

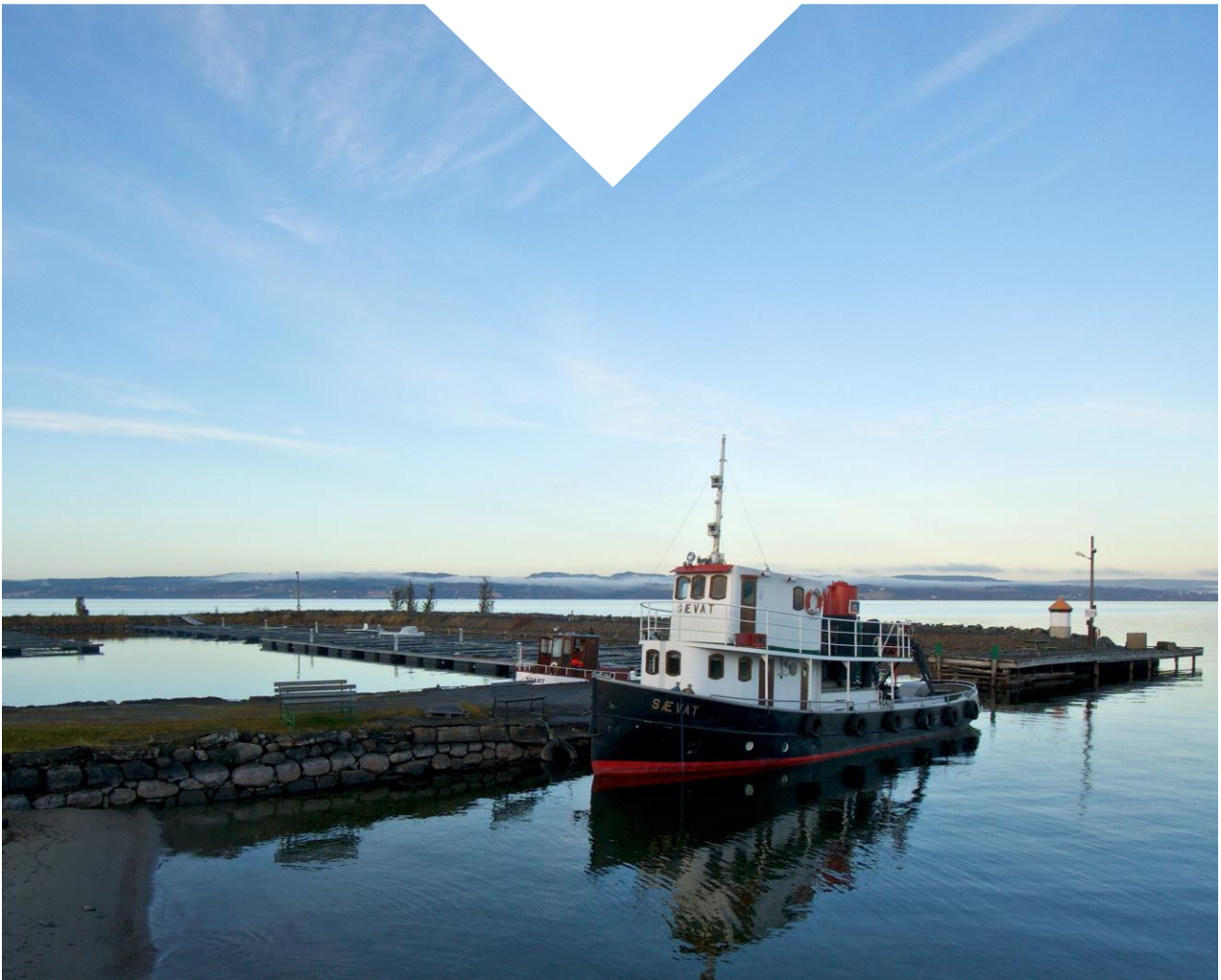


MILJØOVERVÅKNING

M-548 | 2016

Miljøgifter i store norske innsjøer, 2015

Forekomst og biomagnifisering i fisk og zooplankton



KOLOFON

Utførende institusjon

Norsk institutt for vannforskning (NIVA), Norsk institutt for luftforskning (NILU)

Oppdragstakers prosjektansvarlig

Eirik Fjeld

Kontaktperson i Miljødirektoratet

Eivind Farmen

M-nummer

M-548

År

2016

Sidetall

97

Miljødirektoratets kontraktnummer

15078019, 16078018

Utgiver

NIVA; Rapport 7062-2016; Prosjekt O-13223;
ISBN 978-577-6797-6

Prosjektet er finansiert av

Miljødirektoratet

Forfatter(e)

Fjeld, Eirik (NIVA), Bæk, Kine (NIVA), Rognerud, Sigurd (NIVA), Rundberget, Jan Thomas (NIVA), Schlabach, Martin (NILU) og Warner, Nicholas A. (NILU)

Tittel - norsk og engelsk

Miljøgifter i store norske innsjøer, 2015
Environmental pollutants in large Norwegian lakes, 2015

Sammendrag - summary

Vi rapporterer her om forekomsten av miljøgifter i de pelagiske næringskjedene i innsjøene Mjøsa, Randsfjorden og Femunden, samt i supplerende materiale av fisk fra Tyrifjorden og Vansjø, innsamlet i 2015. Kvikksølv og organiske miljøgifter (cVMS, PCB, PBDE, PFAS) ble analysert i prøver av fisk fra alle sjøene, samt i planktoniske krepsdyr i Mjøsa. Av hovedfunnene nevnes at siloksanforbindelsene D5 og D6 viser trofisk magnifisering i Mjøsa og Randsfjorden, samt at PFTra er den dominerende PFAS-forbindelsen i leverprøver av fisk.

We report here on the presence of contaminants in the pelagic food chains in the lakes Mjøsa, Randsfjorden and Femunden and in supplementary material of fish from Tyrifjorden and Vansjø, sampled in 2015. Mercury and persistent organic pollutants (cVMS, PCBs, PBDEs, PFAS) were analyzed in samples of fish from all lakes, as well as pelagic crustaceans in Mjøsa. Among the key findings are that the siloxanes D5 and D6 show trophic magnification in Mjøsa and Randsfjorden and that PFTra is the dominating PFAS in liver samples of fish.

4 emneord

innsjøer, næringsnett, siloksaner, miljøgifter

4 subject words

lakes, food web, siloxanes, pollutants

Forsidefoto

Eirik Fjeld (Kapp ved Mjøsa)

Innhold

1. Extended abstract	4
Sammendrag	8
2. Innledning	11
3. Materiale og metoder	13
3.1 Beskrivelse av innsjøene	13
3.2 Prøvetaking av fisk og zooplankton	16
3.3 Analysemetoder	17
3.3.1 Kvikksølv, Hg	17
3.3.2 Sykliske volatile metylerte siloksaner, cVMS	17
3.3.3 Polyklorerte bifenyler og polybromerte difenyletere, PCB og PBDE	18
3.3.4 Perfluorerte alkylforbindelser, PFAS	18
3.3.5 Stabile N- og C-isotoper, $\delta^{15}N$ og $\delta^{13}C$	19
3.4 Beregning av trofisk magnifisering	19
3.5 Kort om de ulike miljøgiftene	20
3.5.1 Kvikksølv	20
3.5.2 Sykliske (flyktige) metylerte siloksaner, cVMS	20
3.5.3 Polyklorerte bifenyler, PCB	20
3.5.4 Polybromerte difenyletere, PBDE	21
3.5.5 Perfluorerte alkylstoffer, PFAS	21
4. Resultater og diskusjon	22
4.1 Fiskestørrelse, trofiske nivåer og fett	22
4.2 Kvikksølv, Hg	25
4.3 Sykliske flyktige metylerte siloksaner, cVMS	29
4.3.1 Nivåer av cVMS i 2015	29
4.3.2 Årlig variasjon av cVMS i Mjøsa og Randsfjorden	32
4.3.3 Trofisk magnifisering av D5 og D6 i Mjøsa og Randsfjorden	34
4.3.4 Samvariasjoner mellom cVMS, PCB, PBDE og trofisk nivå	36
4.4 Polyklorerte bifenyler, PCB	38
4.4.1 Nivåer av PCB i 2015	38
4.4.2 Historisk utvikling av PCB-nivåene i fisk	40
4.4.3 Trofisk magnifisering av PCB	42
4.5 Perfluorerte alkylforbindelser, PFAS	43
4.5.1 Nivåer av PFAS i 2015	43
4.5.2 Konsentrasjoner av PFAS i muskel vs. lever	47
4.5.3 Tidstrend av PFAS i Mjøsa	48

4.6 Polybromerte difenyletere, PBDE	51
4.6.1 Konsentrasjoner av PBDE i 2015	51
4.6.2 Tidstrend av PBDE i Mjøsa	53
4.6.3 Trofisk magnifisering av PBDE.....	54
5. Ekstra kjemiske analyser	56
6. Referanser	59
7. Vedlegg - Appendix.....	65
7.1 English translation of cVMS related chapters.....	65
7.2 Vedlegg 2 - Kjemisk komponentliste	80
7.3 Vedlegg 3 - Statistiske modeller, cVMS.....	83
7.4 Vedlegg 4 - Rådata	87

1. Extended abstract

Title: Environmental pollutants in large Norwegian lakes, 2015

Year: 2016

Authors: Fjeld, Eirik (NIVA), Bæk, Kine (NIVA), Rognerud, Sigurd (NIVA), Rundberget, Jan Thomas (NIVA), Schlabach, Martin (NILU), and Warner, Nicholas A. (NILU)

Source: Norwegian Environment Agency, report M-548|2016

The Norwegian Institute for Water Research (NIVA) and the Norwegian Institute for Air Research (NILU) are monitoring the occurrence of contaminants in the pelagic food webs in the lakes Mjøsa, Randsfjorden and Femunden, Southeast Norway, on behalf of the Norwegian Environment Agency. These large fjord lakes are respectively moderately, slightly and insignificantly impacted of discharges from local population, industry and agriculture. Supplementary samples of fish were obtained from Lake Tyrifjorden and Lake Vansjø. This monitoring program runs over four years, and started in 2013. Here we report the 2015 data, with focus on the occurrence of pollutants at different trophic levels and evaluation of their potential for biomagnification.

Mercury and organic pollutants (POPs) were analyzed in samples of fish from all lakes, and in planktonic crustacean from Mjøsa. Stable N- and C-isotopes ($\delta^{15}\text{N}$, $\delta^{13}\text{C}$) were analyzed in all samples to describe the organisms' trophic position (place in the food web) and carbon sources.

The POPs included cyclic volatile methylated siloxanes (cVMS), polychlorinated biphenyls (PCBs), polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) and perfluorinated alkyl substances (PFASs). The analyses were done at NILU's analytical laboratory, except for PFASs that were analyzed at NIVA. Stable N- and C-isotopes were analyzed at the Institute for Energy Technology (IFE).

Mercury (Hg)

Mercury is recognized as a substance producing significant adverse neurological and other health effects, with particular concerns expressed about its harmful effects on unborn children and infants. Most of the mercury pollution in Norwegian lakes is now due to atmospherically deposited mercury originating from other parts of the world.

Mercury concentrations increased with trophic level, and the highest concentrations were found in piscivorous brown trout and arctic char, with average concentrations ranging from 0.26 to 0.72 mg/kg (wet weight), highest in Mjøsa and lowest in Femunden. The principal mercury sources are probably long range atmospherically transported depositions together with diffuse, unidentified local sources in the more populated areas. Generally there is a high probability that the fish consumption advisory limit of 0.5 mg/kg w.w. is exceeded in brown trout larger than 50 cm. The concentrations of planktivorous smelt from Randsfjorden and whitefish from Femunden were low, with average values of respectively 0,22 and 0,14 mg/kg. The mercury concentration in trout from Mjøsa has been more or less unchanged over the period 2006 - 2013. No significant change in mean mercury concentration from 1999 - 2000 to 2013 - 2015 could be detected for brown trout in Randsfjorden and Femunden. The concentrations in perch from Tyrifjorden and Vansjø were in average 0.29 and 0.39 mg/kg, respectively. These levels appear to be somewhat lower than those previously reported for

perch in boreal lakes of eastern Norway. The Water Framework Directive's EQS limit for mercury in biota is 0.02 µg/kg w.w., and all fish samples analyzed exceeded this.

Methylated cyclic siloxanes (cVMS)

Cyclic volatile methylsiloxanes (cVMS: D4, D5 and D6) have come under increasing scrutiny by environmental scientists in recent years due to their persistence and potential for long-range transport and bioaccumulation in aquatic organisms. Siloxanes are produced in high volumes and have several uses such as in personal care products, biomedical products, and consumer products such as car polish and waxes. For some organisms they are known or suspected to be carcinogenic, have endocrine disrupting properties and reproductive effects. The results reported here support the view that local use and discharges can cause significantly elevated concentrations in pelagic freshwater food webs.

We analyzed for cVMS (D4, D5 and D6) in fish samples from all lakes, and planktonic crustaceans in Mjøsa. The majority of the samples had concentrations above the quantification limits (LOQ): D4 (83%); D5 (88%) and D6 (84%). In the further statistical analyses are results <LOQ substituted with half the limits, as this represents a compromise between zero and the respective limits.

The highest concentrations of cVMS in fish were found in Mjøsa, then followed by Randsfjorden. D5 was the dominating siloxane, and mean concentrations in different fish species from the two lakes were 1100 - 8800 ng/g lipid (22,6 - 78,7 ng/g w.w.). D5 levels exceed those of legacy POPs in this study, and the levels in lake Mjøsa are also higher than those recently reported for fish from Lake Erie (Mc Godrick et al. 2014). Mean D5 concentration in zooplankton from Mjøsa was 170 ng/g lipid (0,6 ng/g w.w.). The Water Framework Directive's EQS limit for D5 in biota is 15 000 ng/g w.w., and none of the fish samples analyzed exceeded this.

Mean concentrations of the different cVMS compounds in brown trout from Femunden were 90 - 640 ng/g lipid (1 - 4.5 ng/g w.w.), whereas all compounds had concentrations <LOQ in whitefish (<0,5 ng/g w.w.)

By compiling data from different surveys from the period 2010 - 2015 we demonstrated biomagnification of D5 in Mjøsa and Randsfjorden with a common trophic magnification factor (TMF) of 2.28 (95% confidence interval: 1.93 - 2.70), and biomagnification of D6 with a common TMF of 2.29 (1.83 -2.88)

We suspect local discharges from wastewater treatment plants to be the main source of cVMS to Mjøsa and Randsfjorden.

Polychlorinated biphenyls (PCBs)

PCBs are a group of chlorinated organic compounds that previously had a broad industrial and commercial application. PCBs are endocrine-disrupting, can weaken the immune system, affect the nervous system and cognitive development, cause liver cancer and impair fertility. The sources of PCBs in Norwegian lakes are both atmospheric long-rang transported depositions and former local use.

Mean concentrations of ΣPCB7 in various species of fish from Mjøsa and Randsfjorden were in the range of 160-1000 ng/g lipid (5-36 ng/g w.w.), and the highest levels were found in char

from Randsfjorden and trout from Mjøsa. The concentration in whitefish and trout from Femunden were respectively 130 and 370 ng/g lipid (1-3 ng/g w.w.), and the low levels here reflects that local sources are close to non-existent and the supply is mainly caused by long-range atmospherically transported depositions. The levels of PCB in fish from Mjøsa and Randsfjorden are reduced compared to the levels of 1998. In all three main lakes did PCB biomagnify, and the calculated TMF-values of PCB-153 was in the range from 2.06 to 4.81. The Water Framework Directive's EQS limit for Σ PCB7 in biota is 0.6 ng/g w.w., and 95 % of the fish samples analyzed exceeded this.

Perfluorinated alkylated substances (PFAS)

Per- and polyfluorinated alkyl substances (PFAS) are organofluorine compounds, used as oil- and water-repellant surfactants. They are used in numerous industrial and consumer products. Because of their widespread use, high persistence, bioaccumulative properties and potential for long-range transport, they have become ubiquitous in the environment. Some long-chain PFASs have been found to be carcinogenic, neuro- and liver-toxic, and disrupt lipid metabolism, immune- and endocrine systems. The results reported here support the view that elevated concentrations in the Norwegian freshwater environment is due to both atmospheric long-rang transported depositions and local use.

The main analytical matrix in fish for PFAS was liver samples, as PFAS are known to accumulate to a high degree in this tissue. For eight of the 24 analyzed substances almost 100 % of the liver samples showed concentrations above LOQ. This group consisted of long-chained perfluorinated carboxylic acids (PFCA; C9-C14), PFOS and PFOSA. In general, the concentrations of the substances in this group increased with trophic level, with the highest levels in brown trout liver. The other substances were found in rather low concentrations, and a large proportion was below LOQ. PFTrDA was chiefly found with the greatest concentrations, with mean values in liver samples in the range of 8 - 27 ng/g w.w., highest in Femunden and lowest in Mjøsa. This substance accounted for about 12 - 56 % of the sum of PFAS in liver samples. The higher concentrations of long chained PFAS in trout from the pristine Lake Femunden compared to the more polluted Lake Mjøsa may be caused by their closer coupling to the terrestrial food web as indicated by their $d^{13}C$ -signature. Terrestrial organisms (i.e. insects) have a less effective respiratory elimination of anionic and hydrophilic PFAS than water breathing organisms.

Mean PFOS concentrations in fish liver samples from the three main lakes were in the range of 2 - 12 ng/g w.w. However, the PFOS levels were considerably elevated in perch from Tyrifjorden and Vansjø with mean concentrations of 183 and 346 ng/g w.w. respectively. The use of PFOS-containing fire extinguishing foam at an airport nearby Vansjø has resulted in soil and water pollution here, but we are not aware of any identified local sources in the vicinity of Tyrifjorden. In fish muscle samples five different PFAS-compounds could be found in quantifiable concentrations, and a comparison showed average liver concentrations to be 16-18 (PFCAs) to 25 (PFOS) times higher than muscle concentrations, but with a large variation around the means. Under the assumption that muscle concentration of PFOS is about 4 % of the liver concentration levels in muscle samples of perch from lake Tyrifjorden and Vansjø are approximately 7 and 14 ng/g w.w., respectively. This is comparable to the EQS level for PFOS in biota, which is 9.1 ng/g w.w.

Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs)

PBDEs are a group of brominated flame retardants, used in a wide array of products. They are highly persistent in the environment, bioaccumulative and have a high potential for long-range environmental transport. There is evidence for toxic effects in wildlife, including mammals, and some of them are known to be carcinogenic, endocrine-disrupting, cause neurobehavioral alterations and affect the immune system. The sources of PBDEs in Norwegian lakes are both atmospheric long-range transported depositions and former local use.

The concentration of PBDE in fish, measured as the sum of the six commonly occurring congeners of tetra-, penta- and hexa-BDE (BDE-47, -49, -99, -100, -153 and -154) were highest in Mjøsa and lowest in Femunden. Mean sum ranged from 30 to 560 ng/g lipid (0,3-22,5 ng/g w.w.), highest in brown trout from Mjøsa and lowest in whitefish from Femunden. Similar concentration in zooplankton from Mjøsa was 41 ng/g lipid (0,2 ng/g w.w.). The Water Framework Directive's EQS limit for sum PBDE in biota is 0.0085 ng/kg w.w., and all fish samples analyzed exceeded this.

The markedly higher levels in Mjøsa can be attributed mainly to earlier local industry discharges in the period of mid-1990s to early 2000s. The concentrations in trout from Mjøsa have been reduced by approximately 90 % during the period 2000 - 2015, but the levels are still higher than what are found in comparable Swedish and Canadian lakes.

Concentrations of PBDEs increased by trophic level, with estimated TMF-values of BDE-47 in the range of 2.06 - 4.81, highest in Mjøsa and lowest in Femunden. Concentrations of BDE-209 were low in the samples from all the lakes, in average only about 20% of the samples had concentrations above LOQ (1-7 ng/g lipid) and showed no systematic variation with trophic level (estimated mean levels: 0.1-0.2 ng/g w.w.)

Sammendrag

Tittel: Miljøgifter i store norske innsjøer, 2015

År: 2016

Forfattere: Fjeld, Eirik (NIVA), Bæk, Kine (NIVA), Rognerud, Sigurd (NIVA), Rundberget, Jan Thomas (NIVA), Schlabach, Martin (NILU) og Warner, Nicholas A. (NILU).

Kilde: Miljødirektoratet rapport M-548 | 2016

På vegne av Miljødirektoratet har Norsk institutt for vannforskning (NIVA) og Norsk institutt for luftforskning (NILU) kartlagt forekomsten av miljøgifter i de pelagiske næringskjedene i de store innsjøene Mjøsa, Randsfjorden og Femunden (hovedsjøene). Dette er innsjøer med henholdsvis moderat, liten og ubetydelig påvirkning av utslipp fra lokal befolkning, industri og landbruk. Supplerende materiale av fisk er innhentet fra Tyrifjorden og Vansjø. Overvåkningsprogrammet går over fire år, med oppstart i 2013. Vi rapporterer her resultatene for 2015, med fokus på forekomsten av miljøgifter på ulike trofiske nivå og vurdering av potensial for biomagnifisering.

Kvikksølv og organiske miljøgifter ble analysert i prøver av fisk fra alle sjøene, samt i planktoniske krepsdyr i Mjøsa. For å kunne beskrive organismenes trofiske posisjon (plass i næringsnettet) og karbonkilder ble forholdet mellom stabile N- og C-isotoper ($\delta^{15}N$, $\delta^{13}C$) analysert i alle prøvene.

De organiske miljøgiftene omfattet sykliske volatile metylerte siloksaner (cVMS), polyklorerte bifenyler (PCB), bromerte flammehemmere av typen polybromerte difenyletere (PBDE) og perfluorerte alkylsubstanser (PFAS). Analysene ble gjort på NILUs analyselaboratorium, med unntak av PFAS som ble analysert ved NIVA. Stabile N- og C-isotoper ble analysert ved Institutt for energiteknikk (IFE).

Kvikksølv

Konsentrasjonene av kvikksølv økte med fiskens trofisk nivå, og de høyeste konsentrasjonene av kvikksølv ble funnet i stor fiskespisende ørret, med gjennomsnittlige konsentrasjoner (våtvekt) i området 0,26 - 0,72 mg/kg, høyest i Mjøsa og lavest i Femunden. For røye fra Randsfjorden var nivåene også høye, med midlere konsentrasjon på 0,69 mg/kg. Generelt er det overveiende sannsynlig at omsetnings-grensen på 0,5 mg/kg våtvekt overskrides når ørreten blir ca. 50 cm eller større. Konsentrasjonene i planktonspisende krøkle fra Randsfjorden og sik fra Femunden var lave, med gjennomsnittsverdier på henholdsvis 0,22 og 0,14 mg/kg. Vannforskriftens EQS-grense for biota er på 0,02 mg/kg, og samtlige fiskeprøver overskred denne.

Kvikksølvinnholdet i ørret fra Mjøsa var forholdsvis stabilt i perioden 2006 - 2015. For ørreten i Randsfjorden og Femunden kunne det ikke påvises noen signifikant endring i de lengdejusterte middelkonsentrasjonene av kvikksølv fra 1999/2000 og til 2013 - 2015. For abbor fra Tyrifjorden og Vansjø var midlere kvikksølvkonsentrasjon 0,16 og 0,32 mg/kg, og nivåene synes å være noe lavere enn hva som tidligere er rapportert for jevnstor abbor i skogsjøer fra Øst-Norge.

Metylerte sykliske siloksaner (cVMS)

Det ble analysert for cVMS (D4, D5 og D6) i fisk fra Mjøsa, Randsfjorden og Femunden, og i planktoniske krepsdyr i Mjøsa. De høyeste konsentrasjonene ble funnet i Mjøsa, fulgt av Randsfjorden. D5 dominerte i prøvene fra Mjøsa og Randsfjorden, og midlere konsentrasjoner i ulike arter fisk var 1100 - 8800 ng/g lipid (22,6 - 78,7 ng/g våtvekt), mens den for zooplankton i Mjøsa var 170 ng/g lipid (0,6 ng/g våtvekt). Vannforskriftens EQS-verdi for D5 i fisk er 15 000 ng/g våtvekt, og ingen prøver overskred denne.

Midlere konsentrasjoner av D6 i fisk fra begge sjøene var 70 - 630 ng/g lipid (1,5 - 5,2 ng/g våtvekt), mens den for zooplankton i Mjøsa var <LOQ (estimerte verdier: 75 ng/g lipid eller 0,3 ng/g våtvekt). For D4 var midlere nivå i fisk 57-500 ng/g lipid, mens det for zooplankton i Mjøsa var <LOQ (estimerte verdier: 150 mg/g lipid eller 0,6 ng/g våtvekt).

For Femunden var midlere konsentrasjoner av de enkelte cVMS-forbindelsene i ørret i området 90 - 640 ng/g lipid (1 - 1,4 ng/g våtvekt), mens samtlige forbindelser var under kvantifikasjonsgrensen i sik (<0,5 ng/g våtvekt).

De forhøyede nivåene i Mjøsa og Randsfjorden skyldes mest trolig lokale tilførsler. Ved å kombinere data fra enkelte undersøkelser gjort i perioden 2012 - 2015, kunne statistiske modeller påvise at D5 biomagnifiserte i Mjøsa og Randsfjorden med en felles trofisk magnifikasjonsfaktor (TMF) på 2,28 (95 % konfidensintervall: 1,93 - 2,70), og at D6 biomagnifiserte med en felles TMF på 2,29 (1,83 - 2,88).

