



Emittieren Friedhöfe Arzneimittel?

Sabine Fiedler¹ (S.Fiedler@geo.uni-mainz.de), Ilona Hanke¹,
Torsten Dame² (t.dame@ftc-muenchen.de), Ulrike Zollfrank³ (Ulrike.Zollfrank@lgb-rlp.de),
Matthias Graw⁴ (Matthias.Graw@med.uni-muenchen.de)

¹ Geographisches Institut, Johannes Gutenberg-Universität Mainz

² Forensisches Toxikologisches Zentrum - FTC München

³ Landesamt für Geologie und Bergbau, Rheinland Pfalz

⁴ Institut für Rechtsmedizin, LMU München

Zusammenfassung

Ohne Grundlage belastbarer Studien wird in den Medien immer wieder der Arzneimittelaustrag aus Friedhöfen thematisiert. Um zu prüfen, ob Friedhöfe wirklich Arzneimittel emittieren, untersuchten wir Friedhofsdrainagen sowie umliegende Oberflächengewässer. In die LC-ESI-MS/MS-Analytik wurden 12 gängige Wirkstoffe einbezogen. Arzneimittelausträge aus Friedhöfen stellen, gemessen an den Frachten von Oberflächengewässern, ein geringes Problem dar. In den 12 untersuchten Drainagen ließ sich in 7 Carbamazepin (max. 225 ng l⁻¹) und einer Metoprolol (23 ng l⁻¹), sowie in 5 Hydrochlorothiazid und in einer Ibuprofen in Spuren nachweisen. In den Oberflächengewässern wurde ein breiteres Wirkungsmittelspektrum (8 der 12 untersuchten Wirkstoffe) sowie höhere Konzentrationen detektiert (Metoprolol 2230 ng l⁻¹).

Einleitung

In Deutschland existieren ca. 30.000 Friedhöfe, auf denen jährlich 850.000 Menschen bestattet werden. Bis heute wird über das potentielle, ökologische Risiko infolge einer Erdbestattung kontrovers diskutiert. Die Meinung, dass es sich bei Friedhöfen um Reststoffdeponien handelt (Büchi & Willmann, 2002), scheint gerechtfertigt, wenn berücksichtigt wird, dass dem Boden infolge der Erdbestattung neben Nährstoffen schwermetallhaltige Sargbeschläge und aus der Bestattung stammende Artefakte zugeführt werden.

Genährt durch prominente Fälle wie den Tod des Popsängers Michel Jackson, der an einer Überdosis des starken Betäubungsmittels Propofol starb, wird in jüngster Zeit auch zunehmend der Arzneimittelaustrag aus Erdgräbern thematisiert. Vor dem Hintergrund der Konsumzunahme von Arzneimitteln und der höheren Lebenserwartung erscheint dies zunächst plausibel. Im Jahr 2001 wurden in Deutschland insgesamt 37.915 t der eingesetzten 2.671 Arzneiwirkstoffe verkauft. Im Jahr 2000 betrug die Menge 32.573 t und im Jahr 1999 bei 2.754 Wirkstoffen 28.878 t (Huschek & Kregel, 2003). Ausgehend vom Jahr 2002, stiegen die Arzneimittelverbräuche bis 2009 um 28%. Allerdings zeigen sich aber bei den einzelnen Wirkstoffgruppen deutlich unterschiedliche Konsumtrends (Abb. 1).

