

1 EINLEITUNG

Viele Schadstoffe, die in das aquatische Milieu eingebracht werden, binden an die Oberflächen von Schwebstoffen und sedimentieren. Die Konzentration von Schadstoffen in den Sedimenten kann so hunderte Male höher sein als die der überliegenden Wasserschicht (Prorski und Müller, 1987, Fiedler und Rösler, 1993, Calmano, 2001, Simkiss et al., 2001). Zunächst wurde daher angenommen, dass Sedimente als Senke fungierten, die effizient Schadstoffe aus dem Wasser entfernt und sie in eine Form überführt, in der sie für Lebewesen für eine lange Zeit nicht verfügbar sind. Dies stellte sich als eine sehr optimistische Sichtweise heraus, da relativ schnell deutlich wurde, dass nicht alle Schadstoffe dauerhaft in den Sedimenten deponiert sind. Viele können remobilisiert und so durch Organismen aufgenommen werden (Burton, 1991). Eine Remobilisierung sedimentgebundener Schadstoffe kann z.B. durch Hochwasserereignisse, durch das Ausbaggern von Wasserstrassen bzw. bei Veränderungen der physiko-chemischen Bedingungen (pH-Wert, Redoxpotenzial, Salinität, Huminstoffgehalt) jederzeit erfolgen (Calmano, 2001).

Toxische Substanzen in Sedimenten stellen, entweder nach einer Remobilisierung in die Wasserphase oder durch eine direkte Aufnahme aus dem Sediment - sowohl über die Haut der Organismen, als auch über eine Ingestion - ein Gefahr für die Lebewesen aquatischer Ökosysteme dar (Simkiss et al., 2001). Zudem kann eine Biokonzentration in Benthosorganismen erfolgen, so dass Schadstoffe in die Nahrungskette gelangen und sich dort anreichern (Ingersoll et al., 1995). Daher wird seit langem gefordert, die Sedimentqualität, ähnlich der Wasserqualität, einem Bewertungsverfahren zu unterziehen (Long und Chapman, 1985, Förstner et al., 1987, Krebs, 1992). Bei der Strategie zur Bewertung von Sedimenten dominiert in Deutschland jedoch noch immer der chemisch-analytische Ansatz (Ahlf, 1995, Grätzer und Ahlf, 1999, Hollert et al., 1999, Hollert, 2001). Chemisch-analytische Untersuchungen geben zwar Aufschluss über das Auftreten von Umweltschadstoffen in Sedimenten, liefern jedoch keine Information über die Bioverfügbarkeit sowie die Wirkung bzw. Wechselwirkungen der vorgefundenen Chemikalien in unterschiedlichen Konzentrationsbereichen und damit über deren tatsächliche Toxizität für sedimentbewohnende Organismen (O'Connor & Paul, 2000). In Anbetracht der Vielzahl sedimentassoziiertes Verbindungen sind biologische Wirktests nötig, um summarisch die Wirkung aller Inhaltstoffe zu erfassen, sowie deren synergistische und antagonistische Effekte und Metabolisierung im Organismus zu berücksichtigen (Burton, 1991, Zimmer & Ahlf, 1994). Möglich ist der Einsatz von Biotests, die den Einfluss von Eluat, Extrakten oder aber des Gesamtsediments untersuchen. Die Untersuchung von nativen Gesamtsedimentproben besitzt dabei die größte ökologische Relevanz, da sie die aktuelle Bioverfügbarkeit von Schadstoffen berücksichtigt (Hollert, 2001). Die Testorganismen nehmen hierbei über mehrere Expositionspfade (Sediment, Porenwasser, Nahrung) die vorhandenen Schadstoffen auf.

Partikelassoziierte Schadstoffe können unterschiedliche Arten von Schädigungen hervorrufen, neben einer akuttoxischen Wirkung können viele subletale Effekte, wie mutagene, genotoxische, teratogene und endokrine Wirkungen auftreten, die für das Ökosystem ebenfalls relevant sind. Für eine umfassende Charakterisierung der Sedimentbelastung sollten daher zusätzlich zu den zumeist unspezifischen akuten Biotests solche mit exakt definierten Endpunkten eingesetzt werden (Hollert et al., 1999, Hollert, 2001).

