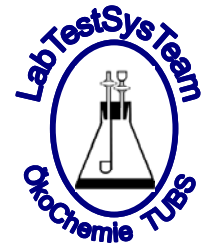




DAS GÜLLE-PROJEKT - Ausarbeitung eines Methodenkataloges zur Untersuchung des Rückstandsverhaltens von Tierarzneimitteln in Gülle und güllegedüngten Böden



Robert Kreuzig, Julia Heise, Sibylla Höltge, Braunschweig; r.kreuzig@tu-bs.de

Einträge von Tierarzneimitteln in Böden

In der Intensivtierhaltung eingesetzte Tierarzneimittel werden von den behandelten Nutztieren als unveränderte Ausgangsverbindungen oder Metaboliten ausgeschieden und gelangen in die Gülle. Während der Lagerung der Gülle bis zur Ausbringung auf landwirtschaftlichen Nutzflächen unterliegen die eingetragenen Tierarzneimittel Alterungsprozessen, die durch den mikrobiellen Abbau, die Bildung nicht-extrahierbarer Rückstände bzw. die Sorption an die Feststoffmatrix der Gülle bedingt werden. Aus der stoffspezifischen Persistenz und Bioverfügbarkeit ergibt sich schließlich die Umweltrelevanz der mit der Gülleausbringung verbundenen Einträge von Tierarzneimitteln in Acker- und Grünlandböden [1].

Im Rahmen der internationalen Harmonisierung der Tierarzneimittel-Zulassung findet dieser Eintragungspfad in einem mehrstufigen Prüfkonzept Berücksichtigung. In Phase I wird die Einhaltung des festgelegten Schwellenwertes (Trigger) von 100 µg Tierarzneimittel kg⁻¹ Boden mittels Expositionsabschätzung auf der Basis von Anwendungsmenge und Anwendungsmuster des jeweiligen Tierarzneimittels ermittelt [2,3]. Bei einer Überschreitung des Schwellenwertes folgen in Phase II neben Tests zur ökotoxikologischen Wirkung (Dungfauna, Regenwürmer, Daphnien) auch Tests zum Rückstandsverhalten in Böden. Ekto- und Endoparasitika gehen grundsätzlich in die Phase II-Bewertung ein [4]. In dieser sind in Anlehnung an "OECD Guidelines for the Testing of Chemicals" [5-8] Abbauraten (DT₅₀, DT₉₀) und Boden/Wasser-Verteilungskoeffizienten (K_d, K_{oc}-Werte) in Laborbatchexperimenten zu ermitteln, in denen die zu untersuchenden Veterinärpharmaka vorzugsweise als ¹⁴C-markierte Radiotracer, gelöst in einem geeigneten Lösungsmittel, zu den Bodenproben dotiert werden. Damit bleiben allerdings der eigentliche Eintragungspfad in Böden durch die Gülleausbringung sowie Einflüsse der Güllematrix auf das Rückstandsverhalten von Tierarzneimitteln in Böden unberücksichtigt.

Genau hier setzt die Ausarbeitung eines Methodenkataloges im Rahmen des vom Umweltbundesamt geförderten und im Institut für Ökologischen Chemie und Abfallanalytik, TU Braunschweig, bearbeiteten Gülle-Projektes an. Im ersten Schritt sind Standardarbeitsanweisungen für Stabilitätstests für Veterinärpharmaka in Gülle zu erarbeiten. Entsprechend stoffspezifischer Anwendungsmuster sind Tests mit Rinder- bzw. Schweinegülle durchzuführen, in denen unterschiedliche Lagerungs- und daraus resultierende Milieubedingungen zu berücksichtigen sind. Im zweiten Schritt gilt es, Arbeitsvorschriften für die Herstellung von Testgülle mit definiert gealterten Tierarzneimittel-Rückständen zu er-

stellen. Diese Testgülle ist dann im dritten Schritt in den Laborbatchexperimenten zur Untersuchung des Abbau- und Sorptionsverhaltens von Veterinärpharmaka in Böden einzusetzen.