Arzneimittel werden auf Stabilität optimiert, um zu gewährleisten, dass genügend intakte Wirkstoffmoleküle in vivo am

Krankheitsort ankommen, bevor sie metabolisiert werden (Gießen 2011). Ein hoher Anteil eines verabreichten Medikaments wird jedoch unverändert wieder ausgeschieden. So beträgt beispielsweise die Ausscheidungsrate von Trimethoprim (Antibiotikum) bis zu 80% (Verlicchi et al. 2010). Die Stabilität der Moleküle erschwert wiederum deren biologischen Abbau in der Umwelt (Gießen 2011). Bereits Anfang der 1970er Jahre wurden weltweit vereinzelt Wirkstoffe in verschiedenen Oberflächengewässern und Kläranlagen nachgewiesen (Kümmerer 2008). Ende der 1990er Jahre wurden im Rhein und Main tägliche Frachten von Diclofenac (Analgetika) und Bezafibrat (Lipidsenker) im Kilogramm-Bereich ermittelt (Ternes 1998).

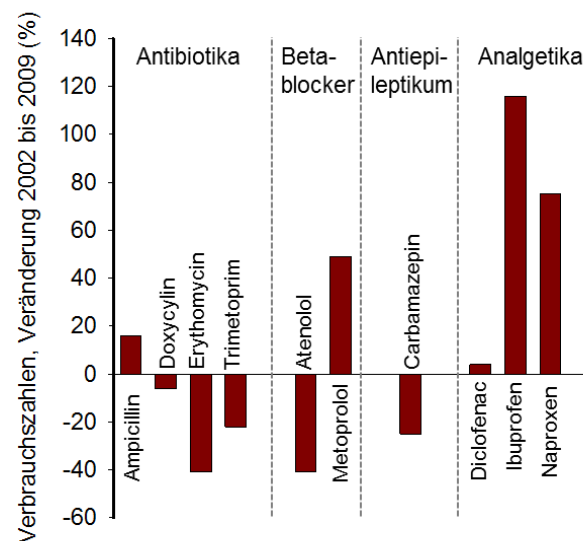


Abb. 1: Verbrauchszahlen ausgewählter Wirkstoffe und -gruppen (Veränderungen 2002 bis 2009) (Bergmann et al., 2011)

Während der Konzentrationsanstieg von Arzneimitteln in Oberflächengewässern durch zahlreiche Studien als sicher gilt, existiert keine belastbare Studie über die Konzentration von Arzneistoffen in Friedhofsdrainagen. Dass eine gewisse Verunsicherung unter der Bevölkerung diesbezüglich zu beobachten ist, beweist ein Blick in diverse Internetforen. So wird in einem der zahlreichen Foren bspw. die Frage gestellt: „*Dürfen Menschen beerdigt werden auf dem Stadtfriedhof,*

wenn sie 25 Jahre oder länger tagtäglich irgendwelche Medikamente geschluckt haben? Wird davon nicht das Grundwasser verseucht?“ (www.cosmiq.de).

Ziel unserer Studie ist es, Drainagen repräsentativer Friedhöfen hinsichtlich ihrer Konzentration ausgewählter Arzneimittelwirkstoffe zu charakterisieren und sie im Vergleich zu Konzentrationen umliegender Oberflächengewässer zu diskutieren.

Material und Methoden

Zur Auswahl geeigneter Untersuchungsobjekte wurden 260 Friedhofsgutachten der Länder Rheinland-Pfalz, Hessen und des Saarlandes eingesehen. Auswahlkriterium war die Empfehlung einer Drainagesystems der begutachteten Friedhöfe zur Verbesserung der Standortbedingungen. In 54 der Gutachten wurde die Empfehlung zur Anlage einer Drainage formuliert. Nachweislich umgesetzt, wurde diese Empfehlung auf weniger als 50% der Friedhöfe. Insgesamt wurden 12 Friedhofsdrainagen sowie oberhalb der jeweiligen Friedhöfe

gelegene Oberflächengewässer in den genannten Bundesländern zwischen Ende April und Ende Juni 2012 beprobt. Die Auswahl berücksichtigt das gesamte Spektrum vorhandener Drainagesysteme (Grabfeld-, Grabkammerentwässerung), typische Ausgangsgesteine (Periglaziale Deckschichten, Buntsandstein, Löss) sowie unterschiedlich große Entwässerungsflächen (1-12.000 m²). Die letzte Bestattung auf den untersuchten Friedhöfen lag maximal ein Jahr zurück.