Endokrine Wirkungen werden durch Substanzen hervorgerufen, die direkt oder indirekt das Hormonsystem von Organismen beeinflussen und auch als endokrine Disruptoren bezeichnet werden. Diese Gruppe von Substanzen wird in den letzten Jahren nicht nur intensiv von der Wissenschaft diskutiert, sondern ist auch vermehrt in das Interesse einer breiten Öffentlichkeit getreten, da verschiedene Effekte bei Mensch und Tier mit hormonell wirksamen Umweltchemikalien in Verbindung gebracht werden. So stehen sie beispielsweise im Verdacht, zu einer Verringerung der Fortpflanzungsfähigkeit, einer Abnahme der Spermiedichte und des Ejakulatvolumens (Carlsen et al., 1992, Auger et al., 1995) sowie zu einem Anstieg der Häufigkeit hormonabhängiger Tumorerkrankungen in Industrieländern (z.B. Hoden- und Prostatakarzinom, einige Typen des Mammakarzinoms) beizutragen (Österlind, 1986, Degen, 1996, Seibert, 1996). Zudem sollen sie Genitalmissbildungen, speziell bei männlichen Neugeborenen, wie Hypospadiex (offene Harn-Samen-Röhren) und Kryptorchismus (= Hodenhochstand) (John Radcliff Hospital Cryptorchidism Study Group, 1992, Neubert und Chahoud, 1996), sowie Störungen der Embryonalentwicklung während der Geschlechtsdifferenzierung (Colborn und Clement, 1992) hervorrufen.

Bei der überwiegenden Mehrzahl der bekannt gewordenen Verdachtsfälle handelt es sich um Substanzen, die eine östrogene Wirkung aufzeigen und daher bevorzugt den männlichen Teil von Populationen schädigen können; dagegen sind nur relativ wenige Beispiele einer nachgewiesenen androgenen Wirkung bekannt, die die Fortpflanzung weiblicher Individuen behindern könnten. So entwickeln weibliche Zahnkarpfen in den Abwasserfahnen verschiedener Papiermühlen in Florida nicht nur ein äußerlich sichtbares männliches Kopulationsorgan (Arrhenoidie), sondern durchliefen darüber hinaus auch teilweise einen Geschlechtswechsel zum Männchen. In diesem Fall konnte gezeigt werden, dass der mikrobielle Abbau von Phytosterolen aus der Papierherstellung zu androgen wirksamen Steranen führte, die die Vermännlichungen auslösten (Davis & Bortone, 1992).

Aus einigen im Tierreich gefundenen Effekten sind effektive Testverfahren entwickelt worden, beispielsweise aus den Befunden zu Vitellogenin-bildenden männlichen Regenbogenforellen in englischen Flüssen unterhalb von Kläranlagenzuläufen (Jobling und Sumpter, 1993, Purdom et al., 1994, Sumpter und Jobling, 1995, Harries et al., 1996, Tyler et al., 1996). Die meisten in diesem Bereich entwickelte Verfahren weisen jedoch Nachteile auf; so dienen sie ausschließlich dem Nachweis östrogenen Aktivitäten oder erfassen lediglich direkte, rezeptorvermittelte Effekte. Häufig können dagegen Substanzen, die indirekt oder funktionell wirken und damit etwa die Biosynthese oder Bioverfügbarkeit der natürlichen Hormone beeinflussen (z.B.

Enzymhemmung oder -induktion, Modulierung der Ausscheidungsrate) nicht nachgewiesen werden. Um zu gewährleisten, dass auch solche Wirkungen identifiziert werden, sollte ein entsprechendes Verfahren auf organismischer Ebene angesiedelt sein. Zudem sollte der Test aus tierschutzrechtlichen und ethischen Gründen auf einem Evertibratensystem beruhen, mit dem möglichst androgene und östrogene Effekte in einem Test unterschieden werden können. Um hormonmimetische Wirkpotenziale in Sedimenten nachzuweisen, sollte der Biotests zudem typische sedimentbewohnende Arten mit hoher ökosystemarer Relevanz berücksichtigen.