Gewinnung repräsentativer Gülleproben

Gülle stellt eine heterogene Probenmatrix hoher Komplexität und Variabilität dar, die von Tierart, Tieralter und Fütterungsbedingungen, aber auch durch die landwirtschaftlich bedingten Einträge von Einstreu- und Futterresten, Wasser sowie Reinigungs- und Desinfektionsmitteln abhängen und während der monatelangen Güllelage durch Abbau- und Sorptionsprozesse weiteren Veränderungen unterliegen [9-11]. Untersuchungen der LUFA Nord-West [12], in denen jeweils 2000 Rinder- und Schweinegülleproben von 1997-2004 analysiert wurden, verdeutlichen die Heterogenität unterschiedlicher Güllematrizes anhand der Variationsbreite der Gehalte an Trockensubstanz, Stickstoff (Ammonium- und Gesamtstickstoff), Phosphor und Kupfer (Tab. 1). Danach kann eine Probenentnahme aus Güllesilos mit Volumina bis zu 6000 m³ nicht zu Gülleproben einer einheitlichen Zusammensetzung führen.

Parameter/ Güllematrix	TS	NH ₄ -N [g kg ⁻¹]	N _{total} [g kg ⁻¹]	P ₂ O ₅ [g kg ⁻¹]	Cu [mg kg ⁻¹]
Rindergülle					
Minimum	0.40	0.01	0.43	0.05	0.08
Median	8.7	1.7	4.0	1.7	3.9
Maximum	12.3	2.9	5.7	2.7	12.1
Schweinegülle					
Minimum	0.40	0.27	0.60	0.03	0.22
Median	4.9	2.7	4.6	2.3	16.1
Maximum	11.6	4.9	8.3	6.3	53.1

Tab. 1: Unterschiede in der Zusammensetzung von 2000 Rinder- und Schweinegülleproben im Zeitraum 1997-2004. Gehaltsangaben beziehen sich auf die Frischgewichte der Gülleproben [12].

Im Gegensatz zu bisher durchgeführten Abbaustudien für Tierarzneimittel in Gülle, in denen Gülleproben aus unter- oder oberirdischen Silos entnommen wurden [13-15], wird deswegen im Gülle-Projekt ein innovativer Ansatz verfolgt, der eine repräsentative und reproduzierbare Gewinnung von Gülleproben gewährleistet. Hierzu werden von Kühen und Schweinen aus der Einzeltierhaltung, die im Versuchsstall des Institutes für Tierernährung, Bundesanstalt für Landwirtschaft (FAL), Braunschweig, unter kontrollierten Bedingungen er-

folgt, gezielt Exkrementen entnommen. Diese werden einer umfassenden Matrixcharakterisierung anhand folgender Parameter unterzogen: Trockensubstanz (TS), organische Substanz (TOC), Mineralstoffanteil (R_{min}), pH-Wert, Redoxpotential (Eh), gelöster Sauerstoff (O_2), Ammonium- und Gesamtstickstoff (NH_4-N , N_{total}), Phosphor- und Kupfer-Gehalt (P, Cu), biologischer und chemischer Sauerstoffbedarf (BSB, CSB). Diese Parameter werden ebenfalls zur Bewertung von Abwasser, Klärschlamm und Bodenproben sowie zur Abschätzung des Biogaspotentials verschiedener Güllematrizes herangezogen [16-18].

In frischen Exkrementproben werden in schnell einsetzenden Abbauprozessen leicht abbaubare Substanzen umgesetzt, die insbesondere durch Veränderungen des gelösten Sauerstoffes und des Ammonium-Stickstoffgehaltes angezeigt werden. Eine Lagerung der Exkrementproben bei

Raumtemperatur für 22 Tage trägt zur Verminderung der Variabilität der Probenmatrizes bei. Nach dieser Konditionierungsperiode können aus Rinder- und Schweineexkrementen durch Zugabe von Wasser Gülleproben mit einem definiertem Trockensubstanzgehalt von 10 % für Rindergülle und von 5 % für Schweinegülle, die als mittlere Trockensubstanzgehalte in Serienuntersuchungen der LUFA-Nordwest ermittelt wurden [12], gezielt hergestellt werden. Die wiederholte Matrixcharakterisierung zeigt, dass zum einen die Exkrementen als Rückstellproben über mindestens 12 Monate bei -20 °C ohne relevante Veränderungen eingelagert werden können. Zum anderen verdeutlicht dieser Parametervergleich, dass diese Probenahmestrategie zur einer erfolgreichen Begrenzung der variablen Zusammensetzung von Rinder- und Schweinegülle trotz unterschiedlichen Tialters und Fütterungsvarianten führt (**Tab. 2**).

