Hintergrund der Verweilzeiten des Sickerwassers in der Grundwasserüberdeckung (s. Tabelle 25) wurde dies in Kauf genommen.

Abbildung 42: 48 Standorte (gelbe Punkte) der Entnahme von Grundwasserproben in den Jahren 2012 und 2013 in 4 Ländern und 5 Flusseinzugsgebieten



Die Standorte liegen in fünf Flussgebietseinheiten (Elbe, Donau, Rhein, Weser und Ems) und fünf hydrogeologischen Großräumen (beschriftet in Abbildung 42), die sich aufgrund des Aufbaus des oberflächennahen Untergrundes deutlich hinsichtlich ihrer Standorteigenschaften unterscheiden können. Im norddeutschen Lockergestein dominieren silikatische Lockergesteine (Sande und Lehme), während in den süddeutschen Einheiten verstärkt silikatisch-karbonatische Wechselagerungen und Festgesteine auftreten. Im Grundgebirge dagegen bewegt sich das Grundwasser primär in Klüften, was zu erhöhten Wegsamkeiten und schnelleren Fließzeiten führen kann.

Die Beprobung wurde mit Ausnahme von vier Messstellen in NW komplett durch die Landesämter bzw. -betriebe in Eigenregie durchgeführt. Diese vier Messstellen wurden durch ein privates Labor ergänzend beprobt. Bis auf eine Messstelle erwiesen sich alle übrigen vorausgewählten Messstellen als geeignet zur Probenentnahme. Für die Messstelle Erle in NW wurde nach Rücksprache mit dem LANUV kurzfristig die Messstelle 60220016 in Heiden als Ersatz ausgewählt und nachbeprobte. In Niedersachsen erwiesen

sich alle 20 ausgewählten Messstellen als geeignet, so dass keine der ursprünglich zusätzlich ausgewählten drei Reservemessstellen beprobt wurden.

Nach den Vorgaben von INFU TU Dortmund erfolgte die Konservierung und der Transport der Flaschen unverzüglich nach Dortmund. Der Anhang beinhaltet alle von INFU übermittelten Daten zu den TAM zusammen mit den von den Landeslaboren analysierten Daten zur Grundwasserbeschaffenheit. Tabelle 29 dokumentiert exemplarisch für die Beprobung des Jahres 2012 einen Auszug für die organoleptisch und messtechnisch erhobenen vor-Ort-Parameter.

Tabelle 29: Auszug aus den aggregierten Analyseergebnissen der Beprobung im Jahr 2012 an 48 Standorten

Messstelle	Land	PN-Datum	RWSP (m)	Entnahmetiefe m	Pumpendauer min	Förderrate m/s	Trübung	Färbung	Geruch	Temperatur °C	pH-Wert	el. Leitf. µS/cm	O <sub>2</sub> mg/l	KS43 mmol/l	KB82 mmol/l
Nordick	NW	17.08.	2,95	6,0	20	3,6	-	farblos	-	13,6	6,0	490	0,6	0,98	1,68
Gruetlohn	NW	20.08.	2,25	8,0	35	2,0	++	gelb	++	13,1	4,9	480	12,2	0,39	1,42
Oestrich	NW	20.08.	5,67	8,0	35	2,6	+	braun	-	12,3	6,6	770	<0,1	7,89	1,73
Merfeld	NW	06.11.	1,78	5,0	20	7,0	-	gelb	-	12,6	6,3	576	0,5	1,80	
Leversum	NW	06.11.	3,05	5,0	20	7,0	-	sw. gelb	-	12,2	7,6	625	3,8	1,74	
Flamschen	NW	08.11.	8,96	11,0	30	87,0	-	sw. gelb	-	10,5	6,9	1328	8,4	5,20	
Heiden	NW	08.11.	7,81	13,0	30	6,0	-	sw. gelb	-	10,4	5,8	464	5,1	0,71	
Tungerloh	NW	17.08.	1,85	5,0	35	1,4	++	braun	-	15,2	7,0	790	2,0	2,10	
Lowick	NW	20.08.	2,15	14,0	55	4,4	-	farblos	-	13,1	6,9	860	<0,1	3,68	0,59
Spork	NW	16.08.	2,13	4,0	20	4,4	-	farblos	-	12,9	6,8	940	<0,1	6,84	0,83
Gesinhook	NW	16.08.	2,08	10,0	45	4,4	+	gelb	-	14,2	5,7	440	0,1	0,60	1,98
Holthausen	NW	14.08.	3,49	8,0	45	6,0	-	farblos	-	11,3	6,9	820	2,5	4,36	0,82
Wendfeld	NW	17.08.	7,62	18,0	60	4,3	-	farblos	-	11,8	5,3	470	9,2	0,18	0,75
Uthuisen	NW	13.08.	1,95	6,0	30	4,6	-	gelb	-	12,5	6,4	780	0,2	2,84	1,86
Hopsten	NW	13.08.	2,57	4,0	35	4,4	-	gelb	++	12,1	6,3	460	0,2	1,28	1,18
Gaupe	NW	14.08.	3,41	6,0	30	4,4	-	grau	-	11,7	6,4	420	0,5	2,22	1,43
Ochtrup	NW	14.08.	2,07	13,0	50	4,1	-	gelb	++	12,6	6,1	168	<0,1	7,86	1,18
Salzbergen	NW	13.08.	2,7	4,0	30	3,6	-	gelb	-	12,2	5,2	420	0,3	0,21	1,03
Sutrum	NW	13.08.	3,32	8,0	40	3,6	+	farblos	-	13,0	6,9	780	1,8	7,74	0,66
Leer	NW	14.08.	2,13	10,0	50	4,3	-	gelb	-	11,7	7,2	800	<0,1	5,20	0,76
Beesten I	NI	09.10.	1,55	2,0	25	10,0	-	farblos	-	12,3	4,1	280	1,4	0,00	1,95
Bethen	NI	16.10.	4,75	6,0	20	15,0	-	farblos	-	11,0	4,4	360	4,7	0,06	3,37
Bösel I	NI	16.10.	3,01	4,0	30	4,5	-	farblos	-	12,5	4,4	650	1,2	0,03	1,42
Carum I	NI	15.10.	2,22	3,1	30	1,7	-	st. gelb	-	12,0	6,8	810	<0,2	7,50	2,64
Dinklage-BDF	NI	15.10.	2,11	4,0	25	9,0	-	sw. gelb	+	10,7	6,9	560	<0,2	5,10	1,61
Drievorden	NI	15.10.	2,63	7,0	25	10,0	-	sw. gelb	-	11,9	6,3	478	<0,2	2,32	1,95
Elbergen	NI	15.10.	9,62	12,0	30	8,8	-	farblos	-	11,6	5,8	1000	<0,2	1,90	5,77
Kalle I	NI	15.10.	0,75	4,4	30	10,0	-	braun	++	13,6	5,9	627	<0,2	3,12	5,14
Gildehaus	NI	15.10.	2,52	5,0	30	10,0	-	sw. gelb	-	12,5	5,7	457	<0,2	0,96	2,12
Halen	NI	16.10.	9,65	12,0	20	15,0	-	farblos	-	10,0	4,7	630	8,9	0,12	2,04
Kleinring. I	NI	16.10.	1,82	5,0	30	5,0	-	farblos	-	12,2	4,5	524	<0,2	<0,1	1,25
Lohe I	NI	16.10.	2,34	3,0	20	4,5	-	sw. gelb	-	11,9	5,1	520	<0,2	0,13	2,31
Markhause	NI	16.10.	3,18	5,0	15	10,0	-	sw. gelb	-	10,4	5,4	280	0,2	0,15	0,99
Neuenkirchen	NI	15.10.	2,29	5,0	20	5,0	-	farblos	-	10,7	5,4	690	<0,2	0,30	1,44
Neuscharrel I	NI	16.10.	1,84	4,0	15	9,5	-	sw. gelb	+	10,8	6,3	720	<0,2	3,20	3,07
Quendorf Ost	NI	05.03.	1,16	7,0	30	10,0	-	farblos	-	11,0	4,9	410	<0,2	0,11	0,89
Südfelde	NI	15.10.	2,22	4,0	20	5,5	-	farblos	-	10,4	6,0	710	<0,2	0,80	1,33
Südlohne	NI	15.10.	7,58	8,5	30	2,5	-	farblos	-	11,3	4,4	94	9,1	0,05	1,01
Wiet Lohne I	NI	16.10.	1,87	9,0	25	10,0	-	sw. gelb	-	10,7	6,6	583	<0,2	3,72	1,73
Wildenhorst I	NI	15.10.	1,30	3,0	20	5,5	+	sw. gelb	+	10,3	6,4	360	<0,2	1,90	2,10
Langenmoos	BY	09.10.	--	--	--	12,0	+/*	braun	-	12,8	7,1	758	8,1	5,86	0,73
Burmagerb.	BY	08.10.	--	--	--	12,0	-	farblos	-	13,2	7,6	738	10,1	4,91	0,21
Kreuzhofqu.	BY	01.10.	--	--	--	30,0	-	farblos	-	12,4	7,4	725	9,7	5,83	0,31
Scharnagl	BY	08.10.	--	--	--	--	-	farblos	-	12,3	7,5	646	8,9	5,43	2,38
Am Kreuzweg	BY	19.09.	--	--	--	150,0	+/*	farblos	-	12,6	7,4	860	8,0	6,79	0,72
Ermetzhofen	BY	19.09.	--	--	--	15,0	-	farblos	-	11,1	7,7	780	9,0	7,03	0,42
Naundorf	SN	28.11.	k.A.	k.A.	k.A.	k.A.	-	farblos	-	11,0	7,2	824	8,1	4,50	0,49
Hartmannsdorf	SN	28.11.	k.A.	k.A.	k.A.	k.A.	-	farblos	-	9,6	9,6	518	4,9	0,58	1,60

## 8.2 Beprobung 2013

Die Beprobung wurde vom 27.05.2013 bis zum 24.09.2013 wiederum vorwiegend durch die Partnerinstitutionen sowie ergänzend durch ein privates Labor durchgeführt.

Es wurden alle 48 Standorte, die auch bereits im Jahr 2012 beprobt worden waren, erneut einer Probenahme nach identischen Vorgaben unterzogen. Hiermit sollte sichergestellt werden, dass die gewonnenen Daten einer Verifizierung unterzogen werden.

Im Jahr 2013 kam es zu keinem Ausfall einer Messstelle aufgrund technischer Probleme, so dass der Messstellenpool identisch mit demjenigen von 2012 war.

Die chemischen Analysen der Haupt- und Nebeninhaltsstoffe wurden erneut von den Landeslaboren und ergänzend durch das private Labor durchgeführt, diejenigen auf die Tierarzneimittel-Wirkstoffe von INFU.

## 8.3 Wiederholungsbeprobungen an zwei Standorten in NW und Niedersachsen

Am Standort Nordick in Nordrhein-Westfalen erfolgten nach projektinterner Abstimmung zusätzliche Probenentnahmen durch ein beauftragtes privates Labor, um die festgestellten hohen Gehalte von Sulfamethoxazol zu überprüfen. Diese wurden durch das LANUV bereits in den Jahren 2008 und 2009 analysiert (Hembrock-Heger et al. 2011), so dass durch die nunmehr wiederholten Probenentnahmen innerhalb von 15 Monaten (August 2012 bis September 2013) der Informationsstand wesentlich verbessert werden konnte (s. Kapitel 9.4).

Die erste zusätzliche Probenentnahme erfolgte im März 2013, um vor allem den möglichen Einfluss der unterbrochenen Gülleverbringung in den Wintermonaten zu untersuchen. Die weiteren zusätzlichen Probenentnahmen wurden in den Monaten Juli und September 2013 durchgeführt. Insgesamt liegen damit aus dem Projektzeitraum fünf Proben vor. Zusammen mit den Daten des LANUV 2008 / 2009 sind es sieben Analyseergebnisse mit Konzentrationsdaten zu den jeweils analysierten TAM.

Die Messstelle Bösel I in Niedersachsen wurde im September 2013 ebenfalls zusätzlich beprobt, um die erstmalig erhöhten SMX-Werte der Probenahme vom Mai 2013 zu verifizieren. Insgesamt wurden also im Jahr 2013 52 Proben und im gesamten Projektzeitraum 100 Grundwasserproben entnommen.

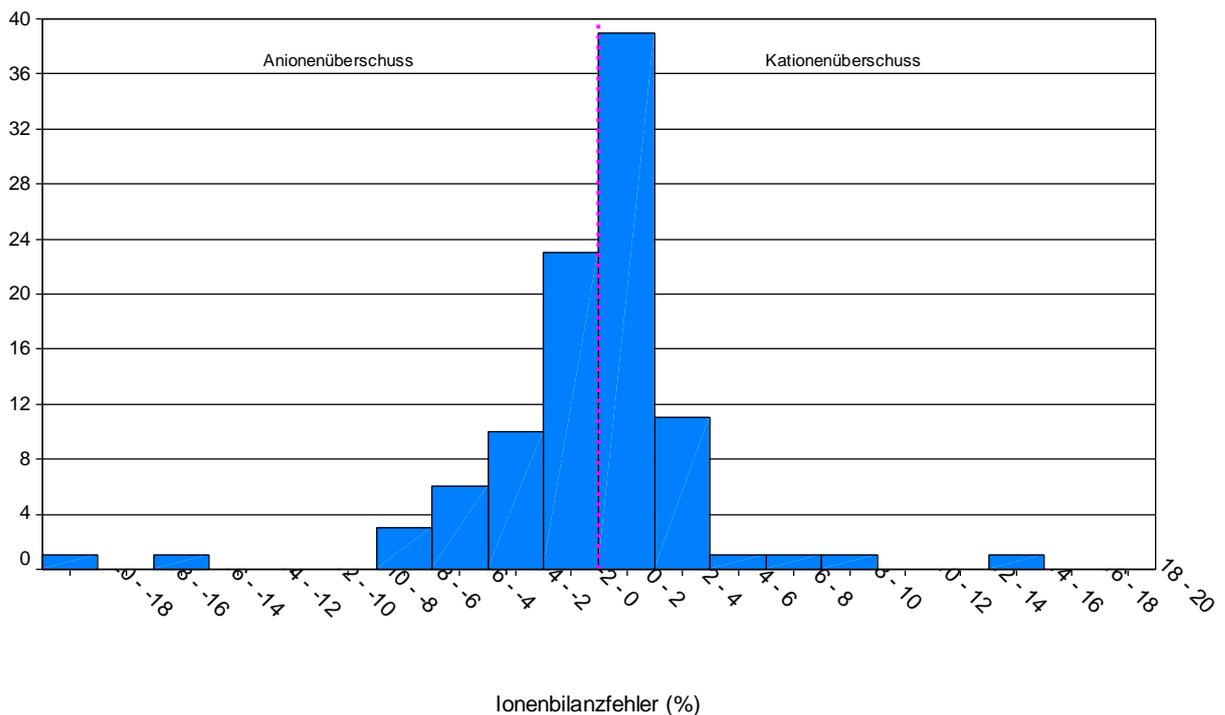
## 9 Bewertung und Interpretation der Ergebnisse der Beprobungen

Die bei der Probenentnahme vor Ort erhobenen Daten sowie die im Labor ermittelten Konzentrationen zu den Haupt- und Nebeninhaltsstoffen des Grundwassers können wertvolle Informationen zur Interpretation des Beschaffenheitsstatus der Grundwässer insgesamt und damit auch zur Bewertung der analysierten Konzentrationen der TAM-Wirkstoffe liefern. So geben die gemessenen Sauerstoffgehalte und Redoxpotentiale - genauso wie die laboranalytisch bestimmten Stickstoff-Spezies - Auskunft über das hydrochemische Milieu der Probe (aerob, anoxisch oder anaerob). Die Konzentrationen der maßgebenden Hauptinhaltsstoffe (Salze) des Grundwassers können genetisch in Bezug auf die Lagerungsposition des Grundwassers bewertet werden. Auch geogene oder anthropogene Beeinflussungen sind anhand der Salze oder z. B. von Spurenelementen erkennbar. Aus diesen Gründen wurde diesen - im Projekt parallel zur Analytik der TAM erhobenen - Daten besonderes Gewicht beigemessen.

### 9.1 Vor-Ort-Parameter und Hauptinhaltsstoffe

Nach Aggregation aller von den Laboren übermittelten Konzentrationen wurden zunächst - als einfaches Mittel einer Plausibilitätsprüfung, die Ionenbilanzen berechnet. Abbildung 43 zeigt die sich ergebende Häufigkeitsverteilung des jeweiligen Bilanzfehlers in Form eines Histogramms:

Abbildung 43: Ergebnisse der Ionenbilanzrechnung als Plausibilitätsprüfung der analysierten Konzentrationen



Im Ergebnis zeigten sich zumeist nur sehr geringe Abweichungen von weniger als 2 %, was als ein sehr gutes Ergebnis der Analytik bewertet werden kann. Der Betrag der mittleren Abweichung liegt bei weniger als 1 %. Proben mit Abweichungen von mehr als 10 % zeigen zugleich einen sehr geringen Gesamt-Lösungsinhalt der Ionen. Hier treten aufgrund von größeren Unsicherheiten bei der Analytik auch gehäuft größere Fehler auf.

Tabelle 30 dokumentiert die arithmetischen Mittelwerte ausgewählter Hauptinhaltsstoffe des Grundwassers der beiden Beprobungen, gegliedert nach den Proben der vier Länder und für alle 48 Proben. Hier sind deutliche Unterschiede erkennbar, die ihre Ursachen in den sehr unterschiedlichen Lagerungspositionen der Grundwässer in den vier Ländern haben.

Tabelle 30: Arithmetische Mittelwerte von Haupt- und Nebeninhaltsstoffen der Beprobungen pro Bundesland

	Einheit	Bayern	Niedersachsen	Nordrhein-Westfalen	Sachsen	alle 4 Länder
Anzahl Proben		12	41	43	4	100
pH-Wert		7,6	5,8	6,2	6,8	6,2
el. Leitfähigkeit	$\mu\text{S}/\text{cm}$	717	579	675	668	639
gel. Sauerstoff	$\text{mg}/\text{l}$	8,1	3,2	2,1	9,7	3,4
Redoxpotential	$\text{mV}$	--	367	345	342	353
Kalium	$\text{mg}/\text{l}$	1,3	23	15	2,4	16
Ammonium	$\text{mg}/\text{l}$	0,02	1,7	0,6	0,04	1,01
Sulfat	$\text{mg}/\text{l}$	28	62	101	145	78
Chlorid	$\text{mg}/\text{l}$	28	34	45	33	38
Nitrat	$\text{mg}/\text{l}$	83	73	89	47	80
DOC	$\text{mg}/\text{l}$	0,9	11,2	9,8	0,9	9,0
TOC	$\text{mg}/\text{l}$	1,2	8,8	10,4	1,1	8,3
Bor	$\mu\text{g}/\text{l}$	50	229	49	49	186
Aluminium	$\mu\text{g}/\text{l}$	--	886	405	10	633
Kupfer	$\mu\text{g}/\text{l}$	-	3,4	8,0	2,4	4,6
Zink	$\mu\text{g}/\text{l}$	-	32	145	24	87

Die Abbildung 44 und die Abbildung 45 dokumentieren exemplarisch anhand der Ergebnisse der Beprobung 2012 die Häufigkeitsverteilungen der gemessenen Konzentrationen in Form von Histogrammen für die Beprobung 2012. Die Abbildung 46 bis Abbildung 51 zeigen ebenfalls exemplarisch und wiederum anhand der Werte von 2012 für 6 Stoffe die regionale Verteilung der gemessenen Konzentrationen in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen. Alle Werte, inkl. derjenigen der Messstellen von Bayern und Sachsen befinden sich im Anhang.

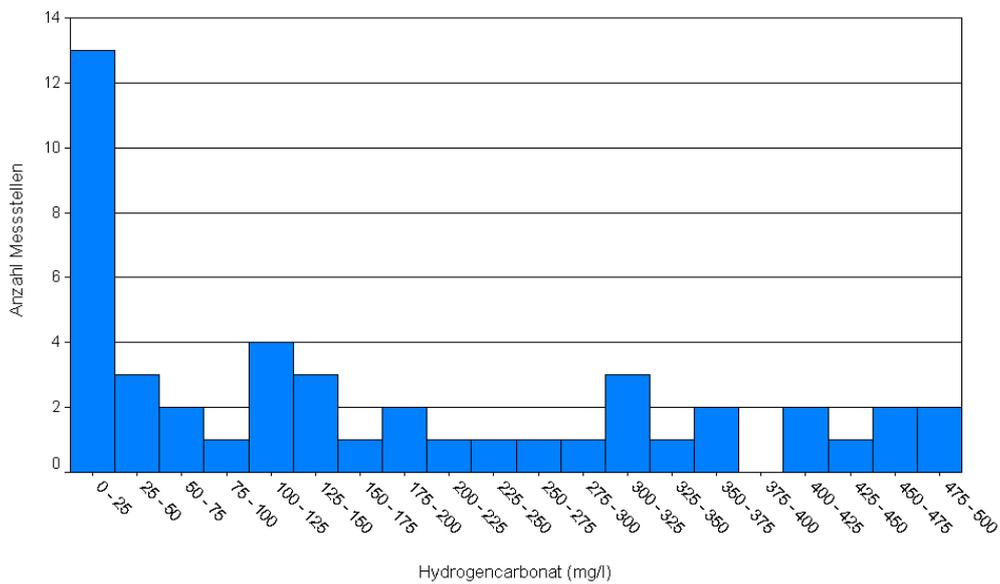
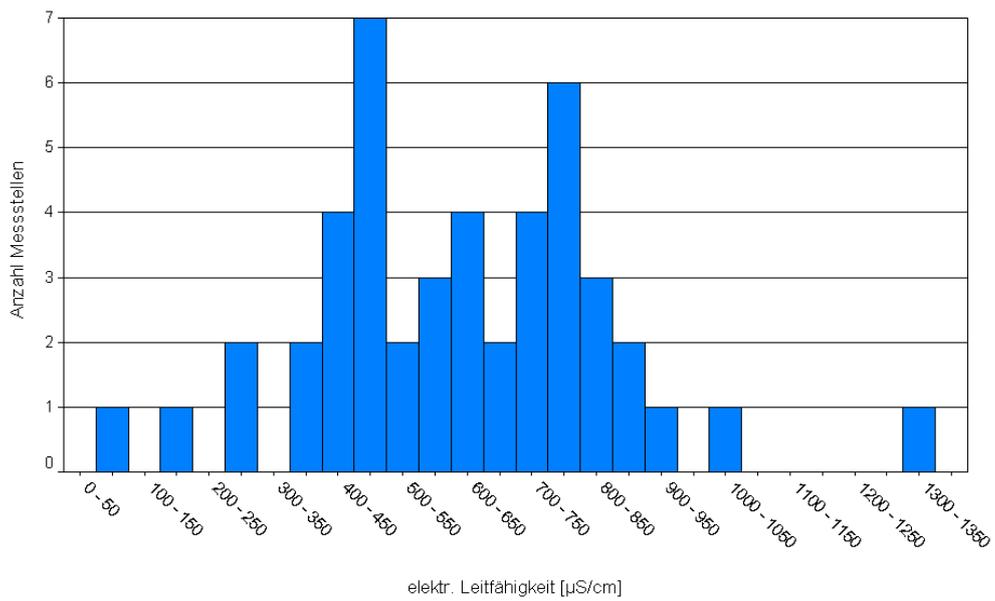
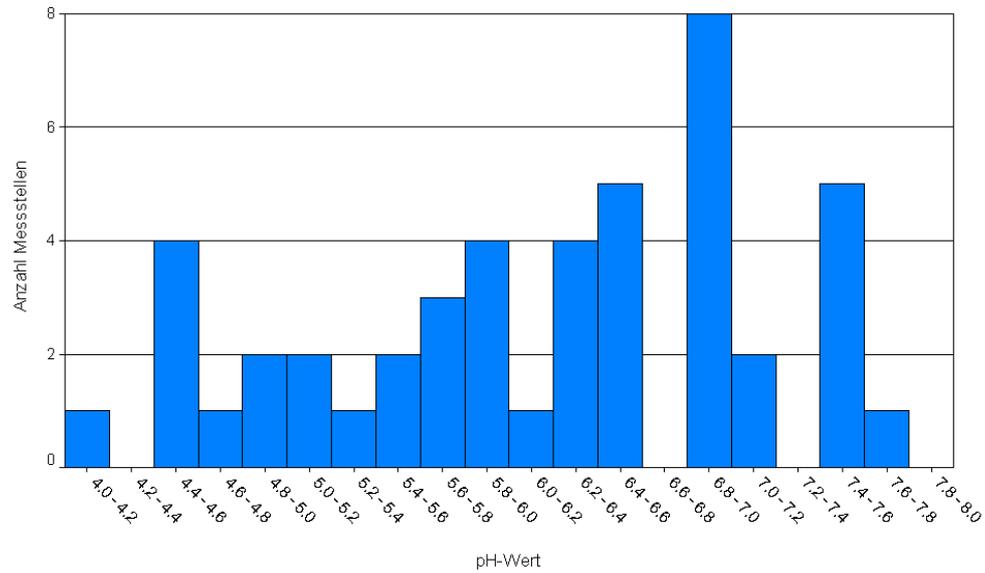
Die in Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen beprobten Grundwassermessstellen wiesen zum jeweiligen Zeitpunkt der Probenentnahmen durchweg oberflächennahe Grundwasserflurabstände in den Lockergesteinen auf, der Durchschnitt lag bei 2,35 Meter unter Geländeoberkante im Jahr 2012 und bei 2,26 Meter im Jahr 2013. In Sachsen lagen die Flurabstände im Festgestein deutlich höher. In Bayern wurden keine Flurabstände ermittelt, da es sich ausschließlich um Quellsfassungen handelt, an denen routinemäßig die Quellschüttungen ermittelt werden.

Die elektrischen Leitfähigkeiten variieren zwischen den Proben aus den vier Ländern mit Mittelwerten zwischen 579  $\mu\text{S}/\text{cm}$  (in Niedersachsen) und 717  $\mu\text{S}/\text{cm}$  (in Bayern) nicht sehr stark. Sie zeigen bei allen Proben, dass die untersuchten Proben aus durchweg oberflächennahen Grundwasserleitern frei von geogen versalztem Tiefenwasser sind. Die niedrigen Werte in Niedersachsen repräsentieren die dort verbreiteten lösungs- und damit auch pufferarmen silikatischen Lockergesteine in der ungesättigten Versickerungszone, die höheren Werte in Bayern die höheren Anteile karbonatischer Sedimente in dieser Zone, die das Sickerwasser während der Untergrundpassage lösen kann.

Bei den pH-Werten zeigt sich eine etwas größere Spannweite, die sich sowohl bei den Mittelwerten als auch dem Histogramm ausdrückt. In Niedersachsen liegen die Werte sehr niedrig (Minimum pH 4.1) und dokumentieren damit die z. T. bereits weit fortgeschrittene Versauerung des Grundwassers infolge der o. g. Pufferarmut der Matrix der die Grundwasserleiter aufbauenden Gesteine. In Bayern und Sachsen dagegen sind die Grundwässer ausreichend mit puffernden Substanzen versorgt, die pH-Werte liegen in Bayern sogar oberhalb des neutralen Bereichs.

Die Konzentrationen des im Grundwasser gelösten Sauerstoffs unterscheiden sich deutlich zwischen den vier Ländern. In den Proben aus Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen, die sandigen

Abbildung 44: Histogramme der Konzentrationen von vor-Ort-Parametern und Hauptinhaltsstoffen des Grundwassers der Beprobung 2012 in den 48 Messstellen



# Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte

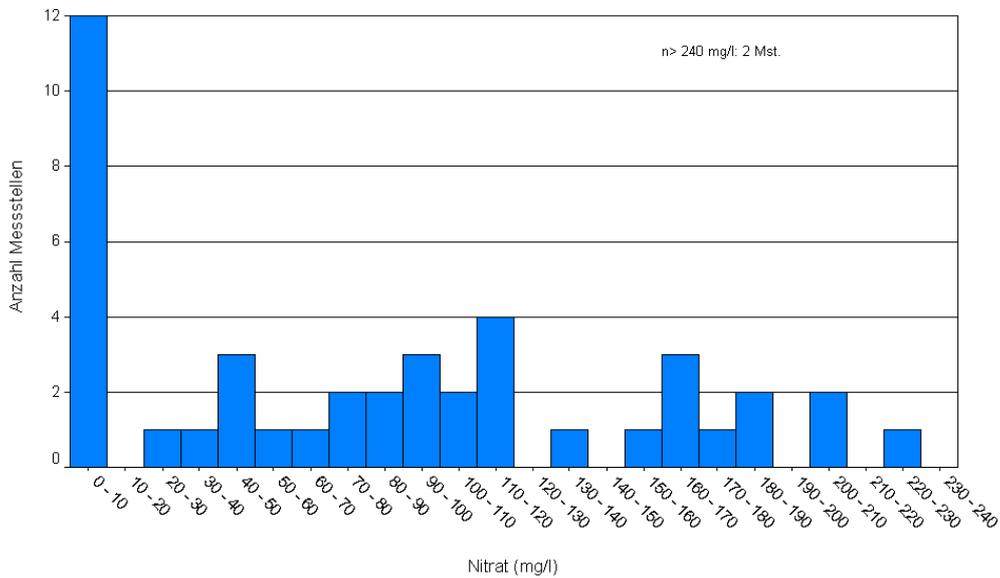
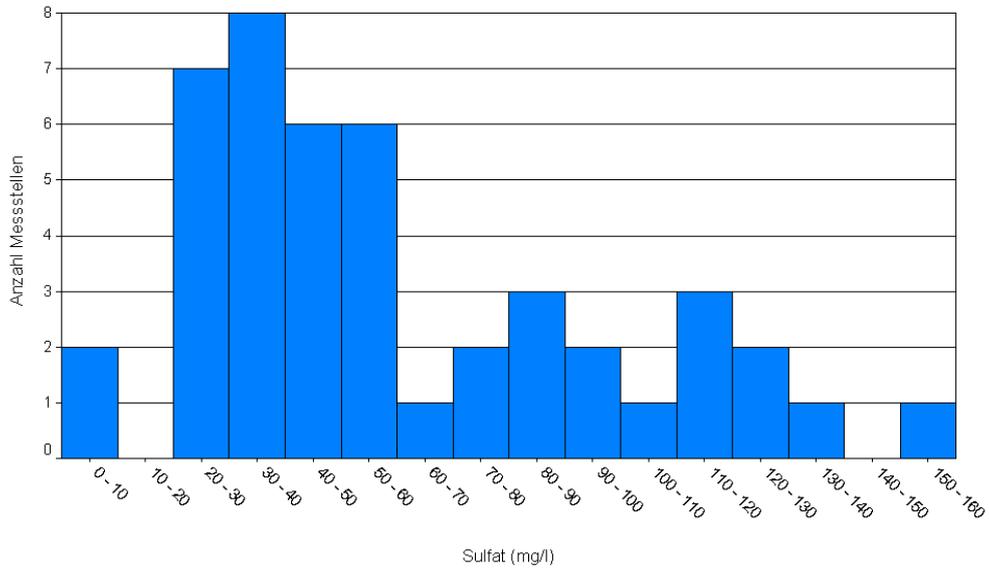
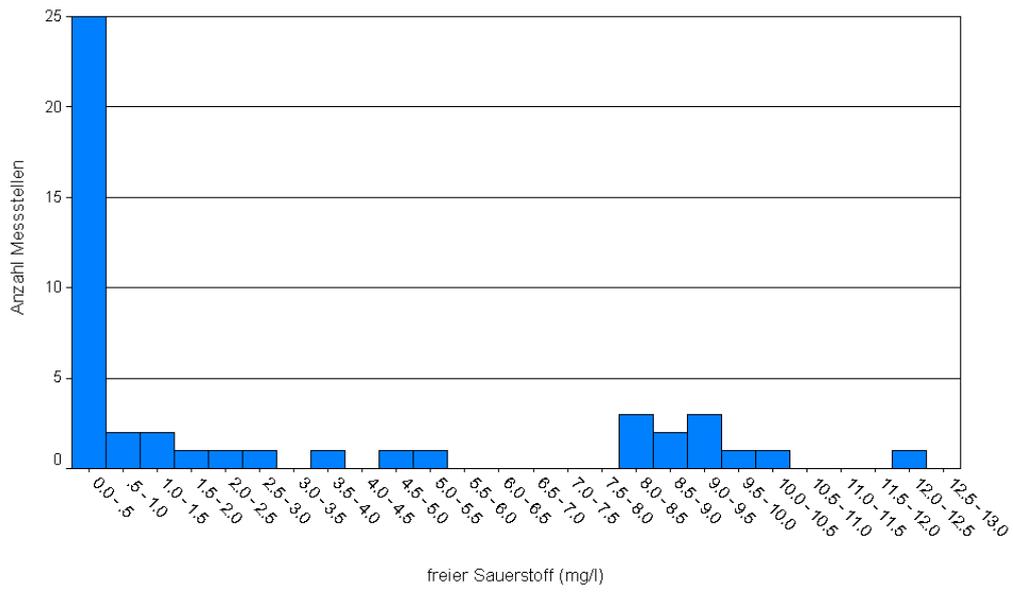
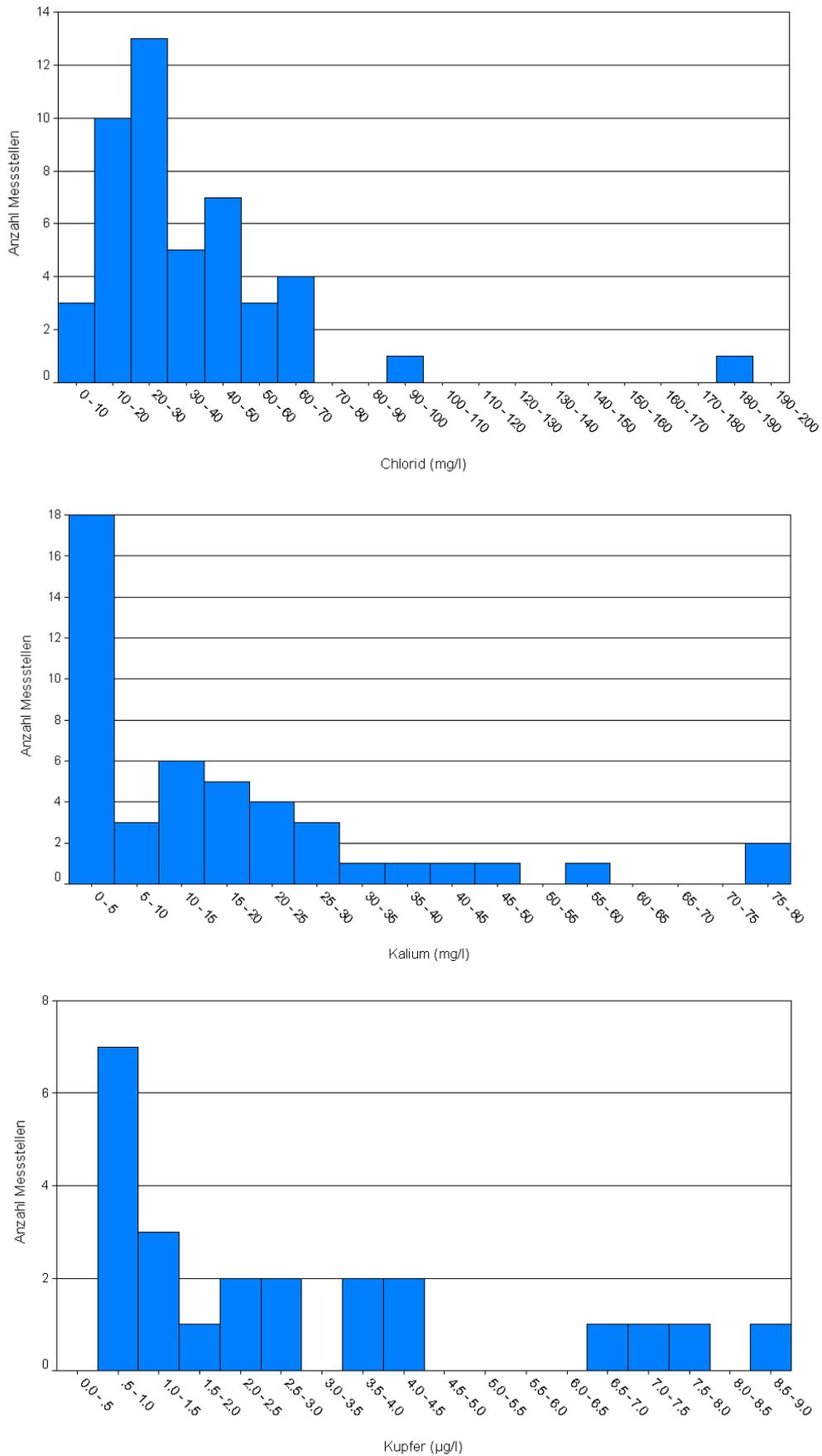
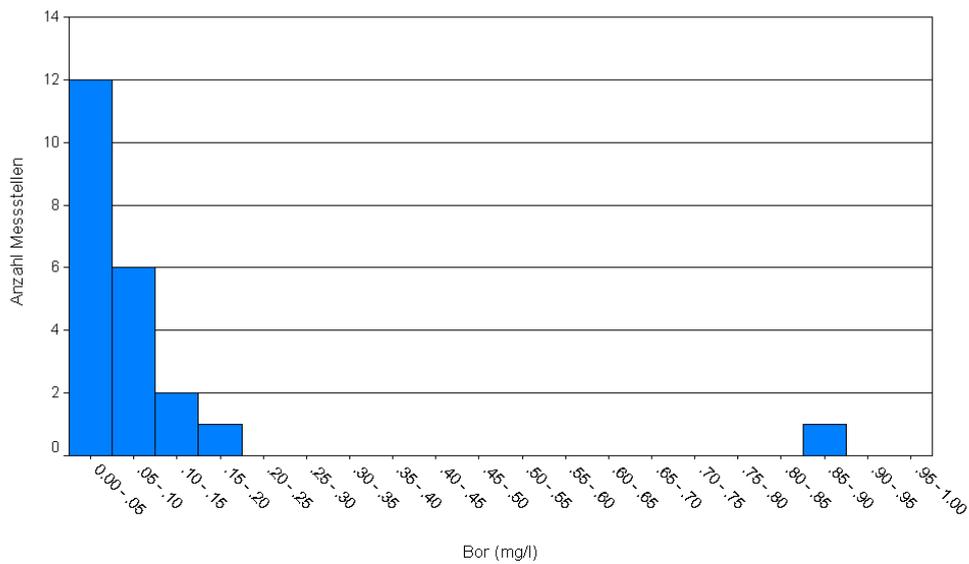
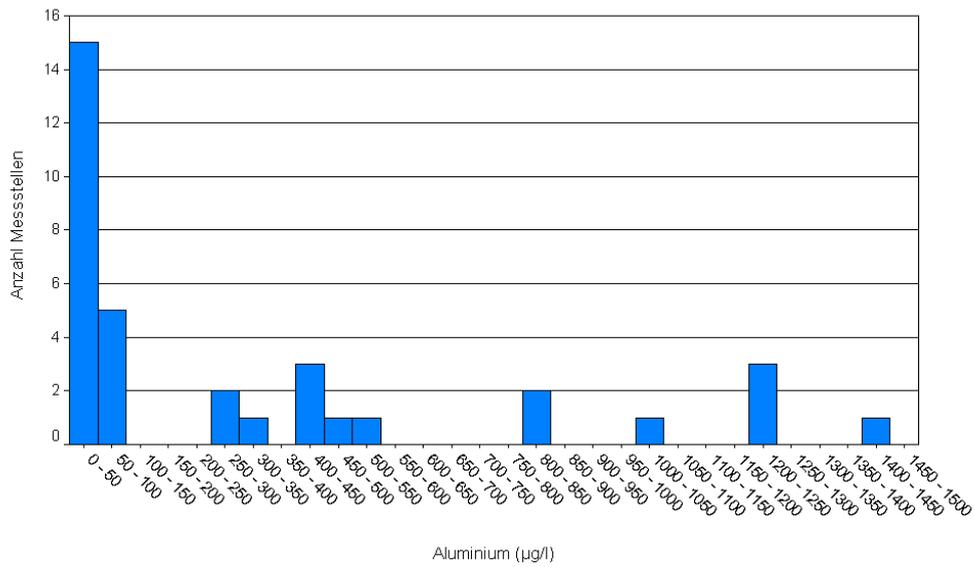
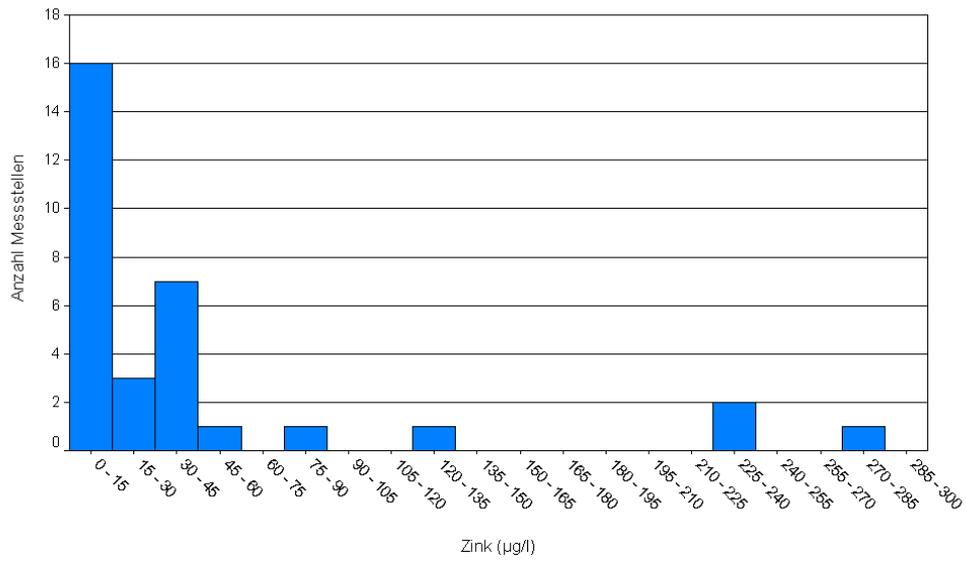


Abbildung 45: Histogramme der Konzentrationen von Haupt- und Spureninhaltsstoffen des Grundwassers der Beprobung 2012 in den 48 Messstellen



# Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte



Grundwasserleitern entnommen wurden, herrscht zumeist Sauerstoffarmut bzw. -freiheit, während alle acht Proben aus Bayern und Sachsen die für Festgesteine aufgrund der Kluftgrundwasserführung typischen höheren Gehalte von bis zu 10 mg/l zeigen.

Redoxpotentiale wurden technologisch bedingt (dieser Parameter gehört nicht zum Grundmessprogramm bei den Probenahmen der Länder) nur bei relativ wenigen Proben vor Ort während der Probenahme gemessen. Im Jahr 2013 wurden sie in Niedersachsen gemessen, zusätzlich liegen auch zu den fünf Standorten aus NW von der Probenentnahme des beauftragten privaten Labors Werte vor. Dieser Parameter liefert wichtige Hinweise zum Redoxmilieu des Grundwassers und damit zu den Lösungs- und Abbaubedingungen von Stoffen. Die in Tab. 29 dokumentierten Werte zeigen mit gemessenen - und umgerechneten - Potentialen zwischen 300 und 400 mV durchweg oxidierte Verhältnisse in den oberflächennahen Grundwässern an. Das wird durch die Sauerstoff- und Nitratgehalte der Messstellen bestätigt.

Die Sulfat-Konzentrationen variieren in den Proben aus NW und NI nicht sehr stark. Sie liegen zudem im Bereich oder unterhalb der geogenen Hintergrundkonzentrationen, die von Kunkel et al. (2004) auf der Basis der rangstatistischen Auswertung eines sehr umfangreichen Datensatzes für alle grundwasserführenden Gesteinseinheiten in Deutschland ermittelt wurden. Der bereits anhand der Leitfähigkeiten abgeleitete Befund des Fehlens von Anzeichen, die auf einen salinaren Tiefenwassereinfluss hindeuten, wird hierdurch, wie auch die Chlorid-Konzentrationen (siehe Tabelle 30), bestätigt. Es handelt sich bei den Proben aus diesen Ländern ausschließlich um Grundwässer, die einerseits durch die natürliche Grundwasserneubildung und andererseits durch anthropogen geprägte Faktoren, wie die landwirtschaftliche Nutzung, geprägt sind. Die in Bayern und Sachsen von den anderen beiden Ländern abweichenden Gehalte haben ihre Ursachen in der lithologisch dort anders ausgeprägten Ausbildung der Gesteine der Versickerungszone bzw. des Grundwasserleiters.

Die Konzentrationen der im Grundwasser gelösten Stickstoffverbindungen (Nitrat und/oder Ammonium) liegen bei fast allen Messstellen sehr hoch. Bis auf wenige Ausnahmen befinden sie sich oberhalb der Umweltqualitätsnorm von Nitrat (50 mg/l) bzw. des Schwellenwertes von Ammonium (0,5 mg/l). Dies war zu erwarten, da hohe Stickstoffgehalte im Grundwasser als Kriterium bei der Messstellenauswahl zur Charakterisierung von Standorten mit einer hohen Verbringung von organischem Wirtschaftsdünger verwendet worden waren.

Die Karte in Abbildung 52 zeigt das für die Messstellen in NW und NI in aggregierter Form für Nitrat. Ergänzend sind in der Karte die Messstellen mit niedrigen Nitrat-, aber hohen Ammoniumwerten gekennzeichnet. Im Jahr 2012 lag der Mittelwert für Nitrat bei allen Messstellen bei 78 mg/l, berücksichtigt man jedoch nur die 37 Messstellen mit niedrigen Ammoniumwerten sogar bei 96 mg/l. Bei den 11 Messstellen mit den hohen Ammoniumgehalten liegt der Mittelwert bei 4,1 mg/l. Die maximalen Konzentrationen lagen bei 204 mg/l in Flamschen (Nitrat) bzw. 9,5 mg/l in Dinklage (Ammonium). Anhand der Beprobung 2013 wurden diese Werte im Wesentlichen bestätigt. Die maximal gemessene Konzentration lag hier sogar noch höher (371 mg/l Nitrat bei der Messstelle Uthuisen in NW).

Auch die Konzentrationen von Kalium liegen mit mittleren Konzentrationen von etwa 16 mg/l durchweg erhöht. Einflüsse aus der landwirtschaftlichen Bewirtschaftung, also der Gülleverbringungen, sind hier sehr wahrscheinlich, da die geogenen Konzentrationen im Grundwasser bei Kalium in allen Regionen in Deutschland deutlich niedriger liegen (Kunkel et al. 2004). Es bestehen jedoch auch große Unterschiede zwischen den Standorten in den Ländern. Vor allem in Niedersachsen und NW (siehe Tabelle 30 und die Karte in Abbildung 47) wurden sehr hohe Konzentrationen gemessen, die bis 80 mg/l reichen.

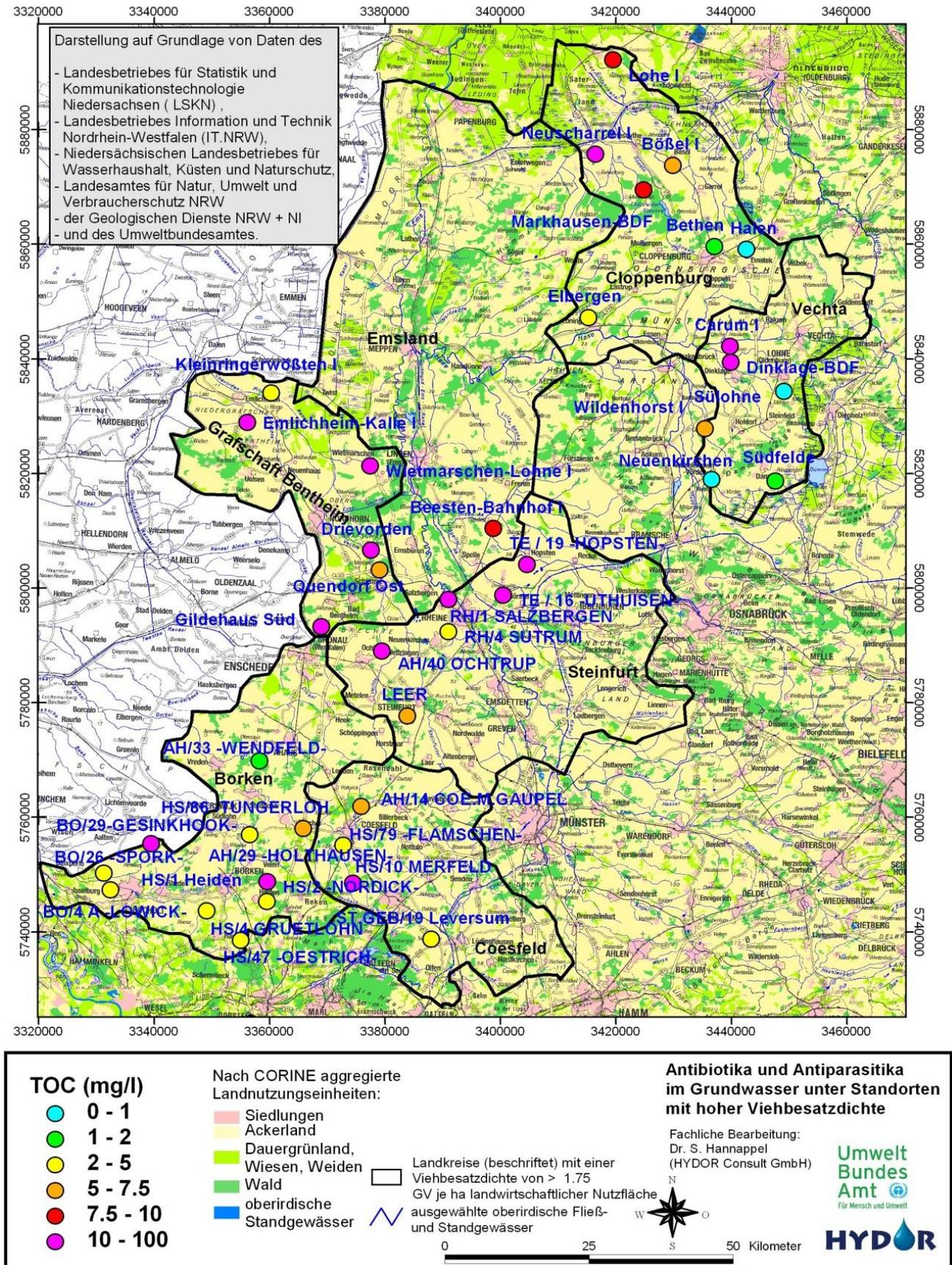
Die DOC- bzw. TOC-Gehalte unterscheiden sich zwischen Bayern und Sachsen einerseits mit sehr niedrigen Konzentrationen. In Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen andererseits sind die Gehalte deutlich erhöht. Die in Tabelle 30 dokumentierten Mittelwerte aller Proben sind daher nicht aussagekräftig, zeigen jedoch in der Tendenz deutlich Beeinflussungen der landwirtschaftlichen Nutzung (Anm.: bei den z. T. höheren DOC- im Vergleich zu den TOC-Werten handelt es sich um ein Artefakt der Berechnung, da nicht bei allen Proben DOC und TOC gleichzeitig analysiert wurde). Die Differenzen zwischen den Ländern können durch die lithofaziellen Unterschiede zwischen den grundwasserführenden Gesteinseinheiten plausibel erklärt werden und stehen in Übereinstimmung mit den Werten von Kunkel et al. (2004). Die Porengrundwasserleiter der Lockergesteine führen matrix- und milieubedingt höhere gelöste- bzw. Gesamtkohlenstoffkonzentrationen im Vergleich zu den Festgesteinen mit primärer Grundwasserführung in Klüften. Die Konzentrationen in NW und NI mit Werten von oftmals 10 mg/l und deutlich mehr (bis zu 60 mg/l in Uithuisen) können jedoch nicht mehr durch geogene Prozesse alleine erklärt werden, da die Hintergrundwerte hier im oberflächennahen Bereich zumeist bei Werten unter 5 mg/l liegen. Vermutet werden muss vielmehr die Auswirkung des intensiven Eintrages der Gülle und der Versickerung des darin enthaltenen organischen Kohlenstoffs in das Grundwasser.

Die Bor-Konzentrationen liegen im Durchschnitt aller Werte mit 186 µg/l leicht erhöht vor, in Niedersachsen betrug der Mittelwert sogar 229 µg/l und damit über dem Normalbereich in quartären Sanden (Kunkel et al. 2004). Auch das steht in Übereinstimmung mit den Lagerungspositionen der oberflächennahen und jungen Grundwässern, die in vielfältiger Hinsicht anthropogen überprägt sind. Die Spannweiten reichen allerdings auch über weite Bereiche, in NW z. B. wurde 2013 ein Maximalwert von 3200 µg/l (Ochtrup) gemessen. Bor ist u. a. ein Indikator für Abwassereinfluss, auch geogen bedingt kann er allerdings bei Zutritt von Tiefenversalzung erhöht sein. Über die Gehalte in den Gülle verschiedener Tierarten ist jedoch bisher wenig bekannt. Bei Funden von TAM im Grundwasser können die Borgehalte ergänzende Informationen zu möglichen separaten Einflüssen geben, z. B. häusliche Abwässer aus Kleinkläranlagen.

Aus dem Spektrum aller analysierten Konzentrationen von Spurenhaltstoffen im Grundwasser (siehe Anhang) dokumentiert Tabelle 30 die mittleren Werte von Zink und Kupfer. Kupfer wird in der Schweinezucht manchmal als Wachstumsförderer dem Futtermittel beigefügt, Zink z. T. als Ersatz für Antibiotika. Bei Kupfer liegen die analysierten Konzentrationen jedoch alle unterhalb der Werte des geogenen Normalbereichs von 10 µg/l (Kunkel et al. 2004), so dass der vermutete Zusammenhang des Austrages von überschüssigem Kupfer über die Gülle und des Eintrages in das Grundwasser nicht bestätigt werden konnte. Bei Zink schwanken die analysierten Konzentrationen sehr stark und liegen bei wenigen Messstellen etwas oberhalb der Hintergrundwerte von 196 µg/l, z. B. 2012 in Grütlohn und Beesten mit 230 µg/l und in Uithuisen mit 280 µg/l. An diesen Standorten wurden jedoch keine Tierarzneimittelfunde oberhalb der Nachweisgrenze gefunden, so dass auch dieser Zusammenhang nicht bestätigt werden kann.

Aluminium als weiterer Spurenhaltstoff liegt mit Konzentrationen zwischen 400 und 800 µg/l in NW und Niedersachsen deutlich über den für die verschiedenen hydrogeologischen Einheiten in Deutschland ausgewiesenen Hintergrundgehalten (Kunkel et al. 2004). Hier bestehen zumeist Korrelationen zu den pH-Werten, da Aluminium vor allem bei sehr niedrigen pH-Werten im Grundwasser gelöst auftreten kann. Als Quellen stehen die Silikatgitter der quartären Sande dafür in unbegrenzter Form zur Verfügung. Bei einigen Messstellen scheinen jedoch auch zusätzliche, anthropogen verursachte Einflüsse zu bestehen, z. B. bei der Messstelle Tungerloh in NW, wo 2013 3900 µg/l gemessen wurden. Hohen Aluminiumkonzentrationen im Grundwasser kommt aufgrund ihrer bakteriziden Wirkung für den TAM-Abbau Bedeutung zu (Pina & Cervantes 1996) und muss bei entsprechenden Funden berücksichtigt werden.

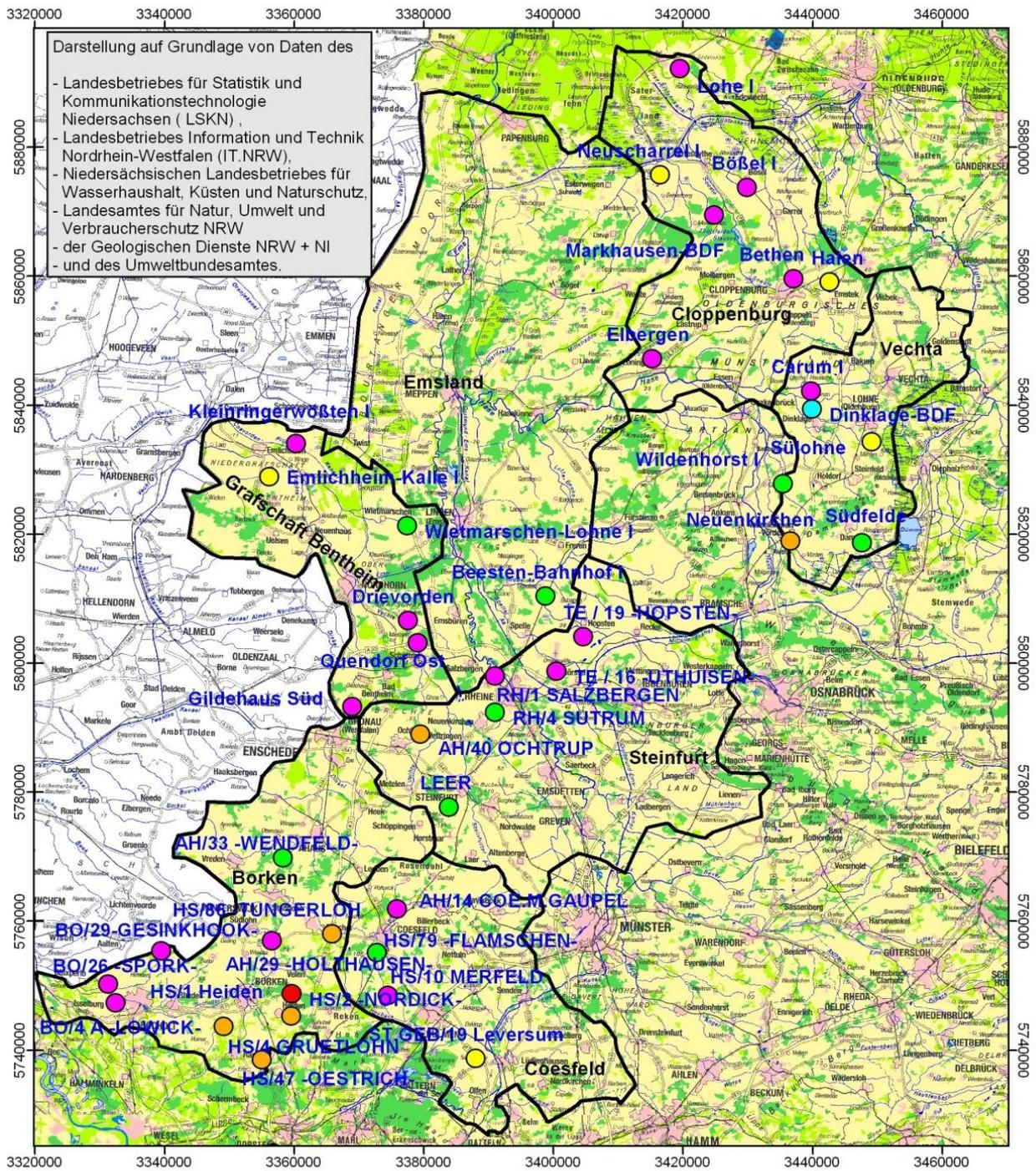
Abbildung 46: TOC-Konzentrationen an den beprobten Grundwassermessstellen in NW und NI im Jahr 2012



Darstellung auf Grundlage von Daten des

- Landesbetriebes für Statistik und Kommunikationstechnologie Niedersachsen ( LSKN ) ,
- Landesbetriebes Information und Technik Nordrhein-Westfalen (IT.NRW),
- Niedersächsischen Landesbetriebes für Wasserhaushalt, Küsten und Naturschutz,
- Landesamtes für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz NRW
- der Geologischen Dienste NRW + NI
- und des Umweltbundesamtes.

Abbildung 47: Kalium-Konzentrationen an den beprobten Grundwassermessstellen in NW und NI im Jahr 2012



**Kalium (mg/l)**

- < 1
- 1 - 3
- 3 - 6
- 6 - 12
- 12 - 15
- > 15

Nach CORINE aggregierte Landnutzungseinheiten:

- Siedlungen
- Ackerland
- Dauergrünland, Wiesen, Weiden
- Wald
- oberirdische Standgewässer

Landkreise (beschriftet) mit einer Viehbesatzdichte von > 1,75 GV je ha landwirtschaftlicher Nutzfläche  
 ausgewählte oberirdische Fließ- und Standgewässer

**Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte**

Fachliche Bearbeitung:  
 Dr. S. Hannappel  
 (HYDOR Consult GmbH)



Abbildung 48: Elektrische Leitfähigkeiten an den beprobten Grundwassermessstellen in NW und NI im Jahr 2012

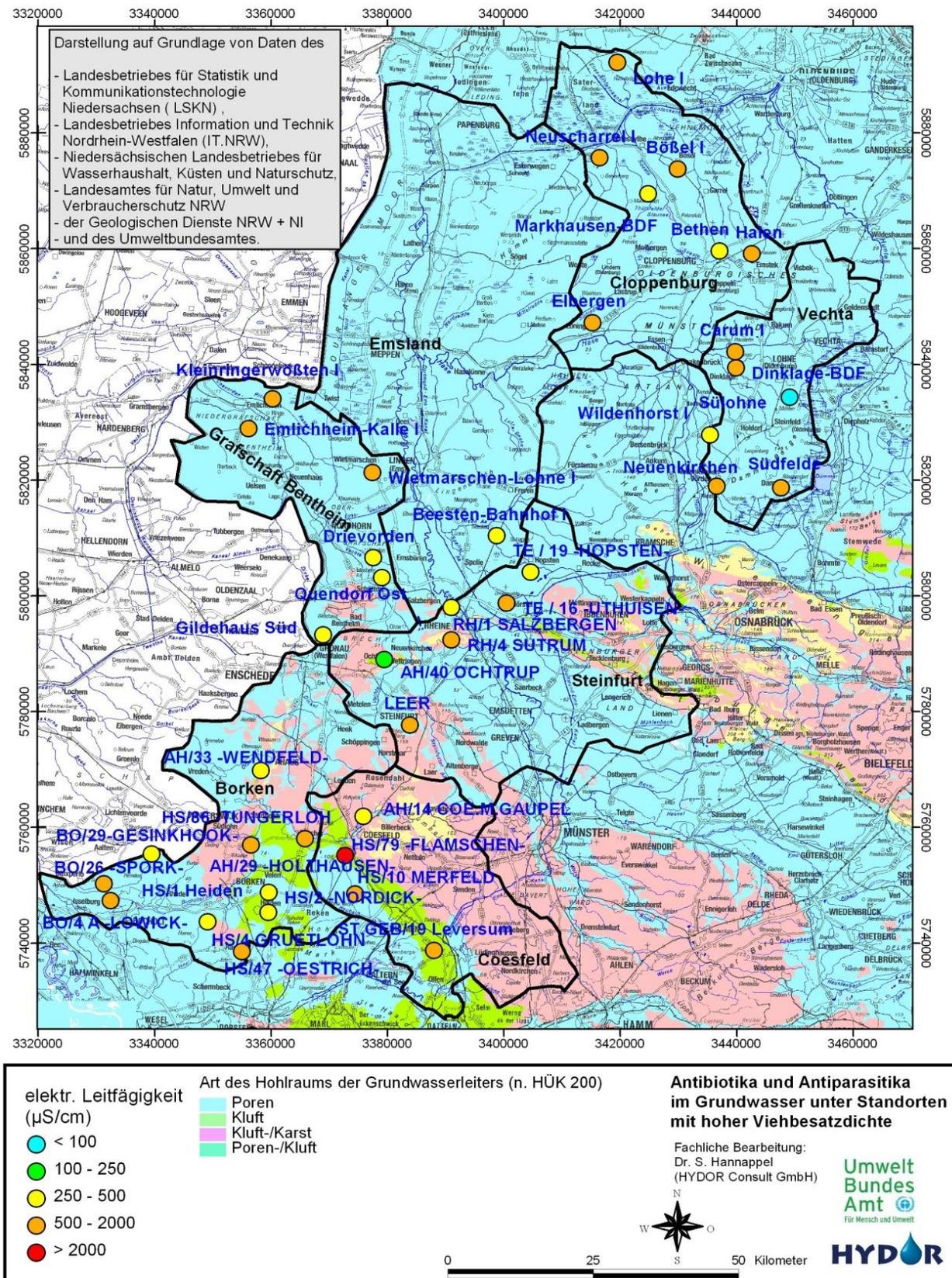


Abbildung 49: Nitrat-Konzentrationen an den beprobten Grundwassermessstellen in NW und NI im Jahr 2012