In die Arzneimittelanalytik wurden 12 Wirkstoffe einbezogen, welche fünf unterschiedlichen Wirkungsklassen zugeordnet werden (Tab. 1). Nach SPE mittels Strata-X-Kartuschen (33 µm, 85Å, Polymeric RP: 2g 20ml⁻¹, Giga tubes, Phenomenex) erfolgte die Analyse mittels LC-ESI-MS/MS. Verwendet wurde ein API 4000 der Firma AB Sciex. Die Chromatographie erfolgte auf einer Zorbax Eclipse XDB-C18 Trennsäule (3*150mm, 3µm) der Firma Agilent unter Verwendung eines Fließmittelgradienten (850 µl min⁻¹, Methanol/Wasser).

Wirkstoff	Wirkstoffgruppe	RZ [min]	IM	MRM Übergang	Declustering Potential [V]	KE [V]	NG [ng l ⁻¹]
Atenolol	Betablocker	3,27	+	267-145	61	35	10
Carbamazepin	Anti-epileptikum	7,37	+	237-194	66	25	10
Chlorthalidon	Diuretika	5,84	+	339-322	76	13	10
Diclofenac	Analgetika	9,01	+	296-215	21	29	10
Furosemid	Diuretika	8,26	-	329-285	-28	-20	10
Hydrochlorothiazid	Diuretika	5,1	-	296-269	-75	-26	10
Ibuprofen	Analgetika	10,58	-	205-161	-28	-13	10
Indometacin	Analgetika	9,04	+	358-139	66	27	10
Metoprolol	Betablocker	5,52	+	268-116	61	27	10
Naproxen	Analgetika	8,25	+	231-185	61	19	10
Propranolol	Betablocker	6,65	+	260-116	36	27	20
Trimethoprim	Antibiotika	4,45	+	292-231	51	33	20

RZ: Retentionszeit, IM: Ionisationsmodus, KE: Kollisionsenergie, NG: Nachweisgrenze

Tab. 1: MS-Parameter der angewendeten Wirkstoffanalyse

Ergebnisse und Diskussion

Die Wirkstoffe Chlorthalidon, Propranolol, Trimethoprim, Furosemid lagen in allen untersuchten Wasserproben unterhalb der Nachweisgrenze. In den untersuchten Friedhofsdrainagen waren insgesamt die vier Wirkstoffe Carbamazepin, Metoprolol, Hydrochlorothiazid und Ibuprofen nachweisbar, wobei letztere nicht quantifiziert werden konnten (negativ Modus) (Tab. 1 und 2). Carbamazepin zeigte von allen in den Drainagen nachgewiesenen Wirkstoffen die höchste Konzentration (Tab. 2). Dieser Wirkstoff gilt als schlecht abbaubar in der Umwelt (Chefetz et al., 2008). Arzneimittelasträge aus Friedhöfen stellen, gemessen an den Arzneimittelfrachten in Oberflächengewässern, ein geringes

Problem dar. In den Oberflächengewässern wurden 8 der 12 untersuchten Wirkstoffe detektiert. Ihre Konzentrationen lagen weit über denen der Drainagewässer. In den Oberflächengewässern wurden bspw. bis zu 359 ng l⁻¹ Carbamazepin, 574 ng l⁻¹ Diclofenac und 2230 ng l⁻¹ Metoprolol nachgewiesen. Im Vergleich zu den Friedhofsdrainagen weisen diese Werte auf eine Belastung hin. Die Konzentrationen sind vergleichbar mit den aus der Literatur bekannten Werten für Oberflächengewässer (Tab. 2).