Güllematrix	Rindergülle				Schweinegülle			
Parameter	RG-1	RG-2	RG-3	RG-4	SG-1	SG-2	SG-3	SG-4
TS [%]	10	10	10	10	5	5	5	5
R_{min} [% TS]	19	15	24	15	23	19	15	21
TOC [$g\ kg^{-1}$]	39	42	40	39	25	20	21	23
pH	6.9	8.4	8.0	6.6	7.6	7.1	6.4	7.6
Eh [mV]	-60	-30	-20	10	-150	-60	20	-210
O_2 [$mg\ kg^{-1}$]	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1	< 0.1
NH_4-N [$g\ kg^{-1}$]	1.3	3.5	4.0	1.4	1.9	1.7	0.9	2.0
N_{total} [$g\ kg^{-1}$]	3.2	5.1	6.5	2.6	3.0	2.7	2.3	2.9
NH_4-N / N_{total}	0.4	0.7	0.6	0.5	0.6	0.6	0.4	0.7
BSB_5 [$g\ kg^{-1}$]	8.5	6.6	6.0	14	10	9.1	11	12
CSB [$g\ kg^{-1}$]	70	61	65	50	39	37	48	39
BSB_5 / CSB	0.1	0.1	0.1	0.3	0.3	0.2	0.2	0.3

Tab. 2: Matrixcharakterisierung von Rinder (RG)- und Schweinegülle (SG). Gehaltsangaben beziehen sich auf die Frischgewichte der Gülleproben.

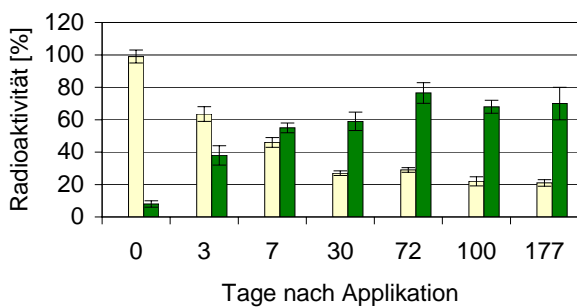
Stabilitätstests für Tierarzneimittel in Gülle

Die Entwicklung der Stabilitätstests basiert auf dem Einsatz umfassend charakterisierter Gülleproben, zu denen die ausgewählte Testsubstanzen Sulfadiazin, Sulfamethoxazol, Acetyl-Sulfamethoxazol, Ketoprofen, Paracetamol und Erythromycin als ^{14}C -markierte Radiotracer dotiert werden. Die Tests werden in Laborbatchsystemen durchgeführt, die auf die OECD Guideline 304 A zurückgehen und bereits erfolgreich in Metabolismusstudien für Pflanzenschutzmittel sowie Human- und Tierarzneimittel in Böden eingesetzt wurden [5, 19-24]. Die in der OECD Guideline 307 [8] beschriebenen Durchfluss- und Biometersysteme bieten hier keine Vorteile, da die Stabilität von Tierarzneimitteln in Gülle unter anaeroben Milieubedingungen, die typisch für die Güllelagerung in ober- und unterirdischen Silos sind, zu untersuchen ist [16, 25]. Zu diesem Zweck werden die Laborbatchsysteme nach dem Befüllen mit einem Ventilaufsatz versehen, mit Stickstoff gespült, um sofort anaerobe Milieubedingungen