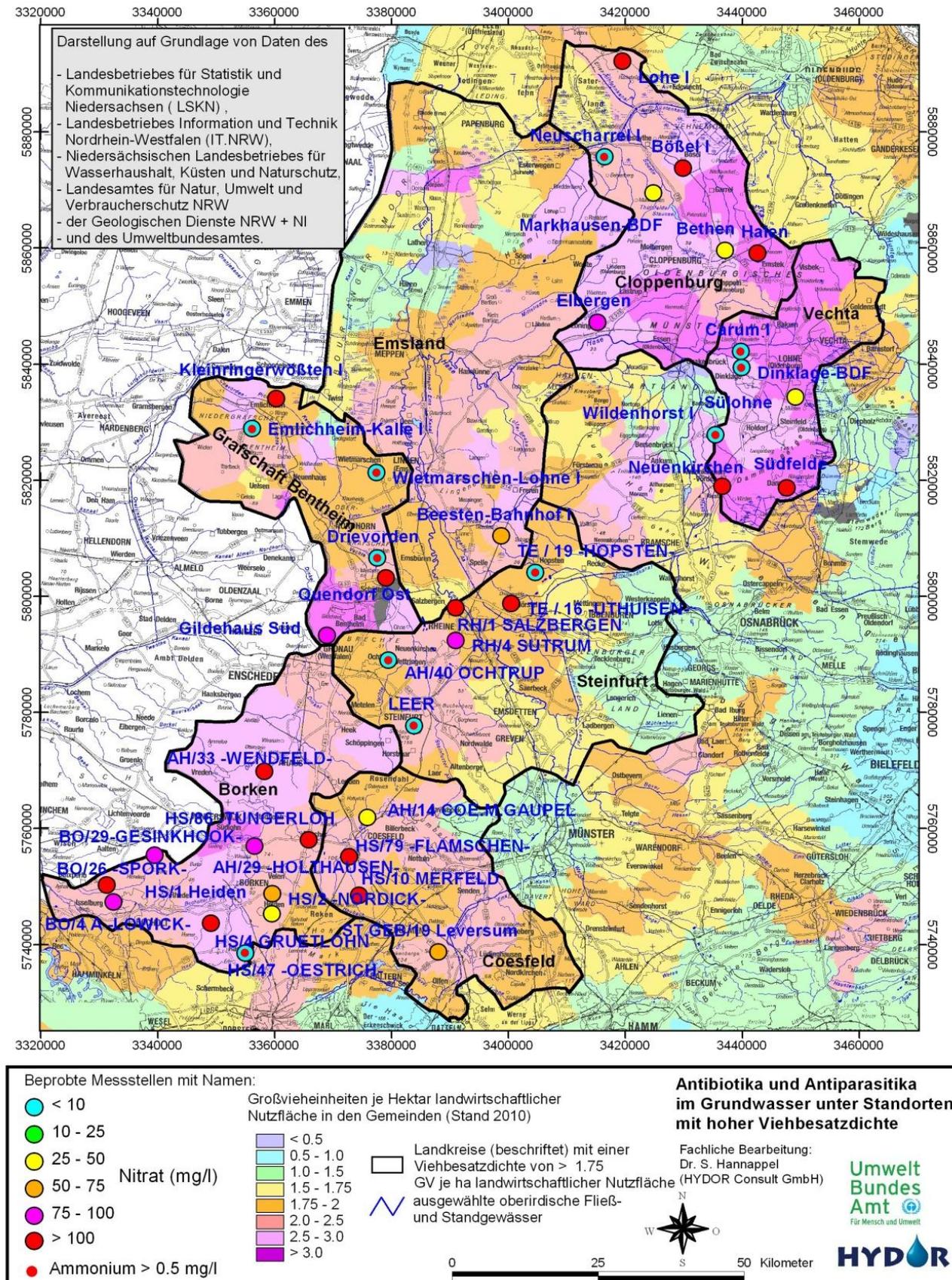


Abbildung 50: Sauerstoffkonzentrationen an den beprobten Grundwassermessstellen in NW & NI im Jahr 2012

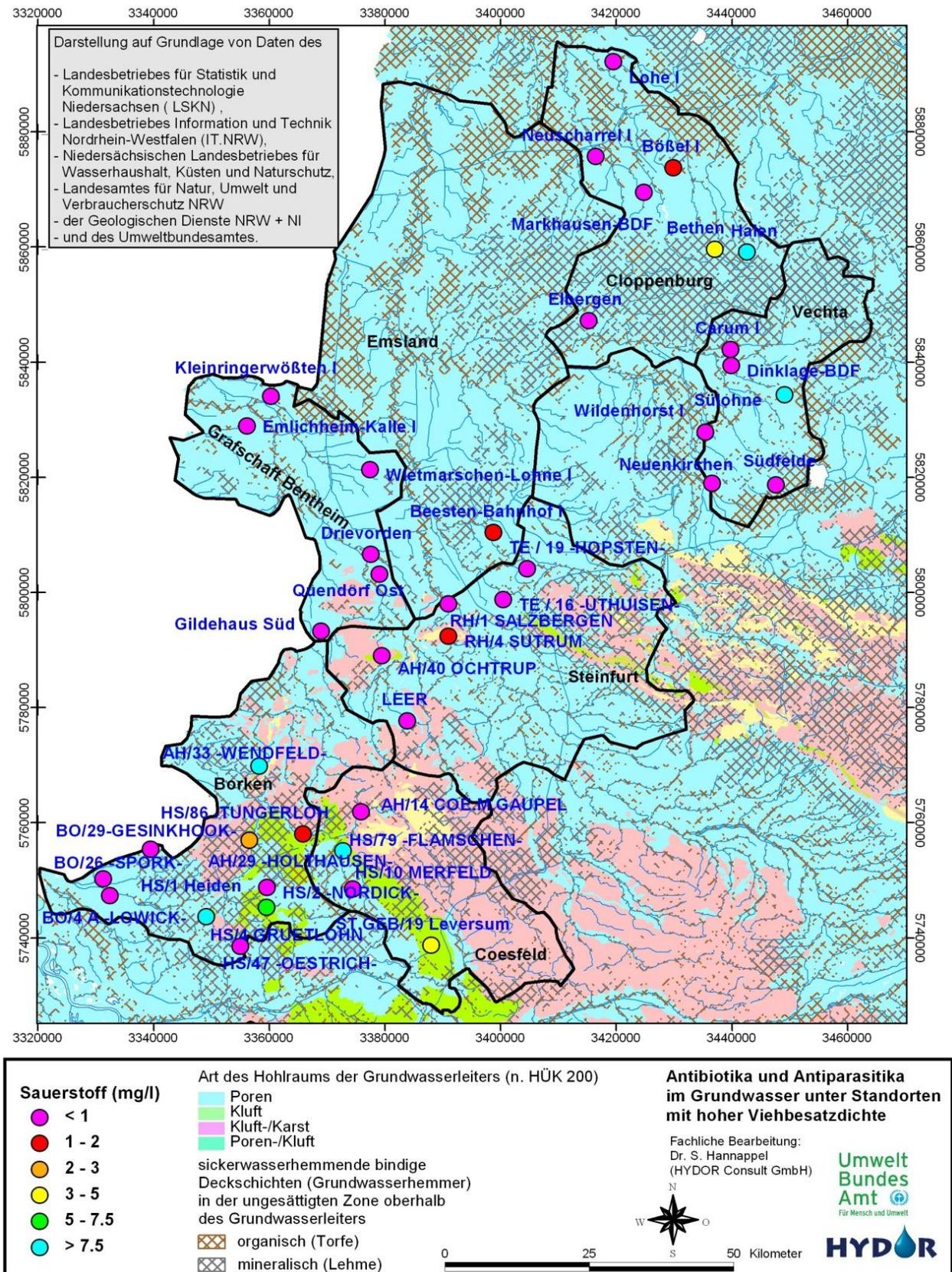
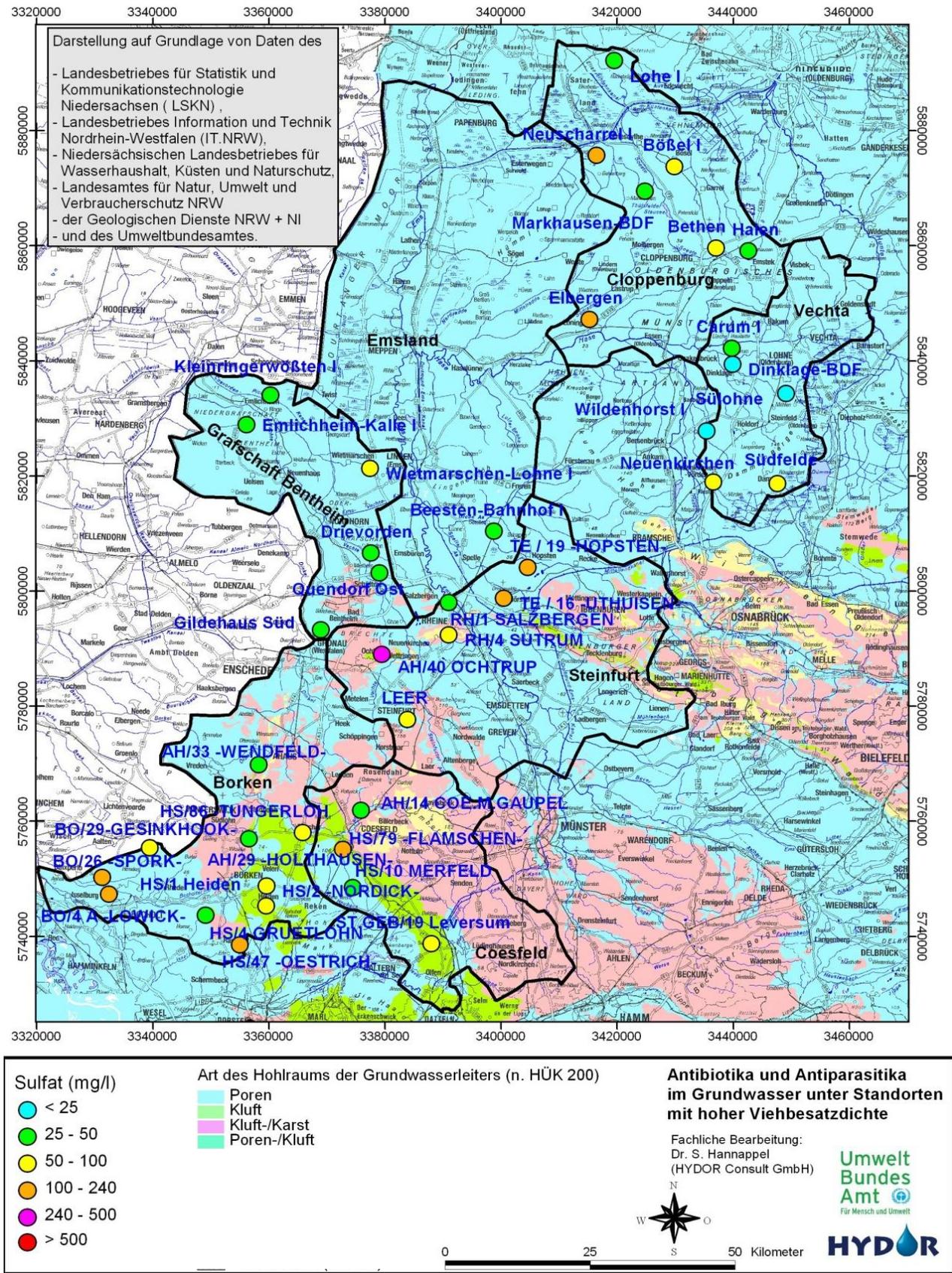


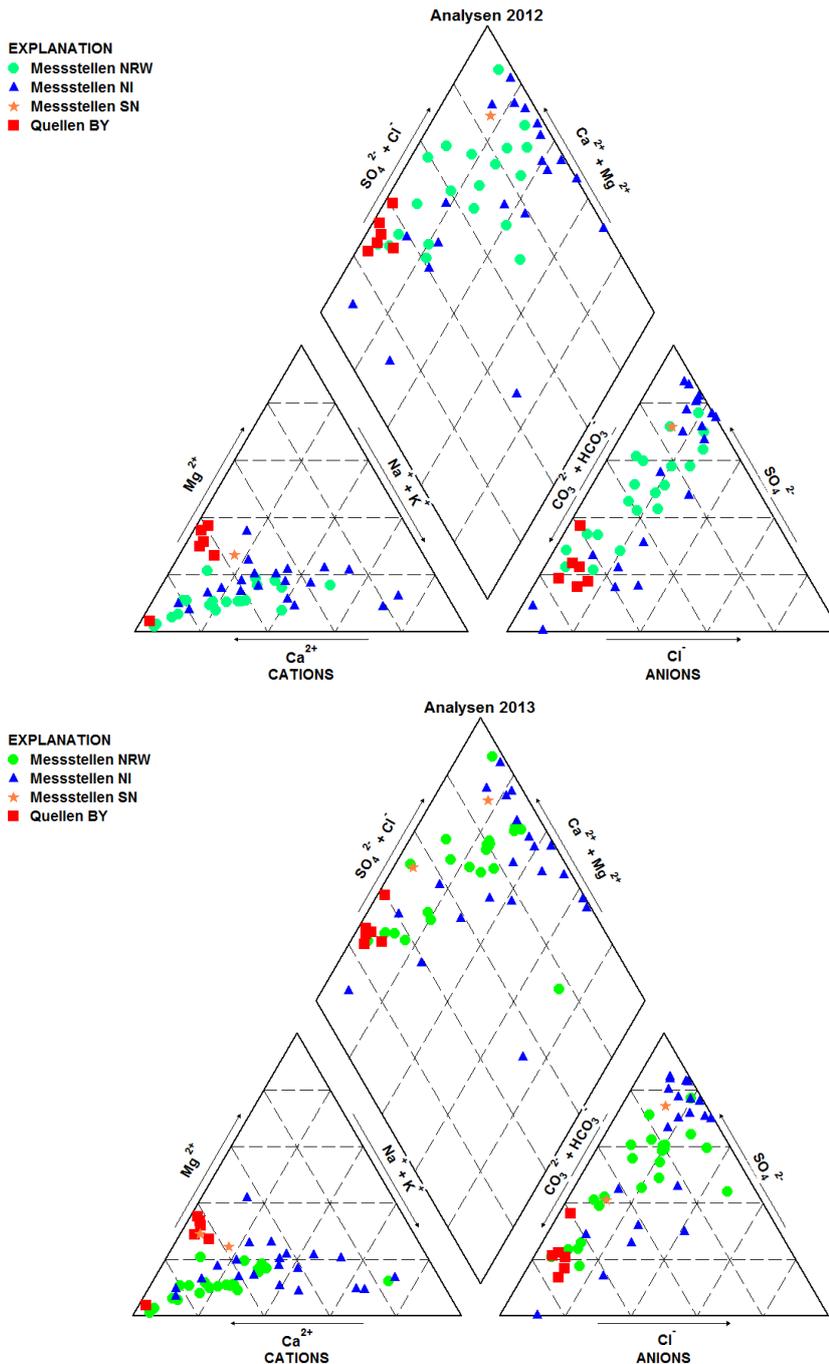
Abbildung 51: Sulfatkonzentrationen an den beprobten Grundwassermessstellen in NW und NI im Jahr 2012



## 9.2 Genetische Bewertung der Analyseergebnisse

Die genetische Bewertung wurde anhand der Klassifizierung nach PIPER (1944) durchgeführt. Abbildung 52 zeigt die Lagepunkte der Analysen von 2012 und 2013 im PIPER-Diagramm. Basis der Darstellung sind die molaren Äquivalentkonzentrationen der Kationen Calcium, Magnesium, Natrium und Kalium sowie der Anionen Chlorid, Sulfat (zzgl. Nitrat) und Hydrogencarbonat.

Abbildung 52: PIPER-Diagramme der Analysen aus dem Jahr 2012 (oben) und aus dem Jahr 2013 (unten) (PIPER 1944)



Anhand der Positionierung in den jeweiligen Diagrammbereichen lassen sich die Grundwässer genetisch klassifizieren und damit Rückschlüsse auf ihre Lagerungspositionen bzw. ihre geogene und/oder anthropogene Beeinflussung ziehen.

Die sechs Quell-Grundwässer aus Bayern z. B. unterscheiden sich von den übrigen Proben aus Norddeutschland deutlich durch ihre Position, die den Kalzium-Hydrogenkarbonat-Typ ( $\text{Ca-HCO}_3^-$ ) anzeigt. Diese beiden geogen geprägten Ionen zeigen deutlich den Einfluss der das Grundwasser überlagernden, carbonatisch geprägten Deckschichten der mesozoischen Festgesteine.

Die deutlich geringer mineralisierten Proben aus Niedersachsen - und auch eine der beiden sächsischen Proben - dagegen führen deutlich weniger Calcium bei den Kationen, da die ausschließlich silikatischen Sande in Norddeutschland nahezu carbonatfrei sind. Bei den Anionen dominieren die reduzierbaren Verbindungen Sulfat und Nitrat, die auf die landwirtschaftliche Beeinflussung der Grundwässer hinweisen.

Die Proben aus NW zeigen dagegen eine größere hydrochemische Variabilität, die vor allem

durch die lithologisch größere Bandbreite der die Grundwasserleiter aufbauenden Gesteine im Vergleich zu Niedersachsen verursacht wird. Fast alle Proben liegen in beiden Jahren in der oberen Hälfte des kombinierten Diagramms (Raute). Das zeigt deutlich an, dass es sich ausnahmslos um junge, neu gebildete Grundwässer handelt.

### 9.3 Übersicht zu den Ergebnissen der Analytik auf Tierarzneimittelwirkstoffe

Der Anhang dokumentiert die Ergebnisse der Analytik auf die Einzelwirkstoffe der Tierarzneimittel sowie von Carbamazepin zusammen mit den Konzentrationen der übrigen Inhaltsstoffe.

Zusammengefasst kann das Ergebnis der Analytik des Jahres 2012 folgendermaßen beschrieben werden:

- 20 der 23 Einzelwirkstoffe wurden in keiner der 48 untersuchten Proben oberhalb der Nachweisgrenze analysiert,
- insgesamt gab es vier Einzelfunde von drei TAM-Wirkstoffen, alle drei aus der Gruppe der Sulfonamide: Sulfadimidin, Sulfadiazin und Sulfamethoxazol,
- Sulfadiazin und Sulfadimidin wurden in drei Proben (Carum I und Kleinringerwösten I in Niedersachsen sowie Sutrum in NW) mit Konzentrationen  $\leq 11$  ng/l analysiert,
- Sulfamethoxazol (SMX) wurde in der Probe aus Nordick im Landkreis Borken in NW mit einer Konzentration von 230 ng/l analysiert, zugleich wurde in der Probe Carbamazepin, allerdings nur in einer extrem geringen Konzentration von 0,35 ng/l nachgewiesen,
- Bei Sutrum handelt es sich um den ersten dokumentierten Fund eines TAM-Wirkstoffes in einem Festgesteinsgrundwasserleiter (Kalkstein) in Deutschland,
- Insgesamt wurden also bei 4 der 48 Messstellen (= 8 %) Wirkstoffe laboranalytisch nachgewiesen, während bei 92 % der Proben keine Befunde vorhanden waren.

Die Ergebnisse der TAM-Analytik von 2013 können folgendermaßen zusammengefasst werden

- Bei Tetrazyklinen und den übrigen Wirkstoffgruppen gab es - wie bereits 2012 - auch 2013 keinen einzigen Befund oberhalb der Nachweisgrenze,
- Wie bereits 2012 wurden die gleichen drei Sulfonamid-Einzelwirkstoffe gefunden,
- Insgesamt gab es 14 Einzelfunde von TAM-Wirkstoffen oberhalb der Nachweisgrenze, 10 davon lagen auch oberhalb der Bestimmungsgrenze,
- Bei drei Proben wurde Sulfadimidin oberhalb der Nachweis-, aber unterhalb der Bestimmungsgrenze nachgewiesen (zwei in Niedersachsen, eine in NW),
- Sulfadiazin wurde in einer (Lowick in NW) und Sulfadimidin in vier Proben (Bösel I, Carum I, Wiethmarschen-Lohne und Kleinringerwösten I in NI) mit Konzentrationen oberhalb der Bestimmungsgrenze analysiert,
- Sulfamethoxazol (SMX) wurde in zwei Messstellen (Nordick in NW und Bösel I in NI) insgesamt sechsmal oberhalb von 100 ng/l (max. 950 ng/l) analysiert,
- In Nordick lagen die Konzentrationen bei vier Wiederholungsbeprobungen von März bis September 2013 relativ konstant bei etwa 200 ng/l (164 bis 229 ng/l),
- In Bösel lag SMX im Mai bei 138 ng/l, im September 2013 bei 950 ng/l, Carbamazepin wurde jeweils unterhalb der Nachweisgrenze analysiert,
- Die insgesamt 16 Proben der sechs Quellen in Bayern und der beiden Messstellen in Sachsen enthielten weder 2012 noch 2013 TAM-Rückstände oberhalb der Nachweisgrenzen,
- Von den vier Messstellen mit Funden 2012 gab es bei drei einen Wiederholungsfund 2013. Bei den übrigen sechs Messstellen mit Funden 2013 wurden 2012 keine Funde ermittelt.

Abbildung 53 dokumentiert das Ergebnis der Laboranalytik auf die 17 ausgewählten TAM der Tabelle 19 (ohne die 6 Tetrazykline, zu denen es keine Funde gab) probenbezogen in vierfach

Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte

klassifizierter grafischer Form für 2012 (oben) und 2013 (unten), letztere inklusive der gezielten vier Wiederholungsbeprobungen an den beiden Messstellen mit hohen Funden. Funde oberhalb von 0,1 µg/l - dem Grenzwert für Trinkwasser in Bezug auf Pflanzenschutzmittel in Deutschland - sind separat farbig hervorgehoben. Ein Grenzwert für Tierarzneimittelwirkstoffe im Trinkwasser existiert in Deutschland nicht.

Abbildung 53: Klassifizierte Form der Ergebnisse der Grundwasseranalytik auf 17 TAM-Wirkstoffe (ohne Tetrazykline) im Jahr 2012 (oben) und im Jahr 2013 (unten); LOD: limit of detection, Nachweisgrenze; LOQ; limit of quantification, Bestimmungsgrenze; siehe Angaben dazu in Kap. 5.2)

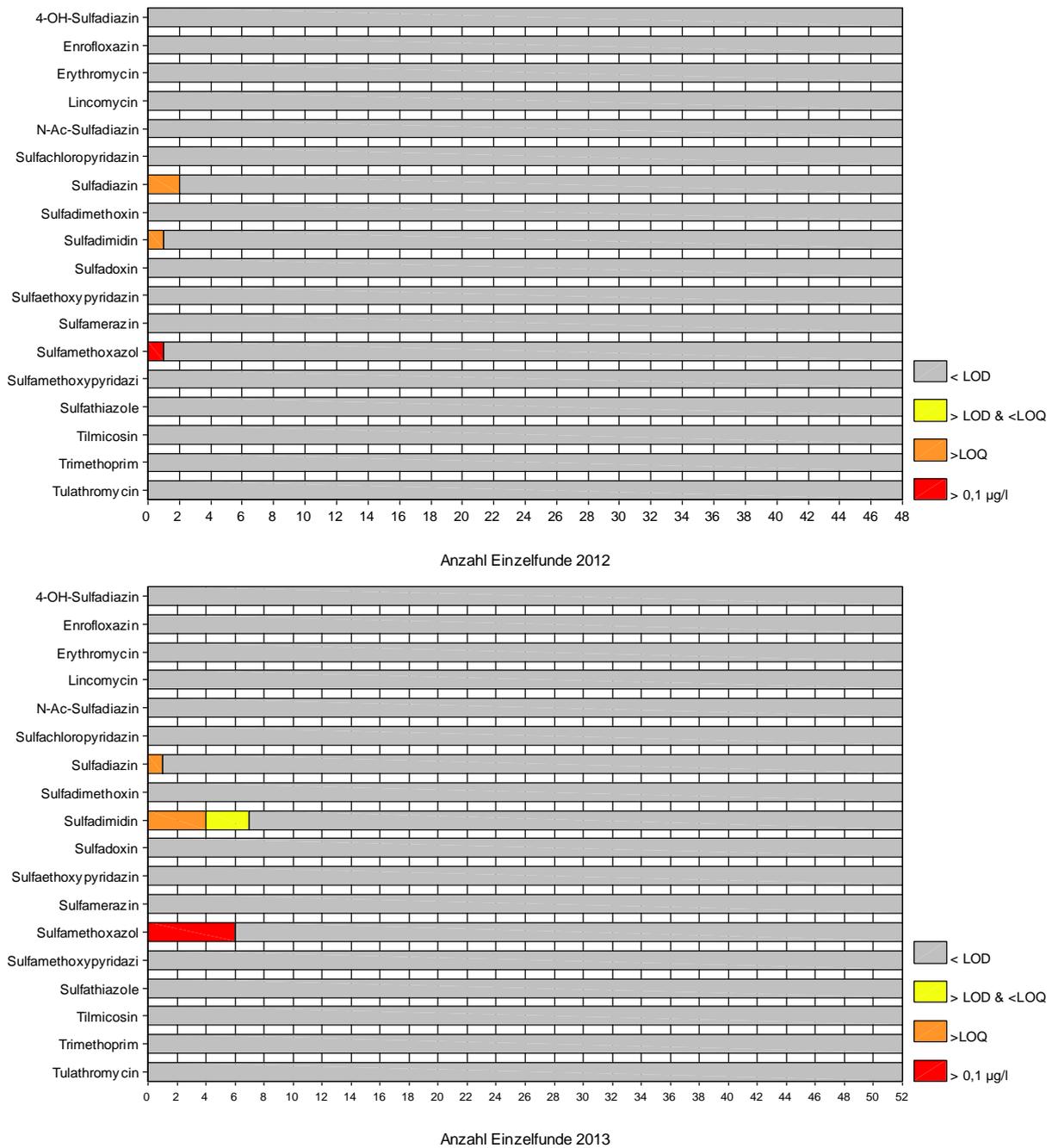


Tabelle 31 zeigt die Einzelfunde pro Messstelle und Wirkstoff in den beiden Jahren ergänzend bzw. als Ausschnitt aus der Gesamtdokumentation der Analyseergebnisse im Anhang. Nur bei den drei Messstellen Carum I, Kleinringerwösten I und Nordick gab es sowohl 2012 als auch 2013 Funde. Die obersten beiden Zeilen beinhalten die Werte der Nachweis- und Bestimmungsgrenzen-

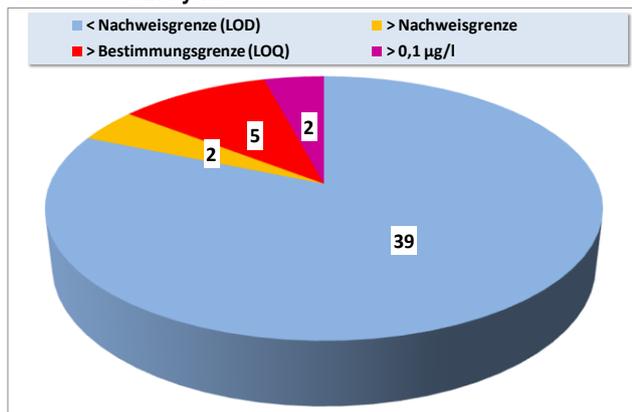
zen des INFU-Labors. Die letzte Spalte beinhaltet Informationen zur berechneten Verweilzeit des Sickerwassers nach der DIN 19732 (s. Kap. 7.5). Diese liegen im Mittel bei nur 13 Monaten und damit bei weniger als der Hälfte des Durchschnitts aller 40 beprobten Messstellen in Niedersachsen und NW.

Tabelle 31: Dokumentation der Konzentrationen aller Einzelfunde von TAM-Wirkstoffen in den Jahren 2012 und 2013 bei insgesamt neun Messstellen (der Suffix „I“ hinter dem Messstellennamen bedeutet, dass es sich hier um den oberen Filterausbau einer Mehrfachmessstelle mit einem unteren Ausbau „II“ handelt)

Name der Messstelle	Land	Datum PN	Sulfadiazin ng/l	Sulfadimidin ng/l	SMX ng/l	Verweilzeit
Nachweisgrenze (ng/l)			2	1	4	n. DIN 19734 in Monate
Bestimmungsgrenze (ng/l)			4	3	10	
Bösel I	NI	16.10.2012	<2	<1	<4	16
		27.05.2013	<2	4	138	
		25.09.2013	<2		950	
Markhausen-BDF	NI	16.10.2012	<2	<1	<4	12
		27.05.2013	<2	<3	<4	
Lohe I	NI	16.10.2012	<2	<1	<4	11
		27.05.2013	<4	<3	<4	
Carum I	NI	16.10.2012	10	<1	<4	8
		29.05.2013	<2	5	<4	
Kleinringerwösten I	NI	16.10.2012	<2	11	<4	11
		27.05.2013	<2	5	<4	
Wietmarschen-Lohne I	NI	16.10.2012	<2	<1	<4	14
		27.05.2013	<2	6	<4	
Sutrum	NW	13.08.2012	4	<1	<4	n.b. (Kluft-GWL)
		20.07.2013	<2	<1	<4	
Lowick	NW	20.08.2012	<2	<1	<4	25
		20.07.2013	4	<3	<4	
Nordick	NW	17.08.2012	<2	<1	230	7
		19.03.2013	<2	<1	229	
		17.07.2013	<2	<1	227	
		13.08.2013	<2	<1	181	
		25.09.2013	<2	<1	164	

Vor allem in Nordick, also bei der Messstelle mit den bisher häufigsten Funden, ist die Verweilzeit - und damit die zur Verfügung stehende Zeitdauer für den Abbau eingetragener TAM über die Gülle - von 7 Monaten besonders niedrig. Berücksichtigt werden muss zudem,

Abbildung 54: Messstellenbezogenes Ergebnis der TAM-Analytik

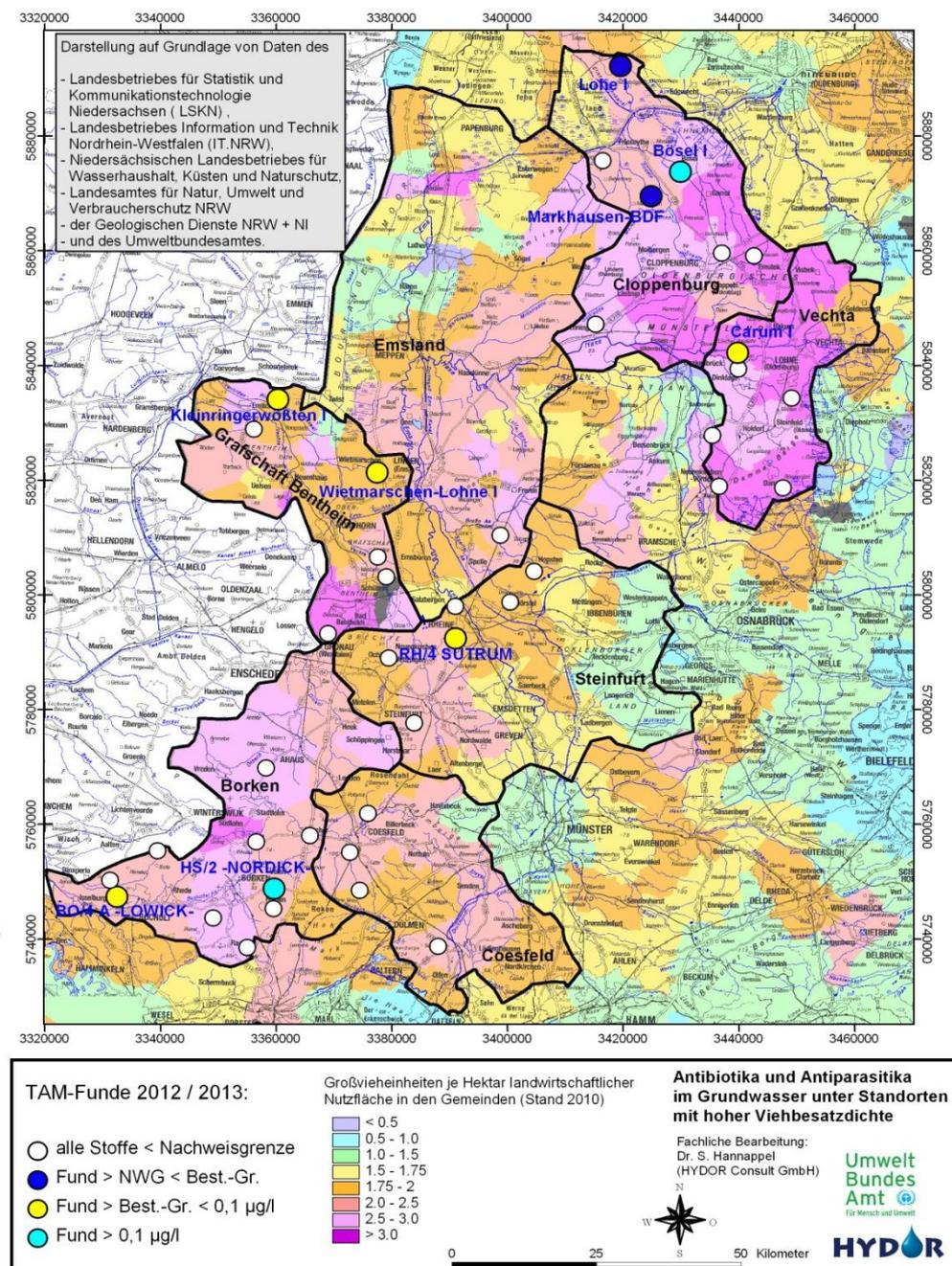


dass diese nach der DIN berechnete Verweilzeit auf der langjährigen mittleren Grundwasserneubildungsrate basiert. Die saisonale Gülleberegung, die mengenmäßig als zusätzliche Neubildungsmenge lokal wirksam wird, ist dabei nicht berücksichtigt. Die Verweilzeiten verkürzen sich entsprechend und liegen bei intensiver und regelmäßig wiederholter Gülleverbringung vermutlich noch deutlich niedriger, als in der letzten Spalte aufgeführt.