Polyklorerte bifenyler (PCB)

Midlere konsentrasjoner av Σ PCB7 i ulike arter fisk fra Mjøsa og Randsfjorden var i området 160 - 1000 ng/g lipid (5 - 36 ng/g våtvekt), og de høyeste verdiene ble funnet i røye fra Randsfjorden og ørret fra Mjøsa. Konsentrasjonen i sik og ørret fra Femunden var i henholdsvis 130 og 370 ng/g lipid (1 - 3 ng/g våtvekt), og de lave nivåene her avspeiler at lokale kilder er nær fraværende og tilførslene i hovedsak må skyldes langtransporterte avsetninger. Konsentrasjonene av Σ PCB7 i fisk fra Mjøsa og Randsfjorden er redusert sammenliknet med nivåene fra 1998. I alle tre hovedsjøene økte konsentrasjonen av PCB med organismenes trofiske nivå, og de beregnede TMF-verdiene for PCB-153 var i området 2,06 - 4,81. Vannforskriftens EQS-verdi for Σ PCB7 i fisk er 0,6 ng/g våtvekt og 95 % av fiskeprøvene hadde konsentrasjoner større enn denne.

Perfluorerte alkylforbindelsene (PFAS)

I fisk ble det analysert for PFAS hovedsakelig i prøver av lever. For åtte av de 24 analyserte forbindelsene hadde nær 100 % av leverprøvene konsentrasjoner over kvantifiseringsgrensene. Dette var de langkjedede perfluorerte karboksylsyrene (PFCA; C9-C14), PFOS (perfluoroktansulfonat) og PFOSA (perfluoroktan-sulfonamid). I de tre hovedsjøene økte nivået av de ulike kvantifiserbare PFAS-forbindelsene oppover i næringskjeden, og var generelt høyest hos ørret. Forbindelsen PFTTrDA (C13-perfluorert karboksylsyre), hadde gjennomgående størst konsentrasjon med middelverdier i leverprøvene i området 8 - 27 ng/g våtvekt, høyest i Femunden og lavest i Mjøsa. Dette utgjorde omlag 12 - 56 % av totalkonsentrasjonen av PFAS i lever.

Midlere konsentrasjoner av PFOS i leverprøver av fisk i de tre hovedsjøene, lå i område 2 - 12 ng/g våtvekt. I Tyrifjorden og Vansjø var imidlertid nivåene av PFOS i abbor betydelig forhøyet med middelkonsentrasjoner i lever på henholdsvis 183 og 346 ng/g våtvekt. For

Vansjø er det kjent at bruk av brannslukkeskum med PFOS ved Rygge flyplass har ført til forurensinger av grunn og resipient, men for Tyrifjorden er vi ikke kjent med lokale kilder. I fiskemuskel kunne fire ulike PFAS finnes i kvantifiserbare konsentrasjoner. For PFOS var gjennomsnittsnivåene i lever 25 ganger høyere enn i muskel, for de langkjedede perfluorerte karboksyl-syrene var forholdstallet i området 16 - 18, men med en stor variasjon omkring gjennomsnittene. Vannforskriftens EQS-verdi for PFOS og PFOA i fisk (muskel) er henholdsvis 9,1 og 91 ng/g våtvekt. Under forutsetning av at muskelkonsentrasjonen av PFOS er omlag 4 % av leverkonsentrasjonen, så er beregnede middelværdier i muskelprøver av fisk fra Tyrifjorden og Vansjø henholdsvis 7 og 14 ng/g våtvekt - hvilket er i samme område som EQS-grensen. Fra de øvrige innsjøene var det ingen prøver som overskred EQS-verdiene.

Polybromerte difenyleterer (PBDE)

Konsentrasjonen av PBDE i fisk, målt som summen av de seks vanligst forekommende kongenere av tetra-, penta- og hekso-BDE (BDE-47, -49, -99, -100, -153 og -154) var høyest i Mjøsa og lavest i Femunden. Midlere sum varierte mellom 30 - 560 ng/g lipid (0,3-22,5 ng/g våtvekt), høyest i ørret fra Mjøsa og lavest i sik fra Femunden. Tilsvarende konsentrasjoner i epipelagisk zooplankton fra Mjøsa var 41 ng/g lipid (0,2 ng/g våtvekt). Vannforskriftens EQS-verdi for Σ PBDE i fisk er 0,0085 ng/g våtvekt og samtlige prøver av fisk hadde konsentrasjoner høyere enn denne.

De markert høyere nivåene i Mjøsa kan i hovedsak tilskrives tidligere lokale utslipp fra industri i perioden fra midten av 1990-tallet til tidlig 2000-tallet. Konsentrasjonene i ørret fra Mjøsa har blitt redusert med ca. 90 % i løpet perioden 2000 - 2015, men nivåene er fortsatt forhøyet jevnført med sammenliknbare innsjøer i Sverige og Nord-Amerika.

Konsentrasjonen av PBDE steg med trofisk nivå. De beregnede *TMF*-verdiene for BDE-47 var i området 2,06 - 4,81 ng/g lipid, høyest i Mjøsa og lavest i Femunden. Konsentrasjonen av BDE-209 var lav i prøvene fra alle innsjøene, kun drøyt 20 % av prøvene hadde kvantifiserbare verdier og det var ingen systematisk variasjon med trofisk nivå (estimerte middelværdier i området 0,1 - 0,2 ng/g våtvekt).

2. Innledning

Miljødirektoratet inngikk i 2013 en avtale med Norsk institutt for vannforskning (NIVA) og Norsk institutt for luftforskning (NILU) om overvåkning av miljøgifter i et utvalg store innsjøer. Overvåknings-programmet går over fire år, og dette er tredje års resultater som rapporteres.

Miljødirektoratet har etter hvert fått god oversikt over en del miljøgifter som har vært overvåket og kartlagt i ulike miljøer over lengre tid. De ønsker derfor nå å bygge videre på denne erfaringen og innhente kunnskap om nye miljøgifter for å bruke resultatene i arbeidet med nasjonale og internasjonale reguleringer av problemstoffer.

Med unntak av det tidligere overvåkningsprogrammet for miljøgifter i Mjøsa (Fjeld et al. 2012), har innsjøundersøkelser i hovedsak vært konsentrert om mindre innsjøer uten kjente kilder til miljøgifter i nedbørfeltet, og hvor de viktigste tilførslene har vært atmosfærisk langtransport.

Miljødirektoratet ønsker derfor å gjennomføre en mer systematisk overvåking av miljøgifter i store innsjøer. Vannforskriften stiller krav til overvåking av vannforekomstene i Norge. Overvåknings-programmet «Miljøgifter i store innsjøer» ble derfor startet i 2013, og dette programmet vil bidra til å ivareta vannforskriftens krav om basisovervåking. Denne rapporten omhandler resultatene fra sesongen i 2015.

Hensikten med overvåkningsprogrammet er å vurdere miljøgifters skjebne og potensiale for effekter av miljøgifter i ferskvannsystemer. Resultatene kan også brukes som grunnlag for kostholdsrad. De primære målene for programmet var i utgangspunktet å:

- Rapportere miljøgiftnivåer på flere nivåer i næringskjeden
- Anslå grad av opphoping av miljøgifter i organismer og i næringskjedene
- Vurdere potensiale for effekter på ulike nivåer i næringskjeden
- Vurdere bidrag fra ulike kilder og deres påvirkning av miljøtilstand
- Vurdere tilstand som grunnlag for å vurdere behov for tiltak og effekter av tiltak

Resultatene vil også bli brukt i internasjonale reguleringsprosesser på kjemikalieområdet som Miljødirektoratet deltar i.

Tatt i betraktning programmets økonomiske ramme vil prosjektet ikke gi utfyllende svar på alle målsetningene som er listet opp ovenfor. Det er følgelig lagt vekt på å oppfylle særlig de to første målene. En del av programmets omfang vil også bidra til oppfyllelse av overvåkingskrav etter vannforskriften.

Vi rapporterer her om forekomsten av kvikksølv, sykliske volatile metylerte siloksaner (cVMS), polyklorerte bifenyler (PCB), perfluoreerte alkylforbindelser (PFAS) og bromerte flammehemmere av type polybromerte difenyletere (PBDE) i fisk og zooplankton fra de store innsjøene Mjøsa, Randsfjorden og Femunden. Et fåtall prøver av med utvalgte analyser av tungmetaller og POPs i abbor fra Tyrifjorden og Vansjø er også inkludert i undersøkelsen.

For de stoffene det finnes miljøkvalitetsstandarder (EQS-verdier) gitt i Vanddirektivet har vi sammenliknet våre funn med disse. Dette er grenseverdier som angir fare for effekter på de mest sårbare delene av økosystemet (f.eks. topp-predatorer som får i seg mye miljøgifter). Grenseverdier for mattrygghet angir den maksimale mengde av en gitt miljøgift som er tillatt i sjømat som omsettes for salg. Siden mennesker spiser langt mindre sjømat enn marine topp-predatorer er disse grenseverdiene gjerne satt høyere enn miljøkvalitetsstandardene.

Feltarbeidet og prøvetakingen har vært gjort av personell fra NIVA (Sigurd Rognerud og Eirik Fjeld) samt lokale fiskere.

Ved NIVA har Kine Bæk vært ansvarlig for planlegging av prøvetaking og all logistikk for prøvene, og Jan Thomas Rundberget har vært ansvarlig for analysene av PFAS.

Ved NILU har Martin Schlabach vært hovedansvarlig for de kjemiske analysene av kvikksølv, cVMS, PCB og PBDE, sammen med Nicholas Warner som har hatt et særskilt ansvar for analysene av cVMS.

Ved Miljødirektoratet har sjefingeniør Eivind Farnen vært prosjektansvarlig. Prosjektleder og hovedansvarlig for rapporteringen har vært Eirik Fjeld.

Rapportens oppbygning følger i store trekk undersøkelsen fra 2014. Vi har valgt å gjengi deler av det felles bakgrunnsstoffet og sammenlikningsgrunnlaget for å unngå unødige henvisninger til foregående rapport og således bedre rapportens lesbarhet.

En stor takk rettes til alle medarbeidere og involverte for et godt samarbeid.

3. Materiale og metoder

3.1 Beskrivelse av innsjøene

Undersøkelsen er primært utført i innsjøene Mjøsa, Randsfjorden og Femunden (heretter også omtalt som hovedsjøene (Figur 1, Tabell 1) men et supplerende prøver av abbor er hentet fra Tyrifjorden og Vansjø. Innsjøene, med unntak av Vansjø, er store og dype fjordsjøer, men er ulike når det gjelder næringsnett og menneskelig påvirkning.

Mjøsa er Norges største innsjø, med et rikt fiskesamfunn med 20 arter. Den har et veldefinert pelagisk næringsnett med ørret (*Salmo trutta*) som toppredator, krøkle (*Osmerus eperlanus*) og lågåsild (*Coregonus albula*) som viktigste planktivore fisk, og et invertebratsamfunn av pelagiske krepsdyr bestående av vannlopper (*Cladocera*), hoppekreps (*Copepoda*) og pungreken istidskreps (*Mysis relicta*, heretter kalt *Mysis*). *Mysis* er en viktig art i det pelagiske næringsnettet, da den er en rovform som spiser annet zooplankton og ellers er et viktig byttedyr for krøkle. Artsmangfoldet i Mjøsa gjør at det pelagiske næringsnettet her ender opp med et høyere trofisk nivå for topp-predatoren ørret enn for de andre undersøkte innsjøene. Mjøsa er resipient for avløpsvann fra kommunale renseanlegg som har en samlet belastning fra en befolkning tilsvarende 200 000 personekvivalenter (PE), i tillegg mottar de avrenning fra industri og urbane områder. Innsjøen mottar også avrenning fra de omkringliggende landbruksområdene.

Randsfjorden er Norges fjerde største innsjø. Fiskesamfunnet med sine 11 arter er ikke like rikt som i Mjøsa, og de menneskelige påvirkningen er mindre med tanke på lokale kilder for miljøgifter. Toppredatorene i det pelagiske næringsnettet er ørret og røye (*Salvelinus alpinus*), de planktivore fiskeartene er i første rekke krøkle og sik (*Coregonus lavaretus*). I motsetning til Mjøsa mangler det pelagiske invertebratsamfunnet istidskrepsen *Mysis*, og den pelagiske næringskjeden er derfor noe kortere enn i Mjøsa. Innsjøen er resipient for avløpsvann fra kommunale renseanlegg tilsvarende omlag 30 000 PE.

Femunden er Norges tredje største innsjø, og store deler av sjøen og dens nedbørfelt ligger i et ubebodd eller svært tynt befolket område. Fiskesamfunnet består av seks arter, hvorav sik, røye og ørret finnes i det pelagiske fiskesamfunnet. I likhet med Randsfjorden mangler det pelagiske invertebratsamfunnet istidskrepsen *M. relicta*. Innsjøen mottar ikke noen direkte avrenning fra kommunale renseanlegg, da renseanlegget ved Elgå (dimensjonert for 200 PE) er et infiltrasjonsanlegg med avrenning til sandholdig grunn.

Tyrifjorden er Norges femte største innsjø. Den har 13 arter i sitt fiskesamfunn, og det pelagiske samfunnet domineres av krøkle og sik, med en fåtallig ørretbestand som toppredator. Istidskrepsen *Mysis* finnes ikke i det pelagiske invertebratsamfunnet. Innsjøen brukes som resipient for flere renseanlegg og avløp fra spredt bebyggelse, industri og jordbruk (PE fra renseanlegg er ikke kjent).

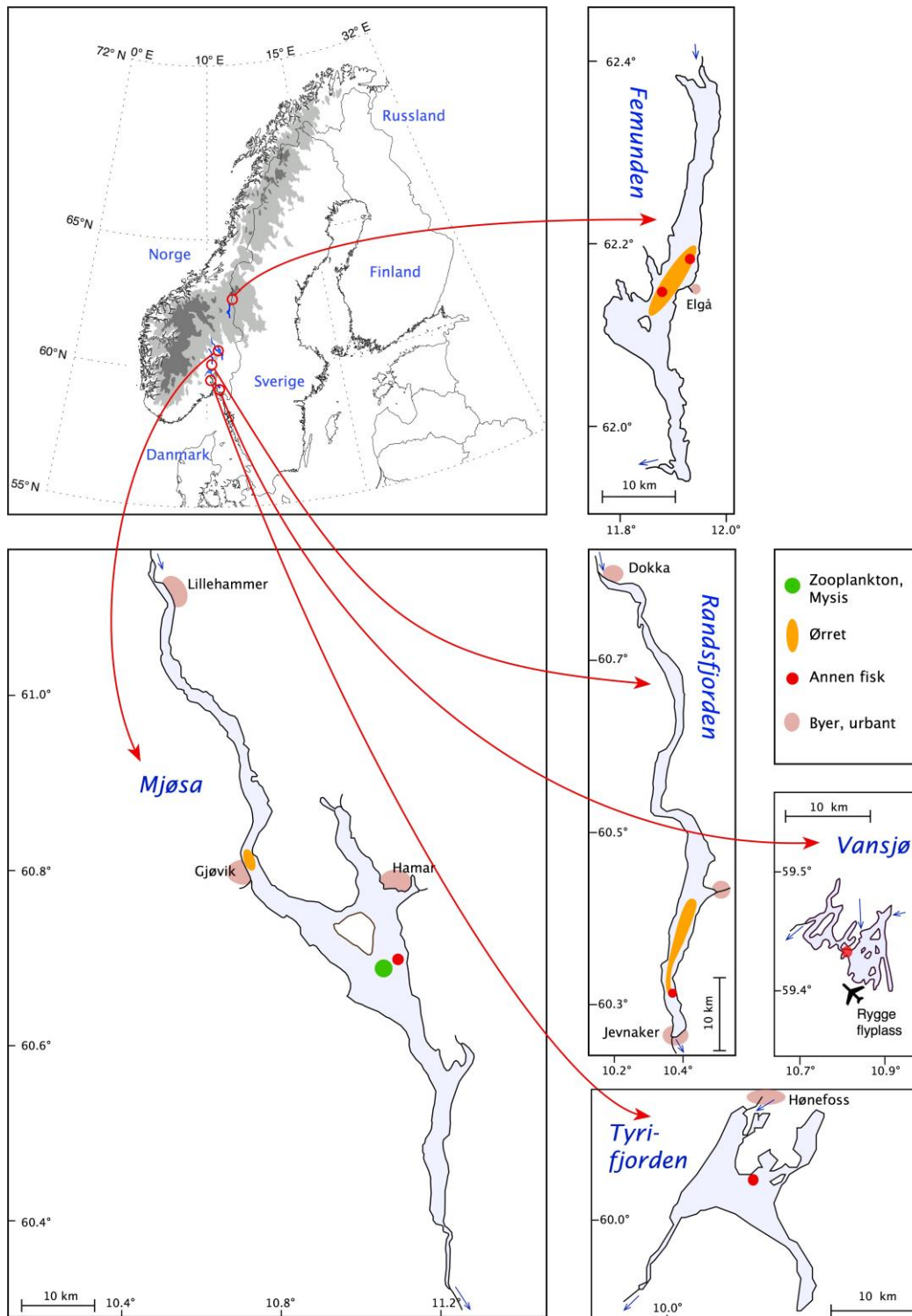
Vansjø er Norges 35. største innsjø og er en del av Mossevasdraget som strekker seg fra Østmarka i Oslo i Nord og til raet gjennom Østfold i sør. Innsjøen har et rikt fiskesamfunn, med 17 arter hvor planktonspisende karpefisk som mort, brasme og laue dominerer det

pelagiske fiskesamfunnet. Innsjøen er resipient for flere renseanlegg og avløp fra spredt bebyggelse, industri og jordbruk (PE fra renseanlegg er ikke kjent). Vassdraget er sterkt belastet med næringssalter som har landbruksavrenning som viktigste kilde. Vansjø er derfor en svært eutrof innsjø. Sørvest for innsjøen ligger Rygge flyplass, som har vært kilde for avrenning av perfluoreerte alkylerte substanser (PFAS) fra brannøvingsfelt (Forsvarsbygg Futura 2014, 2015).

Tabell 1. Informasjon om innsjøene med i undersøkelsen. PE: avrenning fra befolkning i personekvivalenter, beregnet ut fra kart med avrenningsdata fra kommunale renseanlegg for de ulike regionene (kilde: Miljødirektoratet).

Attributter	Mjøsa	Randsfjorden	Femunden	Tyrifjorden	Vansjø
Koordinater UTM 33: Grader:	E: 282000; N: 6746114 60,79 °N 10,10 °E	E: 244543; N: 6717603 61,51 °N 10,35 °E	E: 338500; N: 6898700 62,19 °N 11,90 °E	E: 235062; N: 6663017 60,02 °N 10,25 °E	E: 263080 N: 6591490 59,40 °N 10,83 °E
Volum (km ³)	65	7,3	6	13,1	0,264
Areal (km ²)	369	134	203	137	35,6
Største dyp (m)	453	120	153	295	37
Nedbørfelt (km ²)	17 251	3 665	1 790	9 808	331
PE	206000	28 500	200*	-	-

*Elgå rensepark, utslipp til grunn/sandfang



Figur 1. Kart over de undersøkte innsjøene Mjøsa, Randsfjorden, Femunden, Tyri-fjorden og Vansjø. Områdene hvor fisk, zooplankton og Mysis er samlet inn er markert.

3.2 Prøvetaking av fisk og zooplankton

Innsamling og prøvetaking av biologisk materiale fulgte retningslinjene i Miljøprøvebankens prosedyrer for ferskvannsfisk (Miljøprøvebanken 2013). Det innebærer at personell skal unngå bruk av personlige pleieprodukter, eventuelt kun bruke godkjente produkter, i ett døgn forut for prøvetaking. Under fangst, seinere håndtering og prøvetaking skal fisken ikke komme i kontakt med potensielt kontaminerende flater eller stoffer. Bruk av engangs-hansker (nitril-gummi) skal benyttes såfremt praktisk mulig. Fisken skal oppbevares i kasser kledd med ren aluminiumsfolie. Tradisjonelle fiskekasser i ekspandert polystyren (EPS) skal unngås på grunn av faren for kontaminering av flammehemmere.

Fisken ble fanget i august og september, med unntak av noen individer av ørret fra Randsfjorden som ble fisket i juli. Etter innsamling ble den emballert i ren aluminiumsfolie, pakket ned i rene polyetylenposer og oppbevart kjølig ($\approx 4\text{ }^{\circ}\text{C}$), eventuelt nedfrost ($-20\text{ }^{\circ}\text{C}$), inntil uttak av prøver.

Uttak av fiskeprøver ble gjort ute i ikke-urbane omgivelser for å unngå kontaminering av cVMS fra innendørs kilder. Alle flater som fisken kunne komme i kontakt med ble dekket av aluminiumsfolie, rengjort med metanol og aceton (HPLC grade). Fiskens lengde, vekt, kjønn og modningsstadium ble registret ved prøvetakingen. All redskap benyttet i prøvetakingen var i stål, rengjort i henhold til Miljøprøvebankens rengjøringsprosedyrer (maskinvask, skylling i Milli-Q vann, aceton og metanol). For ørret og sik ble det dissekert ut ca. 20 - 100 g muskelfillet fra hvert individ, av dette ble ca. 2 g overført til egne prøverør som skulle analyseres for cVMS. For små krøkle måtte materiale fra flere individer benyttes for å få tilstrekkelig mengde per prøve (ca. 20 - 25 g). For abbor fra Tyrifjorden og Vansjø ble det laget blandprøver av muskel, hvor hver prøve besto av materiale fra 5 fisk av mest mulig lik størrelse. I tillegg ble det dissekert ut leverprøver fra all fisk for analyser av PFAS. Alle prøvene ble oppbevart på glass forseglet med aluminiumsfolie under lokket, med unntak av prøver til PFAS-analyser som ble oppbevart på PE-plastrør. Glassene og aluminiumsfolien var renset ved gløding til $500\text{ }^{\circ}\text{C}$. Prøvene ble oppbevart nedfrost ($-20\text{ }^{\circ}\text{C}$) fram til analyse.

Zooplankton (epilimnisk) fra Mjøsa ble samlet inn i august med en zooplanktonhåv i nylonduk (maskestørrelse $500\text{ }\mu\text{m}$), påmontert en oppsamlingskopp med sil (begge i messing). Det epilimniske zooplanktonet i Mjøsa besto i hovedsak av herbivore former, dominert av vannlopper (*Cladocera*) av artene *Daphnia galeata* og *Bosmina longispina*, samt hoppekrepsen *Eudiaptomus gracilis*. Aggregater av kiselalger og individer av gelekreps (*Holopedium gibberum*; en vannloppe med en stor, gelatinøs og vannholdig kappe) ble silt fra prøvene om bord i båten. Gelekreps er i mindre grad predatert på av fisk, da den store gelatinøse kappen fungerer som en anti-predasjonstilpasning. Kun naturlig overflatevann ble benyttet under silingen. Zooplankton-prøvene ble deretter overført til samme type prøveglass og -rør som fiskeprøvene og oppbevart nedfrost fram til analyse ($-20\text{ }^{\circ}\text{C}$). Alt utstyr som var i direkte kontakt med zooplanktonprøvene var renset med metanol og aceton (HPLC grade).

3.3 Analysemetoder

3.3.1 Kvikksølv, Hg

Kvikksølv ble analysert av NILU etter en akkreditert, intern metode (NILU-U-65). En prøvemengde på ca. 0,6 gram ble veid inn og tilsatt fortyntet supra pure salpetersyre. Prøven ble ekstrahert ved bruk av UltraClave som er en mikrobølgebasert opplutningsenhet. Etter ekstraksjon ble prøven fortyntet med ionebyttet vann til 50 ml. Prøven tilsettes supra pure saltsyre, før den analyseres med hensyn på Hg. Innholdet av kvikksølv er bestemt ved bruk av et induktivt koplet plasma massespektrometer (ICP-MS) av typen Agilent 7700x. Indium benyttes som internstandard.

3.3.2 Sykliske volatile metylerte siloksaner, cVMS

Prøver ble analysert av NILU ved GC-MS under samme instrumentelle betingelser som publisert av Warner et al. (2010, 2013). En sammenfatning av metoden gis i de understående avsnitt.

Blindprøver («blanks») for prøvetaking av siloksaner ble preparert ved å pakke inn 2 eller 3 gram XAD-2 sorbent i filterposer av polypropylen/cellulose som deretter ble rengjort ved ultralydbehandling i heksan for 30 minutter. Brukt heksan ble fjernet og erstattet med diklormetan, og blindprøvene ble ultralydbehandlet på nytt i ytterligere 30 minutter. Etter ultralydbehandling ble blindprøvene tørket i et rent-kabinett utstyrt med et HEPA- og kullfilter for å hindre forurensning fra inneluft. Etter tørking ble et utvalg blindprøver plassert i forseglede rør av polypropylen og sendt til NIVA for å bli eksponert under feltarbeid og prøvetaking.

Flere blindprøver ble holdt tilbake på NILUs laboratorier og analysert for å bestemme referansekonsentrasjoner av siloksaner før bruk for prøvetaking. Sammenligning av konsentrasjoner mellom referanse (ikke eksponert i felt) og eksponerte blindprøver ble gjort for å vurdere om feltforurensning oppsto.