Bei der ökotoxikologischen Bewertung von Sedimenten werden momentan im Wesentlichen Arthropoden und hierbei vor allem Insekten (*Chironomus tentans*, *Chironomus riparius*, *Hexagenia limbata*, *Polypedilum nubifer*) und Anneliden (*Limnodrilus hoffmeisteri*, *Lumbriculus variegatus*, *Tubifex tubifex*) sowie Crustaceen (*Gammarus fasciatus*, *Hyaella azteca*) eingesetzt (Wentzel et al., 1977, Henry et al., 1986, Hatakeyama, 1987, Wiederholm et al., 1987, Borgmann et al., 1989, Dermott & Munawar, 1992, Hoke et al., 1994, Martinez-Madrid et al., 1999, Ristola et al., 1999). Zudem finden neuerdings auch zunehmend Biotests mit Nematoden (*Caenorhabditis elegans*) und Gastropoden (*Potamopyrgus antipodarum*, *Nassarius reticulatus*) Anwendung in der Sedimentbewertung (Höss et al., 1999, Schulte-Oehlmann et al., 2001 a-c, Tillmann et al., 2001, Duft et al., 2002, 2003, Duft, 2003).

Insekten und Vorderkiemerschnecken wurden auf dem mit internationalen Experten besetzten EDIETA-Workshop zu dem Thema „Endokrine Effekte in Invertebraten“ in den Niederlanden als die aussichtsreichsten Kandidaten für die Entwicklung von Testverfahren zur Erfassung endokriner Wirkungen dargestellt (deFur et al., 1999). Vor diesem Hintergrund wurde in der vorliegenden Arbeit jeweils ein Vertreter dieser Tiergruppen ausgewählt, um seine Eignung zur Identifizierung von Sedimentschadstoffen generell sowie unter besonderer Berücksichtigung endokriner Wirkungen zu überprüfen.

Vorderkiemerschnecken sind nicht nur ein wichtiger Bestandteil von aquatischen Lebensräumen und haben eine hohe Relevanz für marine und limnische Ökosysteme, sondern besitzen zudem ein mit den Wirbeltieren und dem Menschen in wichtigen Bereichen vergleichbares Geschlechtshormonsystem. Sie erscheinen daher als Testorganismen besonders geeignet, um endokrine Disruptoren identifizieren zu können. Einer der am besten untersuchten androgenen Effekte einer Umweltchemikalie auf diese Tiergruppe ist die Auslösung des Impossexphänomens unter dem Einfluss von Tributylzinn (zur Übersicht vgl. Fioroni et al., 1991; Oehlmann, 1994, Stroben, 1994).

Nassarius reticulatus, die Netzreusenschnecke, zeigt Impossex und lebt in direktem Kontakt mit dem Sediment, in dessen oberste Schichten sie sich eingräbt. Sie stellt den Vertreter der Vorderkiemerschnecken. Als Vertreter der Insekten wird ihr der weitgehend standardisierte Sedimenttoxizitätstest mit der Zuckmücke *Chironomus riparius* gegenüber gestellt.

In einem ersten Teil der vorliegenden Arbeit soll geprüft werden, wie die beiden Testverfahren auf ausgewählte Schadstoffe in Labortests mit artifiziellen Sedimenten reagieren, während sie in einem zweiten Teil auf ihre Eignung als Effektmonitor in Freilandproben untersucht werden sollen.

2000 wurde von der EU eine neue Wasserrahmenrichtlinie (WRRL) verabschiedet (2000/60/EG), deren Ziele unter anderem Maßnahmen zum Schutz und zur Verbesserung des Zustands von aquatischen Ökosystemen sind (Europäische Union, 2000). Als bedeutsames biologisches Element aquatischer Ökosysteme sind dabei auch Sedimentorganismen (Makrozoobenthos) als wichtiges Schutzziel zu betrachten. Ein biologisches Effektmonitoring zur Überwachung von Fließgewässersedimenten erfolgt jedoch bislang noch nicht routinemäßig. Demzufolge fehlt auch ein standardisiertes Sedimentbewertungskonzept, das eine Klassifizierung der zuvor bei ausgewählten Organismen beobachteten Effekte erlaubt. Es liegen bereits eine Reihe von Vorschlägen für entsprechende Bewertungskonzepte vor (Ahlf et al., 1999, 2002, Henschel et al., 2001, Hollert, 2001), die an einzelnen Sedimenten bzw. ausgewählten Flussabschnitten erprobt wurden. In einem dritten Teil soll in der vorliegenden Arbeit dementsprechend ein Klassifizierungssystem für die Sedimentbewertung mit den beiden Testorganismen *Nassarius reticulatus* und *Chironomus riparius* abgeleitet und auf die großen Flüsse Deutschlands angewendet werden.