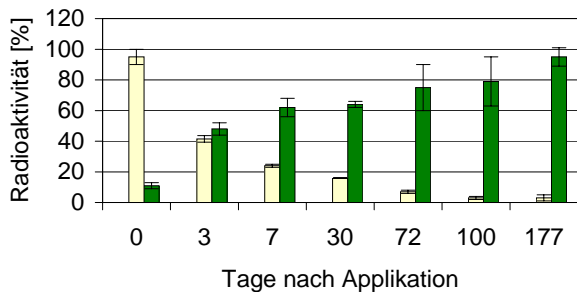
einzustellen, und im Dunkeln bei $20 \pm 1\ C$ für 0, 3, 7, 30, 72, 100 und 177 Tage inkubiert. Damit wird eine 6-monatige Lagerung, wie in der Düngeverordnung vorgesehen [26], nachvollzogen. Alle 7 Tage erfolgt unter Stickstoff-Spülung ein erneuter Gasaustausch. Zu den einzelnen Inkubationsintervallen folgt schließlich die radiotraceranalytische Ermittlung der Massenbilanzen, die die Mineralisation, die Freisetzung von Methan und anderen volatilen Substanzen sowie die Bildung extrahierbarer und nicht-extrahierbarer Rückstände berücksichtigen.

Aus **Abb. 1** wird die in Rinder- und Schweinegülle unterschiedliche Rückstandsdynamik des Sulfonamid-Antibiotikums Sulfamethoxazol ersichtlich. Während in Rindergülle die extrahierbaren Rückstände innerhalb von 177 Tagen kontinuierlich von 95 % der anfangs applizierten Radioaktivität auf 3 % abnehmen und die nicht-extrahierbaren Rückstände gegenläufig von 11 % auf 95 % ansteigen, verlaufen diese

Prozesse in Schweinegülle deutlich langsamer und stagnieren ab Tag 72 der Inkubationsperiode. In parallel durchgeführten Tests zur Matrixcharakterisierung spiegeln sich diese Unterschiede auch in den unterschiedlichen Milieubedingungen wider (**Abb. 2**). Besonders auffallend sind die Verläufe der BSB₅-Kurven, mit denen die mikrobielle Aktivität in den Güllematrizes während der 177-tägigen Inkubationsperiode angezeigt wird. In der Schweinegülle geht mit der Stagnation der Rückstandsdynamik von ¹⁴C-Sulfamethoxazol der Abfall von BSB₅ von 10 auf 0,02 g kg⁻¹ einher. Diese Tendenzen bedürfen in laufenden Stabilitätstests mit weiteren Testsubstanzen einer weiteren Überprüfung, da in Schweinegülleproben trotz des geringeren Trockensubstanzgehaltes die höhere mikrobielle Anfangsaktivität gemessen wurden.



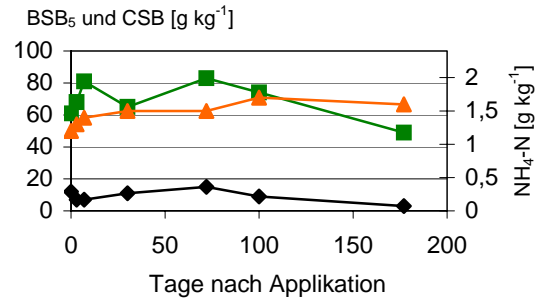
■ MIN ■ ER ■ NER



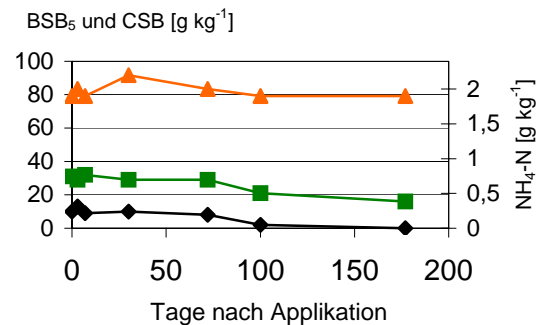
■ MIN ■ ER ■ NER

Abb. 1: Stabilitätstests von ¹⁴C-Sulfamethoxazol in Rindergülle (Bilanz: 89 ± 10 %) (oben) und B: Schweinegülle (Bilanz: 97 ± 8 %) (unten)

Unterschiede wurden auch für den jeweiligen Verlauf des Redoxpotentials registriert, das nach 177-tägiger Inkubation in Rindergülle -84 mV und in Schweinegülle -180 mV erreicht. Damit liegen in diesen Ansätzen keine strikt methanogenen Bedingungen vor, die einen Abfall des Redoxpotentials auf -200 bis -500 mV voraussetzen, damit aus dem applizierten Radiotracer ¹⁴C-Methan freigesetzt werden kann. Die durch Mineralisation bedingte Freisetzung von ¹⁴C-Kohlendioxid war ebenfalls von untergeordneter Bedeutung.



