

Nach ihrer Einnahme werden Pharmaka im Körper meist nur unvollständig metabolisiert, über Kot und Urin ausgeschieden und somit ins Abwassersystem eingetragen. Dort werden Pharmaka durch Transformationsprozesse während der biologischen Stufe oder durch Sorption an Überschussschlamm zwar teilweise entfernt, trotzdem wird ein Großteil über die Kläranlagenabläufe in Bäche und Flüsse emittiert. Bisher gibt es dennoch kaum Studien, die Eliminierungsprozesse von Arzneimittelrückständen in Flüssen quantitativ beschrieben haben. Das Ziel dieser Arbeit war es daher, diese Wissenslücke zu schließen und prozessbasierte Daten über das Verhalten von Arzneimittelrückständen in Fließgewässern zu ermitteln.

Als erster Ansatz wurde ein Tracerversuch mit Arzneimittelwirkstoffen durchgeführt. Hierzu wurden neben zwei Fluoreszenzfarbstoffen sechs Pharmaka als Dirac Puls in einen Bach gegeben und entlang eines 16 km langen Flussabschnittes an fünf Messstellen mit automatischen Probesammlern Wasserproben entnommen. Das Schmerzmittel Ibuprofen und der Lipidsenker Clofibrinsäure wurden dabei innerhalb des Untersuchungsgebietes entfernt. Für die anderen vier betrachteten Pharmaka (Bezafibrat, Diclofenac, Metoprolol, Naproxen) konnte keine Eliminierung entlang der Fließstrecke nachgewiesen werden. Aufgrund der geringen Austauschraten zwischen Oberflächenwasser und Sedimenten wurde die Eliminierung von Ibuprofen und Clofibrinsäure auf biologische Transformation in Biofilmen, die an Wasserpflanzen und auf der Sedimentoberfläche wuchsen, zurückgeführt. Basierend auf den Messdaten des Tracerversuchs wurde ein reaktives Stofftransportmodell entwickelt, das erstmals die Differenzierung zwischen einzelnen Entfernungsprozessen von Pharmaka in der fließenden Welle und in Speicherzonen von Oberflächengewässern ermöglichte.

Als zweiter Ansatz wurde eine Feldstudie an einem Fließgewässer, das ideale Randbedingungen für die Entfernung von Pharmaka bereitstellt, durchgeführt. Die Feldarbeiten fanden an einem 12,5 Kilometer langen Flussabschnitt statt, an dessen beiden Enden Mischproben entnommen und auf zehn Arzneimittelwirkstoffe analysiert wurden. Darüber hinaus wurden an drei Stellen entlang der Fließstrecke *in situ* Phototransformationsstudien durchgeführt sowie das Porenwasser tiefenorientiert beprobt. Für alle betrachteten Stoffe konnte relativ zu Carbamazepin eine Entfernung festgestellt werden. Photoabbau war nur für das Schmerzmittel Diclofenac und für den Betablocker Sotalol ein relevanter Eliminierungspfad. Sehr wahrscheinlich wurden die anderen Stoffe durch biologische Prozesse in den Flusssedimenten entfernt. Der postulierte Bioabbau des Betablockers Metoprolol wurde durch eine Änderung des Verhältnisses der beiden Enantiomere entlang des Untersuchungsgebietes verifiziert.

Als dritter Ansatz wurde ein Labortestsystem entwickelt, das die advektiv dominierten Austauschprozesse zwischen Oberflächenwasser und Sedimenten nachstellt und somit die Bestimmung von Abbauraten von Stoffen in Fließgewässern unter umweltnahen Bedingungen ermöglicht. Mit Hilfe dieses aus rezirkulierenden Sedimentsäulen bestehenden experimentellen Ansatzes wurden Kinetiken für den biologischen Abbau ausgewählter Pharmaka in verschiedenen Sedimenten bestimmt. Abgesehen von einer anfänglichen Einstellung eines Sorptionsgleichgewichts für die Betablocker Metoprolol und Propranolol trugen abiotische Prozesse nicht zur Eliminierung in den Sedimenten bei. Die eingestellte Filtergeschwindigkeit hatte dabei nur einen geringen Einfluss auf die Eliminierungsraten. Die Ergebnisse zeigten, dass das gewählte rezirkulierende Testdesign zwei

entscheidende Vorteile gegenüber Standardtestverfahren aufweist. Einerseits liegen die ermittelten Abbauraten wesentlich näher an den wenigen bestimmten *in situ* Abbauraten und stellen somit realistischere Raten dar. Andererseits werden die Abbaukinetiken unter definierten hydraulischen Bedingungen bestimmt und können dadurch einfacher auf die in der Umwelt vorherrschenden Bedingungen übertragen werden.

Zusammenfassend konnte die Arbeit einen Teil der nach wie vor vorhandenen Wissenslücke über das Verhalten von Pharmaka in Fließgewässern schließen und wertvolle neue Erkenntnisse über die relevanten Eliminierungsmechanismen liefern. Es wurde durch eine Kombination von systematischen Feldstudien mit innovativen Laborexperimenten gezeigt, dass insbesondere (mikro-) biologische Transformationsprozesse in den Flusssedimenten zur Entfernung von Arzneimittelrückständen aus Fließgewässern beitragen. Allerdings wird das vorhandene Reinigungspotenzial der Flusssedimente aufgrund eines mangelnden Austausches von Oberflächenwasser und Porenwasser oftmals nur bedingt ausgeschöpft.

Meeting the challenges of quantifying the elimination processes of pharmaceuticals in rivers. Dissertation von Dipl.-Geoökologe Uwe Kunkel, Betreuer: Dr. habil Michael Radke, Lehrstuhl für Hydrologie, Universität Bayreuth, kostenloser Download verfügbar unter: https://epub.uni-bayreuth.de/1692/1/Diss_kunkel.pdf