Messstellenbezogen betrachtet (s. Abbildung 54) wurden bei sieben von 48 Messstellen TAM oberhalb der Bestimmungsgrenze nachgewiesen, das sind 15 % der Messstellen. Nur bei den drei o. g. Messstellen allerdings konnte der Befund im Folgejahr 2013 bestätigt werden. Fundbezogen sind es 12 %, da bei 12 der insgesamt 100 entnommenen Grundwasserproben der Jahre 2012 und 2013 Wirkstoffe oberhalb der jeweiligen Bestimmungsgrenze nachgewiesen wurden.

Abbildung 55 dokumentiert die regionale Verteilung der Ergebnisse zu den TAM-Untersuchungen der Jahre 2012 und 2013 in Niedersachsen und NW in vierfach klassierter Form.

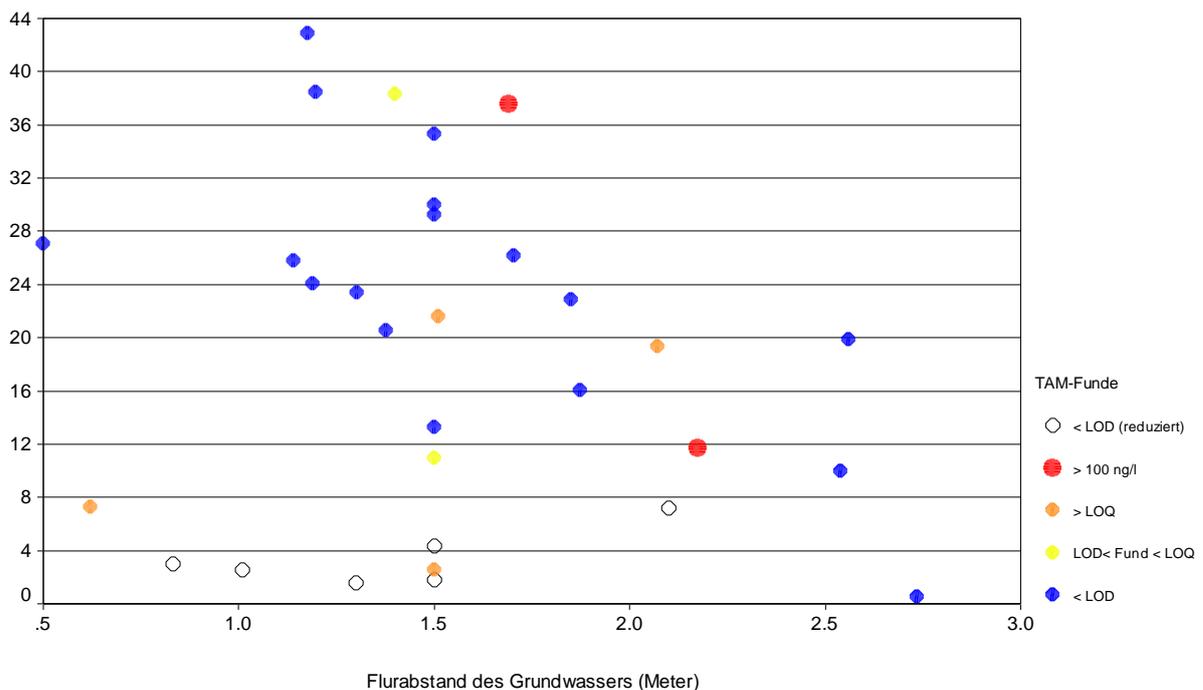
Abbildung 55: Regionale Verteilung der Messstellen mit Funden von TAM-Wirkstoffen in Niedersachsen und NW in den beiden Jahren 2012 und 2013 (der Suffix „I“ hinter dem Messstellennamen bedeutet, dass es sich hier um den oberen Filterausbau einer Mehrfachmessstelle handelt)



Drei der neun Messstellen liegen in NW (LK Borken und Steinfurth), sechs in Niedersachsen (LK Grafschaft Bentheim, Cloppenburg und Vechta). Ein direkter Bezug zu den in der Karte dargestellten Viehbesatzdichten lässt sich nicht herstellen. So wurden bei einer Reihe von Messstellen in Gemeinden mit sehr hoher Viehbesatzdichte ( $> 2.5 \text{ GV/ha*LF}$ ) keine TAM-Funde ermittelt, während die beiden Messstellen mit den hohen Funden  $> 0,1 \mu\text{g/l}$  in Gemeinden liegen, in denen dieser Wert etwa bei 2,0 liegt. Hier kommt also vermutlich lokalen Ursachen des Eintrages von TAM in das Grundwasser eine größere Bedeutung zu als die aus der Landwirtschaftsstatistik übernommene Angabe zur gemeindlichen Viehbesatzdichte. In den Kap. 9.4 und 9.5 wird daher der Versuch unternommen, für die neun Messstellen auf Basis vorhandener bzw. überlieferter Informationen von den Partnerinstitutionen eine gezieltere Fundstellenaufklärung zu betreiben.

Abbildung 56 zeigt den Zusammenhang zwischen den TAM-Funden und dem Gesamt-Stickstoffgehalt (Nitrat + Ammonium) des Grundwassers sowie den bei den Messstellen gemessenen Flurabständen innerhalb des dargestellten Intervalls bis 3 Meter Flurabstand. Ein Zusammenhang zwischen Flurabstand und Stickstoffgehalt deutet sich an, ist jedoch nicht besonders ausgeprägt. Mit zunehmenden Flurabständen verringern sich tendenziell die Stickstoffgehalte, deren höchste

Abbildung 56: Beziehungen zwischen dem Flurabstand des Grundwassers, den mittleren Gesamt-Stickstoffgehalten (berechnet) sowie den TAM-Funden in den Jahren 2012 und 2013



Werte bei niedrigen Flurabständen des Grundwassers zwischen 1 und 2 Meter auftreten. Bei den mit offenen weißen Kreisen dargestellten Messstellen handelt es sich um reduzierte Grundwässer, in denen Ammonium dominiert.

Sehr deutlich wird allerdings auch, dass ein direkter Zusammenhang zwischen dem Stickstoffgehalt und den TAM-Funden nicht besteht. Die rot und orange dargestellten Messstellen mit TAM-Funden oberhalb der Bestimmungsgrenze bzw. oberhalb von  $0,1 \mu\text{g/l}$  treten sowohl bei niedrigen als auch bei stark erhöhten Stickstoffgehalten im Grundwasser auf. Deutlich wird also, dass zur Erklärung des TAM-Eintrages in das Grundwasser nicht nur die Menge des Wirtschaftsdüngers alleine als Kriterium herangezogen werden darf. Vielmehr sind dafür eine Reihe weiterer Standort- und Untergrundfaktoren zu berücksichtigen, die im Folgenden getrennt nach den sieben Standorten mit TAM-Funden im Konzentrationsbereich der Nachweis- bzw. Bestimmungsgrenzen (s. Kap.

9.4) sowie den beiden Messstellen mit wiederholten oder stark erhöhten Funden oberhalb von 0,1 µg/l (s. Kap. 9.5) bewertet werden.

#### 9.4 Bewertung der sieben Standorte mit Funden im Bereich der Nachweis- bzw. Bestimmungsgrenzen

Tabelle 32 dokumentiert zu den sieben Standorten mit nachgewiesenen Funden der beiden Sulfonamide Sulfadimidin und Sulfadiazin im Bereich der Nachweis- bzw. Bestimmungsgrenzen (s. Tabelle 31). Informationen zu ausgewählten Stammdaten der Messstellen und zum gemeindebezogenen Tierbestand sowie Daten der Beprobung und Analytik im Jahr 2013.

Tabelle 32: Ausgewählte Informationen zu den sieben Messstellen mit Nachweisen von Sulfonamiden (n.n. nicht nachweisbar, n. a.: nicht analysiert, \*: jeweils bezogen auf Hektar\*LF)

Messstellename	Bundesland	Datum Probenahme	Filteroberkante m	Filterunterkante m	Flurabstand 2013 m	Nitrat 2013 mg/l	Ammonium mg/l	Zink µg/l	Kupfer µg/l	Geologie aus SVZ	Viehbesatzdichte*	Anzahl Rinder*	Anzahl Schweine*	Anzahl Hühner*
Lowick	NW	02.08.	2	15	1,41	93	1.6	4.5	n.a.	mS, fS	2,4	2,7	5,8	21,9
Sutrum	NW	20.06.	4,5	9	3,52	94	0.1	15	n.a.	Kluft	2,1	1,3	11,2	35,4
Carum I	NI	29.05.	3	4	1,13	47	0.6	22	3.9	fS	3,0	1,4	18	85
Kleinringerwö. I	NI	27.05.	5	6	0,44	124	0.3	28	5.8	S	1,8	1,8	5,7	0,1
Lohe I	NI	27.05.	3	4	0,99	155	0.2	11	3.0	fS, mS	2,1	2,6	2,7	58
Markhausen	NI	27.05.	7	9	2,09	62	n.n.	50	7.0	fS, mS	2,3	1,5	8,0	114
Wietm.-Lohne I	NI	27.05.	9	17	1,15	0.5	3.1	<10	<1	fS	1,8	1,3	9,9	31

Der ausschließliche Nachweis von Sulfonamiden passt zu den Ergebnissen der Literaturrecherche. Die drei in den beiden Jahren 2012 und 2013 nachgewiesenen Wirkstoffe wurden auch in der Vergangenheit bereits wiederholt in Deutschland und international im Grundwasser gefunden. Die anderen Wirkstoffgruppen mit bisher dokumentierten Funden (z. B. Fluorchinolone) konnten jedoch trotz wiederholter Analytik in keiner einzigen der 48 beprobten Messstellen nachgewiesen werden. Auffällig ist zudem, dass SMX wiederholt in sehr hohen Konzentrationen > 0,1 µg/l an zwei Messstellen, die beiden übrigen Sulfonamide jedoch meist vereinzelt (Ausnahme: Sulfadimidin in Kleinringerwösten) und in niedrigen Konzentrationen im Bereich von maximal 11 ng/l nachgewiesen wurden. Das deutet auf stoffspezifisch unterschiedliche Sorptions- und Abbaueigenschaften und weniger auf standortspezifische Charakteristika hin. Ausgehend von Ergebnissen der DFG-Forschergruppe „Veterinary Medicines in Soil - Basic Research for Risk Analysis“ ist davon auszugehen, dass Sulfadiazin und Sulfadimidin zwar an den Bodenpartikeln gebunden vorliegen, jeweils kleine aber periodisch Mengen an das Bodenwasser abgegeben werden können (Sukul et al. 2008, Förster et al. 2009, eigene Ergebnisse INFU/FZ Jülich, s. auch Abbildung 6).

Bei allen sieben in Tabelle 32 aufgeführten Messstellen handelt es sich um oberflächennah ausgebaute Messstellen mit geringen Flurabständen des Grundwassers und daraus resultierend kurzen Verweilzeiten des Sickerwassers in sandigen Substraten (Ausnahme: Messstelle Sutrum in NW) mit einem Mittelwert von nur vierzehn Monaten (s. Abbildung 57). Die Stickstoffgehalte des Grundwassers sind bei allen 7 Messstellen erhöht bis stark erhöht, was auf einen kontinuierlichen Eintrag von Wirtschaftsdünger gewertet werden kann. Zumeist liegt Nitrat oberhalb von 50 mg/l, in Wietmarschen-Lohne ist es Ammonium mit 3,1 mg/l. Nach Auskunft des NLWKN wird hier im Umfeld der Messstelle intensiv gewirtschaftet.

Die gemeindebezogenen Angaben zur Viehbesatzdichte differieren stark. Sie reichen von 1,8 bis 3,0 GV/ha\*LF. Bei zwei der Standorte dominieren die Rinder bei den Angaben zur Anzahl der gehaltenen Tiere pro Hektar landwirtschaftlicher Nutzfläche in den Gemeinden (Lohe und Lowick). Bei zwei weiteren sind es Hühner (Markhausen und Carum), während Schweine bei keiner Messstelle stark überrepräsentiert sind. Besser zu interpretieren sind hier jedoch zustrombezogene Angaben, die nachfolgend exemplarisch erläutert werden. Abbildung 57 bis Abbildung 60 zeigen die Luftbilder zu den 4 Standorten zusammen mit den Grundwassergleichen, der daraus abgeleiteten Fließrichtung und den Zustromgebieten.

Abbildung 57: Zustromgebiet Messstelle Sutrum



Die Messstelle in Sutrum (1100290045, siehe Abbildung 57) ist oberflächennah von 4,50 bis 9,50 m Tiefe in einem von Sanden überlagerndem Kalkstein ausgebaut. Das ist der bisher einzige nachgewiesene TAM-Fund in Deutschland in einem Festgesteins-Grundwasserleiter. Der Zutritt erfolgt hier vorwiegend über Klüfte.

Der Zustrom zu der Messstelle erfolgt von Norden. Innerhalb des Zustromgebietes wurden von der Landwirtschaftskammer NW (siehe Tabelle 22 und Tabelle 28, dort heißt der Standort „Neuenkirchen“) sechs Flächen ausgewertet. Im Ergebnis konnte festgehalten werden, dass auf ca. 70-80 % der landwirtschaftlichen Bewirtschaftungsfläche langjährig Gülle aus einer Mastschweinehaltung zur Düngung verwendet wurde.

Abbildung 58: Zustromgebiet Messstelle Lowick im LK Borken



Bei der Messstelle Lowick westlich von Bocholt (s. Abbildung 58) erfolgt der Zustrom von Südosten aus der landwirtschaftlichen Nutzfläche heraus. Der Filterausbau reicht von 2 bis 15 m unter Gelände, durch diese lange Strecke erfolgt eine Unschärfe durch den lateralen Zustrom von Grundwasser in den tieferen Filterabschnitten. Die Nutzflächen wurden nach Angabe der LWK NW in den letzten Jahren primär mit Rinder- und Schweinemastgülle behandelt, untergeordnet kam auch Milchgülle zum Einsatz.

In Carum (siehe Abbildung 59) erstreckt sich das Zustromgebiet nach Südosten. Die Messstelle liegt in

Abbildung 59: Zustromgebiet und Foto der Messstelle Carum I im Kreis Vechta in Niedersachsen

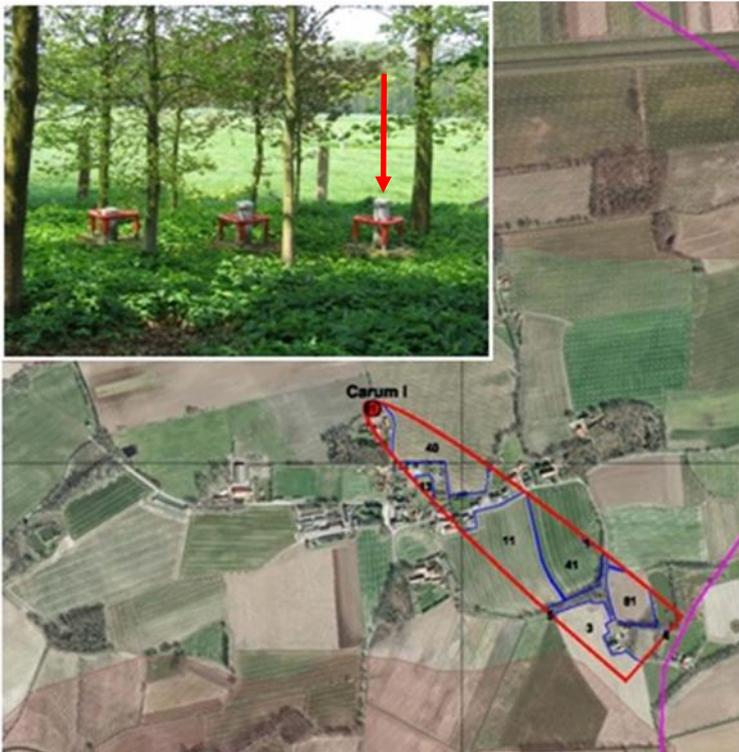
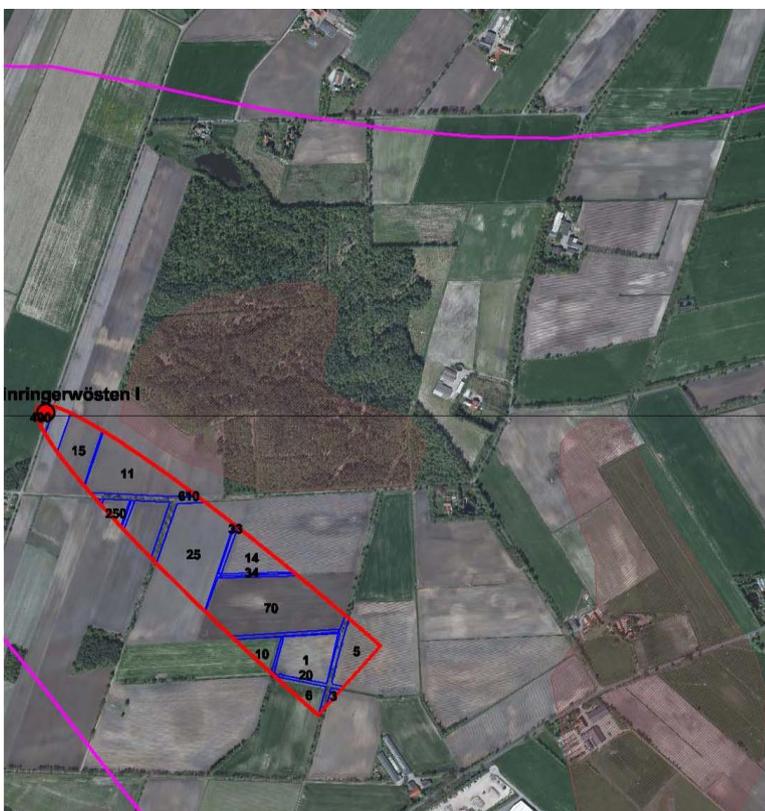


Abbildung 60: Zustromgebiet der Messstelle Kleinringewösten I in der Grafschaft Bentheim in Niedersachsen



Messstellen nicht durch Auffälligkeiten im Umfeld der Standorte bisher zufriedenstellend erklärt werden können. Dafür finden sich bisher zu wenige Besonderheiten.

Carum im Randbereich einer Hofstelle, die nicht mehr selbst bewirtschaftet wird (Angaben vom NLWKN). Das Umfeld ist geprägt durch intensive Landwirtschaft. Eine Grünlandfläche im Umfeld des Betriebes ist vor einigen Jahren umgebrochen und in Ackerland umgewandelt worden. Die gemeindliche Viehbesatzdichte ist sehr hoch (siehe Tabelle 29). Im Zustromgebiet liegen 17 Schläge (siehe ID-Nummern in Abbildung 59). Die flächengrößten davon sind nahezu „tierfrei“, zu einem der Schläge mit einer Größe von 1,5 ha sind jedoch 300 Mastschweine und zu einem anderen 12 ha großen Schlag 160 Rinder in der Agrarstatistik angegeben. Die in Kap. 7.8 bereits erwähnte Einschränkung der Aussagekraft dieser Daten im Hinblick auf die orts- und tierartenspezifische Gülleverbringung erschwert die Interpretation dieser Daten.

In Kleinringewösten I (siehe Abbildung 60) sind Auffälligkeiten im Umkreis der Messstelle nicht bekannt. Die Flächen im Umfeld der Messstelle werden landwirtschaftlich genutzt. Über die Düngemengen und die Art des Düngemittels liegen keine Angaben vor. Etwa 3 km entfernt befinden sich Masthähnchenställe und eine Naturdüngerfabrik. Es ist davon auszugehen, dass die gesamte Menge an Hähnchenkot in der Fabrik zu Naturdünger verarbeitet wird. Zu den 37 Schlägen beinhaltet die Agrarstatistik z. T. sehr hohe Anzahlen von Ferkel, Mast- und Zuchtschweinen.

Zusammenfassend wird eingeschätzt, dass die Funde an den 7

## 9.5 Bewertung der beiden Standorte mit stark erhöhten Funden

### 9.5.1 Standort Nordick

Im Grundwasser der Messstelle in Nordick bei Heiden im Landkreis Borken wurden vom LANUV NW im Rahmen eines Screening-Programms in landwirtschaftlich intensiv genutzten Bereichen bereits wiederholt Funde von Sulfamethoxazol festgestellt, und zwar in den Jahren 2008 und 2009 (Hembrock-Heger et al. 2011). Die Konzentrationen lagen in diesen Jahren bei 0,3 bzw. 0,37 µg/l. Die Ergebnisse aus den Jahren 2012 und 2013 befinden sich mit Werten zwischen 0,16 und 0,23 µg/l in der gleichen Größenordnung. Damit sind inzwischen die hohen Konzentrationen über fünf Jahre hinweg dokumentiert, wenn auch mit einer leicht fallenden Tendenz (s. Tabelle 31) seit der Erstanalyse.

Die Konzentrationen der übrigen Sulfonamide lagen unter der Bestimmungsgrenze. Auf der landwirtschaftlichen Fläche im Zustromgebiet konnten im Boden weder Sulfamethoxazol noch andere Sulfonamide, jedoch Tetrazykline nachgewiesen werden. Aus der Gesamtheit der vom LANUV damals untersuchten Messstellen wurden acht Messstellen auch in die Untersuchungen 2012 und 2013 einbezogen, da sie den „worst-case“-Kriterien entsprachen.

An der Messstelle in Nordick konnte der Befund der vier Jahre zurückliegenden Messungen eindeutig bestätigt werden. Der Zustrom des Grundwassers zur Messstelle erfolgt von Süden, das zeigt das ausgewiesene Zustromgebiet des Grundwassers zu der Messstelle. Die Messstelle selber liegt in unmittelbarer Nachbarschaft zu einem Gehöft im Anstrom der Messstelle. Im Umfeld der Messstelle befinden sich mehrere Höfe mit Viehbestand (Geflügel). Zusätzlich befinden sich dort Biogasanlagen sowie Reitställe mit Pferdehaltung.

Abbildung 61 dokumentiert das vom Geologischen Dienst Nordrhein-Westfalen übergebene Original-Schichtenverzeichnis der Altbohrung vom September 1951. 1978 erfolgte ein Ersatzneubau

Abbildung 61: Geologisches Schichtenverzeichnis der Messstelle des LANUV in Nordick

<b>Schichten-Verzeichnis</b>			
der Bohrung: <u>Nordick (Halturner Sande 2)</u> in <u>Nordick</u> bei			
Gradabteilung: _____ Nr. _____ Höhe über N.N. _____		Blatt: <u>Borken</u> Nr. <u>4107</u> Koordinaten: n. _____ h. _____	
Zweck und Erfolg der Bohrung: <u>Landesgrundwasserdienst</u>			
Zeit der Ausführung: <u>September 1951</u> 25.9.51			
Bohrmethode: <u>Trocken</u>		Wasserstand mit Datum: <u>1,70 m u. Gel.</u>	
Bohrfirma/Auftraggeber: <u>O. Vormann - Münster</u>		Geol. bearbeitet durch: <u>Bode 26.1.52</u>	
Tiefe in m bis	Mächtigkeit in Metern	Geologische Bezeichnung („Angaben des Bohrmeisters“)	Formation
0,30		Humoser Mittel - Feinsand	
1,90		Mittel - Feinsand, hellgrau/bräunlich	
2,90		Mittel - (Feinsand), hellgrau	
4,00		Mittel - Feinsand, grau, mit Kieslagen, Kiese bis Pflaume	<i>Ks<sub>1</sub></i>
5,00		Mittel - Feinsand m. Kieslagen, braun	<i>(Halturner Sande)</i>
6,00		Mittel - Feinsand (? schw. lehm.) rotbraun, m. Kieslagen, besond. Quarze	
6,50		Feinkies + schw. lehm. Mittel - Feinsand, Kiese (Fliege) fast durchweg Quarze	
10,00		Mittel - Feinsand, rotbraun m. wenig Feinkieslagen	
11,20		Mittel - Feinsand, rotbraun m. Kieslagen, grob	
20,00		Wechsel. von Mittelsand, Mittel - Feinsand u. schw. lehm. Feinsand, rotbraun, mit wenig Feinkies	

am gleichen Standort und in der gleichen Tiefe. Die Probenahmeprotokolle der insgesamt fünf Proben aus den beiden Jahren 2012 und 2013 dokumentieren eine nur geringe Absenkung des Ruhewasserspiegels sowie sauerstoffführendes Wasser und gemessene Redoxpotentiale um 400 mV,

die nicht auf ein reduzierendes Milieu in der Messstelle hindeuten. Der Messstelle wurde jedoch jeweils nur eine sehr geringe Menge an Grundwasser entnommen, sie ist zudem mit einer Weite der eingebauten Rohre von 115 mm (großer Durchmesser) nicht optimal auf die Zielstellung der Entnahme von Proben für Beschaffenheitsuntersuchungen angepasst.

Der Filterausbau der Messstelle befindet sich von 4,7 bis 7,7 m unter Gelände. Die Grundwasseroberfläche liegt zwischen 2 und 3 Meter unter Gelände. Die ungesättigte Zone sowie der obere Bereich des ausgebauten Grundwasserleiter werden im Ergebnis der Sieb- und Schlämmanalyse von Mittel- und Feinsanden aufgebaut, die den kreidezeitlichen, sog. „Halturner Sanden“ (s. „Formation“) zugeordnet werden können. Diese haben nach Wisotzky (2011) mit Abstand die niedrigsten  $C_{org}$ -Gehalte unter verschiedenen Lockergesteinen in NW (0,02 Gew. %, s. Tabelle 33). Da der  $C_{org}$ -Gehalt für die Sorption von TAM von Bedeutung ist, kann davon ausgegangen werden, dass der Untergrund in der Umgebung der Messstelle in Nordick nur eine sehr geringe natürliche Sorptionskapazität besitzt. Da keine andere der 20 ausgewählten Messstellen in NW in den Halturner Sanden verfiltert ist, ist dies nach dem derzeitigen Kenntnisstand die plausibelste Erklärung der in Nordick so hohen Konzentrationen der Sulfonamide über viele Jahre hinweg.

Tabelle 33:  $C_{org}$ -Gehalte ausgesuchter Grundwasserleiter in NW ergänzt durch Schwefel-Pyrit-Daten (Wisotzky 2011, frdl. vom Autor ergänzt und übermittelt; \*: S: Sand, G: Kies, U: Schluff)

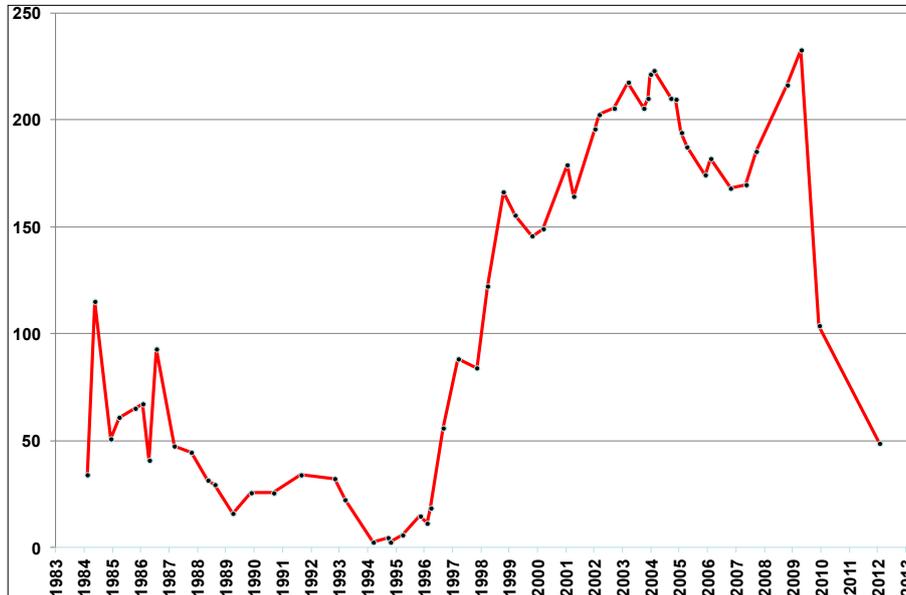
Zeitalter	Gestein	Korngröße*	$S_{pyrit}$ (Gew.%)	$C_{org}$ (Gew.%)	Anzahl	Quelle
Quartär	Terrasse	S, G	< 0,001	0,021	6	WISOTZKY, 1994
	Nieder- und Mittelterrasse	S, G	0,021	0,05	173	Daten WISOTZKY
	Terrasse Rhein und Maas	S, G	< 0,02	0,09	23	MÄURER, WISOTZKY, BECKE, 2009
	Münsterländer Kiessandzug	S, G, U	0,237	0,15	29	WISOTZKY, 2011
	Sennesande	S	< 0,02	0,25	38	Daten WISOTZKY
	Fuhrberger Feld	S-G	0,045	0,25	9	ESCHENBACH & WELL 2013
	Cloppenburg Geest ( qd-qe)	fS-mS, U	0,065	0,10	14	ESCHENBACH & WELL 2013
Tertiär	Hauptkiesserie	S, G	0,097	0,44	25	WISOTZKY, 1994
	Neurather Sande	S	0,338	0,33	70	WISOTZKY, 1994
	Frimmersdorfer Sande	S	0,215	1,10	25	WISOTZKY, 1994
	Grafenberger Sande	S	0,09	0,22	55	MÄURER, WISOTZKY, BECKE, 2009
Kreide	Haltturner Sande, Coesfeld	S	0,046	0,41	36	Daten WISOTZKY
	Haltturner Sande, Nordvelen	S	0,19	0,27	60	Daten WISOTZKY
	Haltturner Sande, Haltern	S	< 0,02	0,04	50	Daten WISOTZKY
	Haltturner Sande, Borken	S	0,02	0,02	58 (17 für $C_{org}$ )	Daten WISOTZKY

Im Zustromgebiet wurden nach Auskunft der LWK NW in den fünf Jahren von 2007 bis 2011 ca. 40 % Schweinegülle und 60 % Rindergülle sowie Biogasgärreste verbracht. Da für Rinder kein Sulfamethoxazol-haltiges Arzneimittel in Deutschland zugelassen ist, muss der seit vielen Jahren anhaltende Eintrag entweder über die Schweinegülle oder über die Biogasgärreste erklärt werden. Tabelle 27 beinhaltet feldblock- und jahresbezogen weitere Details zur Gülleverbringung, anhand derer ersichtlich wird, dass die Biogasgärreste auf den fünf Feldblöcken im Zustromgebiet erst seit 2010 verbracht worden sind. Da jedoch bereits 2008 durch das LANUV sehr hohe SMX-Gehalte im Grundwasser festgestellt wurden, lässt sich hier keine Kausalkette herleiten.

In den vergangenen 20 Jahren unterlagen die Nitrat-Werte bei der Messstelle Nordick sehr starken Schwankungen und lagen über 10 Jahre hinweg bis 2010 auf einem sehr hohen Niveau (siehe

Abbildung 62). Auch die Ammonium-Konzentrationen liegen langjährig auf einem deutlich erhöhten Niveau von etwa 2 mg/l (siehe auch Abbildung 39). Das gleichzeitige Auftreten der beiden

Abbildung 62: Nitratkonzentrationen (mg/l) der Messstelle Nordick von 1984 bis 2013



Stoffe zeigt deutlich an, dass sich das Grundwasser noch nicht im hydrochemischen Gleichgewicht befindet, also sehr jung ist. Bestätigt wird das auch durch die Konzentrationen der übrigen Hauptinhaltsstoffe, z. B. sehr niedrige Calcium- und Hydrogencarbonatgehalte. Kalium und TOC wiederum sind deutlich erhöht, ein weiteres Indiz auf die landwirtschaftliche Beeinflussung.

Seit 2010 allerdings fallen die Nitratwerte sehr stark. Auch in den beiden Jahren 2012 und 2013 lagen sie bei den insgesamt fünf Beprobungen bei nur noch durchschnittlich 60 mg/l. Sowohl die SMX-Gehalte als auch die Nitratwerte haben also seit 2010 deutlich abgenommen, liegen aber beide immer noch auf einem hohen Niveau.