Alle prøver ble ekstrahert i et rent-skap for å hindre forurensning fra inneluft. Alt laboratoriepersonell involvert i ekstraksjonen måtte unngå bruk av personlige pleieprodukter (i.e., hudpleie, hår krem/produkter, deodorant).

Prøvene ble ekstrahert i 3:1 heksan : acetonitril med ultralydbehandling (15 min.) og etterpå ristet i én time. Prøvene ble deretter sentrifugert ved 2500 rpm og en delmengde av heksan ble overført til en GC-ampulle, etterfulgt av tilsetning av tris-(trimetylsiloksy)-silan som en utvinningsstandard.

Metodedeteksjongrensene (MDL) har vist seg å være ideelle for analyse av siloksaner i miljøprøver, da de korrigerer for variasjoner introdusert av den ekstraherte matriksen (Warner et al., 2013). På grunn av de forskjellige matrikser som er undersøkt i dette studiet, innebar det imidlertid logistiske utfordringer å bestemme MDL for alle matrikser. Vi benyttet derfor kvantifiseringsgrenser (LOQ) satt lik gjennomsnittet pluss $10 \times$ standardavviket for blindprøver som konservativ påvisningsgrense ved rapportering av prøvenes konsentrasjon.

3.3.3 Polyklorerte bifenyler og polybromerte difenyletere, PCB og PBDE

Disse forbindelsene ble analysert av NILU, og publiserte referanser for metodene kan finnes i Waugh et al. (2014), Bengtson Nash et al. (2013) og Nash et al. (2008). En sammenfatning av metodene gis i de understående avsnitt.

Prøveforberedelse: Ca. 4 - 5 g biologisk prøvemateriale blir innveid og homogenisert med omtrent 50 g vannfri natriumsulfat til klumpfri pulver. Prøvene blir fylt på elueringskolonne, tilsatt en blanding ¹³C-merkede PCB- og PBDE-kongenerer og eluert med sykloheksan/etylacetat (1/1).

Opprensing av prøver: Ekstraktet blir oppkonsentrert og renses på en 6 g silikakolonne (1 x), behandling med konsentrert svovelsyre (1-6 x) og ny rensing på en 6 g silikakolonne. Det rensede ekstraktet blir oppkonsentrert til et sluttvolum på ca. 100 µL og tilsatt gjenvinningsstandard.

Kvantifisering: PCB- og PBDE-kongenerene blir bestemt og kvantifisert i 2 separate GC/HRMS-analyser. De tilsatte ¹³C-merkede isomerene brukes som intern standarder for utvalgte grupper. I tillegg til dette, blir gjenvinningen av de tilsatte isomere beregnet.

Kvalitetssikring: Følgende forhold må være oppfylt for en godkjent identifisering og kvantifisering av analytten: 1. korrekt retensjonstid, 2. korrekt isotopratio, 3. signal/støy > 3:1, 4. korrekt gjenvinning av intern standard, og 5. akseptert metodeblindprøve for denne prøveserien.

PCB-analysene er akkreditert i henhold til NS-EN ISO/IEC 17025 (2005), mens PBDE-analysene følger eksakt de samme prinsipper.

LOQ var satt til 0,01 ng/g våtvekt for de enkelte kongenerene av PBDE og PCB, med unntak av BDE-209 hvor den var i området 0,01-0,1 ng/g våtvekt.

En oversikt over de analyserte PCB- og PBDE-kongenerene er gitt i Vedlegg 2.

3.3.4 Perfluorerte alkylforbindelser, PFAS

Disse forbindelsene ble analysert av NIVA, og analysemetoden er som beskrevet av Verreault et al. (2007) med små justeringer. Biota prøver ble homogenisert og 2 g veid ut. Etter tilsetning av interne standarder ble prøven ekstrahert 2 ganger med 4 mL acetonitril. En mL av acetonitril ekstraktet ble fortynnet med 0.5 mL 2,6 mM ammonium acetate (aq) og 75 µL eddiksyre (kons.) før aktivt kull ble tilsatt. Etter miksing ble prøven sentrifugert med et (Costar) 0,2 µm nylon Spin-X filter.

UPLC-ToF MS analyse: PFAS ble separert på en (Waters) Acquity BEH C8 kolonne (100 x 2 mm x 1,7 µm) med vann (5,2 mM ammonium acetate) og acetonitril som mobilfase.

En oversikt over forbindelsene og deres kvantifikasjonsgrenser er gitt i Vedlegg 2.

3.3.5 Stabile N- og C-isotoper, $\delta^{15}\text{N}$ og $\delta^{13}\text{C}$

Forholdet mellom de stabile nitrogen-isotopene ^{14}N og ^{15}N ($\delta^{15}\text{N}$) og karbon-isotopene ^{12}C og ^{13}C ($\delta^{13}\text{C}$), ble bestemt ved Institutt for energiteknikk (IFE, Kjeller). Disse forholdene brukes henholdsvis til å anslå organismenes trofiske nivå (plass i næringsnett) og deres dominante karbonkilder (Vander Zanden and Rasmussen 2001; Post 2002).

Analysene ble gjort etter standard protokoller, og verken lipider eller karbonater ble fjernet eller ekstrahert fra prøvene før analyse. Metoden har i korthet følgende trinn: forbrenning i element analysator, reduksjon av NO_x i Cu-ovn, separering av N_2 og CO_2 på GC-kolonne og bestemmelse av ^{13}C og ^{15}N på IRMS; Isotope Ratio Mass Spectrometer.

3.4 Beregning av trofisk magnifisering

Trofisk magnifikasjonsfaktor (TMF) er definert som e^b , hvor b er stigningskoeffisienten til regresjonen mellom den \log_e -transformerte konsentrasjonen (lipidnormalisert) av en kjemisk forbindelse (C_{LW}) og organismenes relative trofiske nivå (TL):

Omregningen fra $\delta^{15}\text{N}$ til trofisk nivå innebærer blant annet en baselinjustering for hver sjø og år, hvor $\delta^{15}\text{N}$ for primærkonsumentene subtraheres fra konsumentenes $\delta^{15}\text{N}$:

$$\text{Eq. 1. } TL = [(\delta^{15}\text{N}_c - \delta^{15}\text{N}_{\text{pc}}) / \Delta^{15}\text{N}] + 2$$

Her er TL trofisk nivå til konsumentene, $\delta^{15}\text{N}_c$ og $\delta^{15}\text{N}_{\text{pc}}$ er N-isotopforholdet til henholdsvis konsumenter og primærkonsumenter, og $\Delta^{15}\text{N}$ er anrikningsfaktoren på 3,4 ‰ per trofisk nivå (Vander Zanden et al. 1997, Vander Zanden and Rasmussen 1999).

Forholdet mellom konsentrasjonen av en kontaminant (C_{LW} , \log_e -transformert) og trofisk nivå (TL) beskrives av funksjonen:

$$\text{Eq. 2. } \ln C_{\text{LW}} = a + b \cdot TL$$

En trofisk magnifisering påvises når regresjons-koeffisienten b er signifikant større enn 0. Den trofiske magnifikasjonsfaktoren TMF , som er definert som e^{TL} , blir da følgelig større enn 1.

Dersom man ikke kan baselinjustere $\delta^{15}\text{N}_{\text{pc}}$ til konsumentene i beregningen av trofisk nivå, så kan man beregne et relativt trofisk nivå (TL_{rel}) til organismene ved kun å dividere med N-anrikningsfaktoren:

$$\text{Eq. 3. } TL_{\text{rel}} = \delta^{15}\text{N}_c / \Delta^{15}\text{N}$$

Ved å bruke relativt trofisk nivå framfor absolutt endres ikke den estimerte trofiske magnifikasjonsfaktoren (TMF), kun regresjonenes konstantledd. TL_{rel} kan derfor brukes til å bestemme trofisk avstand mellom organismegruppene innen en lokalitet, men kan ikke brukes til å fastslå deres absolutte posisjon eller til å sammenlikne trofisk nivå til organismer fra lokaliteter med ulik $\delta^{15}\text{N}$ -baselinje. Det innebærer at vi ikke direkte kan sammenlikne de trofiske nivåene mellom innsjøene i denne undersøkelsen.

3.5 Kort om de ulike miljøgiftene

3.5.1 Kvikksølv

Kvikksølv i fisk foreligger i all hovedsak som den svært giftige forbindelsen metylkvikksølv. Metylkvikksølv er en farlig nervegift, og særlig synes embryonalutviklingen av sentralnervesystemet til fostre å være følsomme for eksponering – med effekter på kognitiv og psykomotorisk utvikling i senere barneår (Grandjean et al. 1997; Grandjean et al. 1998). Det er strenge restriksjoner på bruk av kvikksølv i Norge, og vi har i dag et generelt forbud mot kvikksølv i produkter og det er strenge krav til utslipp og rensetiltak for å redusere utslipp av kvikksølv fra industrien. Norge underskrev i 2013 Minamatakonvensjonen (UNEP 2013), som er en internasjonal avtale som regulerer bruk og utslipp av kvikksølv.

Kildene til kvikksølvforurensninger i ferskvannsfisk i Norden domineres i dag av langtransporterte atmosfæriske avsetninger (Munthe et al. 2007). Tidligere var lokale kilder, særlig fra treforedlings-industri viktige, og kunne føre til høye konsentrasjoner i fisk. Eksempler på slike lokale historiske tilførsler kan finnes i Mjøsa (Underdal 1970a, Sandlund et al. 1981), Tyrifjorden (Berge et al. 1983, Skurdal et al. 1992) og Drammensvassdraget (Underdal 1970b, Fjeld et al. 1999). Det er derfor av interesse å følge kvikksølvnivåene i storørretbestandene i de undersøkte innsjøene med tanke på å eventuelle endringer som kan ha skjedd i løpet av de siste to ti-årene.

3.5.2 Sykliske (flyktige) metylerte siloksaner, cVMS

De tre vanligste sykliske siloksaner (cVMS), D4, D5 og D6, er under utredning i EU for vurdering av deres miljøfarlige egenskaper. ECHAs medlemsstatskomite konkluderte i 2015 at D4 og D5 oppfyller kriteriene i REACH for svært persistente (vP) og svært bioakkumulerende (vB) stoffer¹, og deres komite for risikovurderinger støttet nylig i 2016 et forslag om å legge store begrensninger på bruken av stoffene i kosmetikk og personlige pleieprodukter².

Stoffene er mye brukt i kosmetikk og personlige pleieprodukter, rengjøringsmidler, bilpleiemidler og andre forbrukerprodukter (Huse og Aas-Aune 2009). De er flyktige og spres med både vann og luft. I vann binder de seg lett til partikler og sedimenter. Det er særlig deres mulige langtidseffekter i miljøet som er av bekymring. D4 er også klassifisert som reproduksjonsskadelig (mistenkes for å kunne skade forplantningsevnen). Det er et nasjonalt mål å stanse utslippene av siloksantypene D4 og D5 innen 2020. Det er vist at både D5 og D6 biomagnifiserer i akvatiske næringskjeder (Borgå et al. 2012 og 2013b, Macgoldrick et al. 2014; Jia et al. 2015).

3.5.3 Polyklorerte bifenyler, PCB

PCB har mange alvorlige effekter på helse- og miljø. De kan virke kreftfremkallende, forstyrre immunsystemet og nervesystemet, og ha endokrine og reproduktive effekter. Ny bruk av PCB ble forbudt i 1980, men PCB finnes fortsatt i en del gamle produkter og materialer, og kan derfor havne i miljøet. Utlekking kan også skje fra forurenset grunn og sedimenter. Norge

¹ <http://echa.europa.eu/about-us/who-we-are/member-state-committee/opinions-of-the-msc-adopted-under-specific-echa-s-executive-director-requests>

² http://echa.europa.eu/view-article/-/journal_content/title/committee-for-risk-assessment-concludes-on-restricting-d4-and-d5

tilføres i tillegg PCB gjennom hav- og luftstrømmer. De er svært stabile i miljøet, og på grunn av sin høye fettløselighet kan de hope seg opp i organismene. I denne undersøkelsen bruker vi PCB-er også som referansesubstanser når biomagnifisering av andre nye miljøgifter skal undersøkes. Mjøsa er en innsjø hvor lokale PCB-tilførsler tidligere førte til en opphopning i både sedimenter og fisk (Kjellberg og Løvik 2000, Fjeld et al. 2013).

3.5.4 Polybromerte difenyletere, PBDE

PBDE er en gruppe forbindelser som har vært benyttet/benyttes som flammehemmere i en rekke ulike produkter som tekstiler, plast, møbler, bygningsmaterialer og elektronikk. De er i likhet med PCB svært stabile og fettløselige, og hoper seg opp i organismene. PBDE har hormonforstyrrende og nevrotoksiske egenskaper. Norge har innført forbud mot bruk, import og produksjon av PBDEene. To av de tidligere viktige kommersielle produktene av PBDE (penta-BDE og okta-BDE) er forbudt i EU og globalt i henhold til den internasjonale miljøavtalen Stockholm-konvensjonen. Deca-BDE er ført opp på kandidatlisten under REACH på grunn av stoffets persistente, bioakkumulerende og toksiske egenskaper. EUs Kjemikaliebyrå (ECHA) har i samarbeid med norske myndigheter fremmet et forslag om forbud mot deca-BDE i EU³, og Norge nominerte i 2013 deca-BDE til Stockholmkonvensjonen⁴.

I Mjøsa ble det på begynnelsen av 2000-tallet oppdaget at fisken hadde svært høye konsentrasjoner av PBDE (Fjeld et al. 2001). De lokale industriutslippene ble raskt identifisert og stanset, og konsentrasjonene i fisk har deretter blitt redusert til omlag en femtedel av de høyeste nivåene på 2000-tallet (Fjeld et al. 2013).

3.5.5 Perfluorerte alkylstoffer, PFAS

Dette er stoffer som på grunn av sine vann-, fett- og smussavstøtende egenskaper brukes i impregneringsmidler, på pustende vannavstøtende tekstiler og klær, som slipp-belegg på stekepanner, som beskyttende belegg/film i galvaniseringsbadene i metallindustrien mm. De har også vært brukt i brannskum ved flyplasser og i off-shore virksomhet.

De er ekstremt stabile i miljøet, kan spres globalt med vind- og havstrømmer, kan oppkonsentreres i næringskjeder, og flere av dem har eller mistenkes å ha toksiske egenskaper. De kan virke kreftfremkallende, ha reproduksjonsskadelige effekter og påvirke hormonsystemer og lipidomsetningen i organismer. På sikt utgjør de derfor en miljøtrussel. De tidligere mest brukte og antatt mest skadelige av disse forbindelsene er PFOS og PFOA. PFOS er forbudt i Norge og EU i henhold til reguleringene i Stockholmkonvensjonen. PFOA er ført opp på kandidatlisten under REACH fordi stoffet er reproduksjonsskadelig og fordi det er et PBT-stoff (persistent, bioakkumulerende og toksisk). PFOA er forbudt i forbrukerprodukter i Norge og det arbeides med et forslag til forbud i EU. PFOA og PFOA-relaterte forbindelser ble nominert til global regulering i Stockholmkonvensjonen i 2015. De langkjedede perfluorerte karboksylsyrene med kjedelengde C11 - C14 er ført opp på kandidatlisten under REACH fordi stoffene er svært persistente (vP) og svært bioakkumulerende (vB).

³ http://echa.europa.eu/en/view-article/-/journal_content/title/seac-concludes-on-bisphenol-a-decabde-and-pfoa-restrictions-and-finalises-two-opinions-for-authorisation

⁴ <http://chm.pops.int/Convention/POPsReviewCommittee/Chemicals/tabid/243/Default.aspx>

4. Resultater og diskusjon

4.1 Fiskestørrelse, trofiske nivåer og fett

Individstørrelse, trofisk nivå ($\delta^{15}N$), C-isotoper ($\delta^{13}C$) og andelen fett i prøvene er viktige karakteristika for forståelsen av biomagnifisering av miljøgifter i akvatisk biota. Vi har derfor sammenfattet denne informasjonen ved å beregne middelveier i de ulike organismegruppene i de ulike innsjøene (Tabell 2), samt visualisere samvariasjonen mellom dem ved hjelp av spredningsplott (Figur 2).

Ørreten fra de tre hovedinnsjøene, Mjøsa, Randsfjorden og Femunden, varierte i middelvekt fra omlag 0,8 kg i Femunden og til 5,4 kg i Mjøsa. Krøkla i Mjøsa var noe større enn den i Randsfjorden, og deres middelvekter var henholdsvis 33 og 10 g. Siken fra Femunden hadde middelvekt på 490 g, mens abbor fra Tyrifjorden og Vansjø hadde middelvekter på 126 og 204 g.

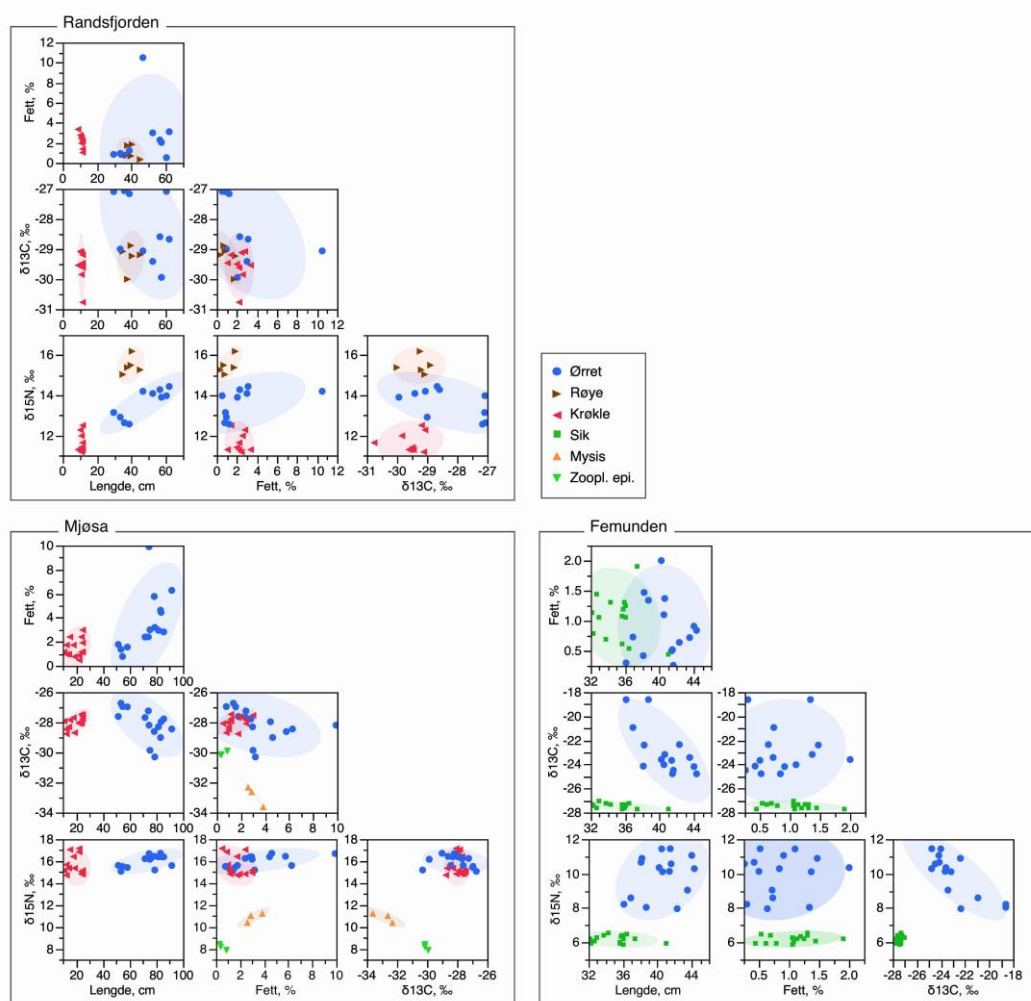
Laksefisk har generelt et mer fettrikt muskelvev enn piggfinnefisk som abbor, og i laksefiskene ørret, krøkle, røye og sik varierte fettinnholdet mellom 0,4 - 3,6 %, høyest hos ørret og lavest hos sik og røye. I Mjøsa og Randsfjorden var det tydelig at fettinnholdet i ørret steg med fiskens størrelse. Prøvene av epilimnisk zooplankton fra Mjøsa hadde et markert lavere fettinnhold enn prøvene av Mysis (3,1 %).

$\delta^{15}N$ antas å stige med omlag 3,4 ‰ (poeng) for hvert trofisk nivå (steg i næringskjeden). I Mjøsa var spredningen i midlere $\delta^{15}N$ -verdier fra zooplankton og til ørret 8,15 - 16,01 ‰, dvs. 7,85 ‰-poeng eller omlag 2,3 trofiske nivå. Differansen i $\delta^{15}N$ -verdier mellom krøkle og ørret fra Mjøsa var imidlertid liten (0,39 ‰-poeng), noe som indikerer at krøkla i den undersøkte størrelsesgruppen hadde utviklet en kannibalistisk atferd. For Randsfjorden viste $\delta^{15}N$ -verdiene at røya (15,49 ‰) sto på et høyere trofisk nivå enn ørret (13,61 ‰). Krøkla, som her er en viktig byttefisk for disse predatorer, sto omlag 1,1 trofisk nivå lavere enn røya. I Femunden viste $\delta^{15}N$ -verdiene at ørret (9,92 ‰) befant seg på omlag 1,1 trofisk nivå høyere enn sik (6,19 ‰). Med unntak av ørret fra Randsfjorden, kunne det ikke spores noen tendens til at $\delta^{15}N$ steg med fiskens størrelse. Dette er å forvente dersom fiskens diett ikke varierer innenfor den analyserte størrelsesgruppen. For ørret fra Randsfjorden skyldes økningen i $\delta^{15}N$ etter all sannsynlighet at en gruppe mindre individer ikke var rene fiskespisere.

Da det i liten grad skjer noen fraksjonering av C-isotoper med trofisk nivå, vil $\delta^{13}C$ -signaturen til organismene i første rekke avspeile deres karbonkilder (France and Peters 1997). Pelagisk drevne næringskjeder har mer negative $\delta^{13}C$ -verdier enn litoralt og terrestrisk drevne kjeder. Dette ser vi et tydelig eksempel på i Mjøsa hvor zooplankton hadde en midlere $\delta^{13}C$ -verdi på ca. -30 ‰, mens krøkle og ørret hadde verdier på -28 ‰ og en total variasjonsbredde på 2 - 4 ‰ (poeng). I Femunden hadde siken en midlere $\delta^{13}C$ -verdi på omlag -27 ‰, mens ørreten hadde en midlere $\delta^{13}C$ -verdi på omlag -23 ‰. Dette indikerer at siken i større grad var knyttet til det pelagiske næringsnett enn ørret.

Tabell 2. Lengde, vekt, fett og forholdet mellom stabile N- og C-isotoper ($\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{15}\text{N}$, for prøver av fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2015. Middelerverdi (\bar{x}), standard avvik (SD) og antall prøver (n) er gitt

Lokalitet	Art		Vekt, g	Lengde, cm	Fett, %	$\delta^{13}\text{C}$, ‰	$\delta^{15}\text{N}$, ‰
Mjøsa	Zoopl., n = 3	\bar{x}			0,5	-30,08	8,15
		SD			0,3	0,12	0,27
	Mysis, n = 3	\bar{x}			3,1	-32,85	10,89
		SD			0,6	0,67	0,44
Krøkle, n = 15	\bar{x}	62,0	19,6	1,5	-28,03	15,62	
	SD	12,7	5,2	0,8	0,42	0,86	
Ørret, n = 15	\bar{x}	5395	73,0	3,6	-28,11	16,01	
	SD	2590	12,7	2,4	1,03	0,55	
Randsfjorden	Krøkle, n = 9	\bar{x}	10,0	10,7	2,2	-29,57	11,65
		SD	0,7	2,0	0,7	0,52	0,50
	Røye, n = 5	\bar{x}	644	39,5	1,1	-29,28	15,49
		SD	153	39,5	0,7	0,42	0,43
Ørret, n = 10	\bar{x}	1422	47,3	2,5	-28,31	13,61	
	SD	1344	12,1	3,0	1,11	0,72	
Femunden	Sik, n = 15	\bar{x}	491	35,5	1,1	-27,44	6,19
		SD	131	2,3	0,4	0,21	0,23
Ørret, n: 15	\bar{x}	760	40,5	0,9	-22,87	9,92	
	SD	144	2,5	0,5	2,01	1,23	
Vansjø	Abbor, n = 5	\bar{x}	126	20,2	0,2	-28,58	15,06
		SD	114	4,9	0,1	0,53	0,68
Tyrifjorden	Abbor, n = 5	\bar{x}	204	24,8	1,3	-19,46	12,32
		SD	112	4,4	1,0	0,45	0,18



Figur 2. Spredningsplott mellom fiskelengde, forholdet mellom stabile N- og C-isotoper ($\delta^{15}\text{N}$, $\delta^{13}\text{C}$) og fettinnholdet i prøvene innsamlet i 2015 i de tre hovedsjøene. For fisk er prøvetypen muskelvev, for zooplankton og Mysis er det helkropp. 90 % konfidensellipser er inntegnet for hver prøvetype.