Wirkstoff	Friedhofsdrainagen	Oberflächengewässer	Oberflächengewässer, Literaturwerte
		Range [mg l ⁻¹] (Standortanzahl positiver Befunde)	
Atenolol	(0)	57 – 301 (2)	
Carbamazepin	10-225 (7)	9-359 (7)	1076 (Havel) (Heberer 2002), 2100 (Rhein) (Sacher et al., 2001)
Diclofenac	(0)	129-574 (3)	500-1000 (Havel) (Heberer 2001), 1200* (Ternes 1998)
Hydrochlorothiazid	nachweisbar (4)	nachweisbar (7)	
Ibuprofen	nachweisbar (1)	(0)	530* (Ternes 1998)
Indometacin	(0)	67 (1)	200* (Ternes 1998)
Metoprolol	23 (1)	11-2230 (3)	10-2200* (Ternes 1998)
Naproxen	(0)	41-81 (2)	390* (Ternes 1998)

*diverse deutsche Flüsse und Bäche

Tab. 2: Ergebnisse der Arzneimittelanalytik der untersuchten Friedhofsdrainagen und Oberflächengewässer

Danksagung

Bedanken möchten sich die Autoren bei den MitarbeiterInnen der untersuchten Friedhöfe für deren Unterstützung bei der Beprobung.

Literatur

- Chefetz, B., Mualem, T., Ben-Ari, C. (2008): Sorption and mobility of pharmaceutical compounds in soil irrigated with reclaimed wastewater. *Chemosphere* 73: 1335–1343.
- Bergmann, A., Fohrmann, R., Weber, F.-A. (2011): Zusammenstellung von Monitoringdaten zu Umweltkonzentrationen von Arzneimitteln. Erstellt im Auftrag des Umweltbundesamts, Forschungskennzahl 360 14 013, UBA-FB 001525
- Büchi, H., Willmann, I. (2002): Verdachtsfläche Friedhof: Umweltgefährdung durch Leichenzersetzung? *Wasser & Boden* 54: 20-24.
- Gießen, H. (2011): Arzneimittelrückstände – Wie belastet ist unser Wasser? *Pharmazeutische Zeitung online* (49), <http://www.pharmazeutische-zeitung.de> (05.11.2013)
- Heberer, T. (2001): Tracking persistent pharmaceutical residues from municipal sewage to drinking water. *Journal of Hydrology* 266: 175-189.
- Heberer, T. (2002): Occurrence, fate and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: a review of recent research data. *Toxicology Letters* 131: 5-17.
- Huschek, G., Krengel, D. (2003): Mengenermittlung und Systematisierung von Arzneimittelwirkstoffen im Rahmen der Umweltprüfung von Human- und Tierarzneimitteln gemäß §28 AMG einschließlich Anhang. *Forschungsbericht* 200 67 401. 2003. Umweltbundesamt.
- Kümmerer, K. (2008): *Pharmaceuticals in the Environment: Sources, Fate, Effects and Risks*. Third ed. Springer, Berlin, Heidelberg.
- Sacher, F., Lange, F., Brauch, H.-J., Blankenhorn I. (2001): Pharmaceuticals in groundwater. Analytical methods and results of a monitoring program in Baden-Württemberg, Germany. *Journal of Chromatography A* 938: 199-210.

Ternes, T.A. (1998): Occurrence of drugs in German sewage treatment plants and rivers. *Water Research* 32: 3245-3260.

Verlicchi, P., Galletti, A., Petrovic, M., Barcelo, D. (2010): Hospital effluents as a source of emerging pollutants: An overview of micropollutants and sustainable treatment options. *Journal of Hydrology* 389: 416-428. www.cosmiq.de (05.11.2013)

Korrespondenzadresse

Prof. Dr. Sabine Fiedler
Geographisches Institut
Bodenkunde
Johannes Gutenberg-Universität Mainz
Johann-Joachim-Becher-Weg 21
D - 55099 Mainz
Tel.: 06131 - 39 24 528, Fax: 06131 - 39 24 735
E-Mail: S.Fiedler@geo.uni-mainz.de