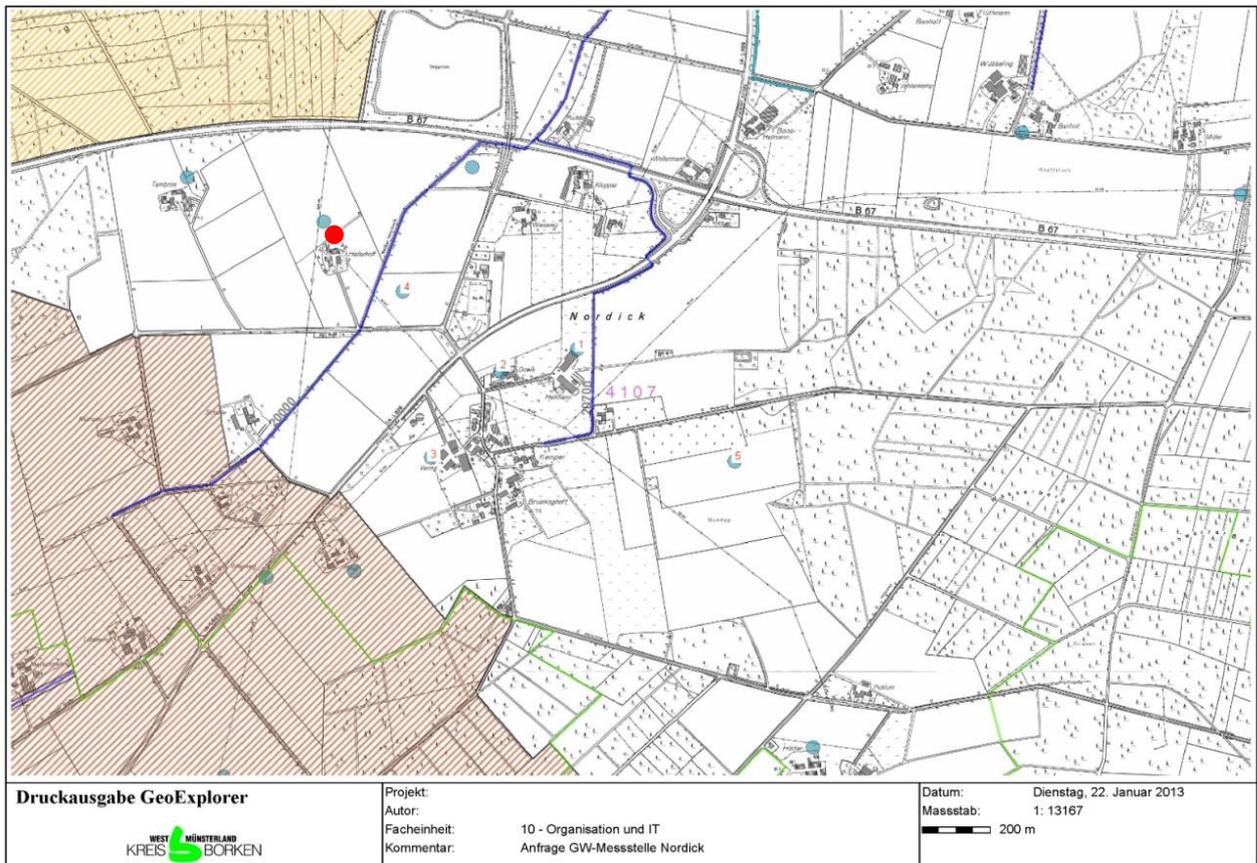
Hembrock-Heger et al. (2011) interpretierten die hohen Stickstoffgehalte dahingehend, dass vermutlich hohe Aufwandmengen an Gülle in den Boden eingetragen und die eingetragenen Nährstoffe und Sulfamethoxazol mit dem Sickerwasser ausgetragen wurden. Zudem gingen sie ebenfalls von einer schnellen Versickerung von Sulfamethoxazol mit dem Sickerwasser und von einer schlechten biologischen Abbaubarkeit aus, da SMX an die organische Substanz in Böden vergleichsweise schwach gebunden und leicht wieder desorbiert wird. Diese Erklärung ist vor allem vor dem Hintergrund der geringen  $C_{org}$ -Gehalte der Halterner Sande schlüssig.

Zur weiteren Erklärung der hohen SMX-Konzentrationen muss berücksichtigt werden, dass am Standort ein Bewässerungsrecht für eine landwirtschaftliche Beregnung aus Grundwasser vorliegt. Abbildung 63 zeigt dazu die Standorte, an denen die Grundwasserentnahme bzw. -verrieselung erfolgt. Diese Informationen wurden von der Unteren Wasserbehörde (UWB), Landkreis Borken zur Verfügung gestellt. Der Umfang der landwirtschaftlichen Bewässerung umfasst nach Angaben der UWB Borken etwa 100 mm/a, verteilt über drei Zeitpunkte innerhalb der Vegetationsperiode. Hierdurch verkürzen sich die Verweilzeiten des Sickerwassers - vor allem im Sommer - zusätzlich und es ist bekannt, dass die Konzentrationen von Sulfonamiden im Sickerwasser bei landwirtschaftlicher Zusatzbewässerung ansteigen können (Blackwell et al. 2009).

Die Untere Wasserbehörde übermittelte folgende weitere Informationen:

- In der näheren Umgebung der Messstelle liegen verschiedenen Hofstellen mit einem genehmigten Tierbestand von 100 Kühen, 102 Jungrindern, 230 Rindern, 127 Kälbern, 25 Mastrindern und 800 Mastschweinen,
- Es existiert eine Biogasanlage die mit Nawaros, Rinder- und Schweinegülle, Hühner-trockenkot, Rinder- und Hähnchenmist beschickt wird. Die Gärreste werden auf eigenen Flächen und über die Nährstoffbörse NW verwertet,

Abbildung 63: Anlagen zur landwirtschaftlichen Bewässerung (blaue Punkte) im Umfeld der Messstelle Nordick (roter Punkt) (frdl. zur Verfügung gestellt von der Unteren Wasserbehörde des LK Borken)

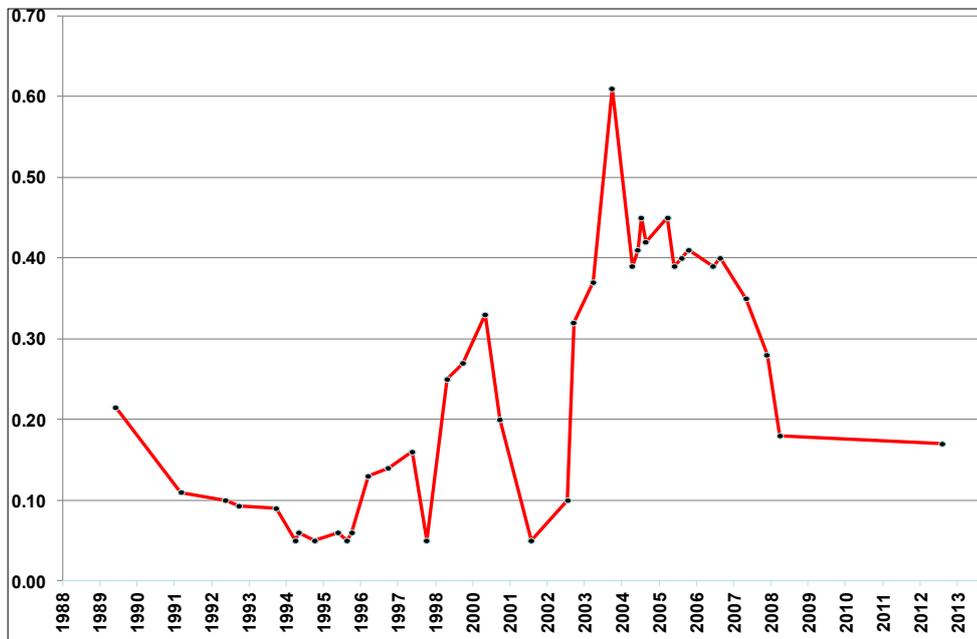


- Die umliegenden Kleinkläranlagen leiten das gereinigte Abwasser in Gewässer ein. Eine dieser Anlagen ist 2012 durch zu hohe CSB-Werte aufgefallen, sie ist jedoch mittlerweile saniert. Zwei weitere Anlagen wurden erst 2012 errichtet und wurden noch nicht gewartet. Belastungen oder Mängel sind nicht bekannt. Hinweise auf Belastungen durch Medikamente sind nicht zu erkennen. Im Umkreis von mehr als 600 m liegen weitere Kleinkläranlagen, die über den Untergrund in das Grundwasser verrieseln.
- An der Hofstelle selber existiert keine Kleinkläranlage, es liegt jedoch auch kein Anschluss an die öffentliche Abwasserentsorgung vor. Die Untere Wasserbehörde geht davon aus, dass eine dichte Sammelgrube existiert, die regelmäßig entleert wird.

Auffällig sind zudem bereits seit vielen Jahren die deutlich erhöhten Bor-Gehalte an der Messstelle (siehe Abbildung 64), die klar über den regional bekannten Konzentrationen und auch über den Hintergrundgehalten des Grundwassers in Deutschland liegen. Seit einigen Jahren sind sie allerdings deutlich rückläufig, auch 2012 und 2013 lagen die Konzentrationen mit Werten zwischen 0,13 mg/l und 0,17 mg/l zwar noch erhöht, aber nicht mehr so hoch wie vor etwa 10 Jahren. Der Zutritt von Bor über ein oberirdisches Gewässer in das Grundwasser, also die Infiltration

ration in das Grundwasser erscheint sehr unwahrscheinlich. In der Nähe befindet sich zwar der Oberlauf der Bocholter Aa, diese ist jedoch hier noch ein solch kleines Gewässer, das in ihr vermutlich keine Kläranlagenabläufe vorhanden sind. Es besteht auch kein Wasserrecht zur Einleitung von häuslichem Abwasser in das Grundwasser.

Abbildung 64: Bor-Gehalte in Nordick von 1988 bis 2012 in mg/l (Daten vom LANUV NW)



SMX wird auch in der Humanmedizin eingesetzt. Um den Eintrag von kommunalem oder sonstigem Abwasser auszuschließen, wurde das in der Humanmedizin häufig eingesetzte und im oberflächennahen Grundwasser in Deutschland aufgrund seiner physikochemischen Eigenschaften sehr oft nachgewiesene (Massmann et al. 2007) Antiepileptikum Carbamazepin (CMZ) in allen Proben analysiert. In der im August 2012 entnommenen Probe wurde CMZ mit 0,35 ng/l nachgewiesen, in den vier im Jahr 2013 entnommenen Proben lagen die Konzentrationen jeweils unter der Bestimmungsgrenze von 0,3 ng/l. Diese Konzentrationen können nicht dahingehend interpretiert werden, dass das Grundwasser im Zustromgebiet der Messstelle durch häusliche Abwässer mit etwaigen Rückständen von Humanpharmaka beeinflusst ist, dafür sind die Konzentrationen eindeutig zu niedrig und das Verhältnis zu den nachgewiesenen Sulfonamiden zu gering. In Bayern z. B. wurde (LfU 2008) die Kombination eines CMZ-Fundes von 110 ng/l (also etwa 300mal so viel wie in Nordick) im Zusammenhang mit einer SMX-Konzentration von 56 ng/l in einer Trinkwasserprobe als Hinweis auf den Eintrag von Humanantibiotika über häusliche Abwässer gewertet. Die in Nordick nachgewiesene Konzentration dagegen liegt bei anderen Untersuchungen unterhalb der Bestimmungsgrenze und sollte daher nicht überinterpretiert werden.

Inwiefern ein Zusammenhang der Anomalien von Bor und Carbamazepin zu den Kleinkläranlagen in der Umgebung besteht, kann nicht abschließend geklärt werden, er erscheint jedoch nach den Hinweisen der unteren Wasserbehörde unwahrscheinlich. Eine zusätzliche separate Beprobung des Wassers der Kleinkläranlage wurde deshalb innerhalb des Projektes nicht durchgeführt. Zur weiteren Fundstellenaufklärung der nachgewiesenen Konzentrationen der TAM am Standort erscheint jedoch die direkte Kontaktaufnahme mit dem Landwirt zur Verbesserung des Informationsstandes zur verbrachten Gülle sowie eine zeitlich parallele Beprobung der Gülle mit dem Grundwasser und ggf. dem Sickerwasser sinnvoll (s. auch Kap. 10).

### 9.5.2 Standort Bösel

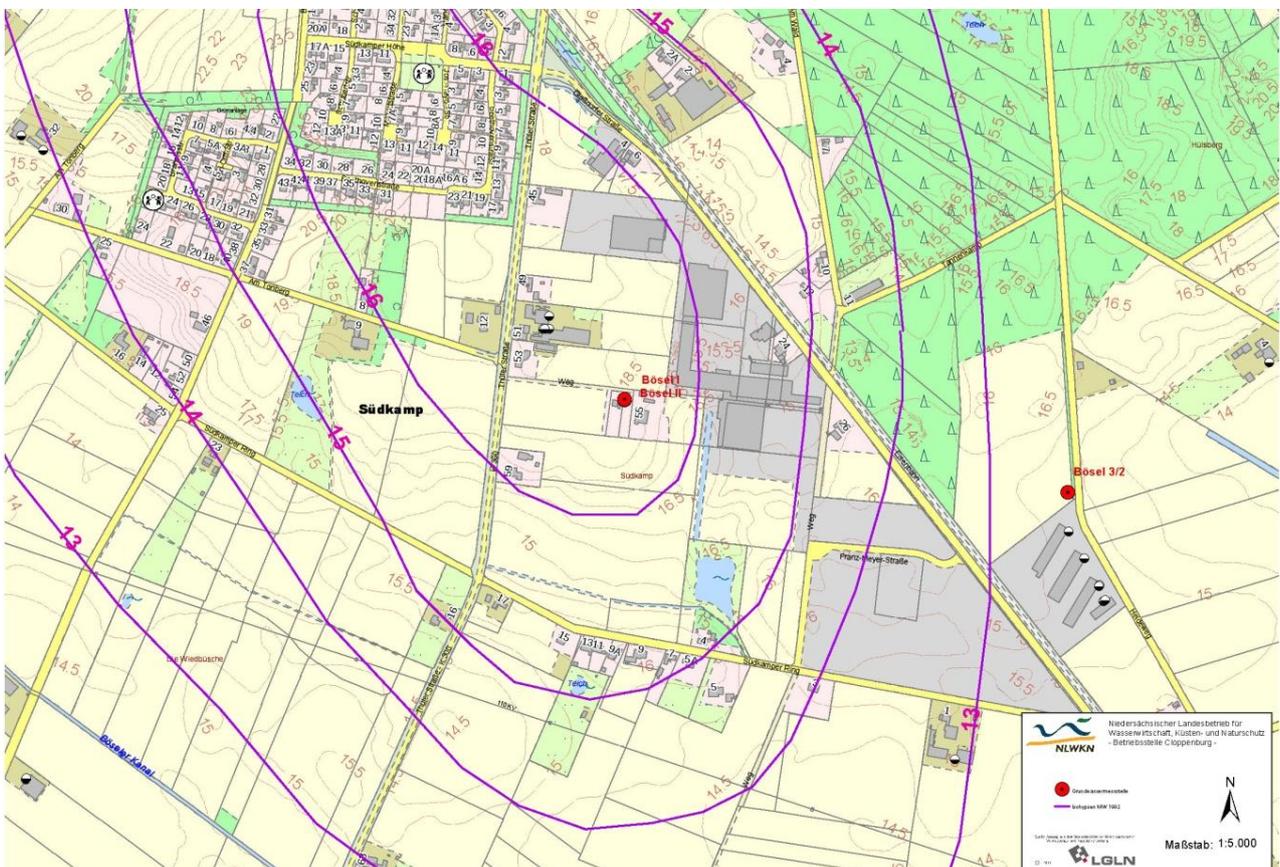
Die Messstelle Bösel I (also der obere Filterausbau einer Messstellengruppe) liegt südwestlich der Ortschaft Bösel im Norden des Landkreises Cloppenburg. Die gemeindliche Viehbesatzdichte liegt bei 2,9 GV/ha\*LF - also fast dem dreifachen des bundesdeutschen Durchschnitts - und nach den Daten der Agrarstatistik 2010 dominiert die Schweinehaltung. In der Region wird jedoch nach Angabe des NLWKN auch intensive Hähnchenmast betrieben. Im (seitlichen) Grundwasserzustrom der Messstelle befand sich im Herbst 2013 eine Zwischenlagerungsstelle für Geflügelmist (s. Abbildung 65, zu deren Dauer jedoch keine Informationen vorhanden sind).

Abbildung 65: Geflügelmistlagerung westlich der Messstelle Bösel (rechts) im Herbst 2013 (frdl. zur Verfügung gestellt vom NLWKN, Betriebsstelle Cloppenburg)



Die vom NLWKN zur Verfügung gestellte Übersichtskarte zum Standort der Messstellengruppe Bösel I/II (s. Abbildung 66) beinhaltet zum Umfeld des Messstellenstandortes einige vom NLWKN recherchierte Informationen zur Nutzung in der Nähe der Messstelle inkl. aktueller Informationen vom Herbst 2013. Das direkte Umfeld der Messstelle wird landwirtschaftlich genutzt, im Herbst 2013 dominierte der Anbau von Mais und Getreide.

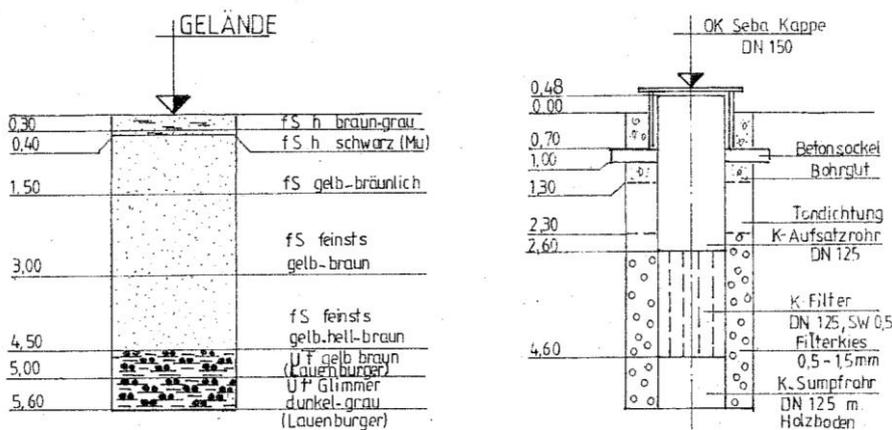
Abbildung 66: Lageplan der Messstelle Bösel I mit Informationen des NLWKN zum Umfeld des Messstellenstandortes (frdl. zur Verfügung gestellt vom NLWKN, Betriebsstelle Cloppenburg)



Zudem enthält die Karte Informationen zur Dynamik des oberen Grundwasserleiters, die von der Betriebsstelle Cloppenburg des NLWKN ergänzend zu den landesweit verfügbaren Daten zur Grundwasserdynamik zur Verfügung gestellt wurden. Aus dieser geht hervor, dass der Zustrom des oberflächennahen Grundwassers zur Messstelle vermutlich von Nordwesten erfolgt, es handelt sich um eine Toplage - innerhalb der 16 m-Isohypse - mit einem kleinen Zustromgebiet. Im Zustrom zur Messstelle befindet sich ein Landwirtschaftsbetrieb mit Schweinehaltung.

Abbildung 67 zeigt das geologische Schichtenverzeichnis und den Ausbauplan der in nur 2,6 bis 4,6 m unter Gelände verfilterten Messstelle mit einer berechneten Verweilzeit des Sickerwassers

Abbildung 67: Schichtenverzeichnis (links) und Ausbau (rechts) der Messstelle Bösel I des NLWKN (zur Verfügung gestellt von der Betriebsstelle Cloppenburg des NLWKN)

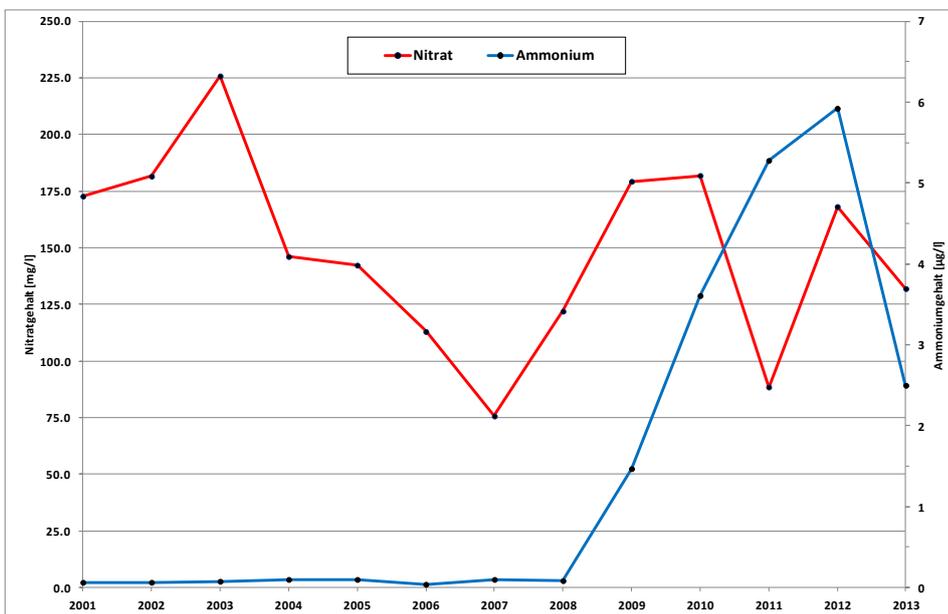


in der ungesättigten Zone von nur 16 Monaten. Der Flurabstand des Grundwassers lag in den beiden Jahren 2012 und 2013 zwischen 2 m und 2,5 m unter Gelände. Wie auch bei der Messstelle Nordick befindet sich der Filterausbau in Feinsanden ohne bindige Deckschichten direkt unterhalb der Grundwasser-

oberfläche. Es handelt sich hier jedoch um quartäre, altpleistozäne Sande, in denen die  $C_{org}$ -Gehalte zwar deutlich höher als in den kreidezeitlichen Halterner Sanden von Nordick, dennoch aber im Vergleich zu anderen Bildungen niedrig sind und damit auch nur geringe Sorptionskapazitäten aufweisen (s. Tabelle 33, „Cloppenburg Geest“). Unterlagert wird der am Standort nur etwa 4 m mächtige Grundwasserleiter von Schluffen und Sanden des „Lauenburger Tones“, einem regional bedeutsamen Grundwasserhemmer. Erst unterhalb davon folgt der bedeckte und wasserwirtschaftlich genutzte Grundwasserleiter.

In den vergangenen 12 Jahren lagen die Stickstoff-Werte in Bösel (s. Abbildung 68) konstant auf

Abbildung 68: Stickstoffkonzentrationen der Messstelle Bösel I von 2001 bis 2013



hohem Niveau. Wie auch in Nordick treten Nitrat und Ammonium periodisch gleichzeitig gelöst auf, auch das wieder ein Zeichen dafür, dass das Grundwasser sich noch nicht im hydrochemischen Gleichgewicht befindet. Im Mittel lagen die Nitratgehalte in den vergangenen 12 Jahren bei 150 mg/l und sind damit ein klares Anzeichen dafür,

dass das oberflächennahe Grundwasser hier stark landwirtschaftlich beeinflusst ist.

Die Analytik auf die Begleitstoffe bei den drei Beprobungen im Oktober 2012 sowie im Mai und September 2013 stützen die o. g. Einschätzung des „jungen“ Grundwassers mit starkem Einfluss der Grundwasserneubildung. So sind die Calcium- und Hydrogencarbonatgehalte mit wenigen mg/l extrem gering. Kalium dagegen liegt stark erhöht vor (z. B. 23 mg/l im Oktober 2012) und auch DOC (7,1 mg/l) zeigt die anthropogene Beeinflussung. Das Grundwasser ist nahezu sauerstofffrei, verbunden durch die stark erhöhten Nitratgehalte weist es jedoch deutlich erhöhte Redoxpotentiale von > 500 mV auf, das hydrochemische Milieu wirkt also nicht reduzierend auf die gelösten Inhaltsstoffe. Sulfamethoxazol wird unter diesen Bedingungen nicht bevorzugt abgebaut, da unter anoxischen Bedingungen der Abbau besser verläuft (Heberer et al. 2008). Das trifft in gleichem Maß auch auf die Messstelle in Nordick zu.

Auffällig sind in Bösel auch sehr niedrige pH-Werte, verbunden mit stark erhöhten Aluminium-Gehalten. Von allen 48 beprobten Messstellen hat nur die Messstelle Beesten noch niedrigere pH- und höhere Al-Gehalte, dort sind jedoch die Nitratwerte deutlich niedriger, vermutlich ist hier also die Belastung mit Wirtschaftsdünger geringer. Verursacht werden die niedrigen pH-Werte durch den lithologischen Aufbau der altpleistozänen Feinsande, in denen aufgrund der langanhaltenden Auswaschung seit dem Ende der Eiszeit keine oder nur noch sehr wenig puffernde, karbonatische Bestandteile im Korngerüst mehr enthalten sind. Im Mittel der drei Beprobungen lagen die pH-Werte bei 4,5, also im - für Grundwasser - extrem sauren Bereich. Dadurch erklären sich auch die stark erhöhten Aluminium-Gehalte. Sie lagen 2012 bei 1400 µg/l und 2013 bei 840 bzw. 1100 µg/l. Das sind gegenüber dem geogenen Hintergrund (283 µg/l für oberflächennahes Grundwasser in Norddeutschland, Kunkel et al. 2004) deutlich erhöhte Gehalte. Sie stehen mit den niedrigen pH-Werten in Verbindung, da das sonst an die Silikate (Feldspäte, Glimmer und Tonminerale) gebundene Aluminium nur dann im Wasser mobil ist (Hannappel 1996).

Problematisch sind die erhöhten Aluminium-Gehalte deswegen, weil der mikrobielle Abbau von TAM-Wirkstoffen dadurch vermutlich behindert oder unterbunden wird. Liegen nämlich die pH-Werte in der ungesättigten Zone unterhalb von pH 6, befindet sich das normalerweise nicht bioverfügbare Aluminium zunehmend in Form des sogenannten „freien“ Aluminiums. In dieser Bindungsform kann es dann auf Bodenbakterien toxisch wirken (Pina & Cervantes 1996). Bei einem pH-Wert von 4,5 im Grundwasser ist sicher davon auszugehen, dass die Werte in der ungesättigten Zone aufgrund der Redoxbedingungen nicht höher, eher sogar noch niedriger sind.

Diese Aluminium-Toxizität ist die derzeit schlüssigste Erklärung für den im September 2013 gemessenen, extrem hohen Wert von 950 ng/l SMX im Grundwasser der Messstelle Bösel. Wie Tabelle 32 dokumentiert, handelt es sich hier um einen (bisher) isolierten Ausreißerwert aller in den beiden Jahren nachgewiesenen Konzentrationen, der quai als „Durchbruch“ des Wirkstoffes in das Grundwasser interpretiert werden kann. Auffällig sind die starken Unterschiede der drei Bestimmungen: während im Oktober 2012 SMX unterhalb der Nachweigrenze lag, wurde sieben Monate später 138 ng/l und weitere vier Monate später 950 ng/l analysiert.

Das spricht für eine hohe zeitliche Varianz des Eintrages bzw. Transports von SMX im Untergrund, der innerhalb des Projektzeitraumes nicht mehr nachgegangen werden konnte, die aber zukünftig an diesem Standort unbedingt geklärt werden sollte. Dabei sollte auch die Frage im Mittelpunkt stehen, ob es sich hier um einen Standort mit singulären „Ausreißereigenschaften“ (z. B. die von der Betriebsstelle Cloppenburg des NLWKN im Oktober 2013 festgestellte, temporäre Lagerung von Geflügelmist in einem Abstand von nur wenigen Hundert Metern im hydraulischen Zustrom zur Messstelle) handelt, oder ob Erkenntnisse auf andere Standorte in Gebieten mit stark erhöhter Viehbesatzdichte in Deutschland übertragen werden können.

## 10 Resume und Ausblick

Nach dem abschließenden Kenntnisstand im Projekt, nach Durchführung der Sitzungen der projektbegleitenden Arbeitsgruppe im Zeitraum von Dezember 2011 bis Oktober 2013 sowie nach Auswertung des Abschlussgespräches am 14.10.2013 mit bundesweit vertretenen Experten aus der Umweltverwaltung und aus der Land- und Wasserwirtschaft wird folgendes Resume gezogen:

### 10.1 Defizite und offene Fragen

- Nicht bekannt sind in Deutschland lokale Daten zu tierartbezogenen Einsatzmengen (Verschreibungen) von TAM-Wirkstoffen über die 2. Postleitzahl-Ziffer hinaus;
- Als wesentliches Defizit bleibt die Unkenntnis über die konkrete TAM-Zusammensetzung der Gülle, die auf den Schlägen im Zustrom der Messstellen in den vorangegangenen Jahren verbracht wurde;
- Nicht eindeutig geklärt werden konnten die standortspezifischen Ursachen für die TAM-Funde an sieben Messstellen in niedrigen (wenige ng/l) bzw. an zwei Messstellen in hohen Konzentrationen ( $> 100$  ng/l);
- die Viehbesatzdichten alleine sind offenbar kein ausreichendes Kriterium, tierartenspezifische Unterschiede konnten ebenfalls nicht eindeutig als Ursachen für die TAM-Funde identifiziert werden;
- Unklar ist auch der Abbau in der ungesättigten Zone unterhalb des Bodens; die durchgeführten Beprobungen an den bestehenden Messstellen der Landesmessnetze geben nur Auskunft über die TAM-Konzentrationen im Grundwasser nach der Vermischung mit lateral zuströmendem Grundwasser;
- Jahreszeitliche Schwankungen, die mit dem saisonalen Niederschlagsverhalten in Verbindung stehen könnten, deuten sich an, die Datenlage ist dazu bisher allerdings zu gering;
- Die beprobten Grundwassermessstellen sind aufgrund ihrer vorgegebenen Lage und ihrer Verfilterung nicht direkt unterhalb der Grundwasseroberfläche nicht optimal an die Fragestellung angepasst. Sie liefern daher keine präzisen Daten zu Eintrags- und Transformationsprozessen der TAM in der Versickerungsstrecke vom Boden bis zum Grundwasser;
- Noch nicht hinreichend geklärt ist der Einfluss landwirtschaftlicher Beregnung nach Art (Grund- bzw. Oberflächenwasser, Abwasser), Intensität und periodischen Einflüssen;
- Ebenso sind Abbauprozesse im Boden, Verweilzeiten des Sickerwassers in der ungesättigten Zone und die Anstromrichtung des Grundwassers bisher nicht ausreichend untersucht;
- Bei der Umwandlung in Transformationsprodukte neu entstehende Substanzen wurden nach dem aktuellen Stand der Analytik untersucht (z. B. von Sulfadiazin das 4-OH-SDZ). Hier muss die Auswahl aber immer an den Wissensfortschritt angepasst werden;
- Der Einfluss der Düngeausbringung ist noch nicht hinreichend geklärt, z. B. bekommen Milchkühe kaum Antibiotika, Mastrinder und Kälber aber schon;
- Die Bedeutung des Zeitpunktes der Verbringung der Gülle im Vergleich mit dem Zeitpunkt der Probenahme muss näher untersucht werden (Verweilzeiten des Sickerwassers);
- Die Belastung des wasserwirtschaftlich genutzten Grundwassers für die öffentliche Trinkwasserversorgung in Deutschland aufgrund von TAM-Einträgen wurde im Projekt nicht untersucht. Hierzu gibt es nach derzeitigem Kenntnisstand auch nur sehr wenige und nicht aktuelle Daten, so dass ein Wissensdefizit konstatiert werden muss.