4.2 Kvikksølv, Hg

Midlere konsentrasjoner av kvikksølv i muskelfilet av ørret var området 0,26 - 0,72 mg/kg våtvekt, høyest i Mjøsa og lavest i Femunden (Tabell 3). Røye fra Randsfjorden hadde også forholdsvis høyt kvikksølvinnhold, med en midlere konsentrasjon på 0,69 mg/kg. Av de 45 analyserte individene av ørret og røye hadde nær halvparten konsentrasjoner som oversteg Mattilsynets omsetningsgrense for konsum (0,5 mg/kg). Vannforskriftens EQS-verdier for biota er imidlertid satt svært lavt (0,02 mg/kg våtvekt), og samtlige fiskeprøver var høyere enn denne.

Analysen av stabile N-isotoper indikerte at ørreten fra Mjøsa og røya fra Randsfjorden var rene fiskespisere, mens det blant ørret fra Randsfjorden og Femunden var et innslag av fisk som i tillegg ernærte seg på lavere trofiske nivåer eller terrestriske organismer (disse hadde stor spredning i $\delta^{15}N$ - og $\delta^{13}C$ -verdiene, se Tabell 2). Nivåene av kvikksølv i krøkle fra Randsfjorden og sik fra Femunden, som er planktonspisende fisk, var vesentlig lavere enn hos ørret og hadde midlere konsentrasjoner på henholdsvis 0,22 og 0,14 mg/g våtvekt (Tabell 3). Krøkla fra Mjøsa tilhørte en størrelsesgruppe som utviklet en kannibalistisk atferd, og midlere konsentrasjon av kvikksølv (0,50 mg/kg våtvekt) var klart forhøyet sammenliknet med krøkla fra Randsfjorden. I zooplanktonprøvene fra Mjøsa, samlet inn fra overflatelaget av innsjøen (epilimnion), var midlere kvikksølvkonsentrasjon 0,004 mg/kg våtvekt.

Tabell 3. Kvikksølvkonsentrasjon (middelverdi, standard avvik, minimum- og maksimum-verdier) i fisk, Mysis og zooplankton, fanget i 2015. Antall prøver (n), midlere lengde og vekt av fisk er òg oppgitt.

Lokalitet	Art	n	Hg, mg/kg				Lengde, cm	Vekt, g
			middel	SD	min.	maks.		
Mjøsa	Ørret	15	0,721	0,308	0,236	1,159	73,0	5395
	Krøkle	15	0,489	0,300	0,109	0,953	19,6	62
	Mysis	3	0,012	0,001	0,011	0,013		
	Zoopl. epi.	3	0,004	0,000	0,004	0,004		
Randsfjorden	Ørret	10	0,501	0,335	0,147	1,082	47,3	1422
	Røye	5	0,692	0,122	0,564	0,845	39,5	649
	Krøkle	9	0,223	0,023	0,186	0,262	10,8	9,6
Femunden	Ørret	15	0,257	0,167	0,065	0,546	40,5	760
	Sik	15	0,143	0,019	0,098	0,166	35,2	491
Tyrifjorden	Abbor	5	0,155	0,058	0,094	0,235	24,8	204
Vansjø	Abbor	5	0,317	0,152	0,144	0,523	20,2	126

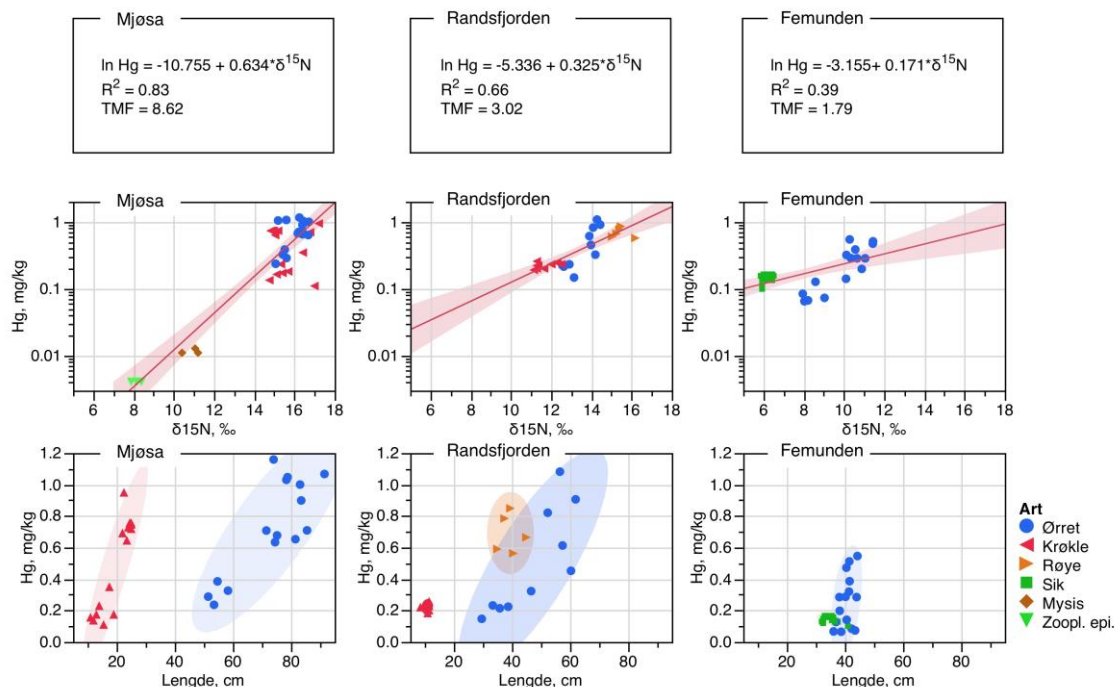
Fra Mjøsa er det gjennom de tidligere overvåkningsprogrammene velkjent at fiskespisende storørret ofte har kvikksølvkonsentrasjoner over omsetningsgrensen (Fjeld et al. 2013 og 2014). Fra de høye kvikksølvnivåene som ble registrert i 1979 og 1980, med en midlere konsentrasjon på omlag 1,4 mg/kg (lengdejustert til en fisk på 58 cm), sank konsentrasjonen markert til omlag 0,5 mg/kg i løpet av få år (middel for perioden 1982-1984, Figur 4). De høye nivåene på slutten av 1970-tallet skyldes lokale utslipp fra treforedlingsindustrien. Utover 2000-tallet sank midlere konsentrasjon jevnt til omlag 0,4 mg/kg i 2005, for så i 2006 brått øke til omlag 0,6 mg/kg (50 % økning, statistisk signifikant) (Fjeld et al. 2009), uten at vi kan

relatere denne nivåøkningen i tidsserien til noen spesielle forhold. Når vi justerer for forskjeller i lengde finner vi at nivåene har ligget stabilt rundt 0,5 - 0,6 mg/kg i perioden 2006 - 2015 (Figur 4). Basert på data fra denne perioden viser det seg at når fisken vokser seg større enn 55 cm ($\approx 1,9$ kg) vil den midlere konsentrasjonen av kvikksølv overstige Mattilsynets grense for omsetning til konsum (0,5 mg/kg).

Det ble gjort undersøkelser av kvikksølv i storørret fra Randsfjorden og Femunden i henholdsvis 1999 og 2000 og vi kan sammenlikne dagens nivåer mot disse for å se hvorvidt det har skjedd noen endringer over tid. Dette er en aktuell problemstilling sett i lys av at vi i to tidligere undersøkelser har vist at kvikksølv-konsentrasjonene i abbor og ørret fra skogssjøer i Sør-Norge har økt siden 1990-tallet (Fjeld og Rognerud 2009, Fjeld et al. 2009).

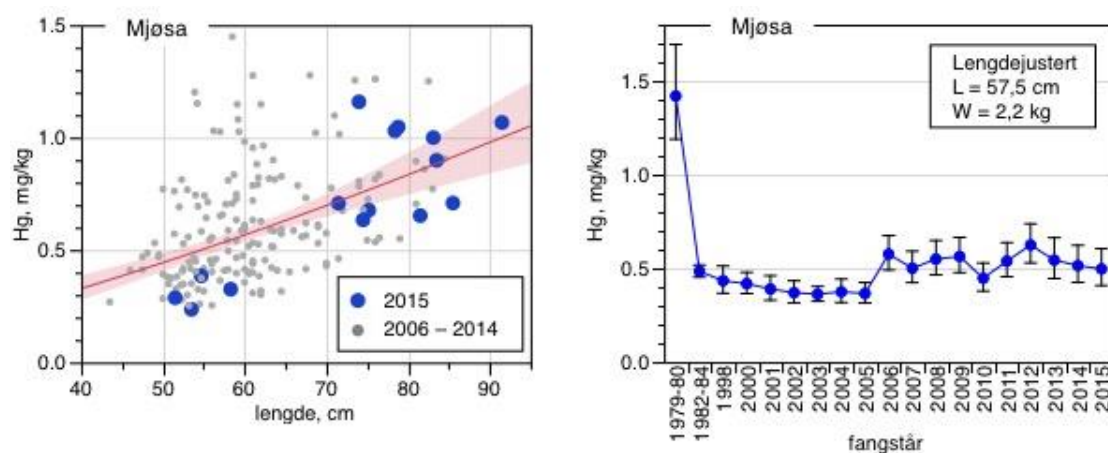
For Randsfjorden kunne en kovariansanalyse forkaste en hypotese om en signifikant endring i nivåene fra 1999 og til perioden 2013-2015 ($p = 0,09$), og de lengdejusterte (54 cm) gjennomsnitt (\pm SE) var som følger: 1999, $0,45 \pm 0,20$ mg/kg; 2013-2015, $0,68 \pm 0,08$ mg/kg. Som det framgår av Figur 3 er kvikksølvkonsentrasjonene i ørret fra Randsfjorden, fanget i 2015, noe høyere enn i Mjøsa ved samme fiskelengde (Figur 3), på tross at vi ikke kjenner noen historiske lokale utslipp til fjorden.

For Femunden syntes midlere lengdejustert (44 cm) konsentrasjon å ha sunket fra 2000 og til 2013-2015: $0,35 (\pm 0,17)$ mg/kg vs. $0,25 (\pm 0,11)$ mg/kg, men en kovariansanalyse kunne ikke påvise signifikante forskjeller ($p = 0,08$).

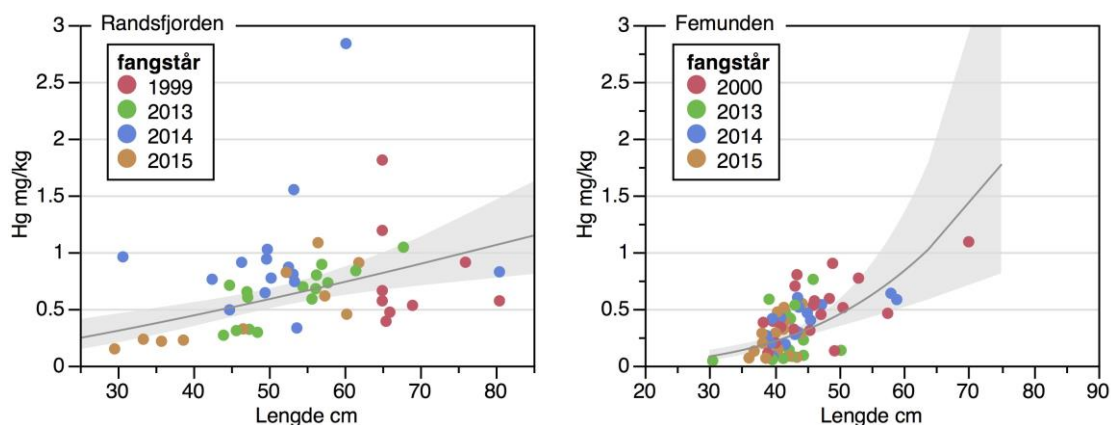


Figur 3. Kvikksølvkonsentrasjonen i fisk (muskel) og zooplankton i de tre hovedsjøene, fanget i 2015, plottet mot $\delta^{15}\text{N}$ og fiskelengde. Regresjonslinjer og 90 % konfidensellipser for de ulike innsjøene er inntegnet. I de øvre panelene er regresjonslikningene og trofisk magnifikasjonsfaktor (TMF) oppgitt.

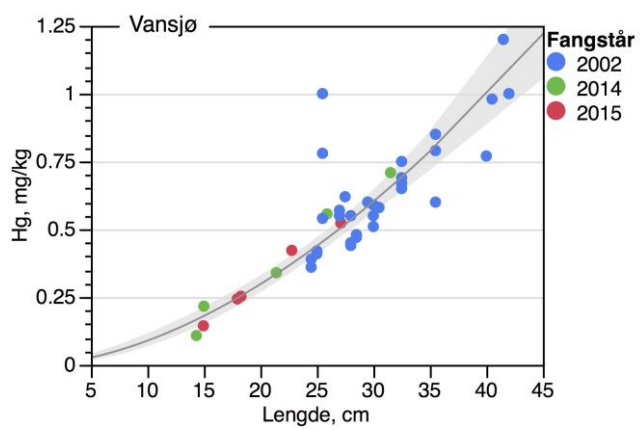
Abborprøvene fra Tyrifjorden og Vansjø hadde en midlere kvikksølvkonsentrasjon på henholdsvis 0,16 og 0,32 mg/kg hos fisk med en midlere lengde på omlag 25 og 20 cm. For Vansjø synes det ikke å ha vært noen endring i forhold til de nivåene som ble funnet i en undersøkelse utført i 2000 (Figur 5) (Lien og Brabrandt et al. 2004). For Tyrifjorden har vi ikke historiske data på kvikksølv i abbor, men det er kjent at ørreten herfra hadde betydelig forhøyede kvikksølvnivåer på 1970-tallet som følge av tidligere utslipp fra treforedlingsindustrien (Berge et al. 1993). Nivåene som vi nå finner i abbor fra Tyrifjorden synes å være noe lavere enn de vi har tidligere rapportert for abborbestander i skogsjøer i Øst-Norge, hvor det var overveiende sannsynlig at omsetningsgrensen på 0,5 mg Hg/kg ble overskredet ved en lengde på omlag 24 cm (Fjeld et al. 2009a).



Figur 4. a): Spredningsdiagram over kvikksølvkonsentrasjon versus fiskelengde for Mjøsarret fanget i perioden 2006-2015 ($n=185$). b): Lengdejustert årsmiddel av kvikksølvkonsentrasjon (med 95 % konfidensintervall) beregnet for ørret med en lengde på 57,5 cm (utvalgets geometriske gjennomsnitt, $\approx 2,2$ kg), fanget i perioden 1979-2015 ($n=561$).



Figur 5. Spredningsdiagram over kvikksølvkonsentrasjon versus fiskelengde for ørret fra Randsfjorden ($n=49$) og Femunden ($n=64$) fanget i ulike år. Regresjoner av log-transformerte konsentrasjoner på fiskelengde er inntegnet (m. 95 % konfidensbånd).



Figur 6. Forholdet mellom kvikksølvkonsentrasjon og fiskelengde hos abbor fra Vansjø (n=41), fanget i ulike år.

4.3 Sykliske flyktige metylerte siloksaner, cVMS

4.3.1 Nivåer av cVMS i 2015

Det ble analysert for siloksan-forbindelsene D4, D5 og D6 i biota i de tre hovedsjøene. I Mjøsa ble det analysert i det pelagiske næringsnett (planktoniske krepsdyr og fisk), mens det i Randsfjorden og Femunden kun ble analysert i pelagisk fisk (fiskeprøvene bestod av dorsal muskel).

Andelen kvantifiserbare analyseresultater for D4, D5 og D6 var henholdsvis 83 %, 88 % og 84 % (Tabell 4). Brutt ned på de enkelte artene/organismegruppene innen hver innsjø var det kun for prøvene fra Femunden at mindre enn 50 % av analyseresultatene var kvantifiserbare for de enkelte forbindelsene. I det følgende er alle beregninger basert på at resultater under metodens kvantifikasjonsgrenser (LOQ: 0,5 - 2,9 ng/g våtvekt) er substituert med halve grensene. Resultatene fra én ørretprøve fra Randsfjorden ble forkastet, da samtlige analyseverdier var under kvantifikasjonsgrensen, og i multivariat sammenheng sto resultatene fra denne tydelig fram som statistiske avvikere («outliers»).

Tabell 4. Antall prøver (N) analysert for cVMS-forbindelser og %-andel større eller lik kvantifikasjonsgrensene (LOQ).

Innsjø	D4		D5		D6	
	N	≥LOQ, %	N	≥LOQ, %	N	≥LOQ, %
Mjøsa	30	87%	30	93%	30	90%
Randsfjorden	23	96%	23	100%	23	96%
Femunden	6	17%	6	17%	6	17%
Totalt	59	83%	59	88%	59	84%

De høyeste konsentrasjonene av cVMS ble funnet i Mjøsa og Randsfjorden, og generelt var D5 den dominerende forbindelsen (Tabell 5, Figur 7).

I Mjøsa ble de laveste midlere konsentrasjonen av D5 funnet i zooplankton med 170 ng/g lipid (0,7 ng/g våtvekt), mens de høyeste nivåene ble funnet i krøkle med 8800 ng/g lipid (78,7 ng/g våtvekt). I Randsfjorden ble de laveste konsentrasjonene funnet i krøkle med 1100 ng/g lipid (22,6 ng/g våtvekt), men de høyeste ble funnet i røye med 5300 ng/g lipid (41,5 ng/g våtvekt). Røye i Randsfjorden står på et høyere trofisk nivå enn ørret, noe som kan ha bidratt til at disse generelt har høyere konsentrasjoner av cVMS. For Mjøsa hadde ørret og krøkle omlag samme trofiske posisjon (mange krøkler var kannibalistiske), så dette forholdet kan ikke forklare hvorfor nivåene av cVMS generelt var høyere i krøkla herfra og dessverre har vi ikke grunnlag for å spekulere videre i dette fenomenet. Vannforskriftens EQS-verdi for biota er 12 000 ng/g våtvekt, og ingen fiskeprøver overskred denne.

For D4 og D6 i zooplankton fra Mjøsa var nivåene i alle prøvene under LOQ, og estimerte middelveier var henholdsvis 150 og 75 ng/g lipid (0,6 og 0,7 ng/g våtvekt). I ørret var nivåene henholdsvis 140 og 220 ng/g lipid (2,7 og 5,2 ng/g våtvekt). For Randsfjorden ble de høyeste konsentrasjonene av disse to forbindelsene funnet i røye, med konsentrasjoner på henholdsvis 230 og 220 ng/g lipid (1,7 og 1,8 ng/g våtvekt).

Konsentrasjonene av cVMS var lavere i fisk fra Femunden enn i de to andre hovedsjøene (24 - 640 ng/g lipid eller 0,6 - 4,5 ng/g våtvekt). Nivåene var høyere i ørret enn i sik, men andelen prøver med nivåer <LOQ var stor (samtlige prøver i sik, to tredjedeler i ørret). Estimatenes av midlere nivåer herfra er derfor svært usikre, og vi kan derfor ikke kommentere dem mer spesifikt.

De høyere nivåene av cVMS i Mjøsa og Randsfjorden er som forventet ut fra tidligere undersøkelser (Borgå et al. 2012b og 2013b) og 2013 (Fjeld et al. 2014 og 2015), og avspeiler trolig betydningen av lokale tilførsler fra en relativt stor befolkning, industri og trafikk. For Femunden, som har en størrelsesmessig ubetydelig befolkning og trafikk, og ingen industri, må det forventes at lokale kilder er nær fraværende. Atmosfæriske avsetninger er her derfor trolig viktigste kilde for cVMS-forbindelser. I følge Xu og Wania (2013) er potensialet for slik atmosfærisk avsetning imidlertid vesentlig mindre for cVMS enn andre persistente organiske miljøgifter på grunn av deres flyktighet og relativt hurtige nedbrytning i atmosfæren under påvirkning av UV-stråling. Forekomsten av atmosfærisk cVMS har siden 2013 vært målt på Zeppelinstasjonen ved Ny-Ålesund, Svalbard (Nizzetto et al. 2014). Resultatene viser en sesongvariasjon, med svært forhøyede verdier i vinterhalvåret (mørketida) hvor nivåene er omlag som for PAH. Det vil si tre størrelsesordener høyere enn konsentrasjonene av andre etablerte miljøgifter, som PCB, PBDE, PFAS og klororganiske pesticider.

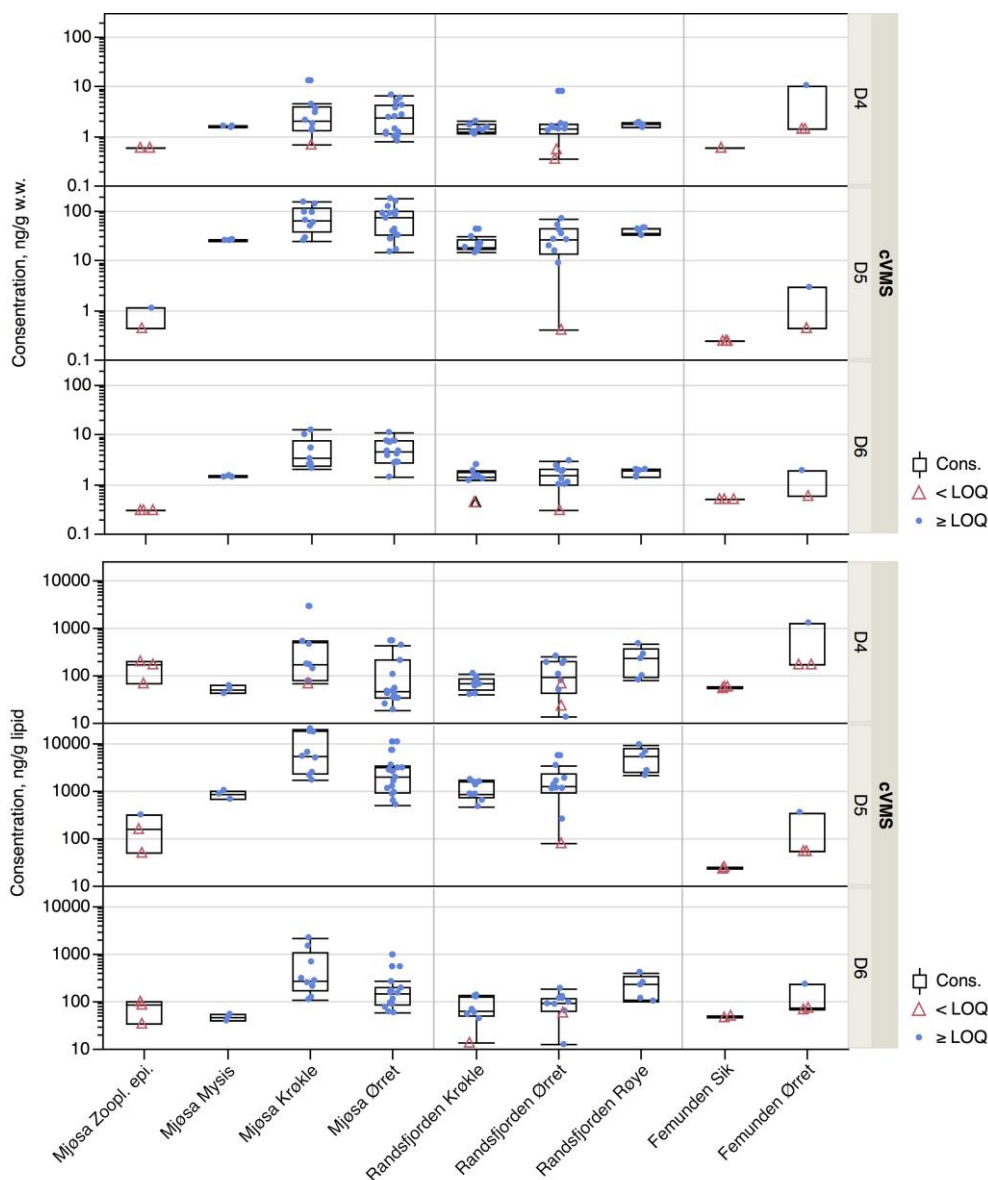
Tabell 5. Gjennomsnittlige konsentrasjoner (\bar{x}), standard avvik (SD), maksimum og minimumsverdier for siloksaner (cVMS: D4, D5 og D6) i prøver av fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2015. Konsentrasjoner under kvantifikasjonsgrensen er byttet ut med halve grensen.