2 UNTERSUCHUNGSGEBIET

Das Untersuchungsgebiet umfasst 12 große Flüsse, die über das gesamte Bundesgebiet verteilt sind: Donau, Elbe, Ems, Main, Mosel, Neckar, Neisse, Oder, Rhein, Ruhr, Saar und Weser (Abbildung 1). Soweit möglich, wurden etwa alle 20 km Sedimentproben entnommen, um eine repräsentative und flächendeckende Beprobung zu gewährleisten.

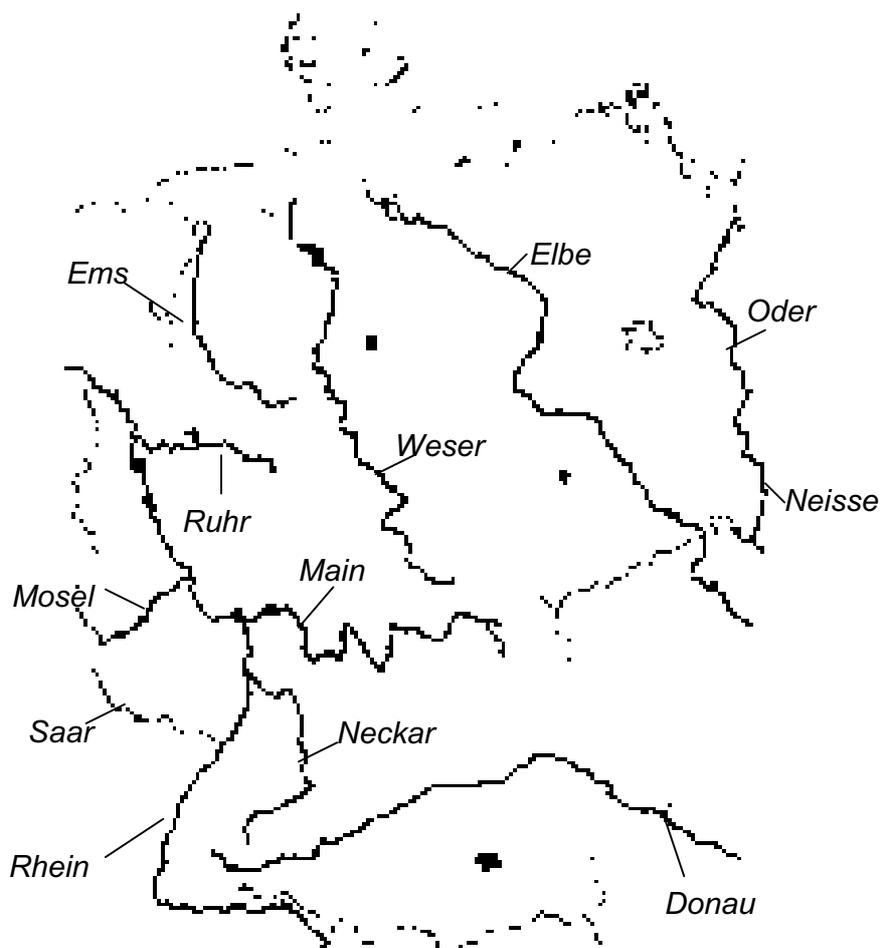


Abbildung 1: Untersuchungsgebiet: Übersicht der beprobten Flüsse.

Die Donau, mit insgesamt 2778 km zweitlängster Fluss Europas, durchfließt auf ihrer 578 km langen Fließstrecke in Deutschland die Bundesländer Baden-Württemberg und Bayern, bevor sie bei Passau nach Österreich und von dort weiter in Richtung Schwarzes Meer strömt. Von Ulm bis zur österreichischen Grenze befinden sich 22 große Stauanlagen im Fluss. Die Donau gilt von allen großen Strömen Deutschlands als am geringsten belastet und wird weitgehend der Gewässergüteklasse II (mäßig