◆ BSB₅ ■ CSB ▲ NH₄-N



◆ BSB₅ ■ CSB ▲ NH₄-N

Abb. 2: BSB₅, CSB und NH₄-N-Gehalt in den Stabilitätstests von Sulfamethoxazol in oben: Rindergülle und unten: Schweinegülle

In Kurzzeittests (3, 7, 30 Tage) werden zusätzlich die Einflüsse unterschiedlicher Trockensubstanzgehalte von Rinder- und Schweinegülle (2,5, 5, 10 %) und unterschiedlicher Inkubationstemperaturen (5, 10, 20 °C) untersucht. Beide Ansätze geben wiederum die Unterschiede zwischen den Güllematrizes wieder. Sie zeigen ferner, dass die Bildung nicht-extrahierbarer Sulfamethoxazol-Rückstände in den ersten Inkubationsintervallen durch die verminderten Trockensubstanzgehalte und durch die bei niedrigeren Temperaturen verminderte mikrobielle Aktivität verlangsamt wurde. Am Tag 30 der Inkubation wird dann aber jeweils die unter Standardversuchsbedingungen erzielte Rückstandsdynamik erreicht. Auch der Einsatz unterschiedlicher Rinder- bzw. Schweinegüllematrizes mit jeweils geringfügig variierender Matrixeigenschaften gibt die Rückstandsdynamik von ¹⁴C-Sulfamethoxazol einheitlich wieder, was die Richtigkeit des experimentellen Designs zur Gewinnung repräsentativer Gülleproben bestätigt.

Labortests zu Abbau und Sorption in güllegedüngten Böden

Auf der Basis dieser Stabilitätstests wird anschließend gezielt Testgülle hergestellt, mit der die zu untersuchenden Testsubstanzen in den anschließenden Abbau- und Sorptionstests zu den Bodenproben dotiert werden, um den realen Eintragspfad für Tierarzneimittel in Böden bereits in den Labortests zu berücksichtigen. Ausgangsmaterialien sind umfassend matrixcharakterisierte Rinder- und Schweinegülleproben. Diese werden in die Laborbatchsysteme eingefüllt, mit den zu unter-

suchenden ^{14}C -markierten Testsubstanzen dotiert und schließlich zur Alterung der Rückstände kurzfristig inkubiert. Nach Abschluss der Inkubation ist die Rückstandssituation in der jeweiligen Testgülle radiotraceranalytisch zu bestimmen, um die Konzentrationen der applizierten Ausgangsverbindung und der gebildeten Metaboliten zu quantifizieren.

Test-system	Standard-Applikation		Testgülle-Applikation	
	Laborbatch-system	Durchflusssystem	Laborbatch-system	Durchflusssystem
MIN [%]	0.8	0.1	0.2	0.2
ER [%]	20	38	2	2
NER [%]	87	66	98	91
Bilanz [%]	107	104	100	93
E_h [mV]	380	380	455	460

Tab. 3: Mikrobieller Abbau von ^{14}C -Acetyl-Sulfamethoxazol nach Standard- und Testgülle-Applikation in tonigem Schluff in 28 Tagen: Leistungsfähigkeit von Laborbatch- und Durchflusssystem