Lokaliter	Art/Gruppe	cVMS	N	≥ LOQ, %	Kons. ng/g v.v.				Kons. ng/g lipid			
					\bar{x}	SD	Min	Max	Mean	SD	Min	Max
Mjøsa	Zooplankton	D4	3	0	0,6	0,0	0,6	0,6	150	72	69	210
		D5	3	33	0,7	0,4	0,5	1,1	170	130	52	310
		D6	3	0	0,3	0,0	0,3	0,3	75	36	34	100
	Mysis	D4	3	100	1,6	0,1	1,5	1,6	52	10	42	62
		D5	3	100	25,9	0,7	25,4	26,7	860	180	670	1000
		D6	3	100	1,4	0,1	1,4	1,5	47	7	39	54
	Krøkle	D4	9	89	3,5	3,8	0,7	13,1	500	900	70	2800
		D5	9	100	78,7	45,1	25,5	152,0	8800	7600	1700	20000
		D6	9	100	5,1	3,8	2,1	12,4	630	730	110	2200
	Ørret	D4	15	100	2,7	2,0	0,8	6,8	140	180	19	540
		D5	15	100	73,5	50,6	15,1	178,0	2800	2800	510	11000
		D6	15	100	5,2	2,7	1,4	11,1	220	240	58	960
Randsfjorden	Krøkle	D4	9	100	1,5	0,3	1,1	2,0	71	23	40	110
		D5	9	100	22,6	9,0	14,5	43,0	1100	460	470	1700
		D6	9	89	1,5	0,5	0,5	2,5	77	43	13	140
	Røye	D4	5	100	1,7	0,2	1,5	1,9	230	160	81	470
		D5	5	100	41,5	5,8	32,2	46,0	5300	3000	2104	9500
		D6	5	100	1,8	0,3	1,4	2,0	220	130	100	410
	Ørret	D4	10	80	2,0	2,2	0,4	8,0	120	84	13	260
		D5	10	90	29,8	21,0	0,4	70,7	1800	1600	77	5500
		D6	10	90	1,6	0,8	0,3	3,0	96	48	12	190
Femunden	Sik	D4	3	0	0,6	0,0	0,6	0,6	57	1	56	58

Lokaliter	Art/Gruppe	cVMS	N	≥ LOQ, %	Kons. ng/g v.v.				Kons. ng/g lipid			
					\bar{x}	SD	Min	Max	Mean	SD	Min	Max
		D5	3	0	0,3	0,0	0,3	0,3	24	1	23	24
		D6	3	0	0,5	0,0	0,5	0,5	47	1	47	49
	Ørret	D4	3	33	4,5	5,2	1,5	10,5	540	640	170	1300
		D5	3	33	1,3	1,4	0,5	2,9	150	170	53	350
		D6	3	33	1,0	0,8	0,6	1,9	120	90	70	230

En svensk undersøkelse i muskel av abbor fra innsjøer som mottar avløp fra kloakkrensingsanlegg rapporterer om konsentrasjoner av D5 i området 1,4 - 14,4 ng/g våtvekt (Kierkegaard *et al.* 2013). Fra Eriesjøen i Nord-Amerika er det funnet konsentrasjoner i området 14 - 36 ng/g våtvekt (Mc Goldrick *et al.* 2014). Til sammenlikning har vi funnet at middelverdiene for ulike fiskearter fra Mjøsa og Randsfjorden ligger i området 1,2 til 160 ng/g våtvekt, med de høyeste nivåene i Mjøsa (data her, Borgå *et al.* 2013a og b, Fjeld *et al.* 2014). Hvorfor vi finner de høyeste konsentrasjonene i Mjøsa sammenliknet de svenske undersøkelsene og undersøkelsen fra Erie-sjøen har vi ikke datagrunnlag for å spekulere i.

Fra Østersjøen er det funnet at konsentrasjonene av D4, D5 og D6 i muskel av sild er henholdsvis omlag 10, 200 og 40 ng/g lipid (Kierkegaard *et al.* 2013), og forfatterne hevder at forholdet mellom de ulike forbindelsene i stor grad reflekterer forholdet mellom de årlige utslippsmengdene i Europa. For fisk fra Mjøsa og Randsfjorden, hvor andelen prøver med kvantifiserbare cVMS-verdier var høyt, finne vi omlag samme dominansforhold mellom forbindelsene som dette.



Figur 7. Box-plot av cVMS-konsentrasjoner i biota fra de enkelte innsjøene i 2015 (våtvektbasert: øvre figur, lipidvektbasert nedre figur). De ulike symbolene representerer kvantifiserbare nivåer og nivåer under metodens kvantifikasjonsgrenser (LOQ). Nivåer under LOQ er substituert med halve grensene.

4.3.2 Årlig variasjon av cVMS i Mjøsa og Randsfjorden

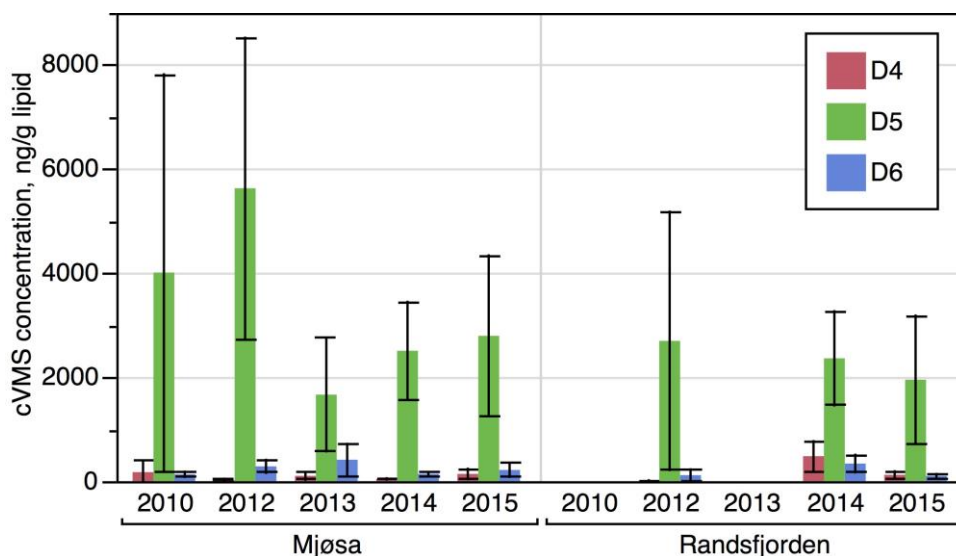
For ørret fra Mjøsa og Randsfjorden har vi nok data over kvantifikasjonsgrensene (LOQ) for enkelte cVMS-forbindelsene til at vi kan sammenlikne konsentrasjonene mellom ulike år (Tabell 6, Figur 8).

D5 var den dominerende forbindelsen i begge sjøene. For ørret fra Mjøsa, med prøver fra 2010, 2012, 2014 og 2015, var prosentandelen av de enkelte forbindelsene som følger: D5: 92 %; D6: 5 %; D4: 3 %. For Randsfjorden, med prøver fra 2012, 2014 og 2015, var estimerte prosentandeler mye lik som i Mjøsa: D5: 82 %, D6: 8 %; D4: 10 %. Variansanalyser (log-transformerte data) viste at det for Mjøsa var signifikante forskjeller mellom år for D4 ($p = 0,004$) og D5 ($p = 0,009$), mens det for Randsfjorden ble påvist signifikante forskjeller mellom konsentrasjonene av D4 ($p < 0,001$) og D6 ($p = 0,02$). Vi vil imidlertid her være forsiktige med

tolkningen av mellomårlig variasjon for cVMS. Mulige kilder til variasjon kan ligge i skifte av analyselaboratorier og analytiske utfordringer i bestemmelsen av konsentrasjonene. Sammenliknet med analysemetodene for andre etablerte POP-er, hvor metodene har blitt perfektionert over lang tid og det er etablert sertifisert referansemateriale, er det større analytisk utfordringer med cVMS.

Tabell 6. Årlig midlere konsentrasjoner av cVMS (lipidnormalisert) i ørret fra Mjøsa og Randsfjorden, samt prosentandelen av de ulike forbindelsene som utgjør total konsentrasjon (Σ cVMS). Konsentrasjoner under kvantifiserings- eller deteksjonsgrensene (LOQ/D) er byttet ut med halve grensene. Oransje fargede celler indikerer at mer enn 50 % av målingene er over LOQ/D. Prøvene fra 2010 og 2012 er analysert ved Universitetet i Stockholm, prøvene fra 2013 - 2015 ved NILU.

År	Lokalitet	n	konsentrasjon (middel \pm SD), ng/g lipid				prosentandel		
			D4	D5	D6	Σ cVMS	D4	D5	D6
2010	Mjøsa	5	180 \pm 190	3800 \pm 3400	130 \pm 44	4100 \pm 3600	4%	93%	3%
2012	Mjøsa	5	23 \pm 17	5600 \pm 2300	285 \pm 100	5900 \pm 2400	0%	95%	5%
2013	Mjøsa	15	100 \pm 130	1700 \pm 2000	410 \pm 550	2200 \pm 2000	5%	76%	19%
2014	Mjøsa	15	40 \pm 20	2500 \pm 1700	140 \pm 60	2700 \pm 1800	1%	94%	5%
2015	Mjøsa	15	140 \pm 180	2800 \pm 2800	140 \pm 180	3100 \pm 3200	4%	89%	7%
2012	Randsfjorden	5	10 \pm 5	2700 \pm 2000	120 \pm 90	2800 \pm 2100	0%	96%	4%
2014	Randsfjorden	15	500 \pm 500	2400 \pm 1600	340 \pm 300	3200 \pm 2700	15%	74%	11%
2015	Randsfjorden	10	120 \pm 80	1800 \pm 1600	96 \pm 48	2200 \pm 1700	6%	89%	5%



Figur 8. Årlig midlere konsentrasjoner (m. 95 % konfidensintervaller) av cVMS i muskel av ørret fra Mjøsa og Randsfjorden. Konsentrasjoner under kvantifiserings- eller deteksjonsgrensen ($<$ LOQ/D) er byttet ut med halve grensene, og dette gjør særlig estimatene for D4 og D6 til dels svært usikre. Prøvene fra 2010 og 2012 er analysert ved Universitetet i Stockholm, prøvene fra 2013- 2015 ved NILU. For Randsfjorden ble det ikke analysert cVMS i 2010 og 2013.

4.3.3 Trofisk magnifisering av D5 og D6 i Mjøsa og Randsfjorden

Som i Fjeld et al. (2015) ønsket vi å kombinere tidligere data med nye for å gjøre statistiske analyser av trofisk magnifisering av D5 og D6 med større generalitet. Vi har tidligere påvist trofisk magnifisering (biomagnifisering) av forbindelsene D5 og D6 i de pelagiske næringsnettene i Mjøsa og Randsfjorden (Borgå et al. 2012b; Borgå et al. 2013a og b; Fjeld et al. 2014, 2015).

I Fjeld et al. (2015) viste vi at $\delta^{15}N$ -nivåene i epipelagisk zooplankton fra Mjøsa (primærkonsumentene) kan variere mellom årene (4,63 - 8,43 ‰), noe som har konsekvenser for beregningen av trofisk nivå (TL) for de ulike konsumentene. Årsaken til variasjonen er uvisst, men det er kjent at det kan være sesongmessige endringer i $\delta^{15}N$ i herbivort zooplankton. Dette kan skyldes endringer i N-isotopforholdet til fytoplanktonets nitrogenkilder (Grey et al. 2000; Legget et al. 2000; Matthews and Mazumder 2005), men også fordi den trofiske fraksjoneringen av N-isotoper hos zooplankton er avhengig av C:N-forholdet i fytoplanktonet de konsumerer (Vander Zanden and Rasmussen 2001).

Når $\delta^{15}N$ til primærkonsumentene varierer mellom år innebærer baselinjusteringen at det introduseres en årlig variasjon i trofisk nivå for konsumentene høyere opp i næringskjeden. Dette er ikke riktig for flerårige og større konsumenter, da deres $\delta^{15}N$ ikke står i en momentan likevekt med N-isotopforholdet til primærkonsumentene, men vil ha en betydelig tregere og dempet respons på sesongmessige eller årlige fluktuasjoner i primærkonsumentenes $\delta^{15}N$.

Vi baselinjusterer derfor ikke $\delta^{15}N$ til konsumentene i beregningen av trofisk nivå, men beregner et relativt trofisk nivå (TL_{rel}) til organismene ved kun å dividere med N-anrikningsfaktoren ($\Delta^{15}N = 3,4$ ‰) (Post 2002):

$$TL_{rel} = \delta^{15}N_c / \Delta^{15}N$$

Dette innebærer at vi ser på de årlige variasjonene i $\delta^{15}N$ til primærkonsumentene som tilfeldige og ikke lar de influere beregningene av høyere trofisk nivå. Da unngås det at trofisk nivå til høyere konsumenter som ørret forskyves fra år til år. Ved å bruke denne metoden endres ikke den estimerte trofiske magnifikasjonsfaktoren (TMF), kun regresjonenes konstantledd. TL_{rel} kan brukes til å bestemme trofisk avstand mellom organismegruppene innen en lokalitet, men ikke til å fastslå deres absolutte posisjon eller til å sammenlikne trofisk nivå til organismer fra lokaliteter med ulik $\delta^{15}N$ -baselinje.

I den videre statistiske analysen av materialet har vi utelatt resultatene fra Mjøsa for 2013 og Randsfjorden for 2015. Det ble da etter Miljødirektoratets ønske ikke gjort en balansert prøvetaking over hele det pelagiske næringsnettet, men fokus var lagt på fisk (ørret, krøkle) med kun et fåtall eller ingen prøver av epipelagisk zooplankton. Vi bygget opp en statistisk modell av typen «mixed linear model» (for en introduksjon, se Galway 2006), som også tillater at det kan analyseres på et ubalansert datasett hvor det mangler data for en innsjø innen et gitt år. Vi definerte effektene av innsjø (nominell variabel) og TL_{rel} (kovariat, kontinuerlig variabel), samt interaksjonene mellom disse som faste effekter (fixed). Effekten av år (nominell), nøstet under innsjø, og interaksjonen mellom år og TL_{rel} , nøstet under innsjø, definerte vi som tilfeldige effekter:

$$\log C = a + b \cdot TL_{rel} + c \cdot Innsjø + d(TL_{rel} \cdot Innsjø) + e \cdot \text{År}[Innsjø]_{random} + f(\text{År} \cdot TL_{rel})[Innsjø]_{random}$$

Denne fulle modellen reduserte vi stegvis fram til vi sto igjen med en modell som inneholdt signifikante eller *à priori* betydningsfulle effekter. For hvert steg ble Akaikes og Schwarz' Bayesiske informasjonskriterier (AIC, BIC) sjekket for hvorvidt de indikerte en bedret tilpasning. Den reduserte modellen vi kom fram til for D5 var:

$$\log C_{D5} = a + b \cdot TL_{rel} + c \cdot Innsjø + e \cdot \text{År}[Innsjø]_{random}$$

Her er det en felles stigningskoeffisient for - eller respons - på relativt trofisk nivå, en effekt for innsjøene, samt at vi tillater at innsjøene responderer ulikt på faktoren år. Denne siste effekten har vi definert som en tilfeldig effekt. Denne modellen innebærer at D5 viser den samme trofiske magnifisering i innsjøenes pelagiske næringsnett, det vil si felles TMF og parallelle regresjonslinjer. Videre betyr det at vi lar regresjonene ha forskjellig skjæringspunkt med Y-aksen, noe som tillater ulik belastning av D5 og/eller forskjellig baselinje for $\delta^{15}N_c$ (fast effekt av innsjø). Mellomårlige effekter som kan skyldes tilfeldige variasjoner i tilførsler eller forskjeller introdusert på grunn av ulike analyselaboratorier fanges opp av den tilfeldige effekten hvor år er nøstet inn under innsjø. Den faste effekten av innsjø var imidlertid ikke statistisk signifikant, men det er gode teoretiske grunner til å la den stå (ulik belastning av D5, forskjellig baselinje for $\delta^{15}N_c$). En ekskludering av den innvirket i liten grad på estimatet av TMF, men bidro i første rekke til å snevre inn dens konfidensgrenser.

Den reduserte modellen forklarte i alt 45 % av variansen i konsentrasjonene av D5 (log-transformert) og ga en TMF for begge sjøene på 2,29 (95% KI: 1,83 - 2,88). Det kunne ikke påvises noen signifikant forskjell mellom midlere D5-konsentrasjoner justert for forskjeller i $\delta^{15}N$ for næringsnettene i Mjøsa og Randsfjorden (2100 vs. 1970 ng/g lipid, $p = 0,9$), men en sammenlikning er ellers lite meningsfull da det ikke er gjort en baselinjustering for $\delta^{15}N$. Den reduserte modellen med dens faste effekter er vist Figur 9 mens resultatene fra den statistiske modelleringen i sin helhet er gitt i Vedlegg 2.

For D6 kom vi fram til følgende reduserte modell:

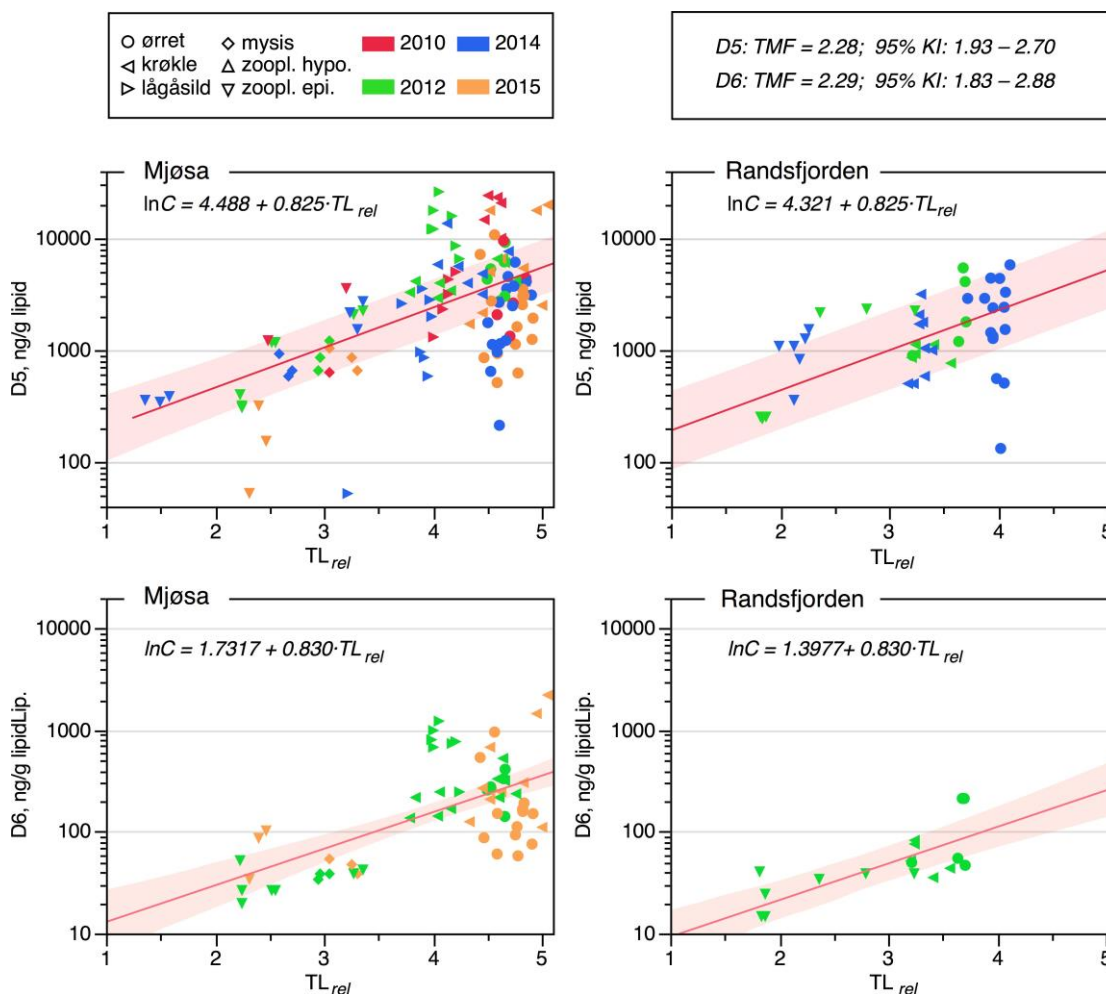
$$\log C_{D6} = a + b \cdot TL_{rel} + c \cdot Innsjø$$

Modellen forklarte i alt 52 % av variansen i konsentrasjonene av D6 (log-transformert) og ga en TMF for begge sjøene på 2,28 (95% KI: 1,93 - 2,70). Det kunne ikke påvises noen signifikant forskjell mellom midlere D6-konsentrasjoner justert for forskjeller i $\delta^{15}N$ for næringsnettene i Mjøsa og Randsfjorden (130 vs. 100 ng/g lipid, $p = 0,2$), men som for D5 er en sammenlikning lite meningsfull da det ikke er gjort en baselinjustering for $\delta^{15}N$. Den reduserte modellen med dens faste effekter er vist Figur 9 mens resultatene fra den statistiske modelleringen i sin helhet er gitt i Vedlegg 2.

Det er publisert få undersøkelser av trofisk magnifisering av sykliske siloksaner, men for Lake Erie har Macgoldrick et al. (2014) rapportert at biomagnifisering av D4 og D5 synes å være svært følsom for hvilke organismegrupper som næringsnettene komponeres av. De påviste at TMF for D4 og D5 var >1 for kun én av fem kombinasjoner av organismegrupper. TMF-estimer for PCB-180 var òg avhengig av kombinasjonen av organismegrupper, men de samsvarte ikke med funnet for cVMS-materialet. Forfatterne diskuterer hvorvidt forskjeller i

miljøeksponering og/eller ulik lipid-partisjonering av PCB og cVMS kan ha bidratt til resultatene, uten å trekke noen entydig konklusjon.

I en nyere studie fra kystområder i Nord-Kina (Jia et al. 2015) rapporteres det imidlertid om trofisk magnifisering av D5, og med en TMF av omlag samme størrelse (1,77; 95 % KI: 1,41 - 2,24) som vi rapporterer fra Mjøsa og Randsfjorden. Som en referansesubstans brukte de her BDE-99, som biomagnifiserte som forventet med en TMF på 3,27 (95 % KI: 2,49 - 4,30). Disse to undersøkelsene, sammen med våre fra Mjøsa og Randsfjorden (Borgå et al. 2012b, Borgå et al. 2013a) er etter hva vi vet de eneste arbeidene som omfatter trofisk magnifisering av cVMS i akvatiske næringskjeder som er publisert i fagfelleverderte tidsskrifter.



Figur 9. Forholdet mellom cVMS-forbindelsene D5 og D6 (lipidnormalisert) og relativt trofisk nivå (TL_{rel}) i organismer fra det pelagiske næringsnett i Mjøsa og Randsfjorden, fanget i ulike år. Regresjonslinjene med 95 % konfidensbånd mellom konsentrasjon (\log_e -transformert) og trofisk nivå er inntegnet. Regresjonene er resultater fra «mixed linear models» (se tekst). Konsentrasjoner under kvantifikasjons- eller deteksjonsgrensene (LOD/Q) er byttet ut med halve grensene.

4.3.4 Samvariasjoner mellom cVMS, PCB, PBDE og trofisk nivå

Miljøgifter med liknende fysisk-kjemiske egenskaper kan forventes å vise et felles mønster for oppkonsentrering i økologiske næringsnett. Vi har derfor undersøkt samvariasjonen mellom cVMS-forbindelsene D5 og D6, PCB-153, BDE-47 og relativt trofisk nivå (TL_{rel} , basert på $\delta^{15}N$) i

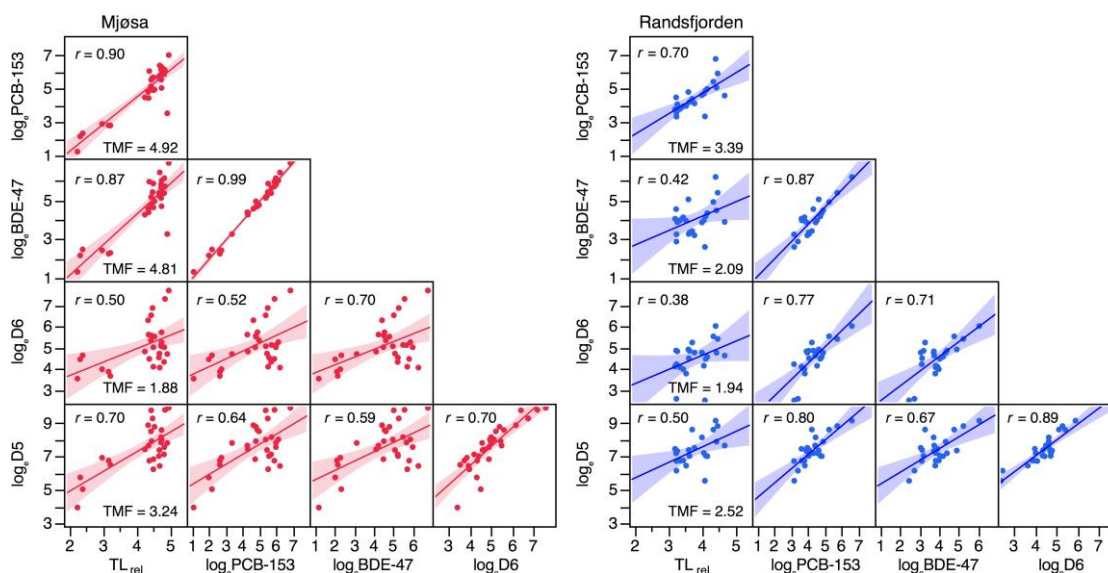
Mjøsa og Randsfjorden for 2015 (Figur 10). PCB-153 og BDE-47 er stabile forbindelser, de er svært fettløselig og biomagnifiserer i stor grad. Vi bruker de her som referanser ved undersøkelsen av oppkonsentreringen av D5 og D6 i næringsnettet. Vi har brukt \log -transformerte lipidnormaliserte konsentrasjoner i undersøkelsen av samvariasjonene og til beregning av trofisk magnifikasjonsfaktor (TMF). Vi har kun sett på data fra Mjøsa og Randsfjorden, da konsentrasjonene av cVMS i fisk fra Femunden i så stor grad var under LOQ at vi valgte å utelate denne.

For D5 var det en signifikant og god til moderat samvariasjon med trofisk nivå (TL_{rel}), med en korrelasjon (Pearsons r) på 0,70 og 0,50 for henholdsvis Mjøsa og Randsfjorden, og en trofisk magnifikasjonsfaktor TMF på henholdsvis 3,24 og 2,52.