## 10.2 Schlussfolgerungen

Folgende Schlussfolgerungen und Empfehlungen können aus den Daten und Erkenntnissen des Projekts gegeben werden:

- Die bisherigen Ergebnisse deuten auf keine allgemein problematische Belastungssituation des Grundwassers hin, in Bayern und Sachsen z. B. gab es an den beprobten Grundwassermessstellen und Quellen gar keine Funde. In Regionen mit sehr hoher Viehbesatzdichte im Nordwesten Deutschlands gibt es jedoch an wenigen Standorten sehr hohe Funde eines einzelnen TAM (SMX), die einer näheren Ursachenforschung und Interpretation bedürfen;
- Die lokale Erfassung der Abgabe von Tierarzneimitteln sollte verbessert werden, damit die dadurch generierten Daten für Forschungszwecke zur Verfügung stehen; dazu gehören auch flächenschärfere Informationen über den Antibiotikaeinsatz, da bisher nur die ersten beiden PLZ-Ziffern erfasst und lediglich Wirkstoffgruppen benannt werden;
- Die bisher identifizierten Standorte mit hohen TAM-Funden in Niedersachsen und NW sollten zeitlich verdichtet weiter untersucht werden. Stichworte sind hier das langfristige Monitoring sowie das Verständnis der Einflussgrößen und Mechanismen;
- Der Kriterienkatalog für die Standortwahl zukünftiger Messungen kann - bei Beibehaltung der bisherigen Kriterien des „worst-case“-Ansatzes- um neue Kategorien erweitert werden (z. B. Biogasanlagen, Kleinkläranlagen, landwirtschaftliche Beregnung);
- Notwendig dafür ist die Aufstellung und Gewichtung geogener und anthropogener Faktoren zur Identifizierung von Gebieten mit einem erhöhten Risiko des Eintrages von Tierarzneimitteln aus der Viehmast über die Gülle in den Untergrund;
- In die Untersuchungen einbezogen werden sollten auch oberirdische Gewässer (Drainagen, Entwässerungsgräben, kleinere Flüsse) im Bereich der Risikostandorte;
- Bei zukünftigen Messungen sollten lokale Expertenkenntnisse und Informationen der landwirtschaftlichen Betriebe, die innerhalb der Zustromgebiete des Grundwassers wirtschaften, frühzeitig einbezogen werden, z. B. zur Art und zur Intensität des Gülleinsatzes; dafür ist eine enge Kooperation mit den Landwirtschaftskammern sinnvoll;
- Ergänzend zu den bisherigen Untersuchungen sind Probenentnahmen mit einer variablen Standortwahl und der Möglichkeit der gezielten Probenentnahme direkt unterhalb der Grundwasseroberfläche sinnvoll, um quantifizierbare Informationen zum Abbau zu erlangen; hierzu sollten Grundwassersondierungen mit einem geeigneten Verfahren (Rammkern- oder Direct-Push-Sondierungen) durchgeführt werden;
- Auch prozess-orientierte Untersuchungen (Lysimeter, Säulenversuche, Wirkungspfad Güllelager/Vergärung, Boden, ungesättigte, oxische Versickerungszone, Grundwasser) erscheinen sinnvoll, um den Transferpfad sowie Langzeiteffekte der möglichen Anreicherung zu untersuchen;
- Eine enge Zusammenarbeit mit den Ländern bzw. der LAWA sollte angestrebt werden, um derzeit dort laufende Aktivitäten berücksichtigen zu können. In Ergänzung / Präzisierung zum Grundwasser-Monitoring der Länder sollten ausgewählte Standorte in einem Sondermessnetz „Veterinärpharmaka/Tierarzneimittel im Grundwasser“ zusammengefasst werden, um langfristig wirksame Trends beobachten und bewerten zu können.
- Die in Kap. 10.1 skizzierten Defizite und offenen Fragen in Bezug auf Einflussgrößen und Mechanismen des TAM-Eintrags sollten in weiterführenden Arbeiten zur detaillierten Fundstellenaufklärung verfolgt werden;

## 11 Literaturverzeichnis

- Ad-hoc-Arbeitsgruppe Boden (2005): Bodenkundliche Kartieranleitung. Hrsg: Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe in Zusammenarbeit mit den Staatlichen Geologischen Diensten, 5. Auflage, 438 S.
- Alexy, R. & K. Kümmerer (2005): Antibiotika in der Umwelt.- Sonderdruck aus KA - Abwasser, Abfall 52. Jahrgang, Heft 5/2005, Seite 563 bis 571.
- Alvarez, J. A., Otero, L., Lema, J. M. & F. Omil (2010): The effect and fate of antibiotics during the an-aerobic digestion of pig manure.- *Bioresource Technology* 101, 8581-8586
- Aust, M.O., Thiele-Bruhn, S., Seeger, J., Godlinski, F., Meissner, R. & P. Leinweber (2010): Sulfonamides leach from sandy loam soils under common agricultural practice.- *Water, Air and Soil Pollution*, 211/1-4, 146-153.
- Avisar, D., Lester, Y. & D. Ronen (2009): Sulfamethoxazole contamination of a deep phreatic aquifer.- *Science of the Total Environment* 407, 4278-4282.
- Baran, W., Adamek, E., Ziemiańska, J. & A. Sobczak (2011): Effects of the presence of sulfonamides in the environment and their influence on human health.- *Journal of Hazardous Materials* 196, 1-15.
- Barnes K. K., Kolpin, D. W., Furlong, E. T., Zaugg, S. D., Meyer, M. T. & L. B. Barber (2008): A national reconnaissance of pharmaceuticals and other organic contaminants in the United States-I Groundwater.- *Science of the Total Environment* 402, 192-200.
- Bartelt-Hunt, S., Snow, D. S., Damon-Powell, T. & D. Miesbach (2011): Occurrence of steroid hormones and antibiotics in shallow groundwater impacted by livestock waste control facilities.- *Journal of Contaminant Hydrology* 123, 94-103
- Batt, A. L., Snow, D. D. & D. S. Aga (2006): Occurrence of sulfonamide antimicrobials in private water wells in Washington County, Idaho, USA.- *Chemosphere* 64(119), 1963-1971.
- Baumgarten, B. (2013): Entfernung von Sulfamethoxazol in der Bodenpassage.- Dissertation Technische Universität Berlin.
- Bäurle, H. & Tamásy, C. (2012): Regionale Konzentrationen der Nutztierhaltung in Deutschland. Mitteilungen, Heft 79, Institut für Strukturforchung und Planung in agrarischen Intensivgebieten (ISPA), Universität Vechta.
- Bergmann, A. (2011): Zusammenstellung von Monitoringdaten zu Umweltkonzentrationen von Arzneimitteln. Gutachten zum FKZ 360 14 013.- Auftraggeber Umweltbundesamt. IWW Rheinisch-Westfälisches Institut für Wasser Beratungs- und Entwicklungsgesellschaft mbH (Hrsg.), Mülheim an der Ruhr.
- BLAC (2003): Arzneimittel in der Umwelt - Auswertung der Untersuchungsergebnisse. Bericht an die 61. Umweltministerkonferenz (UMK), Hrsg.: Bund/Länderausschuss für Chemikaliensicherheit, 19./20. November, Hamburg.
- Blackwell, P. A., Kay, P., Ashauer, R. & A. B. A. Boxall (2009): Effects of agricultural conditions on the leaching behaviour of veterinary antibiotics in soils. *Chemosphere* 75, 13-19
- BMUNR (2008): Grundwasser in Deutschland.- Reihe Umweltpolitik, Hrsg.: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Bonn.
- Boxall, A. B. A., Fogg, L. A., Kay, P., Blackwell, P. A., Pemberton, E. J. & A. Crawford (2004): Veterinary medicines in the environment.- *Rev. Env. Contamination Toxicology* 182, 1-91.

- Boxall, A. B. A., Johnson, P., Smith, E., Sinclair, C., Stutt, E. & L. Levy (2006): Uptake of Veterinary Medicines from Soils into Plants. *Journal Agricultural Food Chemistry*, 54, pp. 2288-2297.
- Boxall, A. B. A. (2008): Fate of veterinary medicines applied to soils. In: *Pharmaceuticals in the environment: Sources, Fate, Effects and Risks.* - Ed. K. Kümmerer. Hrsg. Springer Verlag Berlin, Heidelberg, New York pp. 103-119.
- BPT (2012): Stellungnahme zum Entwurf eines 16. Gesetzes zur Änderung des Arzneimittelgesetzes (AMG), Bundesverband Praktizierender Tierärzte, Frankfurt/Main, 27.12.2012.
- BTK (2010): Leitlinien für den sorgfältigen Umgang mit antibakteriell wirksamen Tierarzneimitteln - mit Erläuterungen -. Hrsg.: Bundestierärztekammer (BTK), Arbeitsgruppe Tierarzneimittel (AGTAM) der Länderarbeitsgemeinschaft Verbraucherschutz, Beilage zum Deutschen Tierärzteblatt 10/2010.
- Campagnolo, E. R., Johnson, K. R., Karpati, A., Rubin, C. S., Kolpin, D. W., Meyer, M. T., Esteban, J. E., Currier, R. W., Smith, K., Thu, K. M. & M. McGeehin (2002): Antimicrobial residues in animal waste and water resources proximal to large-scale swine and poultry feeding operations. - *The Science of the Total Environment* 209, 89-95.
- Capleton, A. C., C. Courage, P. Rumsby, P. Holmes, E. Stutt, A. B: Boxall, L. S. Levy (2006): Prioritising veterinary medicines according to their potential indirect human exposure and toxicity profile. *Toxicology Letters* 163, 213-223.
- Deivasigamani, P., Sukul, P., Lamshöft, M., Mohan, A., Zühlke, S. & M. Spiteller (2009): Photolysis of Difloxacin and Sarafloxacin in Aqueous Systems, *Chemosphere*, 77, 739-746.
- DIN 19732 (1997): Bestimmung des standörtlichen Verlagerungspotentials von nichtsorbierbaren Stoffen. - Normenausschuss Wasserwesen im Dt. Institut für Normung, Beuth Verlag, Berlin.
- Dörhöfer, G., Hannappel, S. & H.-J. Voigt (2001): Die Hydrogeologische Übersichtskarte von Deutschland 1 : 200 000 (HÜK 200) . - Zeitschrift für Angewandte Geologie, Hrsg.: Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Bd. 47, H. 3 + 4, Hannover.
- Eisele, M. & W. Schäfer (2006): Kurzbericht zum Bearbeitungsteil "Emission" im Projekt "Integriertes Monitoring des chemischen Zustandes des Grundwassers" - Vorprojekt zum LIFE - Vorhaben. - LBEG, Hannover, Juni 2006, 23 S.
- Eschenbach, W., & R. Well (2013): Predicting the denitrification capacity of sandy aquifers from shorter-term incubation experiments and sediment properties. - *Biogeosciences*, 10, 1013-1035, 10.5194/bg-10-1013-2013.
- European Medicines Agency (2011): Trends in the sales of veterinary antimicrobial agents in nine European countries (2005-2009). - EMEA/238630/2011
- European Medicines Agency (2013): Sales of veterinary antimicrobial agents in 25 EU/EEA countries in 2011, Third ESVAC report. - EMEA/236501/2013
- Federolf, C., Kühling, G. A. Keyser (2012): Regionalbericht für das Hase-Einzugsgebiet. - Grundwasser, Band 12, Hrsg.: Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz, 121 S., Norden/Cloppenburg.
- Förster, M., Laabs V., Lamshöft M., Groeneweg J., Zühlke J.S., Spiteller M., Krauss M., Kaupen-johann M. & W. Amelung (2009): Sequestration of manure-applied sulfadiazine in soils. - *Environmental Science and Technology* 43, 1824-1830.
- FZJ (2003): Die Grundwasserneubildung in Nordrhein-Westfalen. - Hrsg.: Forschungszentrum Jülich, Reihe Umwelt/Environment 37, Jülich.

- Gans, O., Pfundner, E., Winckler, C. & A. Bauer (2010). Antibiotika in Biogasanlagen. Abbauverhalten und Einfluss auf die Biogasproduktion. - Umweltbundesamt Report 0287 Wien
- GD NW (2012): Geowissenschaftliche Daten des Geologischen Dienstes Nordrhein-Westfalen, digital und projektbezogen zur Verfügung gestellt mit Schreiben vom 07.02.2012, Krefeld.
- Halley, B. A., T. A. Jacob, A. T. H. Lu (1989): The environmental impact of the use of Ivermectin: Environmental effects and fate. - *Chemosphere* 18 (7/8), 1543-1563.
- Hamscher, G., Sczesny, S., Höper, H. & H. Nau (2002): Determination of persistent tetracycline residues in soil fertilized with liquid manure by high performance liquid chromatography with electrospray ionization tandem mass spectrometry. - *Anal. Chem.* 1509-1518.
- Hamscher, G., Pawelzick, H. T., Höper, H. & H. Nau (2005): Different behavior of tetracyclines and sulfonamides in sandy soils after repeated fertilization with liquid manure. - *Environmental Toxicology and Chemistry* 24(4), 861-868
- Hanke, I., Singer, H., Mc Ardell, C., Brennwald, M., Traber, D., Muralt, R., Herold, T., Oechlin, R. & R. Kipfer (2007): Arzneimittel und Pestizide im Grundwasser. - *GWA* 3, 3-12.
- Hannappel, S. (1996): Die Beschaffenheit des Grundwassers in den hydrogeologischen Strukturen der neuen Bundesländer. - Dissertation Freie Universität Berlin, Berl. Geowiss. Abhandlungen, Reihe A, Bd. 182, Berlin.
- Hannappel, S. & R. Wolter (2001): Die Grundwasserzustandsdatenbank des Umweltbundesamtes. - *Hydrologie und Wasserbewirtschaftung*, 45. Jahrg., Heft 1, S. 15-18, Koblenz.
- Hannappel, S., Lemke, G., Schwerdtfeger, B. & S. Zeilfelder (2011): Ermittlung der Verweilzeiten des Sickerwassers in der Grundwasserüberdeckung nach der DIN 19732 für Mecklenburg-Vorpommern. - *Forum für Hydrologie & Wasserbewirtschaftung*, Heft 30/11, S. 206-212, Hrsg.: Fachgemeinschaft Hydrologische Wissenschaften der DWA, ISBN: 978-3-941897-79-3, Hennef.
- Heberer, Th., Zühlke, S., Fanck, B. (2004): Arzneimittelrückstände in der aquatischen Umwelt. - *LaborPraxis*, 28(3), 16-21.
- Heberer, T., Massmann, G., Fanck, B., Taute, T., Dünnbier, U. (2008): Behaviour and redox sensitivity of antimicrobial residues during bank filtration. - *Chemosphere* 73, 451- 460.
- Hein, A. (2011): Verbleib und Verhalten von Makrolid- und Sulfonamid-Antibiotika bei der künstlichen Grundwasseranreicherung mit behandeltem Kommunalabwasser. - Dissertation an der Fakultät III, Institut für Technischen Umweltschutz der Technischen Universität Berlin.
- Heinkele, T., Hannappel, S., Jahnke, C., Voigt, H.-J. & E. Donat (2001): Charakterisierung der Empfindlichkeit von Grundwasserkörpern. - Umweltbundesamt, FB 299 22 278, 118 S., Berlin.
- Hembrock-Heger, A., M. Nießner & R. Reupert (2011): Tierarzneimittel in landwirtschaftlich genutzten Böden und oberflächennahem Grundwasser in NW. *Bodenschutz*, 4 2011, S. 100-104.
- Hirsch, R., Ternes, T., Haberer, K. & K. I. Kratz (1999): Occurrence of antibiotics in the aquatic environment. - *Science Total Environment* 225 (1-2), 109-118.
- Höper, H. (2011): Langzeituntersuchungen zum Vorkommen von Tierarzneimitteln in Boden und Sickerwasser in Niedersachsen. Landesamt für Bergbau, Energie und Geologie, Statusseminar Arzneistoffe in der Umwelt, 07./08.08.2011, Dresden.
- Höper, H., Kues, J., Nau, H. & G. Hamscher (2002): Eintrag und Verbleib von Tierarzneimittelwirkstoffen in Böden. - *Bodenschutz* 4/02, S. 141-148.
- Hollis, J. M. (1991): Mapping the vulnerability of aquifers and surface waters to pesticide contamination at the national scale. - *BCPC monograph* 47, pesticides in soil and water, 146-147.

- Horvat, A. J. M., Petrović, M., Babić, S., Pavlović, D. M., Ašperger, D., Pelko, S., Mance, A. D. & M. Kaštelan-Macan (2012): Analysis, occurrence and fate of anthelmintics and their transformation products in the environment. - Trends in Analytical Chemistry 31, 61-84.
- Howard, P. H. & D. C. G. Muir (2011): Identifying new persistent and bioaccumulative organics among chemicals in commerce II. - Pharmaceuticals. Environ. Sci. Technol. 45, 6938-6946.
- HYDOR (2003): Übersichtskarte der Grundwasseroberfläche des Oberen Grundwasserleiters in Niedersachsen. - HYDOR Consult GmbH im Auftrag des Niedersächsischen Landesamtes für Bodenforschung vom 31.07.2003, Berlin (unveröff.)
- Ingerslev and B. Halling Sørensen (2001): Biodegradability of metronidazole, olaquinox, and tylosin and formation of tylosin degradation products in aerobic soil-manure slurries. - Ecotox Env 48(3), 311-320
- IT.NW (2011): Daten zur Landwirtschaftszählung 2010 und zur Flächenerhebung 2010, digital und projektbezogen zur Verfügung gestellt vom Landesbetrieb Information und Technik Nordrhein-Westfalen, Geschäftsbereich Statistik, Düsseldorf.
- Kay, P., Blackwell, P. A. & A. B. A. Boxall (2004) Fate of veterinary antibiotics in a macroporous tile drained clay soils. Environ. Toxicol. Chem. 23, 1136-1144.
- Kern, K. (2012): Die Apotheke im Gewässer. - Zeitschrift Umweltrecht, 1/2011, S. 9 - 15.
- Kolossa-Gehring, M., Apel, P. & I. Rönnefahrt (2004): Aktuelle Entwicklungen bei der Risikobewertung von Humanarzneimitteln. - In: Bremer Kolloquium Produktionsintegrierte Wasser- / Abwassertechnik 2004. Institut für Umweltverfahrenstechnik (Hrsg.), Bremen, A25-A30.
- Kolz, A. C., Ong, S. K. & T. B. Moorman (2005) Sorption of tylosin onto swine manure. - Chemosphere 60, 284-289.
- Kools, S. A. E., Moltmann, J. F. & T. Knacker (2007): Estimating the use of veterinary medicines in the European Union. - Regulatory Toxicology and Pharmacology 50, 59-65.
- Kools, S. A. E., Boxall, A. B.A., Moltmann, J. F., Bryning, G., Koschorreck, J. & T. Knacker (2008): A ranking of European veterinary medicines based on environmental risks. - Integrated Environmental Assessment and Management 4(4), 399-408.
- Koschorreck J., Koch C. & I. Rönnefahrt (2002): Environmental risk assessment of veterinary medicinal products in the EU - A regulatory perspective. - Toxicology Letters, 131 : 117-124
- Krapac, I.G., Koike, S., Meyer, M.T., Snow, D.D., Chou, S.-F.J., Mackie, R.I., Roy, W.R., Chee-Sandford, J.C. (2005): Long-term monitoring of the occurrence of antibiotic residues and antibiotic resistance in groundwater near swine confinement facilities. Report of the CSREES Project 2001-35102-10774.
- Kreuzig, R, Kullmar, C., Matthies, B., Plaga, B., Dieckmann, H. & S. Höltge (2005): Verhalten von in der Umwelt vorkommenden Pharmaka und ihren Metaboliten in Modellsystemen- „Modellsystem Boden“. - UBA Texte 11/2005 ISSN 0722-186X
- Kreuzig, R., Höltge, S., Heise, J., Kolb, M., Berenzen, N., Hahn, T., Jergentz, S., Wogram, J. & R. Schulz (2007): Untersuchungen zum Abflussverhalten von Veterinärpharmaka bei Ausbringung von Gülle auf Ackerland und Weide. Runoff-Projekt, UBA-FB 001016, Hrsg.: Umweltbundesamt Dessau.
- Kreuzig, R. & S. Höltge (2005): Investigations on the fate of sulfadiazine in manured soil: Laboratory experiments and test plot studies. - Environm. Toxicology and Chemistry 24(4), 771-776.

- Kreuzig, R., Höltge, S., Heise, J., Schmanteck, I., Stein, F. & M. Batarseh (2007a): Veterinary medical products in manures and manured soils: development of a technical protocol for laboratory tests - The manure project.- UBA-Texte 45/07, Hrsg. Umweltbundesamt Berlin.
- Kreuzig, R., Blümlein, K. & S. Höltge (2007b): Fate of the benzimidazole antiparasitics flubendazole and fenbendazole in manure and manured soils.- *Clean* 35(5), 488-494.
- Kroghæ, K. A., Havslund, M.C., Olsen, J., Hansen, M., Kjær, J., Olsen, P., Bak, S.A., Brandt, A., Hal-ling-Sørensen, B.H. & E. Björklund (2012): Environmental fate, occurrence and toxicity of the anti-parasitic pharmaceutical toltrazuril.-Poster SETAC, Berlin, 20-24.05.2012
- Kuchta, S. L. & A. J. Cessna (2009): Lincomycin and spectinomycin concentrations in liquid swine manure and their persistence during simulated manure storage.- *Arch Environ Contam Toxicol* 57, 1-10.
- Kümmerer, K. (2004): *Pharmaceuticals in the environment: Sources, fate, effects and risks.*- Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York.
- Küster, A., Lehmann, S., Hein, A. und J. Schönfeld (2013): Antibiotika in der Umwelt- Wirkung mit Nebenwirkung.-UMID-Umwelt und Mensch-Informationdienst Nr. 1/2013, 18-28.
- Kwon, J.-W. (2011): Mobility of veterinary drugs in soil with application of manure compost.- *Bull Environ Contam Toxicol* 87, 40-44.
- Kunkel, R., Voigt, H.-J., Wendland, F. & S. Hannappel (2004): Die natürliche, ubiquitär überprägte Grundwasserbeschaffenheit in Deutschland.- *FZ Jülich, Reihe Umwelt*, Bd. 47, Jülich.
- Lamshöft, M., Sukul, P., Zühlke, S. & Spiteller, M. (2007): Metabolism of <sup>14</sup>C-labelled and non labelled Sulfadiazine after administration to pigs.- *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 388, 1733-1745.
- Lamshöft, M., Sukul, P., Zühlke, S. & M. Spiteller (2010a): Behaviour of <sup>14</sup>C-sulfadiazine and <sup>14</sup>C-difloxacin during manure storage.- *Science of the Total Environment* 408, 1563-1568.
- Lamshöft, M., Zühlke, S., Sukul, P., Kusari, S. & M. Spiteller (2010b): Antibiotikarückstände in Gülle und Böden.- *Mitt Umweltchem Ökotox*, 2, 41-44.
- LANUV (2007): Eintrag von Arzneimitteln und deren Verhalten und Verbleib in der Umwelt - Literaturstudie. Fachbericht 2, Hrsg.: Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz Nordrhein-Westfalen, Recklinghausen.
- LANUV (2011): Abschlussbericht: Evaluierung des Antibiotikaeinsatzes in der Hähnchenhaltung.- Hrsg.: Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz Nordrhein-Westfalen, , Abteilung 8, Verbraucherschutz, Tiergesundheit, Agrarmarkt, Recklinghausen, den 14.11.2011.
- Lilienblum W., Bülow W., Herbst V., Jandel B., Müller K. (1998): Endokrin wirksame Schadstoffe (EWS) und pharmakologisch wirksame Stoffe in aquatischen Bereichen Niedersachsens. In: Nachhaltiges Niedersachsen 11. Dauerhaft umweltgerechte Entwicklung, Niedersächsisches Landesamt für Ökologie (Hrsg.), Band 11, 1. Auflage, Hildesheim, 1-40.
- Liu, F., Ying, G.-G., Yang, J.-F., Zhou, L.-J, Tao, R., Wang, L., Zhang, L.-J. & P.-A. Peng (2010): Dissipation of sulfamethoxazole, trimethoprim and tylosin in a soil under aerobic and anoxic conditions.- *Environmental Chemistry* 7(4) 370-376.
- Löscher, W., Ungemach, F. & R. Kroker (2006): *Pharmakotherapie bei Haus- und Nutztieren.*- 7. Auflage 2006, Parey Verlag
- Loos, R., Locorno, G., Comero, S., Contini, S., Schwesig, D. & F. Werres (2010): Pan-European survey on the occurrence of selected polar organic persistent pollutants in ground water.- *Water Res.* 44, 4115-4126.

- LSKN (2011): Daten zur Landwirtschaftszählung 2010, projektbezogen zur Verfügung gestellt vom Landesbetrieb für Statistik und Kommunikationstechnologie Niedersachsen, Hannover.
- McCall, P. J. et al. (1981): Measurement of sorption coefficients of organic chemicals and their use in environmental fate analysis.- Proceedings of symposium AOC, Washington DC.
- Massmann, G., Heberer, T., Grützmacher, G., Dünnbier, U., Knappe A. & H. Meyer (2007): Trinkwassergewinnung in urbanen Räumen, Uferfiltration in Berlin.- Grundwasser, 12, 232-245.
- Massmann, G., Dünnbier, U., Heberer, T., A. Pekdeger, D. Richter, J. Sültenfuß & Y. Tosaki (2009): Hydrodynamische und hydrochemische Aspekte der anthropogen und natürlich induzierten Uferfiltration am Beispiel von Berlin/Brandenburg- Grundwasser, 14, 163-177.
- Mäurer, D., Wisotzky, F. & N. Becker (2009): Ausbau und Nutzung einer tiefen Multilevel-Messstelle am Niederrhein.- Wasser & Abfall, Heft 7-8, S. 10-15.
- Mensink et al. (1995): Manual for summarizing and evaluating the environmental aspects of pesticides. RIVM report no. 679101022.
- Mohring (2009): Degradation and Elimination of Various Sulfonamides during Anaerobic Fermentation: A Promising Step on the Way to Sustainable Pharmacy.- Environ. Sci. Technol. 43, 2569-2574.
- Müller, B., Zippel, M., Scheytt, T., Hannappel, S., Duscher, K. & J. Klein-Goedicke (2010): A New Approach to Calculate EMEA's Predicted Environmental Concentration for Human Pharmaceuticals in Groundwater at Bank Filtration Sites.- Water Air Soil Pollut, 217, 1-4, 67-82.
- NLFB (2007): Lage und Charakterisierung der Bodendauerbeobachtungsflächen in Niedersachsen.- Hrsg: Niedersächsisches Landesamt für Bodenforschung, Hannover.
- NLWKN (2011): projektbezogen zur Verfügung gestellte Daten vom Niedersächsischen Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz, BS Aurich, Cloppenburg & Meppen.
- OOWV (2005): Grundwasseruntersuchungen auf Rückstände aus Tierarzneimitteln.- Interner Vermerk des Oldenburgisch-Ostfriesischen Wasserverbandes, Brake (unveröff.).
- Pico, Y., Andreu, V. (2007): Fluoroquinolones in soil - risks and challenges.- Anal Bioanal Chem 387, 1287-1299.
- Pina, R. G. & C. Cervantes (1996): Microbial interactions with aluminium.- BioMetals 9, Mini-Review, pp. 311-316.
- PIPER, A. M. (1944): A graphic procedure in the geochemical interpretation of water analysis.- Trans. Am. Geophys. Union, 25, pp. 914-928, Washington D. C..
- Rabølle, M. & N. H. Spliid (2000): Sorption and mobility of metranidazole, olaquinox, oxytetracycline and tylosin in soil.- Chemosphere 40, 715-722.
- Radke, M., Lauwigi, C., Heinkele, G., Mürdter, T. E. & M. Letzel (2009): Fate of the antibiotic Sul-fameth-oxazole and its two major human metabolites in a water sediment test.- Environ. Sci. Tech-nol. 43, 3135-3141.
- Ratsak, C., Guhl, B., Zühlke, S. & T. Delschen (2013): Veterinärantibiotikarückstände in Gülle und Gärresten aus Nordrhein-Westfalen.- doi:10.1186/2190-4715-25-7, Environmental Sciences Europe 2013 25:7.
- Rosendahl, I., Siemens, J., Groeneweg, J., Linzbach, E., Laabs, V., Hermann, C., Vereecken, H. & W. Amelung (2011): Dissipation and sequestration of the veterinary antibiotic sulfadiazine and its me-tabolites under field conditions.- Environmental science & technology 45, 516-522.

- Rosendahl, I., Siemens, J., Kindler, R., Groeneweg, J., Zimmermann, J., Czerwinski, S., Lamshöft, M., Laabs, V., Wilke, B.-M., Vereecken, H. & W. Amelung (2012) Persistence of the fluoroquinolone antibiotic difloxacin in soil and lacking effects on nitrogen turnover.- *Journal of Environmental Quality* 41, 1-9.
- Sarmah, A. K., Meyer, M. T. & A. B. A. Boxall (2006): A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics in the environment.- *Chemosphere* 65, 725-759.
- Schneiderei, M. (2005): Verbrauchsmengen von Tierarzneimitteln. In: *Arzneimittel in der Umwelt: Zu Risiken und Nebenwirkungen fragen Sie das Umweltbundesamt.*- UBA Texte 29/05. Hrsg. Umweltbundesamt, Berlin.
- Schlüsener, M. P. & K. Bester (2006): Persistence of antibiotics such as macrolides, tiamulin and salinomycin in soil.- *Environ Pollut.* 143(3), 565-571.
- Schlüsener, M. P., von Arb M. A. & K. Bester (2006): Elimination of macrolides, tiamulin, and salinomycin during manure storage.- *Arch Environ Contam Toxicol* 51(1), 21-28.
- Schulte-Hunsbeck, W (2009): Analyse der extrahierbaren und nicht extrahierbaren Rückstände von Sulfadiazin und seinen Metaboliten drei Jahre nach Applikation von Schweinegülle auf Lysimetern sowie die Remobilisierung der nicht extrahierbaren Rückstände durch Maisrhizosphärentätigkeit.- *Dipl.-Arbeit, Ruhr-Universität Bochum (unveröff.)*
- Spelsberg (2013): Folgen des massenhaften Einsatzes von Antibiotika in Human- und Veterinärmedizin.- *Autorin: Dr. med. Angela Spelsberg, S. M., Tumorzentrum Aachen e.V. Gutachten im Auftrag der Bundestagsfraktion Bündnis 90/Die Grünen (unveröff.)*
- Stoob K., Schmitt H. & M Wanner (2005): Antibiotikaeinsatz in der Landwirtschaft - Folgen für die Umwelt. In: *Landwirtschaft und Gewässerqualität.*- EAWAG news 59d, Informationsbulletin der EAWAG GmbH, Dübendorf (Schweiz).
- Sukul, P., Lamshöft, M., Zühlke, S. & M. Spiteller (2008): Sorption and desorption of sulfadiazine in soil and soil-manure systems.- *Chemosphere*, 73 (8), 1344-1350.
- Tappe et al (2008): Growth-inhibitory effects of sulfonamides at different pH: Dissimilar susceptibility patterns of a soil bacterium and a test bacterium used for antibiotic assays.- *Chemosphere* 72, pp. 836-843.
- Tappe et al (2013): Degradation of Sulfadiazine by Microbacterium lactus Strain SDZm4, Isolated from Lysimeters Previously Manured with Slurry from Sulfadiazine-Medicated Pigs.- *Applied and Environmental Microbiology* 79 (8), 2572 - 2577
- Thiele-Bruhn, S. (2003): Pharmaceutical antibiotic compounds in soils - a review.- *Journal of Plant Nutrition and Soil Science* 166, 145-167.
- Tolls, J., (2001): Sorption of veterinary pharmaceuticals - a review.- *Environ Sci Technol* 35, 3397-3406
- Topp, E., Chapman, R., Devers-Lamrani, M., Hartmann, A., Marti, R., Martin-Laurent, F., Sabourin, L., Scott, A. & M. S. Topp (2013): Accelerated Biodegradation of Veterinary Antibiotics in Agricultural Soil following Long-Term Exposure, and Isolation of a Sulfamethazine-degrading Microbacterium sp.- *Journal of Environmental Quality* 42: 1: 173-178
- UBA (2005): *Arzneimittel in der Umwelt - Zu Risiken und Nebenwirkungen fragen Sie das Umweltbundesamt. Texte 29/05, Hrsg.: Umweltbundesamt, Dessau.*
- UBA (2014): *Arzneimittel in der Umwelt - vermeiden, reduzieren, überwachen. Hintergrundpapier für die Presse, Dessau-Rosslau (unveröff.)*

- VetCab (2013): Repräsentative Verbrauchsmengenerfassung von Antibiotika in der Nutztierhaltung - Kurzbericht über die Ergebnisse der Studie „VetCab-Pilot“. Fachinformation, Hrsg.: Veterinary Consumption of Antibiotics.
- Watanabe, N., Bergamaschi, B. A., Loftin, K. A., Meyer, M. T. & T. Harter (2010): Use and environmental occurrence of antibiotics in freestall dairy farms with manured forage fields. - Environ. Sci. Technol. 44, 6591-6600.
- Wehrhan; A. (2006): Fate of veterinary pharmaceuticals in soil: An experimental and numerical study on the mobility, sorption and transformation of sulfadiazine. Schriften des Forschungszentrum Jülich, Reihe Umwelt / Environment, Band 66.
- Wei, R., F. Ge, S. Huang, M. Chen, R. Wang (2011): Occurrence of veterinary antibiotics in animal wastewater and surface water around farms in Jiangsu Province, China. Chemosphere 82, 1408-1414.
- Wei, R., F. Ge, M. Chen, R. Wang (2012): Occurrence of ciprofloxacin, enrofloxacin and florfenicol in animal wastewater and water resources proximal to large-scale animal feeding operations. Journal of Environmental Quality eingereicht
- Weiß, K., Schüssler, W., Porzelt, M. (2007): Auswaschung von Sulfadimidin, Enrofloxacin und Flubendazol in das Sickerwasser. In: Tierarzneimittel in der Umwelt. Münchener Beiträge zur Abwasser-, Fischerei- und Flussbiologie. Band 58, Bayerisches Landesamt für Umwelt, ISBN 978-3-8356-3135-9, Hof.
- Weiß, K., Schüssler, W., Porzelt, M. (2008): Sulfamethazine and Flubendazole in seepage water after the sprinkling of manured areas. Chemosphere 72, 1292-1297
- vTI (2003): Räumlich differenzierte Quantifizierung der N- und P-Einträge in Grund- und Oberflächenwasser in NW unter besonderer Berücksichtigung diffuser landwirtschaftlicher Quellen. - Bericht des Johann Heinrich von Thünen-Institutes (vTI) im Auftrag des Landesumweltamtes Nordrhein-Westfalen, Braunschweig (unveröff.)
- vTI (2010): vTI-Baseline 2009 - 2019: Agrarökonomische Projektionen für Deutschland. - Sonderheft 333 (Autoren: Frank Offermann, Horst Gömann, Werner Kleinhanß, Peter Kreins, Oliver von Ledebur, Bernhard Osterburg, Janine Pelikan, Petra Salamon, Jörn Sanders), Johann Heinrich von Thünen-Institut, Braunschweig.
- Winckler, C. & A. Grafe (2000): Charakterisierung und Verwertung von Abfällen aus der Massentierhaltung unter Berücksichtigung verschiedener Böden. UBA-Texte 44/00, Berlin.
- Wisotzky, F. (1994): Untersuchungen zur Pyritoxidation in Sedimenten des Rheinischen Braunkohlereviere und deren Auswirkungen auf die Chemie des Grundwassers. - Besondere Mitteilungen zum Dt. Gew. Jahrbuch, 58, 153 S.
- Wisotzky, F. (2011): Angewandte Grundwasserchemie, Hydrogeologie und hydrogeochemische Modellierung. Springer Verlag: 449 S.
- Yang, J.-F., G.-G. Ying, L.-J. Zhou, S. Liu, J.-L. Zhao (2009): Dissipation of oxytetracycline in soils under different redox conditions. Environmental Pollution 157, pp. 2704-2709.
- Zilles, J., T. Shimada, A. Jindal, M. Robert, L. Raskin (2005): Presence of macrolid-Lincosamidestreptogramin B and tetracycline antimicrobials in swine waste treatment processes and amended soil. Water Environ. Res. 77, 57-62.
- Zippel, M., Scheytt, T., Hannappel, S., Duscher, K. & B. Müller (2010): Mathematische Simulation des Eintrages von Arzneimitteln aus Oberflächengewässern in das Grundwasser durch Uferfiltration. - Hrsg.: Umweltbundesamt, Förderkennzeichen 3707 64 400, UBA-FB 001294.