Mittels Testgülle-Applikation werden die Testsubstanzen schließlich zu den zu untersuchenden Bodenproben dotiert, um anschließend in Labortests Abbau und Sorption von Tierarzneimitteln in güllegedüngten Böden in Anlehnung an die entsprechenden OECD Guidelines zu untersuchen. Für die Abbautests sieht die OECD Guideline 307 [8] den Einsatz eines Durchflusssystems vor, um die Beibehaltung der für terrestrische Oberböden typischen aeroben Milieubedingungen während der Inkubation sicherzustellen. Anhand der Überprüfung des Redoxpotentials lässt sich nach 28-tägiger Inkubation im Abbautest mit ^{14}C -Acetyl-Sulfamethoxazol in Boden zeigen, dass die aeroben Milieubedingungen auch in den bereits für die Stabilitätstests in Gülle eingesetzten Laborbatchsystemen aufrechterhalten werden können. Aus **Tab. 3** ist zu entnehmen, dass die Rückstandsdynamik für diese Testsubstanz in beiden Labortestsystemen übereinstimmend wiedergegeben wird. Darüber hinaus lassen sich aus der Gegenüberstellung der Resultate für Standard- und Testgülle-Applikation auch deutliche Unterschiede in der Rückstandsdynamik ablesen. So werden unter dem Einfluss der Testgülle vermehrt nicht-extrahierbare Acetyl-Sulfamethoxazol-Rückstände gebildet. Da sich der Einfluss der Güllematrix auch auf die Sorption von Tierarzneimitteln in Böden auswirkt [20, 21], gilt es zur Vervollständigung des zu erarbeitenden Methodenkataloges, auch die Testgülle-Applikation in die Standardarbeitsanweisungen für die Bestimmung der Boden/ Wasser-Verteilungskoeffizienten einzubeziehen, um hiermit die Verlagerung von Veterinärpharmaka unter realen Freiland-situationen exakter abschätzen zu können.

Danksagung

Dem Umweltbundesamt sei an dieser Stelle für die finanzielle Förderung des Gülle-Projektes (FKZ 20467455) und die fachliche Projektbetreuung durch Frau Dr. J. Klein-Goedicke gedankt.

Literatur

- Halling-Sørensen, B., Nors Nielsen, S., Lanzky, P., Ingerslev, F., Holten Lutzhöft, H., Jøregensen, S. (1998): Occurrence, fate and effect of pharmaceutical substances in the environment - a review. *Chemosphere*, 36, 357-393.
- VICH (2000): Environmental Impact Assessment (EIAs) for Veterinary Medicinal Products (VMPs) – Phase I. VICH GL6, Ecotoxicity Phase I, Bruxelles, Belgium.
- Spaepen, K., Van Leemput, L., Wislocki, P., Verschueren, C. (1997): A uniform procedure to estimate the predicted environmental concentration of the residues of veterinary medicines in soil. *Environ. Toxicol. Chem.*, 16, 1977-1982.
- VICH (2003): Environmental Impact Assessment (EIAs) for Veterinary Medicinal Products (VMPs) – Phase II Draft Guidance. VICH GL38, Ecotoxicity Phase II, Bruxelles, Belgium.
- OECD (1981a): Guideline for testing of chemicals. Inherent biodegradability in soil. 304 A, 1-11.
- OECD (1981b): Guideline for testing of chemicals. Adsorption/Desorption. 106, 1-18.
- OECD (2001): Guideline for testing of chemicals. Adsorption/Desorption. 106, 225-245.
- OECD (2002): Guideline for testing of chemicals. Aerobic and anaerobic transformation in soil. 307, 1-19.
- Hoffmann, H., Hege, U. (1991): Gülle – ein wertvoller Wirtschaftsdünger, ADI 1149, J.P. Bachem GmbH & Co. KG. Köln, Germany.
- Montforts, M., Tarazona Lafarga, J. (2003): Environmental risk assessment for veterinary medicinal products. Part 4. Exposure assessment scenarios. RIVM report 601450017.
- Schuchhardt, F., Hahne, J. (1996): Aerobe Behandlung landwirtschaftlicher Reststoffe, Nr. 5657. - In: Hösel, G., Kumpf, W.: Müll-Handbuch: Sammlung und Transport, Behandlung und Ablagerung sowie Vermeidung und Verwertung von Abfällen, ergänzbares Handbuch für die kommunale und industrielle Abfallwirtschaft. Schmidt Verlag, Berlin, Germany. ISBN 0176-4969.
- Merkel, D. (2005): Persönliche Mitteilung.
- Kühne, M., Ihnen, D., Möller, G., Agthe, O. (2000): Stability of tetracycline in water and liquid manure. *J. Vet. Med.*, A 47, 379-384.
- Langhammer, J.-P. (1989): Untersuchungen zum Verbleib antimikrobiell wirksamer Arzneistoffe als Rückstände in Gülle und im landwirtschaftlichen Umfeld. Dissertation, Universität Bonn.