For D6 var samvariasjonen med trofisk nivå (TL_{rel}) noe svakere, med en korrelasjon (Pearsons r) på 0,50 og 0,38 for henholdsvis Mjøsa og Randsfjorden, og en trofisk magnifikasjonsfaktor TMF på henholdsvis 1,88 og 1,94.

PCB-153 og BDE-47 samvarierte også med trofisk nivå, med korrelasjonskoeffisienter i området 0,42-0,90. De biomagnifiserer i begge innsjøene, og TMF for disse forbindelsene var til dels vesentlig større enn for D5 og D6 (2,09 - 4,93)

D5 og D6 i prøvene viste en moderat til god samvariasjon med PCB-153 og BDE-47 (r : 0,52 - 0,80). Dette er som forventet ut fra de foregående resultatene: De er alle forbindelser som biomagnifiserer og vil derfor også samvarierte i prøvene. Den ekstremt sterke korrelasjon mellom PCB-153 og BDE-47 (r : 0,87 - 0,98) viser at disse to forbindelsene oppfører seg svært likt i næringsnettet.



Figur 10. Spredningsplott og regresjoner for siloksanforbindelsene D5 og D6, BDE-47, PCB-153 og relativt trofisk nivå (TL_{rel}) i fisk (muskel) og zooplankton fra Mjøsa og Randsfjorden, fanget i 2015. Konsentrasjonene er oppgitt som \log_e -transformerte verdier på lipidvektbasis (ng/g lipid). Konsentrasjoner under kvantifiseringsgrensen (<LOQ) er byttet ut med halve grensen. TMF : trofisk magnifikasjonsfaktor; r : korrelasjonskoeffisient.

4.4 Polyklorerte bifenyler, PCB

4.4.1 Nivåer av PCB i 2015

Det ble analysert for PCB i muskelprøver av fisk, samt i krepsdyrplankton fra Mjøsa. I gjennomsnitt utgjorde Σ PCB7 (syv vanlig analyserte kongenere)⁵ 54 - 63 % av total mengde PCB i fisk. Vannforskriftens EQS-verdi for Σ PCB7 i biota er 0,6 ng/g våtvekt, i samtlige sjøer var middelverdien av fiskeprøvene høyere enn denne. Totalt overskred 95 % av fiskeprøvene EQS-verdien.

Midlere konsentrasjon av Σ PCB7 i Mjøsas pelagiske næringsnett steg fra omlag 0,2 ng/g våtvekt i zooplankton til 35,5 ng/g våtvekt i ørret. Omregnet til konsentrasjoner på lipidvektbasis steg nivåene oppover i næringskjeden fra omlag 53 til 920 ng/g lipid.

Ørret fra Mjøsa hadde på våtvektbasis markert høyere konsentrasjoner av PCB enn ørret fra Randsfjorden og Femunden (Tabell 7, Figur 11). Midlere konsentrasjon av Σ PCB7 var seks ganger høyere i Mjøsa enn i Randsfjorden og 12 ganger høyere enn i Femunden (35 vs. 5,4 og 2,8 ng/g våtvekt). Ørreten i Mjøsa hadde et høyere fettinnhold enn ørret i Randsfjorden og Femunden (middelverdi: 3,5 vs. 2,5 og 0,9 %), noe som demper forskjellene mellom de lipidjusterte konsentrasjonene, og middelverdiene for ørret fra Mjøsa, Randsfjorden og Femunden var henholdsvis 920, 270 og 370 ng/g lipid. Like fullt viste variansanalyser at det lipidjusterte gjennomsnittet hos ørreten i Mjøsa var signifikant høyere enn i de to andre sjøene (log-transformerte verdier, $p < 0,0001$).

I Randsfjorden hadde røya høyere midlere konsentrasjon av Σ PCB7 enn ørreten; den var omlag 6,8 ng/g våtvekt eller 1000 ng/g lipid, det vil si en økning på henholdsvis 1,3 eller 3,8 ganger. De høyere konsentrasjonene i røya kan ha sin årsak i at de står på et høyere trofisk nivå enn ørret.

Krøkle fra Mjøsa hadde en gjennomsnittlig konsentrasjon av Σ PCB7 som på våtvektbasis var dobbelt så høy som i Randsfjorden (6,2 vs. 3,1 ng/g våtvekt), mens på lipidvektbasis ble nivåene nær fire ganger høyere (570 vs. 160 ng/g lipid). Her må det nevnes at krøkla fra Mjøsa var større enn krøkla fra Randsfjorden, og flere av de trolig var fiskepisere (kannibaler).

Det laveste midlere nivået av Σ PCB7 i de tre hovedsjøene ble funnet i sik fra Femunden med 1,2 ng/g våtvekt eller 126 ng/g lipid. I abbor fra Tyrifjorden og Vansjø var tilsvarende nivåer henholdsvis 0,9 og 1,4 ng/g våtvekt eller 250 og 730 ng/g lipid.

De lave nivåene av PCB i Femunden avspeiler at lokale kilder her er nær fraværende og tilførselene i hovedsak må skyldes langtransporterte avsetninger. For Mjøsa og Randsfjorden vil lokale kilder komme i tillegg. Det er kjent at Mjøsa har vært påvirket av lokale utslipp av PCB, blant annet fra NSBs verksteder ved Hamar (Kjellberg og Løvik 2000), men også andre ikke-definerte punktkilder kan ha bidratt (Fjeld et al. 2006a). Fra Randsfjorden er vi imidlertid ikke kjent med noen lokale utslipp av betydning.

De midlere konsentrasjonene av Σ PCB7 i ørret fra Randsfjorden og Femunden i 2015 av samme størrelse som i 2013 og 2014, både på våtvekt og lipidvektbasis. For krøkle og sik varierte

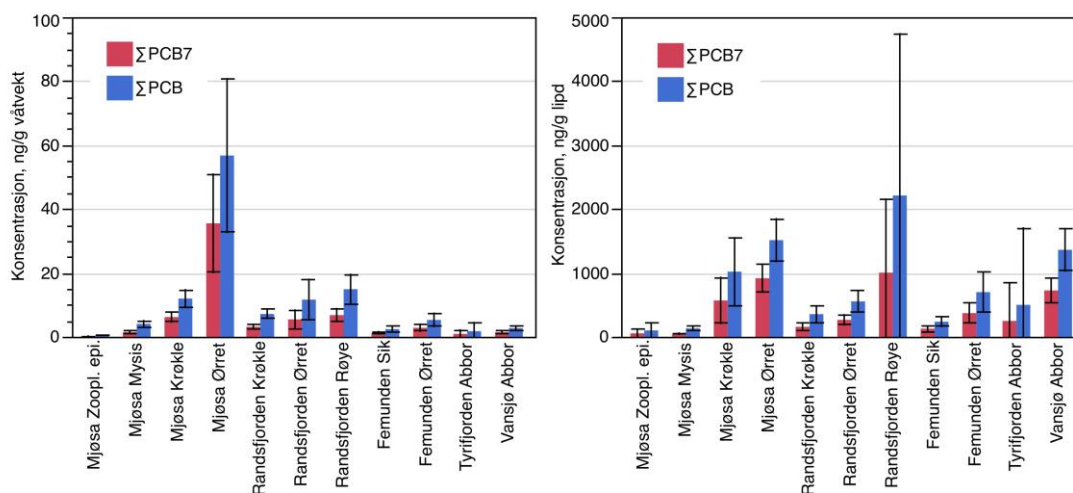
⁵ Σ PCB7: sum av PCB-28, -52, -101, -118, -138, -153 og -180

imidlertid nivåene noe usystematisk fra år til år (opp til en faktor på to), og statistiske tester (Wilcoxon/Kruskal-Wallis test) påviste signifikante forskjeller mellom år. Muligens kan dette avspeile at sik og krøkle er mer kortlivede arter enn ørret, og således er deres PCB-nivåer mer utsatt for tilfeldige temporære variasjoner i prosessene relatert til biomagnifisering og miljøbelastning av PCB.

For å sammenlikne nivåene vi rapporterer her med andre relevante data kan det nevnes at for sjørret fra Drammensfjorden, fisket i 2008, det ble rapportert om konsentrasjoner av Σ PCB7 i seks blandprøver fra indre og ytre fjord i området 500 - 2400 ng/g lipid (9-58 ng/g våtvekt), med et gjennomsnitt på omlag 900 ng/g lipid (28 ng/g våtvekt) (Fjeld *et al.* 2008). I en nyere undersøkelse fra 2014 ble det for sjørret fra Drammensfjorden rapportert om konsentrasjoner på våtvektbasis i området 6-24 ng/g våtvekt (Norconsult 2015), dessverre finnes ikke lipidjusterte verdier fra denne undersøkelsen. Nivåene fra Drammensfjorden er omlag av samme størrelse som de vi finner i ørret fra Randsfjorden og Mjøsa. Fra storørretbestandene i Väneren og Vättern, Sverige, synes middel-konsentrasjonene å være noe høyere enn i Mjøsa og Randsfjorden (1-5 x), og for fisk fanget i 2001-2002 og 2010 ble det rapportert om midlere konsentrasjoner av Σ PCB7 på 36 og 93 ng/g våtvekt fra de to svenske innsjøene (midlere lipidinnhold: 1,6-4,7 %; midlere lengde av fisk: 50-83 cm kg) (Cantillana og Aune, 2012).

Tabell 7. Midlere konsentrasjon av polyklorerte bifenyler (PCB) i fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2015. Konsentrasjonene er gitt på våtvekt- og lipidvektbasis. Σ PCB7: syv vanlige kongenere, se teksten, Σ PCB: total PCB. N: antall, \bar{x} : middelværdi, SD: standard avvik.

Lokaliter	Art	PCB	N	ng/g våtvekt		ng/g lipid	
				\bar{x}	SD	\bar{x}	SD
Mjøsa	Zoopl. epi.	Σ PCB	3	0,40	0,00	99	48
		Σ PCB7	3	0,21	0,00	53	26
	Mysis	Σ PCB	3	4,03	0,40	130	14
		Σ PCB7	3	1,47	0,19	48	4
	Krøkle	Σ PCB	15	11,95	5,00	1000	950
		Σ PCB7	15	6,16	2,79	570	650
	Ørret	Σ PCB	15	56,71	43,43	1500	600
		Σ PCB7	15	35,49	27,78	920	390
Randsfjorden	Krøkle	Σ PCB	9	7,12	1,75	350	160
		Σ PCB7	9	3,13	0,78	160	70
	Røye	Σ PCB	5	14,88	3,71	2200	2000
		Σ PCB7	5	6,77	1,64	1000	930
	Ørret	Σ PCB	10	11,62	8,86	550	230
		Σ PCB7	10	5,44	4,08	260	110
Femunden	Sik	Σ PCB	15	2,39	1,48	240	140
		Σ PCB7	15	1,23	0,65	130	75
	Ørret	Σ PCB	15	5,27	3,77	700	560
		Σ PCB7	15	2,80	1,95	370	280
Tyrifjorden	Abbor	Σ PCB	5	1,74	2,15	500	970
		Σ PCB7	5	0,89	1,00	250	480
Vansjø	Abbor	Σ PCB	5	2,69	0,51	1400	270
		Σ PCB7	5	1,43	0,26	720	150



Figur 11. Midlere konsentrasjon (med 95 % konfidensintervall) av polyklorerte bifenyl (PCB) i fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2015. Konsentrasjonene er oppgitt som våtvekt (v.v.) og lipidvekt. Σ PCB7: syv vanlige kongener, Σ PCB: total PCB.

4.4.2 Historisk utvikling av PCB-nivåene i fisk

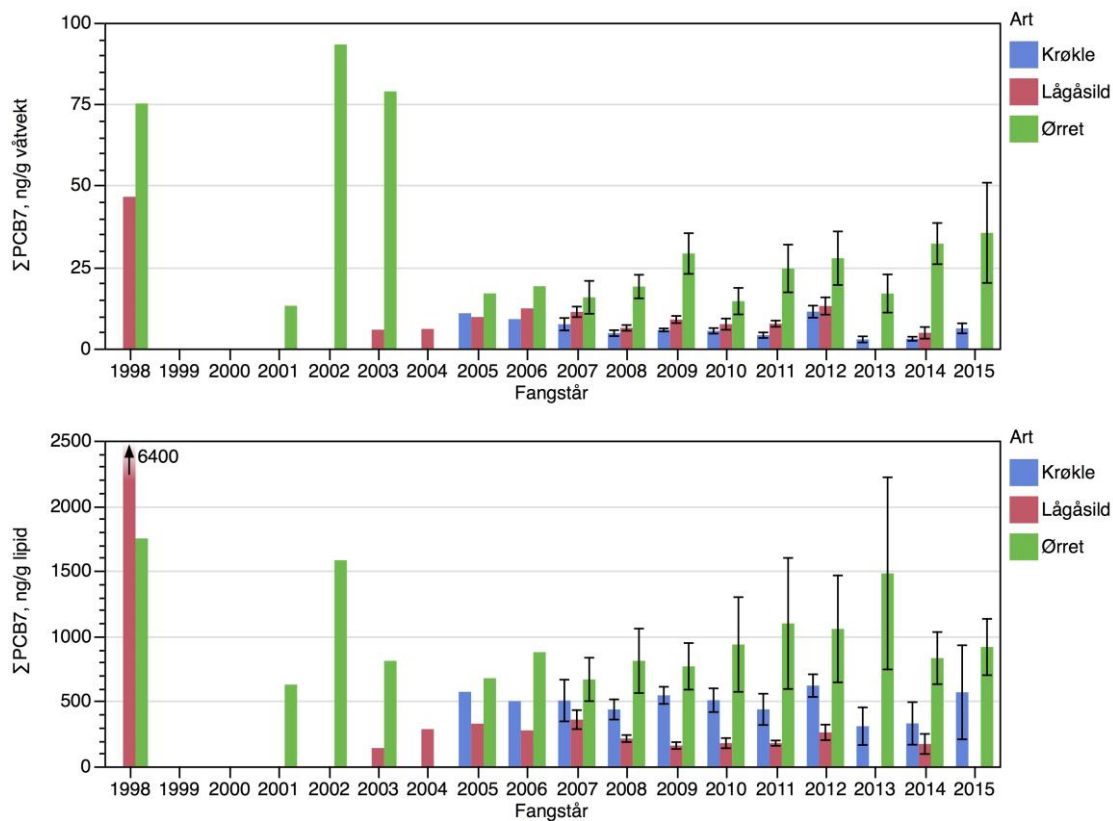
Vi har årlige analyser av PCB i ørret for perioden 2005 - 2015, og midlere konsentrasjoner av Σ PCB7 varierte usystematisk i området 700 - 1500 ng/g lipid (Figur 12). Videre har vi noen sporadiske prøver fra perioden 1998 - 2003 hvor midlere konsentrasjoner var i området 630 - 1750 ng/g lipid. For to av årene, 2002 og 2003, var prøvene basert på til dels svært store individer (middelvekt: 6,6 kg og 10,3 kg) sammenliknet med de øvrige årene (1,9 - 5,3 kg). Resultatene tyder på at nivåene har sunket siden 1998, men vi kan ikke spore noen systematiske endringer siden 2003.

For krøkle i Mjøsa har det blitt analysert for PCB i perioden 2005 - 2015, og midlere konsentrasjon av Σ PCB7 var da i området 310 - 620 ng/g lipid. For 2013 og 2014, hvor vi i hovedsak har analysert prøver av mindre krøkle (middelvekt 12 og 23 g), var de midlere konsentrasjonene lavere (310 - 330 ng/g lipid) enn for de øvrige årene hvor prøvene i hovedsak var basert på noe større kannibalistiske individer (middelvekt 51 - 92 g). For krøkle viser resultatene ingen systematiske endringer siden 2005.

Lågåsild inngikk dessverre ikke i undersøkelsen i 2015, men en blandprøve av lågåsild fra Mjøsa hadde i 1998 en svært høy konsentrasjon av Σ PCB7 på lipidbasis (6400 ng/g lipid) sammenliknet med prøver fra 2003 - 2014 (middelverdier: 140 - 360 ng/g lipid). Denne prøven hadde en uvanlig lav fettprosent (0,73 %), og dette har bidratt til det høye nivået. På våtvektbasis hadde prøven fra 1998 en konsentrasjon på omlag 47 ng/g, mens gjennomsnittsnivåene i perioden 2003 - 2014 var i området 4,8 - 13 ng/g våtvekt. Det synes således klart at nivåene har sunket siden 1998, men vi kan ikke spore noen klare systematiske endringer siden 2005.

For Randsfjorden har vi tidligere data på PCB i en blandprøve av ørret fra 1998 (middelvekt 2,5 kg), og konsentrasjonene av Σ PCB7 i denne var 1 650 ng/g lipid (Fjeld 1999). Dette var 1,5 - 7 ganger høyere enn midlere konsentrasjoner i 2013 - 2015 som varierte i området 235 og 1050 ng/g lipid.

For Femunden har vi tidligere analysedata fra 2008 og 2009, og det ble da rapportert om konsentrasjoner henholdsvis ca. 300 og 630 ng/g lipid (Løvik et al. 2010). Resultatene for Femunden fra 2013 - 2015, med middelverdier mellom 390 og 300 ng/g lipid er òg innenfor dette området.

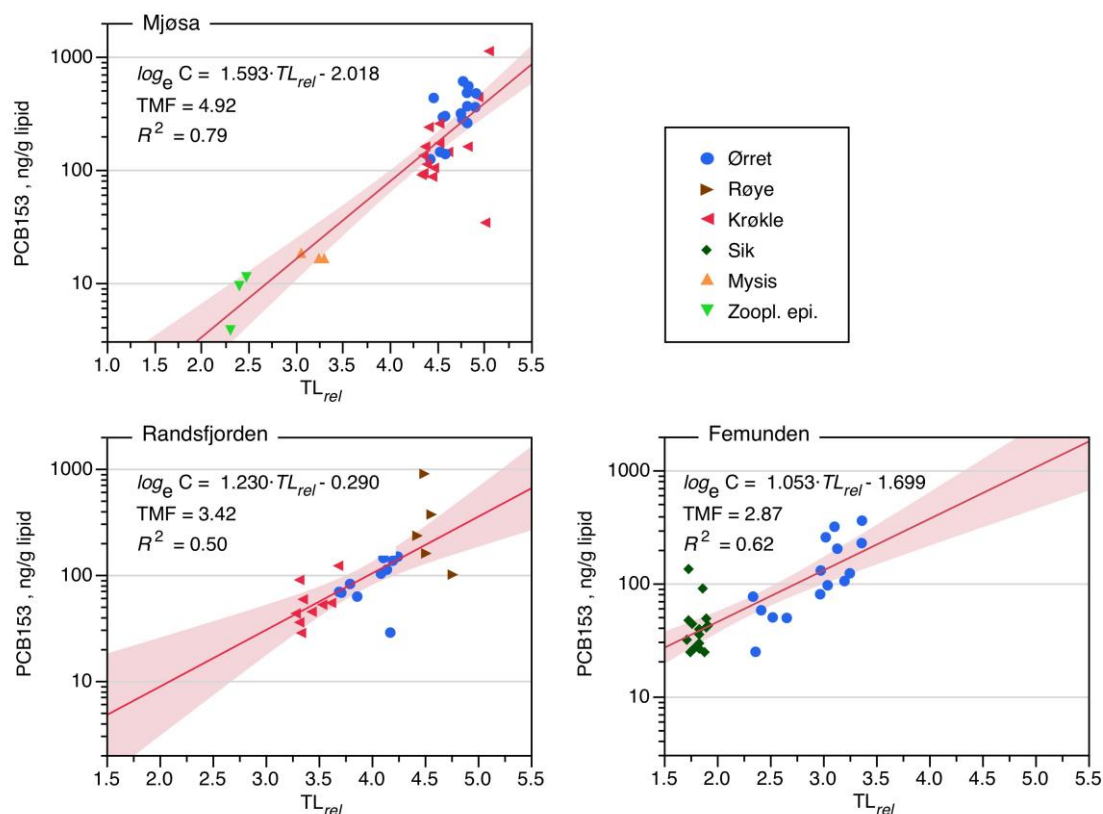


Figur 12. Konsentrasjoner av polyklorerte bifenyl (ΣPCB7) i muskelprøver av fisk fanget i Mjøsa i perioden 1998-2015. Øvre figur viser nivåene på våtvektsbasis, nedre figur viser nivåene på lipidvektsbasis. Konsentrasjonene er resultater fra enkelte blandprøver (1998-2006) eller gjennomsnitt av individuelle prøver (2007-2015). Data fra før 2013 er fra Fjeld et al. (2013).

4.4.3 Trofisk magnifisering av PCB

I alle tre hovedsjøene økte konsentrasjonen av PCB med organismenes trofiske nivå, noe vi har vist med å beregne regresjonene av PCB-153 på relativt trofisk nivå (TL_{rel}) (Figur 13). Regresjonene var signifikante, det vil si at PCB biomagnifiserte i næringskjeden og de beregnede *TMF*-verdiene var i området 2,87 - 4,92.

For Femunden og Randsfjorden var zooplankton ikke inkludert i undersøkelsen. Dette er primærkonsumentene i det pelagiske næringsnett, og uten at vi kjenner deres PCB-konsentrasjoner og $\delta^{15}N$ -forhold vil beregningen av trofisk magnifikasjonsfaktor (*TMF*) være svært usikker, da denne faktoren bør baseres på et balansert utvalg organismer fra hele næringsnett (Borgå et al. 2012a).



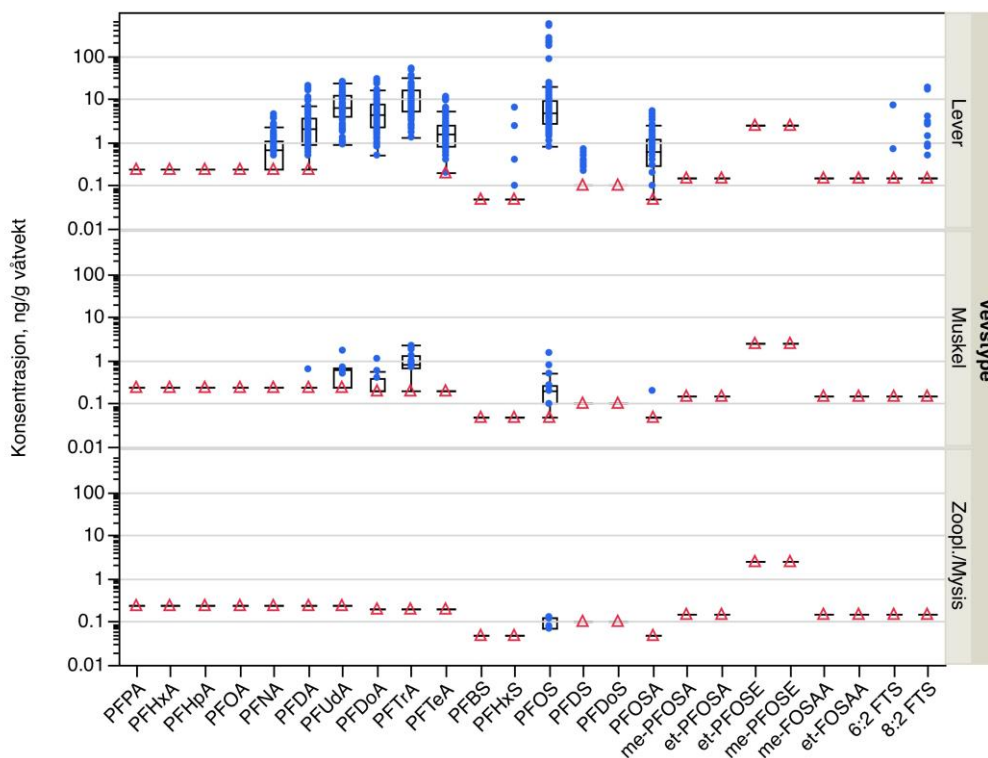
Figur 13. Forholdet mellom PCB-153 (lipidnormalisert) og relativt trofisk nivå (TL_{rel}) i fisk (muskel) og zooplankton, fanget 2015. Regresjonslinje med 95 % konfidensbånd mellom konsentrasjon (\log_e -transformert) og TL_{rel} er inntegnet.

4.5 Perfluorerte alkylforbindelser, PFAS

4.5.1 Nivåer av PFAS i 2015

Det ble analysert for perfluorerte alkylforbindelsene (PFAS) i prøver av zooplankton, Mysis og fisk. For fisk ble det som i 2014 valgt å bruke lever som hovedmatriks, da nivåene i muskel ofte er under kvantifikasjonsgrensene. PFAS har vist seg å akkumulere i blod og blodfylte organer som lever og nyre, samt i galle, da de særlig binder seg til serum-albumin og har en struktur og polaritet som likner galledalter (Lau et al. 2007; Stahl et al. 2011; Ng and Hungerbühler 2013). For å kunne sammenlikne med tidligere data ble det i tillegg til leverprøvene valgt å analysere et mindre antall muskelprøver, satt sammen som blandprøver fra de samme individene det ble tatt leverprøver av.

For åtte av de 24 analyserte forbindelsene hadde nær 100 % av leverprøvene konsentrasjoner over kvantifiseringsgrensene. Dette var de langkjedede perfluorerte karboksylsyrene (PFCA; C9-C14), PFOS (perfluoroktansulfonat) og PFOSA (perfluoroktan-sulfonamid). For de øvrige forbindelsene var andelen kvantifiserbare prøver i hovedsak svært lave (Figur 14).