**Anhang:**

**Dokumentation aller hydrochemischen  
Analyseergebnisse 2012 und 2013**

Beprobung 2012: hydrochemische Analysenergebnisse (Daten der Länder und von INFU Dortmund)



		vor-Ort-Parameter															
Messstelle	Land	Mst-Nr.	PN-Datum	RWSP_MP	Entnahmetiefe	Pumpdauer	Förderrate	TRÜBUNG	FÄRBUNG	GERUCH	T	pH	LF	O <sub>2</sub>	KS43	KB82	Redox
Einheit			TT.MM.JJJJ	m	m von GOK	min	l/min	Klartext	Klartext	Klartext	°C		µS/cm	mg/l	mmol/l	mmol/l	mV
HS/2 -NORDICK-	NRW	60220028	17.08.2012	2,95	6,0	20	3,6	klar	farblos	ohne	13,6	6,0	490	0,6	0,98	1,68	
HS/4 GRUETLOHN	NRW	60220041	20.08.2012	2,25	8,0	35	2,0	stark	braun	würzig	13,1	4,9	480	12,2	0,39	1,42	
HS/47 -DESTRICH-	NRW	60220478	20.08.2012	5,67	8,0	35	2,6	gering	gelb	ohne	12,3	6,6	770	<0,1	7,89	1,73	
HS/10 MERFELD	NRW	110220109	06.11.2012	1,78	5,0	20	7,0	keine	schwach gelb	ohne	12,6	6,3	576	0,5	1,80		375
ST.GEB/19 Leversum	NRW	110210190	06.11.2012	3,05	5,0	20	7,0	keine	schwach grau	ohne	12,2	7,6	625	3,8	1,74		374
HS/79 -FLAMSCHEN-	NRW	110220791	08.11.2012	8,96	11,0	30	87,0	keine	schwach gelb	ohne	10,5	6,9	1328	8,4	5,20		367
HS/1 Heiden	NRW	60220016	08.11.2012	7,81	13,0	30	6,0	keine	schwach gelb	ohne	10,4	5,8	464	5,1	0,71		463
HS/86 -TUNGERLOH-	NRW	60220867	17.08.2012	1,85	5,0	35	1,4	stark	braun	ohne	15,2	7,0	790	2,0	2,10		
BO/4 A -LOWICK-	NRW	60230058	20.08.2012	2,15	14,0	55	4,4	keine	farblos	ohne	13,1	6,9	860	<0,1	3,68	0,59	
BO/26 -SPORK-	NRW	60230265	16.08.2012	2,13	4,0	20	4,4	keine	farblos	ohne	12,9	6,8	940	<0,1	6,84	0,83	
BO/29-GESINKHOOK-	NRW	60230290	16.08.2012	2,08	10,0	45	4,4	gering	gelb	ohne	14,2	5,7	440	0,1	0,60	1,98	
AH/29 -HOLTHAUSEN-	NRW	60240295	14.08.2012	3,49	8,0	45	6,0	keine	farblos	ohne	11,3	6,9	820	2,5	4,36	0,82	159
AH/33 -WENDFELD-	NRW	60240337	17.08.2012	7,62	18,0	60	4,3	keine	farblos	ohne	11,8	5,3	470	9,2	0,18	0,75	
TE / 16 -UTHUISEN-	NRW	110200160	13.08.2012	1,95	6,0	30	4,6	keine	gelb	ohne	12,5	6,4	780	0,2	2,84	1,86	
TE / 19 -HOPSTEN-	NRW	110200196	13.08.2012	2,57	4,0	35	4,4	keine	gelb	modrig	12,1	6,3	460	0,2	1,28	1,18	
AH/14 COE.M.GAUPEL	NRW	110240145	14.08.2012	3,41	6,0	30	4,4	keine	grau	ohne	11,7	6,4	420	0,5	2,22	1,43	
AH/40 OCHTRUP	NRW	110240406	14.08.2012	2,07	13,0	50	4,1	keine	gelb	würzig	12,6	6,1	168	<0,1	7,86	1,18	
RH/1 SALZBERGEN	NRW	110290010	13.08.2012	2,7	4,0	30	3,6	keine	gelb	ohne	12,2	5,2	420	0,3	0,21	1,03	
RH/4 SUTRUM	NRW	110290045	13.08.2012	3,32	8,0	40	3,6	gering	farblos	ohne	13,0	6,9	780	1,8	7,74	0,66	
LEER	NRW	110320062	14.08.2012	2,13	10,0	50	4,3	keine	gelb	ohne	11,7	7,2	800	<0,1	5,20	0,76	
Beesten-Bahnhof I	NI	6744	09.10.2012	1,55	2,0	25	10,0	keine	farblos	ohne	12,3	4,1	280	1,4	0,00	1,95	
Bethen	NI	CLP_11_462	16.10.2012	4,75	6,00	20	15,0	keine	farblos	ohne	11,0	4,4	360	4,7	0,06	3,37	
Bösel I	NI	CLP_11_464	16.10.2012	3,01	4,00	30	4,5	keine	farblos	ohne	12,5	4,4	650	1,2	0,03	1,42	
Carum I	NI	CLP_11_468	15.10.2012	2,22	3,1	30	1,7	leicht opalisierend	stark gelb	ohne	12,0	6,8	810	<0,20	7,50	2,64	
Dinklage-BDF	NI	CLP_11_3487	15.10.2012	2,11	4	25	9,0	keine	sehr schwach gelb	schwach jauchig	10,7	6,9	560	<0,20	5,10	1,61	
Drievorden	NI	6383	15.10.2012	2,63	7,0	25	10,0	keine	sehr schwach gelb	ohne	11,9	6,3	478	<0,20	2,32	1,95	
Elbergen	NI	CLP_11_278	15.10.2012	9,62	12	30	8,8	keine	farblos	ohne	11,6	5,8	1000	<0,2	1,90	5,77	
Emlichheim-Kalle I	NI	7068	15.10.2012	0,75	4,4	30	10,0	keine	stark braun	stark faulig	13,6	5,9	627	<0,20	3,12	5,14	
Gildehaus Süd	NI	6749	15.10.2012	2,52	5,0	30	10,0	keine	schwach gelb	ohne	12,5	5,7	457	<0,20	0,96	2,12	
Halen	NI	CLP_11_189	16.10.2012	9,65	12,00	20	15,0	keine	farblos	ohne	10,0	4,7	630	8,9	0,12	2,04	
Kleinringerwörsten I	NI	6628	16.10.2012	1,82	5,0	30	5,0	keine	farblos	ohne	12,2	4,5	524	<0,20	<0,10	1,25	
Lohe I	NI	CLP_11_287	16.10.2012	2,34	3,00	20	4,5	keine	sehr schwach gelb	ohne	11,9	5,1	520	<0,20	0,13	2,31	
Markhausen-BDF	NI	CLP_11_572	16.10.2012	3,18	5,00	15	10,0	keine	sehr schwach gelb	ohne	10,4	5,4	280	0,2	0,15	0,99	
Neuenkirchen VEC	NI	CLP_11_203	15.10.2012	2,29	5	20	5,0	keine	farblos	ohne	10,7	5,4	690	<0,20	0,30	1,44	
Neuscharrel I	NI	CLP_11_25	16.10.2012	1,84	4,00	15	9,5	keine	sehr schwach gelb	H2S	10,8	6,3	720	<0,20	3,20	3,07	
Quendorf Ost	NI	6410	05.03.2012	1,16	7,0	30	10,0	keine	farblos	ohne	11,0	4,9	410	<0,20	0,11	0,89	
Südfelde	NI	CLP_11_213	15.10.2012	2,22	4	20	5,5	keine	farblos	ohne	10,4	6,0	710	<0,20	0,80	1,33	
Südlohne	NI	CLP_11_300	15.10.2012	7,58	8,5	30	2,5	keine	farblos	ohne	11,3	4,4	94	9,1	0,05	1,01	
Wietmarschen-Lohne I	NI	6734	16.10.2012	1,87	9,0	25	10,0	keine	schwach gelb	ohne	10,7	6,6	583	<0,20	3,72	1,73	
Wildenhorst I	NI	CLP_11_223	15.10.2012	1,30	3	20	5,5	fast klar	schwach gelb	H2S	10,3	6,4	360	<0,20	1,90	2,10	
Quelle Langenmoosgraben	BY	OM-DON-06	09.10.2012	--	--	--	12,0	schwach trüb, Schwimmstoffe	schwach braun	ohne	12,8	7,1	758	8,1	5,86	0,73	
QUELLE Burgmagerbein	BY	T40	08.10.2012	--	--	--	12,0	klar	farblos	ohne	13,2	7,6	738	10,1	4,91	0,21	
Kreuzhofquelle	BY	OM-DON-08	01.10.2012	--	--	--	30,0	klar	farblos	ohne	12,4	7,4	725	9,7	5,83	0,31	
Unterdumeltshausen, Quelle Scharnagl	BY	OM-IN-11	08.10.2012	--	--	--	--	klar	farblos	ohne	12,3	7,5	646	8,9	5,43	2,38	
Quelle Am Kreuzweg, Herrnberchthheim	BY	OM-AN-71	19.09.2012	--	--	--	150,0	fast klar, absetzbare Stoffe	farblos	ohne	12,6	7,4	860	8,0	6,79	0,72	
Weidenbrunnen Ermetzhofen	BY	OM-AN-44	19.09.2012	--	--	--	15,0	klar	farblos	ohne	11,1	7,7	780	9,0	7,03	0,42	
Naundorf, Br. HYP NfOs1/2002	SN	47440007	28.11.2012	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	klar	farblos	ohne	11,0	7,2	824	8,1	4,50	0,49	233
Hartmannsdorf, HY 1/2002	SN	51426003	28.11.2012	n. b.	n. b.	n. b.	n. b.	klar	farblos	ohne	9,6	9,6	518	4,9	0,58	1,60	475
													614,02	4,8172	2,8982	1,6021	349,43

gelb markiert sind Nachweise < Bestimmungsgrenze, rot markiert sind Nachweise > Bestimmungsgrenze

Beprobung 2012: hydrochemische Analyseergebnisse (Daten der Länder und von INFU Dortmund)



Messstelle	Hauptinhaltsstoffe - Kationen							Hauptinhaltsstoffe - Anionen							Ionenbilanz				Summen			
	Ca	Mg	Na	K	NH4	Mn	Fe	HCO3	SO4	CL	NO3	NO2	o-PO4	F	Σ Kat	Σ An	Σ Io	IBF (%)	DOC	TOC	SAK_254	
Einheit	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	µg/l	µg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l					mg/l C	mg/l	m <sup>-1</sup>	
HS/2 -NORDICK-	54	5,5	18,0	14,0	<0.05	6,2	72	59,7	85,0	32,7	51,4	<0.06	0,92		4,29	4,52	8,81	-1,3	11,9	12,3		
HS/4 GRUETLOHN	37	8,2	22,0	12,0	0,2	230	1500	23,8	50,0	41,8	105,4	<0.06	<0.09		3,86	4,31	8,16	-2,8	1,6	2,2		
HS/47 -DESTRICH-	120	9,8	10,0	9,2	2,6	1700	23000	480,2	158,0	15,0	1,0	<0.06	0,16		8,49	11,60	20,09	-7,7	3,2	3,4		
HS/10 MERFELD	70	6,1	42,3	33,1	0,2	117	109	109,6	31,4	24,5	188,0	<0.03	1,48		6,68	6,20	12,88	1,8		15,0		
ST.GEB/19 Leversum	97	3,4	8,1	5,6	0,0	25	119	106,0	53,1	44,7	70,3	<0.03	0,14		5,63	5,24	10,86	1,8		3,6		
HS/79 -FLAMSCHEN-	272	3,1	16,8	1,3	0,0	<5	107	316,7	121,0	61,9	204,0	0,03	0,08		14,60	12,74	27,34	3,4		4,4		
HS/1 Heiden	41	8,0	28,5	11,7	0,1	27	185	43,2	89,2	41,3	43,1	0,20	0,21		4,24	4,43	8,67	-1,1		3,4		
HS/86 -TUNGERLOH-	110	8,6	24,0	12,0	<0.05	180	4200	127,9	59,9	60,5	169,1	0,26	0,25		7,71	7,78	15,49	-0,2	4,8	6,8		
BO/4 A -LOWICK-	120	11,0	24,0	19,0	0,4	1400	900	224,1	115,8	59,5	93,9	0,20	<0.09		8,53	9,28	17,81	-2,1	2,8	2,8		
BO/26 -SPORK-	130	12,0	33,0	28,0	<0.05	490	<20	416,6	101,7	29,7	113,3	0,16	<0.09		9,65	11,61	21,26	-4,6	4,6	4,8		
BO/29-GESINKHOOK-	40	8,3	12,0	19,0	<0.05	88	480	36,5	64,2	18,2	90,3	<0.06	<0.09		3,71	3,90	7,61	-1,3	19,3	20,2		
AH/29 -HOLTHAUSEN-	130	11,0	9,3	17,0	<0.05	38	110	265,5	45,8	59,7	87,2	<0.06	<0.09		8,24	8,40	16,64	-0,5	4,8	4,8		
AH/33 -WENDFELD-	51	9,8	8,3	2,5	<0.05	87	21	11,0	32,0	28,6	157,2	<0.06	<0.09		3,78	4,18	7,97	-2,5	1,0	1,4		
TE / 16 -UTHUISEN-	92	9,9	24,0	41,0	<0.05	43	240	173,0	116,3	36,1	102,7	0,07	<0.09		7,51	7,93	15,44	-1,4	40,9	43,1		
TE / 19 -HOPSTEN-	49	5,0	7,3	26,0	3,2	240	4200	78,0	123,2	12,4	1,0	<0.06	0,30		4,18	4,21	8,38	-0,2	18,3	19,3		
AH/14 COE.M.GAUPEL	55	3,5	7,6	18,0	<0.05	81	41	135,2	31,0	14,8	43,8	0,07	0,58		3,83	4,00	7,83	-1,1	5,4	6,1		
AH/40 OCHTRUP	170	50,0	290,0	11,0	0,5	1100	1900	478,7	586,8	183,5	1,0	<0.06	<0.09		25,63	25,24	50,87	0,4	27,9	27,9		
RH/1 SALZBERGEN	36	6,5	11,0	18,0	<0.05	56	47	12,8	26,7	29,9	115,1	<0.06	<0.09		3,28	3,46	6,74	-1,4	12,9	13,4		
RH/4 SUTRUM	180	3,0	11,0	1,7	<0.05	9,3	20	471,4	52,8	24,3	85,0	<0.06	<0.09		9,75	10,88	20,64	-2,7	2,3	2,4		
LEER	130	5,7	16,0	2,7	3,7	300	7400	316,7	85,1	44,7	1,0	<0.06	1,17		8,20	8,26	16,46	-0,2	5,7	6,0		
Beesten-Bahnhof I	6	2,9	12,0	2,6	<0.05	<50	<200	0,0	26,0	18,0	60,2	<0.03	<0.06	0,57	1,11	2,02	3,13	-14,6	10,0		27	
Bethen	27	7,0	5,7	26,0	0,1	410	<200	3,7	75,0	11,0	47,8	<0.03	<0.06	<0,10	2,86	2,70	5,56	1,4	1,5	1,6		
Bösel I	22	5,5	70,0	23,0	5,9	<50	<200	1,8	55,0	42,0	168,2	<0.03	<0.06	<0,10	5,52	5,07	10,58	2,1	7,1	7,1		
Carum I	97	17,0	12,0	80,0	4,6	1000	2500	456,8	37,0	9,8	0,5	<0.03	0,18		9,19	8,54	17,74	1,8	30,0	31,0		
Dinklage-BDF	88	6,4	9,8	1,0	9,5	190	6900	310,6	0,7	22,0	0,5	<0.03	1,04	<0,10	6,15	5,75	11,90	1,7	13,0	13,0	40	
Drievorden	11	5,6	15,0	80,0	1,3	430	16000	141,3	44,0	33,0	0,9	<0.03	1,84		4,37	4,22	8,59	0,9	14,0			
Elbergen	75	20,0	65,0	55,0	0,3	1700	<200	115,7	130,0	96,0	92,1	0,10	0,12		9,71	8,80	18,50	2,5	2,2	2,3		
Emlichheim-Kalle I	66	12,0	27,0	4,7	6,6	420	15000	190,0	45,0	66,0	0,5	<0.03	0,64		6,49	5,93	12,42	2,3	40,0			
Gildehaus Süd	39	9,1	15,0	35,0	<0.05	190	<200	58,5	39,0	24,0	76,6	0,20	<0.06		4,26	3,68	7,94	3,6	13,0			
Halen	48	21,0	15,0	5,2	<0.05	<50	<200	7,3	50,0	29,0	179,7	<0.03	<0.06		4,91	4,87	9,79	0,2	<1,0	<1,0		
Kleinringerwörsten I	26	11,0	14,0	49,0	0,4	390	<200	3,0	48,0	23,0	139,0	<0.03	<0.06		4,11	3,94	8,04	1,1	4,9			
Lohe I	48	11,0	14,0	21,0	0,1	600	230	7,9	31,0	14,0	181,1	0,03	<0.06		4,49	4,09	8,57	2,3	9,1	9,2		
Markhausen-BDF	21	2,4	9,0	22,0	0,1	<50	<200	9,1	41,0	19,0	34,1	<0.03	<0.06	<0,10	2,21	2,09	4,30	1,4	10,0	10,0		
Neuenkirchen VEC	60	17,0	22,0	10,0	0,1	610	<200	18,3	95,0	43,0	113,8	0,03	<0.06		5,64	5,32	10,96	1,4	<1,0	1,2		
Neuscharrel I	79	11,0	23,0	3,5	2,3	430	38000	194,9	110,0	66,0	0,5	<0.03	<0.06	<0,10	7,44	7,35	14,79	0,3	14,0	14,0		
Quendorf Ost	28	8,5	14,0	20,0	0,3	160	<200	6,7	36,0	19,0	116,0	<0.03	<0.06	<0,10	3,24	3,26	6,51	-0,1	5,2		10	
Südfelde	96	11,0	22,0	2,9	<0.05	<50	<200	48,7	90,0	42,0	165,1	0,07	<0.06		6,73	6,52	13,25	0,8	1,4	1,4		
Südlohne	6	0,8	3,0	3,8	0,1	<50	<200	3,0	5,1	3,8	27,0	<0.03	<0.06		0,58	0,70	1,28	-4,7	<1,0	<1,0		
Wietmarschen-Lohne I	88	5,1	15,0	1,7	3,3	520	11	226,5	78,0	27,0	0,5	<0.03	0,98		5,71	6,12	11,83	-1,7	14,0			
Wildenhorst I	28	3,9	12,0	1,7	2,2	760	25	115,7	23,0	28,0	0,5	<0.03	<0.06		2,43	3,17	5,60	-6,6	5,5	6,0		
Quelle Langenmoosgraben	113	29,0	21,0	2,0	< 0,02	6	90	356,9	23,0	33,0	94,0	<0.06	0,12	< 0,1	8,99	8,78	17,77	0,6	1,0	1,8		
QUELLE Burgmagerbein	155	3,8	4,5	0,8	< 0,02	<1	<10	299,0	23,0	11,0	161,0	<0.06	0,08	< 0,1	8,26	8,29	16,55	-0,1	0,5	0,5		
Kreuzhofquelle	112	31,0	7,7	2,0	< 0,02	<1	<10	355,0	29,0	24,0	89,0	<0.06	0,14	0,1	8,53	8,54	17,07	0,0	< 0,5	0,5		
Unterdumeltshausen, Quelle Scharnagl	100	30,0	8,4	0,6	< 0,01	<1	<10	330,7	21,0	36,0	47,0	<0.06	0,25	0,1	7,84	7,64	15,48	0,7				
Quelle Am Kreuzweg, Herrnberchthheim	128	44,0	4,6	1,0	< 0,03	4	89	413,5	32,0	57,0	69,0	<0.06	<0.06	0,2	10,24	10,17	20,41	0,2	1,3	1,4		
Weidenbrunnen Ermetzhofen	109	41,0	6,9	1,5	< 0,03	<1	5	428,1	44,0	22,0	51,0	<0.06	<0.06	0,2	9,15	9,38	18,53	-0,6	0,8	1,7		
Naundorf, Br. HYP NfOs1/2002					0,1			280,0	190,0	44,0	22,0	<0.02	<0.031	0,1					1,1	1,1	1,8	
Hartmannsdorf, HY 1/2002	52	15,0	16,0	2,2	<0.026	6,6	40	35,0	100,0	22,0	71,0	0,02	0,031		9,15				0,6	1,1	<0.5	
	78,94468	12,135319	23,12255	16,1915	1,77987111	390,11389	3985,194	173	73,95	36,43	77,756548	0,1101962	0,51097									

gelb markiert sind Nachweise < Bestimmungsgrenze, rot markiert sind Nachweise > Bestimmungsgrenze

Beprobung 2012: hydrochemische Analyseergebnisse (Daten der Länder und von INFU Dortmund)



parameter			Spurenelemente															
Messstelle	SAK_436	AOX	Ni	B	Ba	Al	Pb	As	Cr	Cu	Zn	Cd	Hg	SiO2	U	Sulfaethoxyppridazin	4-OH-Sulfadiazin	Sulfadiazin
Einheit	m^-1	µg/l	µg/l	mg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	mg/l	µg/l	ng/l	ng/l	ng/l
HS/2 -NORDICK-			7,6	0,170	120,00	56	0,25	0,65	1,7	7,9	5,3	0,11	<0.005		0,03	< 2	< 5	< 2
HS/4 GRUETLOHN			27	0,900	58,00	73	3,1	1,4	0,96	4,2	230	0,49	<0.005		0,03	< 2	< 5	< 2
HS/47 -OESTRICH-			8,6	0,077	0,10	<20	0,24	2,5	0,51	0,72	6,8	0,079	<0.005		0,05	< 2	< 5	< 2
HS/10 MERFELD																< 2	< 5	< 2
ST.GEB/19 Leversum																< 2	< 5	< 2
HS/79 -FLAMSCHEN-																< 2	< 5	< 2
HS/1 Heiden																< 2	< 5	< 2
HS/86 -TUNGERLOH-				0,051	0,06	1200					120					< 2	< 5	< 2
BO/4 A -LOWICK-				0,140	0,10	<20					<4					< 2	< 5	< 2
BO/26 -SPORK-				0,130	0,06	<20					6,5					< 2	< 5	< 2
BO/29-GESINKHOOK-				0,091	0,07	1200					80					< 2	< 5	< 2
AH/29 -HOLTHAUSEN-				0,056	0,03	<20					<4					< 2	< 5	< 2
AH/33 -WENDFELD-				0,043	0,15	<20					29					< 2	< 5	< 2
TE / 16 -UTHUISEN-				0,067	0,04	490					280					< 2	< 5	< 2
TE / 19 -HOPSTEN-			<1	0,046	49,00	280	0,11	0,41	2,1	<0.5	<4	<0.01	<0.005			< 2	< 5	< 2
AH/14 COE.M.GAUPEL				0,042	0,06	40					<4					< 2	< 5	< 2
AH/40 OCHTRUP			7,9	1,700	0,03	80	1,7	5	1,6	2,5	5,6	0,037	<0.005		0,95	< 2	< 5	< 2
RH/1 SALZBERGEN				<0.03	0,19	1000					48					< 2	< 5	< 2
RH/4 SUTRUM				<0.03	0,04	260	0,53	0,27	0,75	1,6	<4	<0.01	<0.005		0,45	< 2	< 5	4
LEER			<1	0,064	0,07	<20	<0.1	3,5	<0.5	<0.5	<4	<0.01	<0.005		<0.02	< 2	< 5	< 2
Beesten-Bahnhof I	0,70	55	9,9	<0,050		14000	<1,0	<1,0	1,6	4,4	230	1,1		0,34		< 2	< 5	< 2
Bethen				<0,050		500				2,0	31					< 2	< 5	< 2
Bösel I				<0,050		1400				2,6	<10					< 2	< 5	< 2
Carum I						34				2,4	36					< 2	< 5	10
Dinklage-BDF	1,5	16	<1,0	<0,050		16	<1,0	6,5	<1,0	<1,0	<10	<0,050	<0,020	9,1		< 2	< 5	< 2
Drievorden						30				<1,0	<10					< 2	< 5	< 2
Elbergen						19				1,1	<10					< 2	< 5	< 2
Emlichheim-Kalle I						430				<1,0	<10					< 2	< 5	< 2
Gildehaus Süd						310				3,9	19					< 2	< 5	< 2
Halen						61				<1,0	40					< 2	< 5	< 2
Kleinringerwörsten I						400				6,5	33					< 2	< 5	< 2
Lohe I						830				3,9	24					< 2	< 5	< 2
Markhausen-BDF				<0,050		400				8,7	44					< 2	< 5	< 2
Neuenkirchen VEC						57				<1,0	42					< 2	< 5	< 2
Neuscharrel I				<0,050		23				<1,0	<10					< 2	< 5	< 2
Quendorf Ost	0,30	34	85	<0,050		1200	<1,0	<1,0	1,0	7,3	42	0,41		0,29		< 2	< 5	< 2
Südfelde						11				<1,0	<10					< 2	< 5	< 2
Südlohne						810				1,3	11					< 2	< 5	< 2
Wietmarschen-Lohne I						16				<1,0	<10					< 2	< 5	< 2
Wildenhorst I						<10				1,1	<10					< 2	< 5	< 2
Quelle Langenmoosgraben														10,6		< 2	< 5	< 2
QUELLE Burgmagerbein														6,1		< 2	< 5	< 2
Kreuzhofquelle														9,7		< 2	< 5	< 2
Unterdumeltshausen, Quelle Scharnagl														11		< 2	< 5	< 2
Quelle Am Kreuzweg, Herrnberchthaim														9,2		< 2	< 5	< 2
Weidenbrunnen Ermetzhofen														8,1		< 2	< 5	< 2
Naundorf, Br. HYP NfOs1/2002														13		< 2	< 5	< 2
Hartmannsdorf, HY 1/2002			7,6	0,005	46,00	<10	0,3	<0.5	<1	<2	18	0,2		32	<0.1	< 2	< 5	< 2

gelb markiert sind Nachweise < Bestimmungsgrenze, rot markiert sind Nachweise > Bestimmungsgrenze

Beprobung 2012: hydrochemische Analysenergebnisse (Daten der Länder und von INFU Dortmund)



Einzelwirkstoff-Verbindungen Tierarzneimittel											
Messstelle	Sulfathiazole	Sulfamerazin	Trimethoprim	Sulfadimidin	Sulfadoxin	Sulfamethoxyypyridazin	N-Ac-Sulfadiazin	Sulfachloropyridazin	Sulfamethoxazol	Sulfadimethoxin	Tetracyclin
Einheit	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l
HS/2 -NORDICK-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	230	< 2	< 6
HS/4 GRUETLOHN	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
HS/47 -OESTRICH-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
HS/10 MERFELD	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
ST.GEB/19 Leversum	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
HS/79 -FLAMSCHEN-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
HS/1 Heiden	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
HS/86 -TUNGERLOH-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
BO/4 A -LOWICK-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
BO/26 -SPORK-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
BO/29-GESINKHOOK-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
AH/29 -HOLTHAUSEN-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
AH/33 -WENDFELD-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
TE / 16 -UTHUISEN-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
TE / 19 -HOPSTEN-	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
AH/14 COE.M.GAUPEL	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
AH/40 OCHTRUP	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
RH/1 SALZBERGEN	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
RH/4 SUTRUM	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
LEER	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Beesten-Bahnhof I	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Bethen	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Bösel I	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Carum I	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Dinklage-BDF	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Drievorden	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Elbergen	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Emlichheim-Kalle I	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Gildehaus Süd	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Halen	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Kleinringerwörsten I	< 2	< 2	< 2	11	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Lohe I	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Markhausen-BDF	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Neuenkirchen VEC	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Neuscharrel I	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Quendorf Ost	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Südfelde	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Südlohne	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Wietmarschen-Lohne I	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Wildenhorst I	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Quelle Langenmoosgraben	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
QUELLE Burgmagerbein	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Kreuzhofquelle	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Unterdumeltshausen, Quelle Scharnagl	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Quelle Am Kreuzweg, Herrnberchthaim	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Weidenbrunnen Ermetzhofen	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Naundorf, Br. HYP NfOs1/2002	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6
Hartmannsdorf, HY 1/2002	< 2	< 2	< 2	<1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6

gelb markiert sind Nachweise < Bestimmungsgrenze, rot markiert sind Nachweise > Bestimmungsgrenze

Beprobung 2012: hydrochemische Analyseergebnisse (Daten der Länder und von INFU Dortmund)



Messstelle	4-epi-Tetracyclin	Oxytetracyclin	4-epi-Oxytetracyclin	Chlortetracyclin	4-epi-Chlortetracyclin	Enrofloxazin	Lincomycin	Tilmicosin	Tulathromycin	Erythromycin	Carbamazepin
Einheit	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l
HS/2 -NORDICK-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	0,35
HS/4 GRUETLOHN	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
HS/47 -OESTRICH-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
HS/10 MERFELD	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
ST.GEB/19 Leversum	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
HS/79 -FLAMSCHEN-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
HS/1 Heiden	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
HS/86 -TUNGERLOH-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
BO/4 A -LOWICK-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
BO/26 -SPORK-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
BO/29-GESINKHOOK-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
AH/29 -HOLTHAUSEN-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
AH/33 -WENDFELD-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
TE / 16 -UTHUISEN-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
TE / 19 -HOPSTEN-	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
AH/14 COE.M.GAUPEL	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
AH/40 OCHTRUP	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
RH/1 SALZBERGEN	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
RH/4 SUTRUM	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
LEER	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Beesten-Bahnhof I	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Bethen	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Bösel I	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Carum I	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Dinklage-BDF	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Drievorden	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Elbergen	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Emlichheim-Kalle I	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Gildehaus Süd	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Halen	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Kleinringerwörsten I	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Lohe I	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Markhausen-BDF	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Neuenkirchen VEC	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Neuscharrel I	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Quendorf Ost	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Südfelde	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Südlohne	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Wietmarschen-Lohne I	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Wildenhorst I	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Quelle Langenmoosgraben	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
QUELLE Burgmagerbein	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Kreuzhofquelle	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Unterdumeltshausen, Quelle Scharnagl	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Quelle Am Kreuzweg, Herrnberchthaim	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Weidenbrunnen Ermetzhofen	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Naundorf, Br. HYP NfOs1/2002	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1
Hartmannsdorf, HY 1/2002	< 6	<12	<12	<15	<15	< 3	<2	< 3	<3	<2	<0.1

gelb markiert sind Nachweise < Bestimmungsgrenze, rot markiert sind Nachweise > Bestimmungsgrenze