15. Loke, M.-L., Jespersen, S., Vreeken, R., Halling-Sørensen, B., Tjørnelund, J. (2003): Determination of oxytetracycline and its degradation products by high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry in manure-containing anaerobic test systems. *J. Chromatogr., B*, 783, 11-23.
16. Hahne, J. (2001): Untersuchungen zu den stofflichen Umsetzungen bei der aerob-thermophilen Belüftung und Einsatz des Verfahrens zur Nährstoffabtrennung aus Schweinegülle. Dissertation, TU Braunschweig.
17. Hüther, L. (1999): Entwicklung bodenanalytischer Methoden und Untersuchungen von Einflussfaktoren auf Ammoniak-, Methan- und Distickstoffmonoxidemissionen aus Flüssig- und Festmist. Dissertation, TU Braunschweig.
18. Møller, H., Sommer, S., Ahring, B. (2004): Biological degradation and greenhouse gas emission during pre-storage of liquid animal manure. *J. Environ. Qual.*, 33, 27-36.
19. Höllrigl-Rosta, A., Kreuzig, R., Bahadir, M. (1999): Investigations on the metabolic fate of prochloraz in soil under field and laboratory conditions. *Pestic. Sci.*, 55, 531-538.
20. Kreuzig, R., Höltge, S. (2005): Investigations on the fate of sulfadiazine in manured soil: Laboratory experiments and test-plot studies. *Environ. Toxicol. Chem.*, 24, 771-776.
21. Kreuzig, R., Höltge, S., Heise, J., Kolb, M., Berenzen, N., Hahn, T., Jergentz, S., Wogram, J., Schulz, R. (2005b): Untersuchungen zum Abflussverhalten von Veterinärpharmaka bei Ausbringung von Gülle auf Ackerland und Weide. Endbericht zum Runoff-Projekt (FKZ 20167401/02). UBA-Texte, ISSN 0722-186X. Umweltbundesamt, Berlin, Germany, 1-150. (eingereicht zur elektronischen Publikation).
22. Kreuzig, R., Kullmer, C., Matthies, H., Höltge, S., Dieckmann, H. (2003): Fate and behaviour of pharmaceutical residues in soils. *Fresenius Environ. Bull.*, 12, 550-558.
23. Kreuzig, R., Kullmer, Ch., Matthies, B., Plaga, B., Dieckmann, H., Höltge, S. (2005): Verhalten von in der Umwelt vorkommenden Pharmaka und ihren Metaboliten in Modelltestsystemen – Teil 2: "Modellsystem Boden". Endbericht zum Boden-Projekt (FKZ 20167401/02). UBA-Texte 11/05, ISSN 0722-186X. Umweltbundesamt, Berlin, Germany, 1-122.
<http://www.umweltbundesamt.org/fpdf-l/2897.pdf>.
24. Heise, J., Höltge, S., Schrader, S. Kreuzig, R. (2006): Chemical and biological characterization of non-extractable sulfonamide residues in soil. *Chemosphere*. (in Druck).
25. Ndegwa, P., Zhu, J., Luo, A. (2003): Effects of bioreactor temperature and time on odour-related parameters in aerated pig manure slurries. *Environ. Technol.*, 24, 1007 - 1016.
26. Düngeverordnung (2006): Verordnung über die Grundsätze der guten fachlichen Praxis beim Düngen (DüV). Bundesgesetzblatt, Jhg. 2006, Teil 1, Nr. 2 vom 13. Januar 2006.

Korrespondenzadresse

Prof. Dr. Robert Kreuzig
Institut für Ökologische Chemie und Abfallanalytik
TU Braunschweig
Hagenring 30, 38106 Braunschweig
Tel: 0531/391-5962, Fax: 0531/391-5799