Figur 14. Fordelinger (box-plot) av PFAS-konsentrasjoner i ulike vevstyper/organismer for samtlige innsjøer, innsamlet i 2015. Analyseresultater under kvantifikasjonsgrensen er byttet ut med halve grensen. Røde trekanter markerer analyseresultater under kvantifiseringsgrensene, blå punkter markerer resultater over grensene.

Midlere konsentrasjoner av en enkelt forbindelse basert på prøver hvor mer enn halvparten av analysene var <LOQ anser vi som så vidt usikre at vi ikke vil bruke disse resultatene i diskusjonen om forskjeller mellom grupper av organismer eller sjøer. De gjennomsnittlige konsentrasjonene av de åtte PFAS-forbindelsene hvor nær 100 % av analyseresultatene var

≥LOQ er presentert i Figur 15 og Tabell 8. For zooplankton var samtlige PFAS-forbindelser, med unntak av PFOS, under kvantifiseringsgrensen.

I de tre hovedsjøene økte nivået av de ulike kvantifiserbare PFAS-forbindelsene oppover i næringskjeden, og var generelt høyest hos ørret (Figur 16). Forbindelsen PFTrDA (C13-perfluorert karboksylsyre), hadde gjennomgående størst konsentrasjon med middelverdier i leverprøvene i området 8-27 ng/g våtvekt. Dette utgjorde omlag 12-56 % av totalkonsentrasjonen av PFAS i lever. For ørret ble de høyeste konsentrasjonene funnet i Femunden og de laveste i Mjøsa, dette kan muligens ha sammenheng med at fisken fra Femunden er mer knyttet til et terrestrisk næringsnett (overflateinnsjekter er her en aktuell byttedyrgruppe). Det er kjent at den respiratoriske utskillelsen av de mer vannløselige og anioniske PFAS-forbindelsene er mindre effektiv hos terrestriske organismer (som insekter) enn hos akvatiske organismer (Kelly et al. 2009).

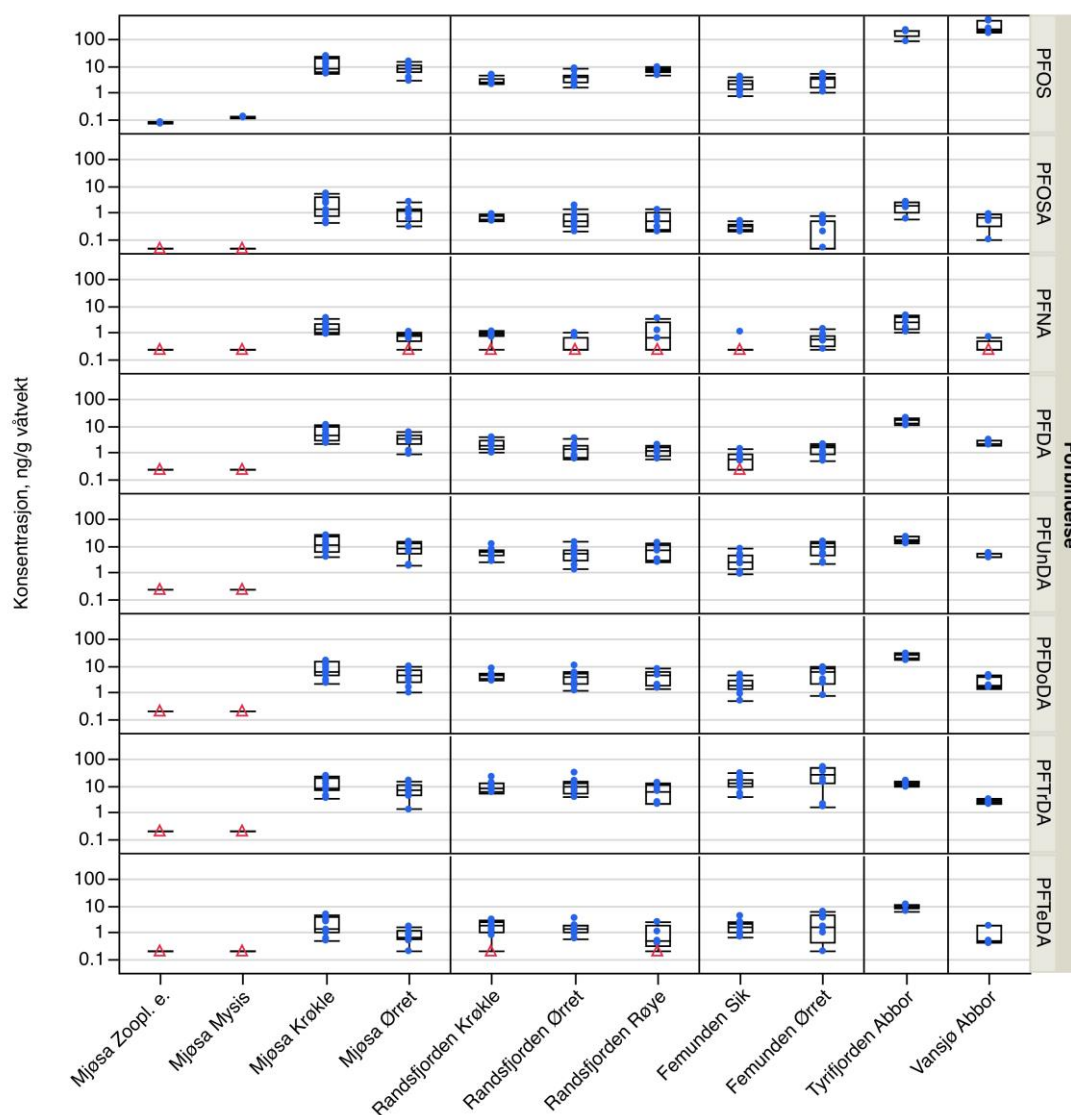
For de andre langkjedede perfluorerte karboksylsyrene (PFNA, PFDA, PFUnDA, PFDoDA og PFTeDA) var middel-konsentrasjonene i leverprøvene fra ørret i området 0,5-26 ng/g våtvekt, i hovedsak høyest for PFUnDA og lavest for PFTeDA eller PFNA.

Tabell 8. Konsentrasjoner av utvalgte PFAS-forbindelse, gitt som middelverdier m. standardavvik (\bar{x} , SD, ng/g våtvekt) i fisk og zooplankton, innsamlet i 2015. Analyseresultater under kvantifikasjonsgrensen er byttet ut med halve grensen. I fisk er det analysert i muskel (M) og lever (L).

Lokalitet	Art	Matriks	N	\bar{x} , SD	Konsentrasjon, ng/g våtvekt							
					PFOS	PFOSA	PFNA	PFDA	PFUnDA	PFDoDA	PFTrDA	PFTeDA
Mjøsa	Zoopl. e.	Helkropp	3	\bar{x}	0,07	0,05	0,25	0,25	0,25	0,20	0,20	0,20
				SD	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Mjøsa	Mysis	Helkropp	3	\bar{x}	0,12	0,05	0,25	0,25	0,25	0,20	0,20	0,20
				SD	0,01	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Mjøsa	Krøkle	Muskel	2	\bar{x}	1,14	0,13	0,25	0,44	1,17	0,84	1,32	0,20
				SD	0,51	0,11	0,00	0,27	0,75	0,37	0,69	0,00
Mjøsa	Krøkle	Lever	15	\bar{x}	11,87	2,16	1,72	5,92	13,60	8,41	12,39	2,31
				SD	6,72	1,72	0,75	3,25	7,42	5,05	7,47	1,61
Mjøsa	Ørret	Muskel	3	\bar{x}	0,24	0,05	0,25	0,25	0,25	0,20	0,20	0,20
				SD	0,04	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Mjøsa	Ørret	Lever	10	\bar{x}	8,39	1,12	0,72	3,51	8,35	4,92	7,93	0,84
				SD	3,74	0,67	0,30	1,66	4,57	3,02	4,79	0,46
Randsfj.	Krøkle	Lever	9	\bar{x}	2,97	0,63	0,88	2,23	6,13	4,46	10,13	1,82
				SD	0,87	0,15	0,28	0,94	2,60	1,55	5,07	0,99
Randsfj.	Ørret	Muskel	3	\bar{x}	0,20	0,05	0,25	0,25	0,33	0,33	0,80	0,20
				SD	0,00	0,00	0,00	0,00	0,14	0,12	0,10	0,00
Randsfj.	Ørret	Lever	10	\bar{x}	4,06	0,69	0,46	1,43	5,76	4,15	10,89	1,54
				SD	2,09	0,54	0,29	0,89	3,74	2,59	8,15	0,83
Randsfj.	Røye	Muskel	1	\bar{x}	0,50	0,05	0,25	0,25	0,70	0,20	0,70	0,20
				SD								
Randsfj.	Røye	Lever	5	\bar{x}	7,02	0,60	1,17	1,22	6,80	4,02	6,58	0,94
				SD	1,66	0,44	1,36	0,51	4,36	2,47	4,61	0,93
Femunden	Sik	Muskel	3	\bar{x}	0,05	0,05	0,25	0,25	0,25	0,20	1,03	0,20
				SD	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,25	0,00
Femunden	Sik	Lever	12	\bar{x}	2,18	0,31	0,32	0,59	3,16	2,07	13,84	1,76
				SD	1,00	0,09	0,25	0,37	2,06	1,15	7,44	0,93
Femunden	Ørret	Muskel	3	\bar{x}	0,13	0,05	0,25	0,25	0,37	0,20	1,83	0,20
				SD	0,06	0,00	0,00	0,00	0,20	0,00	0,47	0,00

Lokalitet	Art	Matriks	N	\bar{x} , SD	Konsentrasjon, ng/g våtvekt							
					PFOS	PFOSA	PFNA	PFDA	PFUnDA	PFDoDA	PFTTrDA	PFTeDA
Femunden	Ørret	Lever	12	\bar{x}	2,95	0,24	0,60	1,43	8,80	5,23	27,36	2,52
				SD	1,39	0,27	0,32	0,57	4,68	3,22	18,35	2,16
Tyrifjorden	Abbor	Lever	5	\bar{x}	183,14	1,76	2,76	16,42	18,20	24,64	13,20	9,60
				SD	56,17	0,75	1,45	3,63	4,23	5,23	2,69	1,94
Vansjø	Abbor	Lever	5	\bar{x}	346,20	0,62	0,34	2,70	4,76	2,68	2,52	0,98
				SD	164,52	0,33	0,20	0,45	0,71	1,42	0,42	0,70

For de perfluorerte karboksylsyrene (PFCA) i fisk finner vi generelt at oddetalls-kjedene foreligger i høyere konsentrasjoner enn den neste lavere liketalls-kjeden, noe som også ble påvist i undersøkelsen fra 2014. Det betyr følgende parvise rangering av konsentrasjoner: PFUnDA > PFDA, PFTTrDA > PFDoDA. Årsaken til dette fenomenet antas å være at flyktige fluortelomer-alkoholer (FTOH) i atmosfæren er en viktig forløper for disse forbindelsene. FTOH produseres kun som liketalls-kjeder (n:2 FTOH, med n fluorerte karbonatomer og to hydrogenerte karbonatomer). I atmosfæren oksideres de til PFCA, med en like stor andel av henholdsvis liketalls- (n) og oddetalls- (n-1) kjeder (Ellis et al. 2004). Eksempelvis vil 10:2 FTOH brytes ned til PFUnDa og PFDA. I likhet med Bossi et al. (2015) anser vi at forekomsten av både odde- og liketalls telomerer er i tråd med hypotesen til Martin et al. (2004) om at atmosfærisk langtransport av flyktige forløpere er en viktig kilde til PFAS i avsidesliggende områder. Da de lengre liketalls-kjedene av PFCA biomagnifiserer mer effektivt enn de kortere oddetalls-kjedene, vil de finnes i større konsentrasjoner i organismene (Martin et al. 2004).

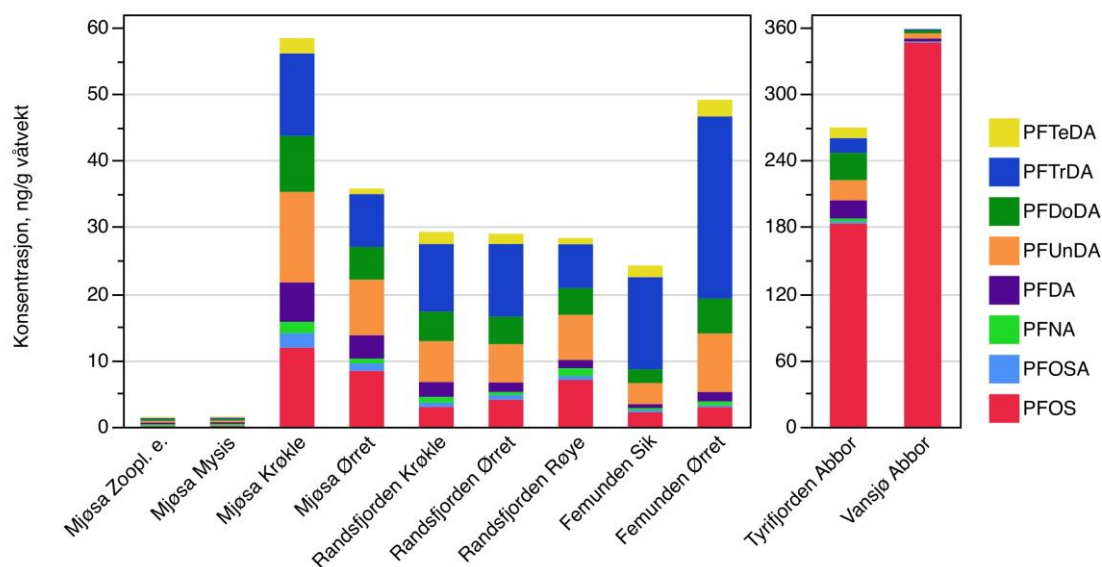


Figur 15. Fordelinger (box-plot) av PFAS-konsentrasjoner i leverprøver av fisk og i zooplankton fra de undersøkte innsjøene i 2015. Analyseresultater under kvantifikasjonsgrensen (røde trekanter) er byttet ut med halve grensen.

Midlere konsentrasjoner av PFOS i leverprøver av fisk i de tre hovedsjøene, lå i område 2-12 ng/g våtvekt. I Tyrifjorden og Vansjø var imidlertid nivåene av PFOS i abbor betydelig forhøyet med middelkonsentrasjoner i lever på henholdsvis 183 og 346 ng/g våtvekt, noe som utgjør 68 og 96 % av total mengde PFAS i prøvene fra abbor i disse innsjøene. Til sammenlikning var andelen PFOS i leverprøvene av ørret fra de tre hovedsjøene omlag 6-25 %. For Vansjø er det kjent at bruk av brannslukkeskum med PFOS ved Rygge flyplass har ført til omfattende forurensninger av grunn, resipient og fisk (Forsvarsbygg Futura 2014, 2016). Det rapporteres om konsentrasjoner av PFOS i filet av fisk i området 5,2 - 73 ng/g våtvekt, med de høyeste konsentrasjonene nær området hvor vi har hentet fisk fra. For Tyrifjorden er vi ikke kjent med lokale forurensningskilder.

Vannforskriftens EQS-verdi for PFOS og PFOA i biota er henholdsvis 9,1 og 91 ng/g våtvekt og ingen av de analyserte muskelprøvene overskred disse. For Tyrifjorden og Vansjø ble det imidlertid kun analysert i lever, men antar vi at konsentrasjonen av PFOS i muskel er omlag 4

% av den i lever (se kap. 4.5.2) vil estimert gjennomsnitt i muskel være henholdsvis 7 og 14 ng/g våtvekt - hvilket er like under og over EQS-verdien på 9,1 ng/g våtvekt.



Figur 16. Fordeling (midlere konsentrasjoner) av ulike PFAS-forbindelser i fisk (lever) og zooplankton i de undersøkte innsjøene i 2015. Analyseresultater under kvantifikasjonsgrensen er byttet ut med halve grensen.

4.5.2 Konsentrasjoner av PFAS i muskel vs. lever

I de tidligere overvåkningsundersøkelsene av PFAS i ferskvannsfisk (Fjeld et al. 2014, Fjeld et al. 2013) har PFAS kun vært analysert i muskelprøver. Da nivåene i disse vanligvis har vært lave og ofte under kvantifikasjonsgrensene, anbefalte vi at det burde vurderes å analysere PFAS i andre matrikser enn muskel. Gode alternativer er lever, galle og blod, hvor konsentrasjonene kan forventes å være høyere på grunn av bindinger til proteiner i blod og til gallesalter (Lau et al. 2007; Stahl et al. 2011; Naile et al. 2013; Ng and Hungerbühler 2013).

Undersøkelsene i 2015, som i 2014, hadde derfor lever som hovedmatriks for analyser av PFAS. Det ble kun analysert på et mindre antall blandprøver av muskel ($n = 15$) for å kunne kartlegge forholdet mellom nivåene i lever og muskel, samt for å kunne sammenlikne nivåene mot tidligere resultater. Til blandprøvene av muskel ble det brukt samme individer som det ble tatt individuelle leverprøver fra.

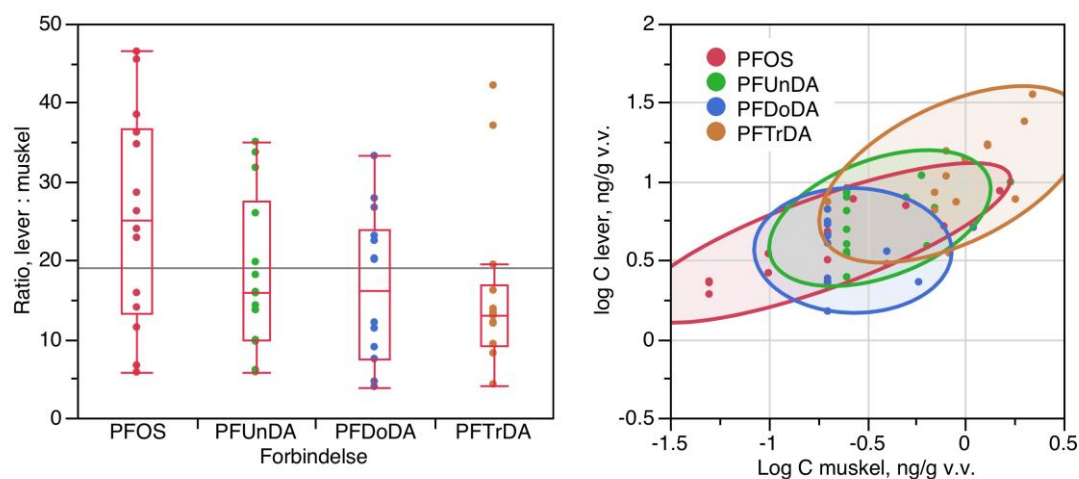
For fire forskjellige PFAS-forbindelser ble det funnet tilstrekkelig med analyser over kvantifikasjons-grensene til at vi kunne sammenlikne nivåene i lever mot muskel (Tabell 9, Figur 12), og konsentrasjonene i lever var til dels betydelig høyere enn i muskel. For PFOS var gjennomsnittsnivåene i lever 25 ganger høyere enn i muskel; for de langkjedede perfluoreerte karboksyl-syrene var forholdstallet i området 16-18.

Korrelasjonene mellom nivåene i lever og muskelprøvene varierte for de ulike forbindelsene: for PFOS og PFTrDA var korrelasjonene (r) henholdsvis 0,80 og 0,53 og statistisk signifikante, mens det for de to andre forbindelsene kun ble påvist lavere og ikke-signifikante verdier. De svake korrelasjonene skyldes trolig delvis at den relative analyse-usikkerheten blir stor når

det er så vidt lave nivåer som påvises i muskelprøvene (mange var like over LOQ). Dette gjør det vanskelig å etablere pålitelige relasjoner mellom konsentrasjonene i lever og muskel. Bossi et al. (2015) viser at konsentrasjonen av ulike PFAS i røye (*Salvelinus alpinus*) fra Grønland og Svalbard er 10 ganger høyere eller mer i lever enn i muskel. Vi finner imidlertid at sammenhengene kan være svake, og det er derfor vanskelig å gi noe enkel skaleringsfaktor for omregning av lever- til muskelkonsentrasjoner. For beregning av muskelverdier i abbor fra Tyrifjorden og Vansjø (kap. 4.5.1.) har vi imidlertid satt at muskelkonsentrasjonen er 4 % av leverkonsentrasjonen.

Tabell 9. Forholdet (ratio) mellom PFAS-konsentrasjoner i lever- og i muskelprøver av fisk fanget i Mjøsa, Randsfjorden og Femunden 2015. Korrelasjonene (r) og signifikansnivået (p) er òg gitt.

forbindelse	n	ratio, gjennomsnitt	ratio, SD	r	p
PFOS	14	25,5	13,6	0,80	0,0006
PFUnDA	14	18,3	9,8	0,33	0,12
PFDoDA	14	16,4	9,5	0,02	0,95
PFTTrDA	14	15,6	11,0	0,53	0,05



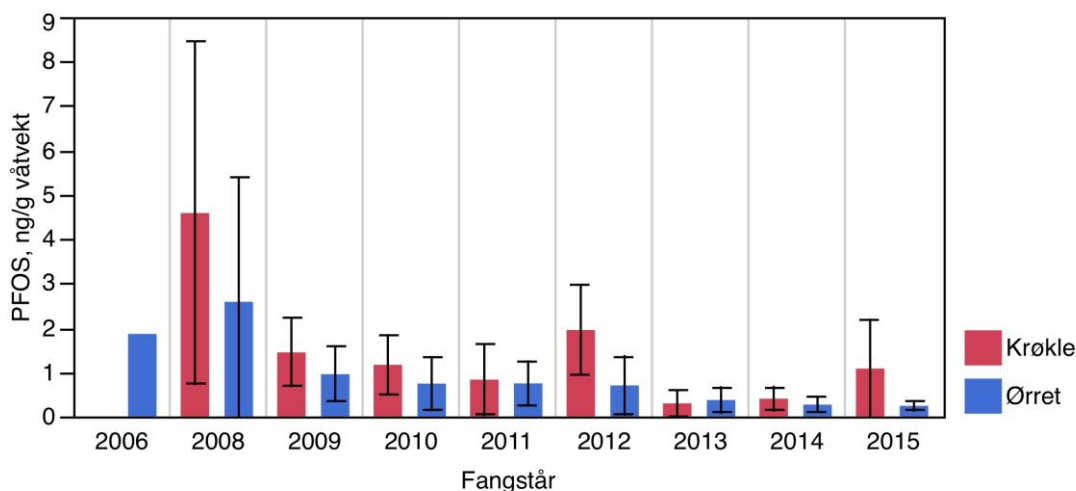
Figur 17. Konsentrasjoner perfluorerte stoffer (PFAS) i lever- og i muskelprøver av fisk fanget i Mjøsa, Randsfjorden og Femunden 2015. Venstre figur viser midlere konsentrasjoner i de to prøvetypene, beregnet ut fra de samme individene. Høyre figur viser et spredningsplot (m. 90 % konfidensellipser) mellom konsentrasjoner i lever- og muskelprøver.

4.5.3 Tidstrend av PFAS i Mjøsa

For Mjøsa har det vært analysert for PFAS i fisk siden 2006 (Fjeld et al. 2013), og vi finner at konsentrasjonen av PFOS har vært i tilbakegang siden 2008 og fram til 2015 (Figur 18). For ørret er konsentrasjonen i muskelvev i denne perioden redusert fra omlag 0,9 til 0,2 ng/g våtvekt. For krøkle er konsentrasjonen redusert fra omlag 4,3 ng/g i 2006 og til 1,1 ng/g i 2015.

Som tidligere nevnt (Fjeld et al. 2015) er konsentrasjonen av PFOS i muskelprøver av fisk fra Mjøsa innenfor variasjonsbredden rapportert i tidligere undersøkelser fra ferskvanns-

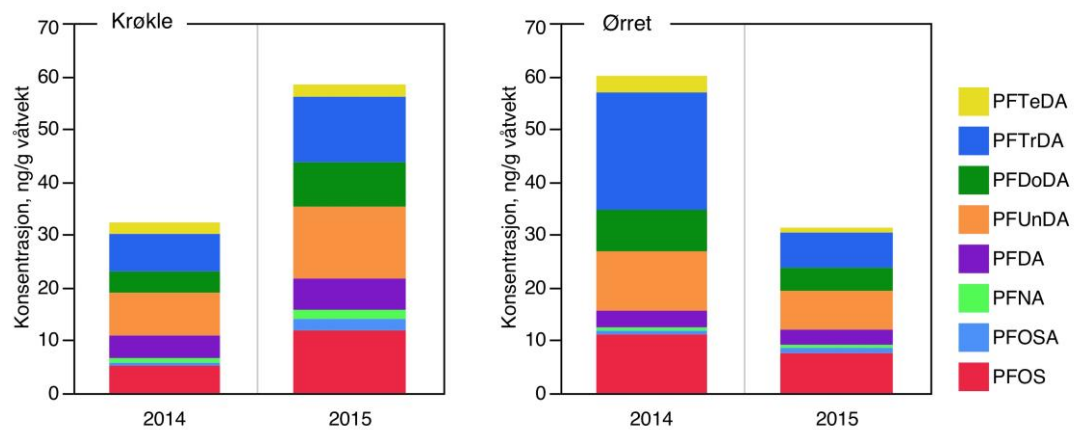
forekomster uten kjente store punktutslipp. I en screening-undersøkelse fra 2004 var konsentrasjonene av PFOS i muskel fra ulike arter ferskvannsfisk <math><0,002 - 3,99 \text{ ng/g}</math> våtvekt (Fjeld et al. 2005). I en regional undersøkelse fra Sør-Norge i 2008 (Fjeld et al. 2008) ble det rapportert om konsentrasjoner av PFOS i muskel av ørret i området Salvelinus namaycush) i Ontariosjøen (Nord-Amerika). Her har konsentrasjonene i perioden 1997-2010 variert i området



Figur 18. Midlere konsentrasjon av PFOS i muskel av krøkle og ørret fanget i Mjøsa i perioden 2006 -2015. Konsentrasjoner under kvantifiseringsgrensen er byttet ut med halve grensen.