Messstellenname	PN-Datum	Land	Mst-Nr.	RWSP m u. MP	Entnahmetiefe	Pumpdauer	Förder-rate	Trübung	Färbung	geruchlos	T	pH	LF	O <sub>2</sub>	KS <sub>43</sub>	KB <sub>82</sub>
Einheit	TT.MM.JJJJ			m	m von GOK	min	l/min	Klartext	Klartext	Klartext	°C		µS/cm	mg/l	mmol/l	mmol/l
HS/2 -NORDICK-	15.03.2013	NRW	60220028	2,6	7,0	30	8,0	keine	schwach gelb	geruchlos	10,0	6,0	486	1,0	0,85	
HS/2 -NORDICK-	17.07.2013	NRW	60220028	3,0	4	30	3,15	keine	gelb	geruchlos	13,4	5,6	430	0,9	0,798	1,09
HS/2 -NORDICK-	13.08.2013	NRW	60220028	3	5,0	30	8,0	keine	schwach gelb	geruchlos	10,9	5,9	425	1,6	0,75	
HS/2 -NORDICK-	24.09.2013	NRW	60220028	3	7,5	25	8,0	keine	schwach gelb	geruchlos	11,9	6,0	404	1,72	0,76	
HS/4 GRUETLOHN	09.08.2013	NRW	60220041	2,6	8,0	45	2,5	stark	braun	modrig	11,5	5,4	480	1,0	0,42	1,83
HS/47 -OESTRICH-	18.07.2013	NRW	60220478	5,8	8,0	30	3,9	keine	gelb	geruchlos	11,5	6,7	700	0,0	5,31	1,67
HS/10 MERFELD	21.06.2013	NRW	110220109	1,53	6,0	25	3,8	keine	farblos	geruchlos	10,5	6,2	600	2,5	1,49	0,988
ST.GEB/19 Leversum	19.06.2013	NRW	110210190	2,72	6,0		4,0	keine	farblos	geruchlos	11,5	7,0	720	2,7	2,20	0,221
HS/79 -FLAMSCHEN-	24.06.2013	NRW	110220791	8,7	10,0	25	3,9	keine	farblos	geruchlos	10,3	6,8	1270	7,2	6,41	1,19
HS/1 Heiden	17.07.2013	NRW	60220016	8,1	12,0	90	2,6	keine	farblos	geruchlos	12,1	5,2	540	5,4	0,35	0,986
HS/86 -TUNGERLOH-	18.07.2013	NRW	60220867	1,8	4,0	30	2,8	stark	rötlich	geruchlos	13,0	6,9	730	4,2	2,69	0,322
BO/4 A -LOWICK-	02.08.2013	NRW	60230058	2,21	14,0	62	4,5	keine	farblos	geruchlos	13,0	7,1	860	0,0	5,14	0,791
BO/26 -SPORK-	18.07.2013	NRW	60230265	2,2	4,0	30	4,0	keine	farblos	geruchlos	12,7	7,0	930	0,1	4,85	0,575
BO/29-GESINKHOOK-	02.08.2013	NRW	60230290	2,24	4,0	45	4,7	keine	gelb	geruchlos	13,7	5,8	410	0,0	0,70	1,98
AH/29 -HOLTHAUSEN-	17.07.2013	NRW	60240295	3,8	6,0	40	3,3	keine	farblos	geruchlos	13,4	6,7	660	2,7	5,44	0,697
AH/33 -WENDFELD-	16.07.2013	NRW	60240337	7,51	9,0	70	5,0	keine	farblos	geruchlos	11,9	5,3	460	8,4	0,14	0,732
TE / 16 -UTHUISEN-	18.06.2013	NRW	110200160	1,98	6,0	30	4,0	gering	gelb	schwach modrig	10,7	6,4	1490	0,2	3,17	1,31
TE / 19 -HOPSTEN-	18.06.2013	NRW	110200196	2,63	6,0	30	4,3	gering	gelb	schwach modrig	11,3	6,2	450	0,0	1,19	1,17
AH/14 COE.M.GAUPEL	24.06.2013	NRW	110240145	3,35	8,0	30	3,2	keine	farblos	geruchlos	10,8	6,4	410	0,9	2,63	0,883
AH/40 OCHTRUP	20.06.2013	NRW	110240406	1,77	11,0	55	5,2	gering	gelb	schwach würzig	12,2	6,9	1950	0,3	7,06	0,663
RH/1 SALZBERGEN	20.06.2013	NRW	110290010	2,63	6,0	25	3,9	gering	grau	geruchlos	10,9	4,8	410	2,8	0,19	1,9
RH/4 SUTRUM	20.06.2013	NRW	110290045	4,32	8,0	34	3,5	mittel	grau	geruchlos	11,5	6,8	850	2,6	9,73	
LEER	25.06.2013	NRW	110320062	1,96	10,0	55	4,4	gering	farblos	geruchlos	10,6	7,2	760	0,1	5,24	0,576
Beesten-Bahnhof I	27.05.2013	NI	6744	1,41	2,0	30	10,0	keine	farblos	geruchlos	8,9	4,4	245	2,4	< 0.1	1,82
Bethen	28.05.2013	NI	CLP_11_462	4,36	6,0	35	6,0	keine	farblos	geruchlos	9,8	4,7	280	4,4	0,14	3,26
Bösel I	27.05.2013	NI	CLP_11_464	2,46	4,0	25	5,5	keine	farblos	geruchlos	8,5	4,6	530	0,8	< 0.1	1,36
Bösel I	25.09.2013	NI	CLP_11_464	2,90	4,0	30	5,0	keine	farblos	geruchlos	12,5	4,5	580	1,3	< 0.1	1,63
Carum I	29.05.2013	NI	CLP_11_468	1,93	3,2	20	2,2	fast klar	schwach gelb	geruchlos	8,7	6,8	1670	< 0.2	7,40	2,59
Dinklage-BDF	29.05.2013	NI	CLP_11_3487	1,93	4,0	20	8,8	opalisierend	schwach gelb	schwach H2S	10,4	6,8	600	< 0.2	5,40	1,63
Drievoorden	28.05.2013	NI	6383	2,19	7,0	25	10,0	fast klar	schwach gelb	geruchlos	10,2	6,5	517	< 0.2	2,09	2,17
Elbergen	28.05.2013	NI	CLP_11_278	9,34	12,0	20	9,5	keine	farblos	geruchlos	11,8	5,8	920	0,6	2,00	6,13
Emlichheim-Kalle I	28.05.2013	NI	7068	0,85	4,0	25	10,0	fast klar	stark gelbbraun	stark faulig	9,4	5,8	648	< 0.2	1,69	7,37
Gildehaus Süd	28.05.2013	NI	6749	2,67	5,0	30	10,0	fast klar	schwach gelb	geruchlos	9,6	5,7	514	< 0.2	0,69	2,66
Halen	28.05.2013	NI	CLP_11_189	9,64	12,0	30	8,5	keine	farblos	geruchlos	10,1	4,8	620	9,2	0,10	1,90
Kleinringerwüsten I	27.05.2013	NI	6628	1,24	5,0	25	10,0	fast klar	farblos	geruchlos	9,9	4,7	468	< 0.2	< 0.1	1,28
Lohe I	27.05.2013	NI	CLP_11_287	1,79	3,0	20	5,5	keine	sehr schwach gelb	geruchlos	8,2	5,2	490	< 0.2	0,22	1,96
Markhausen-BDF	27.05.2013	NI	CLP_11_572	2,89	4,0	35	9,5	keine	sehr schwach gelb	geruchlos	9,5	5,3	330	< 0.2	0,16	0,94
Neuenkirchen VEC	28.05.2013	NI	CLP_11_203	2,26	4,0	20	5,0	keine	farblos	geruchlos	10,7	5,4	670	0,3	0,20	1,42
Neuscharrel I	27.05.2013	NI	CLP_11_25	1,83	4,0	20	8,0	opalisierend	sehr schwach gelb	H2S	9,4	6,3	710	0,2	3,00	3,13
Quendorf Ost	28.05.2013	NI	6410	1,45	7,0	30	10,0	keine	farblos	geruchlos	10,7	5,5	412	< 0.2	0,24	1,43
Südfelde	29.05.2013	NI	CLP_11_213	2,14	4,0	20	5,7	keine	farblos	geruchlos	10,1	6,0	700	< 0.2	0,70	1,25
Südlohne	29.05.2013	NI	CLP_11_300	7,43	8,0	20	6,5	keine	farblos	geruchlos	10,4	4,4	150	9,4	0,10	0,94
Wietmarschen-Lohne I	27.05.2013	NI	6734	1,95	9,0	30	10,0	fast klar	farblos	geruchlos	10,5	6,8	565	< 0.2	3,41	1,51
Wildenhorst I	28.05.2013	NI	CLP_11_223	1,39	3,0	20	5,5	keine	farblos	H2S	10,5	6,4	340	< 0.2	1,90	1,66
Quelle Langenmoosgraben	10.06.2013	BY	OM-DON-06	-	-	-	12.0*	fast klar	gelblich	geruchlos	9,9	7,2	724	8,7	5,86	0,7
QUELLE Burgmagerbein	13.05.2013	BY	T40	-	-	-	12.0*	keine	farblos	geruchlos	9,9	7,4	728	11,7	4,90	0,33
Kreuzhofquelle	24.06.2013	BY	OM-DON-08	-	-	-	30.0*	keine	farblos	geruchlos	11,0	7,3	748	9,1	6,27	0,56
Unterdumeltshausen, Quelle Scharnagl	06.05.2013	BY	OM-IN-11	-	-	-	-	keine	farblos	geruchlos	10,6	7,5	645	10,2	5,89	0,45
Quelle Am Kreuzweg, Herrnberchthaim	26.06.2013	BY	OM-AN-71	-	-	-	240*	keine	farblos	geruchlos	10,7	7,2	810	6,5	7,00	1,1
Weidenbrunnen Ermetzhofen	26.06.2013	BY	OM-AN-44	-	-	-	180*	keine	farblos	geruchlos	10,0	7,3	770	8,0	6,79	0,86
Naundorf, Br. HYP NfOs1/2002	22.05.2013	SN	47440007	-	-	-	**	keine	farblos	geruchlos	11,2	7,6	902	9,0	4,50	0,46
Hartmannsdorf, HY 1/2002	13.05.2013	SN	51426003	-	-	-	**	keine	farblos	geruchlos	10,4	5,9	434	10,4	0,59	1,80

Messstellenname	PN-Datum	Redox	Ca	Mg	Na	K	NH <sub>4</sub>	Mn	Fe	HCO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	CL	NO <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	o-PO <sub>4</sub>	F	DOC	TOC	SAK 254	SAK 436
Einheit	TT.MM.JJJJ	mV	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	µg/l	µg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l	mg/l C	mg/l	m <sup>-1</sup>	m <sup>-1</sup>
HS/2 -NORDICK-	15.03.2013	322	58,6	6,1	17,8	14,7	0,02	< 5	120	51,9	75,0	31,8	68,7	<0.05	0,88			13,0		
HS/2 -NORDICK-	17.07.2013	396	49,0	4,8	14	12	< 0.06			48,7	65	29	59,3	< 0.07	0,76343		9,8	10,7		
HS/2 -NORDICK-	13.08.2013	481	49,5	5,2	14,5	14,1	0,03	< 5	75	45,8	63,0	25,8	56,4	<0.05	0,86			12,0		
HS/2 -NORDICK-	24.09.2013	540	48,9	5,0	14,2	13,2	0,02	5	87	46,4	55,7	25,5	56,8	<0.05	0,86			13,0		
HS/4 GRUETLOHN	09.08.2013	412	40,0	8,6	20,0	12,0	0,11	300	56000	25,7	48,0	40,0	109,3	< 0.07	0,05		1,6	3,2		
HS/47 -OESTRICH-	18.07.2013	118	110,0	8,8	8,8	9,1	4,89	1500	18000	324,2	89,0	26,0	< 1.3	< 0.07	0,09		2,4	3,3		
HS/10 MERFELD	21.06.2013	410	64,0	5,6	20,0	20,0	< 0.06	54	35	91,0	50,0	47,0	100,5	0,08	1,11		11,9	12,2		
ST.GEB/19 Leversum	19.06.2013	369	100,0	4,0	12,0	6,0	< 0.06	11	40	134,3	42,0	32,0	186,4	< 0.07	0,10		3,0	3,6		
HS/79 -FLAMSCHEN-	24.06.2013	367	320,0	2,4	18,0	1,5	< 0.06	< 2.0	88	391,3	103,0	54,0	223,1	< 0.07	0,17		1,9	2,4		
HS/1 Heiden	17.07.2013	410	47,0	9,4	28,0	11,0	< 0.06	8	58	21,4	94,0	58,0	58,4	< 0.07	< 0.03		< 1.0	1,1		
HS/86 -TUNGERLOH-	18.07.2013	343	110,0	11,0	21,0	13,0	< 0.06	320	200000	164,2	67,0	58,0	135,0	0,11			4,1	7,9		
BO/4 A -LOWICK-	02.08.2013	303	120,0	10,0	24,0	20,0	1,55	1100		313,8	119,0	39,8	93,0	0,10	0,06		2,4	2,9		
BO/26 -SPORK-	18.07.2013	273	120,0	11,0	24,0	30,0	< 0.06	340	< 20	296,1	80,0	28,0	139,5	0,14	< 0.03		4,3	5,2		
BO/29-GESINKHOOK-	02.08.2013	454	38,0	7,9	8,2	18,0	< 0.06	97	570	43,0	66,9	13,1	77,5	< 0.07	0,07		19,6	21,5		
AH/29 -HOLTHAUSEN-	17.07.2013	278	110,0	9,3	9,3	17,0	< 0.06	34	150	332,1	56,0	36,0	52,7	< 0.07	0,04		4,6	6,3		
AH/33 -WENDFELD-	16.07.2013	497	54,0	9,8	7,7	2,8	< 0.06	73	20	8,3	31,0	29,0	155,4	< 0.07	< 0.03		1,0	1,4		
TE / 16 -UTHUISEN-	18.06.2013	340	110,0	19,0	37,0	60,0	< 0.06	31	300	193,5	133,0	75,0	370,5	< 0.07	0,09		63,1	63,0		
TE / 19 -HOPSTEN-	18.06.2013	103	46,0	4,6	7,4	19,0	3,09	220	4000	72,6	116,0	14,0	< 1.3	< 0.07	0,32		16,9	18,4		
AH/14 COE.M.GAUPEL	24.06.2013	404	57,0	3,7	6,6	13,0	< 0.06	120	130	160,6	29,0	18,0	30,1	< 0.07	0,85		4,6	4,9		
AH/40 OCHTRUP	20.06.2013	117,8	110,0	5,0	55,0	16,0	0,80	510	3800	431,0	763,0	223,0	< 1.3	< 0.07	0,09		14,5	15,4		
RH/1 SALZBERGEN	20.06.2013	535	34,0	6,3	13,0	15,0	< 0.06	54	60	11,6	28,0	37,0	23,7	< 0.07	0,05		12,5	12,6		
RH/4 SUTRUM	20.06.2013	387,4	200,0	3,5	12,0	2,3	0,09	120	2000	594,0	59,0	26,0	94,3	< 0.07	0,27		1,3	2,8		
LEER	25.06.2013	76	130,0	5,6	15,0	2,4	2,83	280	6800	319,9	66,0	44,0	< 1.3	< 0.07	1,05		4,5	5,1		
Beesten-Bahnhof I	27.05.2013	260	4,9	2,3	10,0	2,2	< 0.06	< 50	< 200	3,1	27,0	20,0	56,7	< 0.03	< 0.06	0,57	10,0		28	0,70
Bethen	28.05.2013	584	18,0	5,6	4,5	22,0	< 0.06	280	< 200	8,5	62,0	7,9	35,9	< 0.03	< 0.06	< 0.1	1,8		2,5	< 0.1
Bösel I	27.05.2013	569	19,0	4,3	48,0	17,0	3,22	< 50	< 200	3,1	45,0	33,0	131,9	< 0.03	< 0.06	< 0.1	6,3		14	0,2
Bösel I	25.09.2013		26,0	5,6	58,0	18,0	1,26	68	< 200	3,1	57,0	51,0	138,1	< 0.03			3,7			
Carum I	29.05.2013	387	210,0	33,0	70,0	98,0	0,64	900	< 200	451,8	350,0	89,0	46,5	0,12	0,09	0,11	39,0		110	3,2
Dinklage-BDF	29.05.2013	95	88,0	6,3	9,5	1,1	8,89	170	7400	329,7	< 0.5	25,0	< 0.5	< 0.03	3,68		12,0			
Drievoorden	28.05.2013	230	11,0	6,8	19,0	84,0	1,26	500	20000	127,6	55,0	43,0	< 0.5	< 0.03	1,01		13,0			
Elbergen	28.05.2013	436	73,0	18,0	51,0	57,0	0,19	1300	< 200	122,1	120,0	96,0	92,1	< 0.03	0,15		2,2			
Emlichheim-Kalle I	28.05.2013	250	51,0	14,0	37,0	14,0	4,51	360	14000	103,2	84,0	86,0	< 0.5	< 0.03	0,31		53,0			
Gildehaus Süd	28.05.2013	430	43,0	10,0	13,0	42,0	< 0.06	230	< 200	42,1	44,0	28,0	125,3	0,10	< 0.06	< 0.1	14,0		41	1,4
Halen	28.05.2013	572	51,0	29,0	15,0	5,6	< 0.06	< 50	< 200	6,1	52,0	27,0	191,7	< 0.03	< 0.06		1,1			
Kleinringerwüsten I	27.05.2013	540	26,0	10,0	12,0	45,0	0,26	340	200	3,1	51,0	21,0	123,5	< 0.03	< 0.06	< 0.1	4,8		10	0,1
Lohe I	27.05.2013	309	46,0	9,4	9,7	17,0	0,24	440	300	13,4	34,0	13,0	155,4	0,07	< 0.06		9,5			
Markhausen-BDF	27.05.2013	403	26,0	3,4	10,0	23,0	< 0.06	< 50	< 200	9,8	40,0	20,0	62,0	< 0.03	< 0.06	< 0.1	8,5		25	0,7
Neuenkirchen VEC	28.05.2013	405	56,0	17,0	22,0	9,9	< 0.06	570	< 200	12,2	90,0	38,0	143,9	< 0.03	< 0.06		1,6			
Neuscharrel I	27.05.2013	99	80,0	13,0	22,0	3,7	2,19	440	450	183,2	110,0	67,0	< 0.5	< 0.03	< 0.06	< 0.1	14,0		27	0,9
Quendorf Ost	28.05.2013	470	31,0	11,0	12,0	19,0	0,36	270	< 200	14,7	34,0	19,0	120,4	< 0.03	< 0.06		4,3			
Südfelde	29.05.2013	420	100,0	11,0	21,0	3,2	< 0.06	< 50	< 200	42,7	110,0	46,0	146,1	< 0.03	< 0.06		1,6			
Südlohne	29.05.2013	607	8,5	1,0	4,9	8,6	< 0.06	< 50	< 200	6,1	20,0	4,7	31,9	< 0.03	< 0.06	< 0.1	2,9		4	0,2
Wietmarschen-Lohne I	27.05.2013	160	96,0	4,9	12,0	1,6	3,09	510	12000	208,2	79,0	24,0	< 0.5	< 0.03	1,04		15,0			
Wildenhorst I	28.05.2013	107	27,0	3,7	12,0	1,7	1,67	700	27000	116,0	21,0	27,0	< 0.5	0,07	< 0.06		6,5			
Quelle Langenmoosgraben	10.06.2013		108,0	28,1	18,0	1,7	< 0.02	10	120	357,8	19,0	29,0	85,0	< 0.016	0,03	0,1	1,5	2,0		
QUELLE Burgmagerbein	13.05.2013		155,0	3,7	4,2	0,7	0,02	< 1	< 10	299,1	22,0	10,0	155,0	< 0.016	0,03	< 0.1	0,9	1,1		
Kreuzhofquelle	24.06.2013		120,0	31,4	8,4	2,0	< 0.02	1	10	382,8	29,0	21,0	85,0	< 0.016	0,04	0,2	0,5	0,6		
Unterdumeltshausen, Quelle Scharnagl	06.05.2013		101,0	31,0	7,9	1,2	< 0.01	< 1	< 10	359,6	19,0	31,0	42,0	< 0.02	0,07	0,2	1,1	1,2		
Quelle Am Kreuzweg, Herrnberchthaim	26.06.2013		126,0	43,0	4,7	0,8	< 0.03	4	29	427,4	38,0	39,0	52,0	< 0.02	0,03	0,4	0,7			
Weidenbrunnen Ermetzhofen	26.06.2013		117,0	38,0	6,7	1,4	< 0.03	4	15	414,5	42,0	19,0	68,0	< 0.02	< 0.02	0,2	0,9			
Naundorf, Br. HYP NfOs1/2002	22.05.2013	258	130,0	35,0	12,0	2,7	0,05	190	200	280,0	180,0	42,0	16,0	< 0.02	< 0.03	0,09	1,0	1,0		
Hartmannsdorf, HY 1/2002	13.05.2013	404	55,0	14,0	17,0	2,2	< 0.026	3,1	< 30	36,0	110,0	23,0	80,0	< 0.02	< 0.03	< 0.05	1,0	1,0		

Messstellenname	PN-Datum	AOX	Ni	B	Ba	Al	Pb	As	Cr	Cu	Zn	Cd	Hg	SiO2	U	Sulfaethoxy-pyridazin	4-OH-Sulfadiazin	Sulfa-diazin	Sulfa-thiazole	Sulfa-merazin
Einheit	TT.MM.JJJJ	µg/l	µg/l	mg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	µg/l	mg/l	µg/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l
HS/2 -NORDICK-	15.03.2013															< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
HS/2 -NORDICK-	17.07.2013			0,130	130	70					5,9					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
HS/2 -NORDICK-	13.08.2013			0,000												< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
HS/2 -NORDICK-	24.09.2013			0,000												< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
HS/4 GRUETLOHN	09.08.2013			0,091	66	130					2900					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
HS/47 -OESTRICH-	18.07.2013		8	0,067	95	< 20	0,11	2,2	< 0.5	0,91	4,9	0,079	<0.005		0,07	< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
HS/10 MERFELD	21.06.2013			0,039	59	28					120					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
ST.GEB/19 Leversum	19.06.2013			0,042	21	27					< 4					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
HS/79 -FLAMSCHEN-	24.06.2013			<0,003	28	34					< 4					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
HS/1 Heiden	17.07.2013			0,120	24	25					5,7					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
HS/86 -TUNGERLOH-	18.07.2013			0,046	99	3900					560					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
BO/4 A -LOWICK-	02.08.2013			0,110	92	< 20					4,5					< 2	< 5	4,00	< 2	< 2
BO/26 -SPORK-	18.07.2013			0,110	53	< 20					< 4					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
BO/29-GESINKHOOK-	02.08.2013			0,074	61	1500					91					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
AH/29 -HOLTHAUSEN-	17.07.2013			0,056	22	< 20					< 4					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
AH/33 -WENDFELD-	16.07.2013			0,038	130	< 20					18					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
TE / 16 -UTHUISEN-	18.06.2013		4	0,130	77	620	2,6	1,2	3,2	47	440	0,2	0,009		1,80	< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
TE / 19 -HOPSTEN-	18.06.2013		< 1	0,044	39	260		0,4	2,4	< 0.5	< 4	< 0.01	<0.005		0,03	< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
AH/14 COE.M.GAUPEL	24.06.2013			0,042	61	53					< 4					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
AH/40 OCHTRUP	20.06.2013			3,200	27	120					12					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
RH/1 SALZBERGEN	20.06.2013		7,9	<0,003	240	1100	0,71	0,46	3,1	22	42	0,21	<0.005		0,27	< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
RH/4 SUTRUM	20.06.2013			<0,003	48	1800					15					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
LEER	25.06.2013			0,063	68	< 20										< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Beesten-Bahnhof I	27.05.2013	53	6,3	< 0.05		9200	< 1.0	< 1.0	1,4	4,4	180	0,8	< 0.02	1,00		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Bethen	28.05.2013	< 10	6,5	< 0.05		300	< 1.0	< 1.0	< 1.0	1,4	21	0,24	< 0.02	0,47		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Bösel I	27.05.2013	48	< 1.0	< 0.05		840	< 1.0	< 1.0	< 1.0	2,4	< 10	< 0.05	< 0.02	1,4		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Bösel I	25.09.2013					1100										< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Carum I	29.05.2013	80	4,1	< 0.05		21	< 1.0	< 1.0	< 1.0	3,9	22	< 0.05	< 0.02	5,9		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Dinklage-BDF	29.05.2013					12										< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Drievorden	28.05.2013					36				1,1	< 10					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Elbergen	28.05.2013					12										< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Emlichheim-Kalle I	28.05.2013					960				< 1.0	< 10					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Gildehaus Süd	28.05.2013	67	38	< 0.05		320	< 1.0	< 1.0	3,3	4,0	40	0,39	< 0.02	1		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Halen	28.05.2013					50										< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Kleinringerwüsten I	27.05.2013	27	17	< 0.05		350	1,3	< 1.0	< 1.0	5,8	28	0,54	< 0.02	0,83		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Lohe I	27.05.2013					440				3,0	11					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Markhausen-BDF	27.05.2013	68	13	< 0.05		350	< 1.0	< 1.0	3	7,0	50	0,26	< 0.02	0,67		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Neuenkirchen VEC	28.05.2013					66										< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Neuscharrel I	27.05.2013	25	< 1.0			39	< 1.0	< 1.0	< 1.0	< 1.0	< 10	< 0.05	< 0.02	4,3		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Quendorf Ost	28.05.2013					650				4,7	43					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Südfelde	29.05.2013					< 10										< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Südlohne	29.05.2013	< 10	2,1	< 0.05		1200	< 1.0	< 1.0	< 1.0	1,3	< 10	0,22	< 0.02	1		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Wietmarschen-Lohne I	27.05.2013					22				< 1.0	< 10					< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Wildenhorst I	28.05.2013					< 10										< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Quelle Langenmoosgraben	10.06.2013													11		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
QUELLE Burgmagerbein	13.05.2013													6,3		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Kreuzhofquelle	24.06.2013													8,8		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Unterdumeltshausen, Quelle Scharnagl	06.05.2013													12		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Quelle Am Kreuzweg, Herrnberchthheim	26.06.2013													10		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Weidenbrunnen Ermetzhofen	26.06.2013													11		< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Naundorf, Br. HYP NfOs1/2002	22.05.2013		< 0.5	0,140	84	< 10	0,2	0,8	< 1.0	< 2.0	33	< 0.03		14	4,80	< 2	< 5	< 2	< 2	< 2
Hartmannsdorf, HY 1/2002	13.05.2013		5,8	<0.004	46	< 10	0,4	< 0.5	< 1.0	3,3	22	0,2	0,07	14	< 0.1	< 2	< 5	< 2	< 2	< 2

Messstellenname	PN-Datum	Trime-thoprim	Sulfa-dimidin	Sulfadoxin	Sulfamethoxy-pyridazin	N-Ac-Sulfadiazin	Sulfachloro-pyridazin	Sulfame-thoxazol	Sulfadime-thoxin	Tetra-cyclin	4-epi-Tetracyclin	Oxyte-tracyclin	4-epi-Oxy-tetracyclin	Chlorte-tracyclin	4-epi-Chlor-tetracyclin	Enro-floxazin	Lincoc-mycin
Einheit	TT.MM.JJJJ	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l
HS/2 -NORDICK-	15.03.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	229	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
HS/2 -NORDICK-	17.07.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	227	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
HS/2 -NORDICK-	13.08.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	181	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
HS/2 -NORDICK-	24.09.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	164	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
HS/4 GRUETLOHN	09.08.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
HS/47 -OESTRICH-	18.07.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
HS/10 MERFELD	21.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
ST.GEB/19 Leversum	19.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
HS/79 -FLAMSCHEN-	24.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
HS/1 Heiden	17.07.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
HS/86 -TUNGERLOH-	18.07.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
BO/4 A -LOWICK-	02.08.2013	< 2	< 3	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
BO/26 -SPORK-	18.07.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
BO/29-GESINKHOOK-	02.08.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
AH/29 -HOLTHAUSEN-	17.07.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
AH/33 -WENDFELD-	16.07.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
TE / 16 -UTHUISEN-	18.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
TE / 19 -HOPSTEN-	18.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
AH/14 COE.M.GAUPEL	24.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
AH/40 OCHTRUP	20.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
RH/1 SALZBERGEN	20.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
RH/4 SUTRUM	20.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
LEER	25.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Beesten-Bahnhof I	27.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Bethen	28.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Bösel I	27.05.2013	< 2	3,65	< 2	< 2	< 2	< 6	138	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Bösel I	25.09.2013	< 2	< 2	< 2	< 2	< 2	< 6	950	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Carum I	29.05.2013	< 2	4,70	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Dinklage-BDF	29.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Drievorden	28.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Elbergen	28.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Emlichheim-Kalle I	28.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Gildehaus Süd	28.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Halen	28.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Kleinringerwüsten I	27.05.2013	< 2	5,10	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Lohe I	27.05.2013	< 2	< 3	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Markhausen-BDF	27.05.2013	< 2	< 3	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Neuenkirchen VEC	28.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Neuscharrel I	27.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Quendorf Ost	28.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Südfelde	29.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Südlohne	29.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Wietmarschen-Lohne I	27.05.2013	< 2	6,00	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Wildenhorst I	28.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Quelle Langenmoosgraben	10.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
QUELLE Burgmagerbein	13.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Kreuzhofquelle	24.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Unterdumeltshausen, Quelle Scharnagl	06.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Quelle Am Kreuzweg, Herrnberchthaim	26.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Weidenbrunnen Ermetzhofen	26.06.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Naundorf, Br. HYP NfOs1/2002	22.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2
Hartmannsdorf, HY 1/2002	13.05.2013	< 2	< 1	< 2	< 2	< 2	< 6	< 4	< 2	< 6	< 6	< 12	< 12	< 15	< 15	< 3	< 2

**Beprobung 2013: aggregierte hydrochemische Analyseergebnisse** (Daten der Länder und von INFU Dortmund; gelb markiert sind Nachweise < Bestimmungsgrenze, rot markiert sind Nachweise > Bestimmungsgrenze)



Messstellenname	PN-Datum	Tilimicosin	Tulathromycin	Erythromycin	Carbamazepin
Einheit	TT.MM.JJJJ	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l
HS/2 -NORDICK-	15.03.2013	< 3	<3	<2	<0.3
HS/2 -NORDICK-	17.07.2013	< 3	<3	<2	<0.3
HS/2 -NORDICK-	13.08.2013	< 3	<3	<2	<0.3
HS/2 -NORDICK-	24.09.2013	< 3	<3	<2	<0.1
HS/4 GRUETLOHN	09.08.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
HS/47 -OESTRICH-	18.07.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
HS/10 MERFELD	21.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.3
ST.GEB/19 Leversum	19.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
HS/79 -FLAMSCHEN-	24.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
HS/1 Heiden	17.07.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
HS/86 -TUNGERLOH-	18.07.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
BO/4 A -LOWICK-	02.08.2013	< 3	<3	< 2	<0.3
BO/26 -SPORK-	18.07.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
BO/29-GESINKHOOK-	02.08.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
AH/29 -HOLTHAUSEN-	17.07.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
AH/33 -WENDFELD-	16.07.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
TE / 16 -UTHUISEN-	18.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
TE / 19 -HOPSTEN-	18.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
AH/14 COE.M.GAUPEL	24.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
AH/40 OCHTRUP	20.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
RH/1 SALZBERGEN	20.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
RH/4 SUTRUM	20.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
LEER	25.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Beesten-Bahnhof I	27.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Bethen	28.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Bösel I	27.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Bösel I	25.09.2013	< 3	<3	< 2	<0.2
Carum I	29.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Dinklage-BDF	29.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Drievorden	28.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Elbergen	28.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Emlichheim-Kalle I	28.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Gildehaus Süd	28.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Halen	28.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Kleinringerwüsten I	27.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Lohe I	27.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Markhausen-BDF	27.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Neuenkirchen VEC	28.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Neuscharrel I	27.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Quendorf Ost	28.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Südfelde	29.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Südlohne	29.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Wietmarschen-Lohne I	27.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Wildenhorst I	28.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Quelle Langenmoosgraben	10.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
QUELLE Burgmagerbein	13.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Kreuzhofquelle	24.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Unterdumeltshausen, Quelle Scharnagl	06.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Quelle Am Kreuzweg, Herrnberchthheim	26.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Weidenbrunnen Ermetzhofen	26.06.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Naundorf, Br. HYP NfOs1/2002	22.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1
Hartmannsdorf, HY 1/2002	13.05.2013	< 3	<3	< 2	<0.1