I vannforekomster i nærheten av norske flyplasser, hvor det i brannøvelser har vært benyttet slukningsmidler med PFAS, er det kjent at biota kan ha svært forhøyede konsentrasjoner av PFOS. For ørret har det vært rapportert om konsentrasjoner på

For lever, hvor langt fler av PFAS-forbindelser er over kvantifiseringsgrensen, har vi kun analyser fra 2014 og 2015 (Figur 19). Konsentrasjonene i ørret var generelt høyere i 2014 enn i 2015, mens det omvendte forholdet var tilfelle for røye - uten at vi kan peke på noe spesielle forhold som kan forklare dette mønsteret. Forholdet mellom de enkelt komponentene var imidlertid konsistent mellom artene og år: Av de langkjede perfluorerte karboksylsyrene dominerte PFTrDa og PFUnDa (C13- og C11-kjeder). Videre bidro PFOS også til en vesentlig andel av den totale PFAS-konsentrasjonen. Sammen utgjorde disse tre forbindelsene omlag



Figur 19. Midlere konsentrasjon av perfluoreerte stoffer (PFAS) i leverprøver av krøkle og ørret fanget i Mjøsa i perioden 2014 og 2015. Konsentrasjoner under kvantifiseringsgrensen er byttet ut med halve grensen.

4.6 Polybromerte difenyletere, PBDE

4.6.1 Konsentrasjoner av PBDE i 2015

Det ble analysert for PBDE i muskelprøver av fisk, samt i krepsdyrplankton fra Mjøsa. Kvantifikasjonsgrensen (LOQ) for de enkelte PBDE-kongenerene var 0,01 ng/g våtvekt, med unntak for BDE-209 hvor den for et fåtall var mellom 0,01 og 0,16 ng/g våtvekt. I Tabell 10 har vi vist prosentandelen analyser >LOQ for de seks vanligst forekommende PBDE-kongenerene og for den fullbromerte BDE-209.

Tabell 10. Andel (%) av prøver hvor konsentrasjonene av de syv vanligste kongener av polybrominerte difenyletere (PBDE) i tetra-, penta- og heksa-gruppen (BDE-28 : BDE-154) og den fullbromerte kongeneren BDE-209 oversteg kvantifikasjonsgrensen (\geq LOQ) i prøver av fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2015. (LOQ for BDE-28 – BDE-154: 0,002–0,003 ng/g våtvekt; LOQ for BDE-209: 0,02–0,03 ng/g våtvekt)

Art/gruppe	Lokaliter	N	BDE-28	BDE-47	BDE-49	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-209
Zoopl. epi.	Mjøsa	3	0%	100%	0%	100%	100%	0%	100%	0%
Mysis	Mjøsa	3	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	0%
Krøkle	Mjøsa	15	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	20%
Ørret	Mjøsa	15	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	0%
Krøkle	Randsfjorden	9	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	11%
Røye	Randsfjorden	5	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	0%
Ørret	Randsfjorden	10	100%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	0%
Sik	Femunden	15	13%	93%	100%	100%	100%	93%	100%	0%
Ørret	Femunden	15	33%	93%	93%	100%	100%	100%	100%	7%
Abbor	Tyrifjorden	5	20%	80%	80%	100%	100%	80%	100%	40%
Abbor	Vansjø	5	20%	100%	100%	100%	100%	100%	100%	40%

Konsentrasjonen av PBDE i fisk, målt som summen av de seks vanligst forekommende kongener av tetra-, penta- og heksa-BDE, samt deka-BDE, var høyest i Mjøsa og lavest i Femunden (Tabell 11, Figur 20). Midlere sum varierte mellom 0,3-22,5 ng/g våtvekt eller omlag 30-560 ng/g lipid, høyest i ørret fra Mjøsa og lavest i sik fra Femunden. Tilsvarende konsentrasjoner i epipelagisk zooplankton fra Mjøsa var 0,2 ng/g våtvekt og 41 ng/g lipid. Vannforskriftens EQS-verdi for Σ PBDE i biota er 0,0085 ng/g våtvekt, og samtlige prøver hadde konsentrasjoner høyere enn denne.

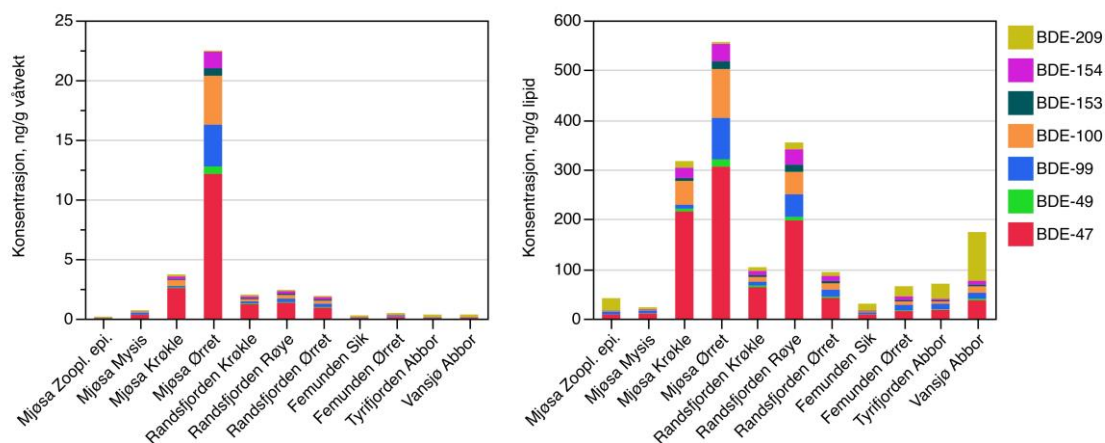
Den fullbromerte kongeneren BDE-209 var tilstede i kvantifiserbare konsentrasjoner i kun 23 % av prøvene, og etter å ha substituert <LOQ-verdiene med halve grensen var de estimerte middelkonsentrasjoner for de ulike organismene fra de enkelte sjøene i området 0,1-0,2 ng/g våtvekt (4-98 ng/g lipid). Det er vist at noen arter fisk kan oppta BDE-209 gjennom føden, men at den raskt debromineres til andre kongenerer og da særlig til slutt BDE-154 (Kierkegaard et al. 1999; Stapleton et al. 2004a og b; Stapleton et al. 2006; Noyes et al.

2011). Biotilgjengeligheten av BDE-209 synes imidlertid å være lav, og i de refererte arbeidene meldes det om at absorpsjonen over tarmepitelet var i området <0,13-3,2 %. I vår undersøkelse var det ingen tendens til at konsentrasjonen av BDE-209 økte med trofisk nivå, og på grunn av de generelt lave nivåene går vi ikke inn i en videre diskusjon om denne kongeneren.

Av de seks vanligst forekommende kongenerene dominerte tetra-kongeneren BDE-47 med en andel på omlag 30-70 %. I fisk var forekomsten av denne kongeneren høyest i Mjøsa og lavest i Femunden.

Tabell 11. Midlere konsentrasjon og prosentandel seks vanligste kongener av polybrominerte difenyletere (PBDE) i tetra-, penta- og hekso-gruppen (BDE-47 : BDE-154) og den fullbromerte kongeneren BDE-209 i prøver av fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2015. Konsentrasjoner under kvantifikasjonsgrensen er byttet ut med halve grensen. \bar{x} : middelerverdi, SD: standard avvik.

ng/g våtvekt		BDE-47		BDE-49		BDE-99		BDE-100		BDE-153		BDE-154		BDE-209		sum	sum
Lokalitet	Lok Art	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD
Mjøsa	Zoopl. epi.	0,03	0,00	0,00	0,00	0,02	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,10	0,00	0,2	0,0
	Mysis	0,32	0,05	0,02	0,00	0,16	0,04	0,06	0,01	0,01	0,00	0,03	0,01	0,10	0,00	0,7	0,1
	Krøkle	2,55	1,44	0,07	0,04	0,11	0,05	0,51	0,34	0,07	0,04	0,23	0,14	0,17	0,09	3,7	1,9
	Ørret	10,71	8,33	0,55	0,50	3,09	2,62	3,62	3,16	0,55	0,44	1,23	0,96	0,10	0,00	22,5	15,4
Randsfjorden	Krøkle	1,22	0,51	0,07	0,02	0,15	0,05	0,18	0,08	0,07	0,02	0,17	0,06	0,15	0,06	2,0	0,7
	Ørret	0,92	0,77	0,06	0,05	0,26	0,17	0,26	0,21	0,09	0,07	0,21	0,15	0,10	0,00	1,9	1,4
	Røye	1,33	0,32	0,05	0,01	0,29	0,10	0,31	0,07	0,10	0,02	0,22	0,04	0,10	0,00	2,4	0,6
Femunden	Sik	0,07	0,06	0,01	0,00	0,03	0,01	0,02	0,01	0,01	0,00	0,01	0,01	0,13	0,00	0,3	0,1
	Ørret	0,11	0,07	0,01	0,01	0,08	0,06	0,05	0,04	0,02	0,01	0,05	0,04	0,14	0,04	0,5	0,2
Tyrifjorden	Abbor	0,06	0,07	0,01	0,01	0,04	0,05	0,02	0,02	0,01	0,01	0,01	0,01	0,20	0,15	0,3	0,2
Vansjø	Abbor	0,07	0,02	0,01	0,00	0,02	0,00	0,02	0,01	0,01	0,00	0,02	0,00	0,19	0,13	0,3	0,1
ng/g lipid		\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD
Mjøsa	Zoopl. epi.	8,1	4,1	0,3	0,1	5,6	2,8	1,0	0,5	0,3	0,1	0,7	0,3	25,1	12,1	41	20
	Mysis	10,3	0,9	0,6	0,1	5,2	0,4	1,9	0,2	0,3	0,0	1,0	0,1	3,3	0,6	23	2,0
	Krøkle	215,5	235,9	5,7	4,1	7,9	4,8	47,9	71,3	5,9	6,4	20,7	25,0	13,4	8,4	320	350
	Ørret	278,6	150,2	13,4	6,0	76,2	38,0	89,5	49,2	14,2	7,3	32,4	15,1	3,8	3,0	560	240
Randsfjorden	Krøkle	63,0	41,1	3,5	1,5	7,6	2,9	9,6	6,6	3,4	1,3	8,7	4,2	7,7	5,6	100	62
	Ørret	41,4	20,0	2,8	1,2	14,1	7,3	12,7	5,8	4,5	1,9	10,3	3,9	8,0	5,7	94	38
	Røye	197,5	177,6	7,2	6,0	45,3	44,9	45,3	40,7	14,3	12,3	30,9	25,2	13,8	9,8	350	320
Femunden	Sik	8,5	12,2	0,7	0,6	3,1	1,3	1,8	1,6	0,5	0,2	1,4	0,4	13,9	6,2	30	21
	Ørret	14,9	10,4	1,6	1,3	11,1	9,0	6,9	5,8	2,6	2,3	7,3	6,4	20,7	12,0	65	41
Tyrifjorden	Abbor	17,6	34,0	1,4	2,6	10,7	21,5	4,9	9,3	2,0	3,8	3,4	6,4	30,4	38,3	70	120
Vansjø	Abbor	36,9	11,4	3,1	1,2	12,1	4,7	12,9	5,8	3,3	1,0	7,8	2,6	98,0	69,1	170	71



Figur 20. Midlere konsentrasjon av polybromerte difenyletere (PBDE) i fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2015. Det er her vist de syv vanligst forekommende kongenere. Konsentrasjonene er oppgitt på henholdsvis våtvekt- (venstre figur) og lipidvektbasis (høyre figur). Konsentrasjoner under kvantifiseringsgrensen (< LOQ) er byttet ut med halve kvantifiseringsgrensen (LOQ/2).

4.6.2 Tidstrend av PBDE i Mjøsa

Konsentrasjonene av PBDE i ørret fra Mjøsa har sunket markert siden de maksimale nivåene på omlag 5400 ng/g lipid på begynnelsen av 2000-tallet, da det var betydelige lokale tilførsler fra en tekstilbedrift ved Lillehammer, og til dagens nivå på 560 ng/g lipid (Figur 21).

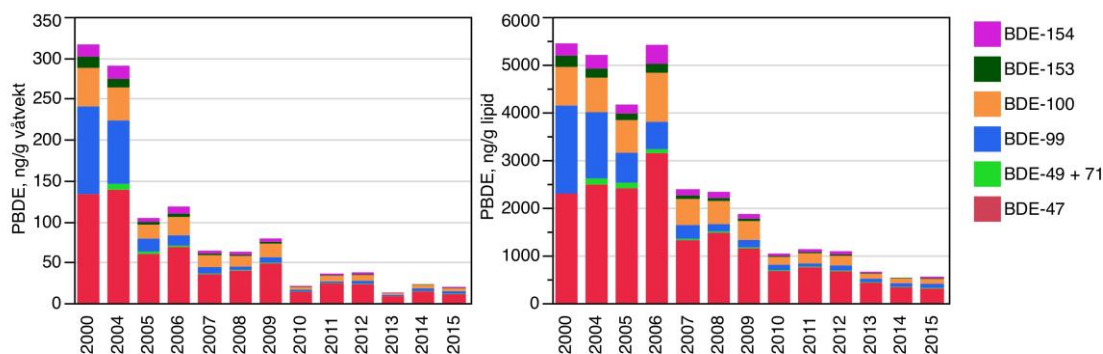
Utslippene pågikk trolig i perioden fra midten av 1990-tallet til tidlig 2000-tallet. En Mann-Kendal test viste at det var en signifikant negativ trend (Kendall $\tau = -0,90$, $p = <0,0001$).

Konsentrasjonene av PBDE i Mjøsa var på begynnelsen av 2000-tallet blant de høyeste som internasjonalt er observert i laksefisk. Midlere konsentrasjon i et utvalg på 10 ørret fisket i 2000 (gjennomsnittsvekt: 3,5 kg), var 5 450 ng/g lipid (Figur 21). De individuelle nivåene varierte mellom 3 300-17 500 ng/g lipid. Til sammenlikning rapporterte Manchester-Neesvig *et al.* (2001) for innsjølevende laks av artene Coho (*Oncorhynchus kisutch*) og Chinook (*O. tshawytscha*) fra Lake Michigan, USA, om et gjennomsnittlig nivå av PBDE på 2 440 ng/g lipid. Dette ble da karakterisert som «blant de høyeste i verden observert for laks i åpent vann».

Selv om konsentrasjonene i Mjøsørreten sank til omlag 560 ng/g lipid i 2014, det vil si ca. 10 % av de høye nivåene som ble funnet på begynnelsen av 2000-tallet, så er de fortsatt forhøyet sammenliknet med andre storørretbestander fra innsjøer uten store punktutslipp. Til sammenlikning var konsentrasjonene av PBDE i storørret fra Vänern og Vättern på begynnelsen av 2000-tallet betydelig lavere enn i Mjøsa, med middelkonsentrasjoner i området 200-260 ng/g lipid (Øberg 2003).

I trendfiguren kommer det fram at andelen av BDE-99 synker markert med tiden, noe som trolig er en «aldri-effekt» av de tidligere lokale utslippene av PBDE ved Lillehammer. Det er kjent at penta-forbindelsen BDE-99 biotransformeres (debromineres) og danner den mer stabile tetra-kongenere BDE-47 (Streets *et al.* 2006, Benedict *et al.* 2007). Vi ser i tidsserien av ørret i Mjøsa hvor andelen BDE-47 har økt fra 42 % i år 2000 og til 59 % i år 2014, men med en mindre reduksjon til 48 % i 2015 (Figur 21). Den kommersielle pentaBDE-blandingen, som disse kongenere tilhører, har diverse toksikologiske effekter – blant annet på lever, nervesystem og omsetningen av tyroidhormoner hos høyerestående organismer (ECHA 2001;

ATSDR 2004; UNEP 2006). Dette, samt synergistiske effekter av kongenerene (Tagliaferri et al. 2010) gjør det til en vanskelig oppgave å vurdere i hvilken grad debromineringen av BDE-99 til BDE-47 har noen vesentlig betydning for giftigheten av blandingen.

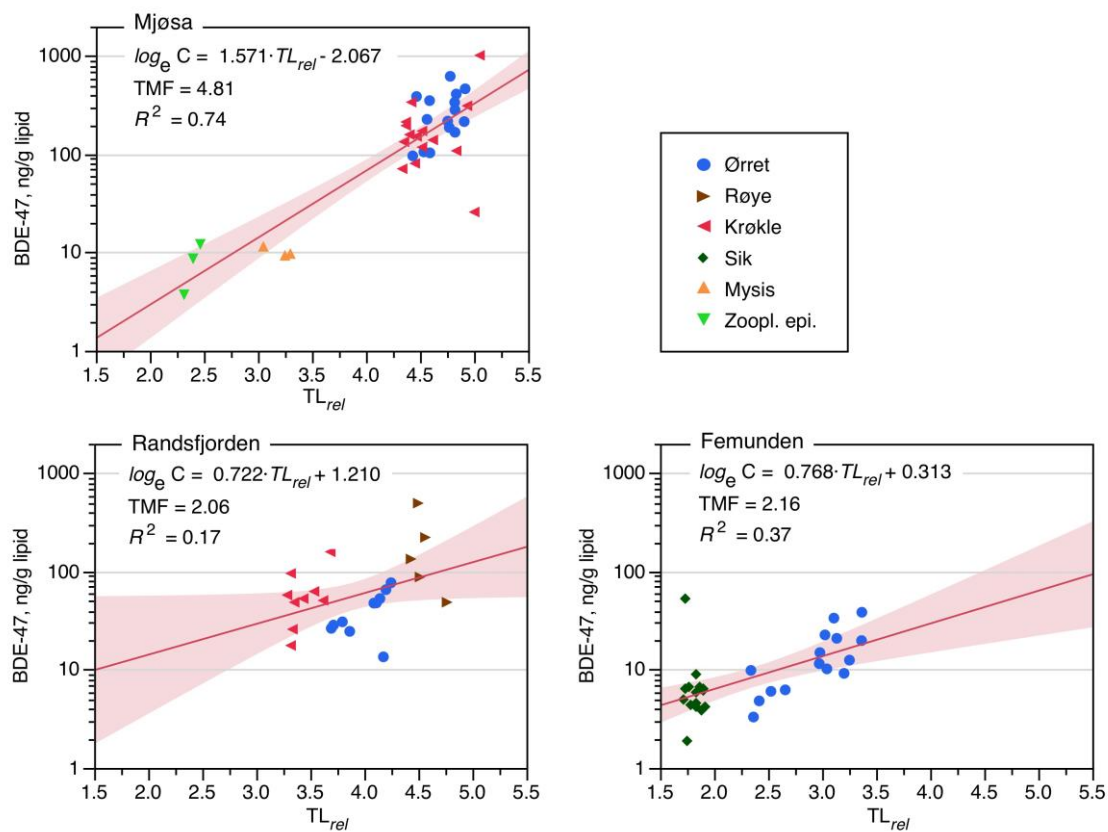


Figur 21. Midlere konsentrasjon av polybromerte difenyletere (PBDE) i muskelprøver av ørret fra Mjøsa, fanget i perioden 2000 - 2015. Det er her vist de vanligst forekommende kongenerene. Konsentrasjonene er oppgitt på henholdsvis våtvekt (venstre figur) og lipidvektbasis (høyre figur). Konsentrasjoner under kvantifiseringsgrensen (<LOQ) er byttet ut med halve grensen). Data fra 2000 - 2012 er fra Fjeld et al. (2013).

4.6.3 Trofisk magnifisering av PBDE

I både Mjøsa, Randsfjorden og Femunden økte konsentrasjonen av de seks vanligst forekommende PBDE-kongenerene med $\delta^{15}N$ -forholdet i organismene, og vi har illustrert dette ved å beregne regresjonene av den dominerende kongeneren BDE-47 på relativt trofisk nivå (T_{rel}) - på samme måte som for siloksaner (Figur 22). Regresjonene var signifikante, det vil si at BDE-47 biomagnifiserte.

For Randsfjorden og Femunden var zooplankton ikke inkludert i undersøkelsen. Blant zooplanktonet finnes primærkonsumentene i det pelagiske næringsnett, og beregningen av trofisk magnifikasjonsfaktor (TMF) vil være usikker så lenge den ikke er basert på et balansert utvalg organismer fra hele næringsnett (Borgå et al. 2012a). Tatt i betraktning at $\delta^{15}N$ -forholdet i Mjøsa også viser årlige variasjoner, og vi derfor ikke har fullt ut pålitelige data for bunnlinjekorrigerende av N-isotopforholdet, fant vi det riktigst å benytte samme framgangsmåte som for siloksaner og beregne en TMF basert på relativt trofisk nivå. TMF for BDE-47 varierte mellom sjøene, fra 2,06 i Femunden og til 4,81 i Mjøsa. For Mjøsa er dette en TMF-verdi, som i likhet med PCB, er betydelig større enn de vi beregnet for siloksanforbindelsene D5 (2,28) og D6 (2,29).



Figur 22. Forholdet mellom BDE-47 (lipidnormalisert) og relativt trofisk nivå (TL_{rel}) i fisk (muskel) og zooplankton, fanget 2015. Regresjonslinje med 95 % konfidensbånd mellom konsentrasjon (\log_e -transformert) og relativt trofisk nivå er inntegnet.

5. Ekstra kjemiske analyser

Her gis en analysetabell for en opsjon som ikke inngår i det ordinære prøvetakingsprogrammet. Det har blitt analysert for utvalgte organiske miljøgifter og tungmetaller i blandprøver av muskel fra abbor fra Tyrifjorden og Randsfjorden. For denne opsjonen finnes EQS-grenseverdier for sum HBCDD (heksabrom-syklododekan), S/MCCP (kort- og langkjedede klorerte parafiner) og sum DDT. Samtlige prøver hadde konsentrasjoner under EQS-grensene. Tungmetallene ble påvist i konsentrasjoner lavere enn øvre grense for normalintervallet til ferskvannsfisk (Grande 1987).

Tabell 12. Analyser av utvalgte forbindelser og tungmetaller som ikke inngår i det ordinære prøvetakingsprogrammet. Det er analysert i blandprøver av muskel fra abbor i Tyrifjorden og Vansjø.

NILU ID	15/1560	15/1561	15/1562	15/2726	15/2727	15/2728	EQS	
Lokaliter	Tyrifjorden	Tyrifjorden	Tyrifjorden	Vansjø	Vansjø	Vansjø		
art	Abbor	Abbor	Abbor	Abbor	Abbor	Abbor		
lengde, cm	30	26	27	27	23	18		
vekt, g	358	203	241	285	159	71		
fisk per prøve	5	5	5	5	5	5		
Analytt	Enhet							
a-HBCDD	ng/g v.v.	0.14	0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	sum:
b-HBCDD	ng/g v.v.	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	
g-HBCDD	ng/g v.v.	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	167
TBBPA	ng/g v.v.	<1	<1	<1	<1	<1	<1	
SCCP	ng/g v.v.	1.30	0.70	1.20	1.00	1.50	1.30	6000
MCCP	ng/g v.v.	0.20	<0.02	1.30	0.40	0.10	0.40	170
o,p'-DDE	ng/g v.v.	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
p,p'-DDE	ng/g v.v.	3.74	1.20	1.09	0.90	1.43	0.96	
o,p'-DDD	ng/g v.v.	0.04	0.08	0.08	0.01	0.01	0.02	
p,p'-DDD	ng/g v.v.	0.13	0.15	0.14	0.04	0.06	0.11	
o,p'-DDT	ng/g v.v.	0.12	0.10	0.15	<0.01	0.02	0.02	
p,p'-DDT	ng/g v.v.	0.69	0.27	0.27	0.07	0.12	0.13	
Sum DDT	ng/g v.v.	4.72	1.79	1.72	1.01	1.63	1.25	609
Ni	mg/kg v.v.	0.007	0.006	0.005	0.012	0.018	0.011	
Cd	mg/kg v.v.	0.0049	0.0011	0.0010	0.0003	0.0003	0.0003	
Pb	mg/kg v.v.	0.002	0.002	0.002	0.001	0.002	0.003	

NILU ID	15/2731	15/2732	15/2733	15/2736	15/2737	15/2738	EQS	
Lokaliter	Femunden	Femunden	Femunden	Mjøsa	Mjøsa	Mjøsa		
art	Ørret	Ørret	Ørret	Ørret	Ørret	Ørret		
lengde, cm	38	41	43	75	84	60		
vekt, g	615	753	911	5432	7754	3000		
fisk per prøve	5	5	5	5	5	5		
Analytt	Enhet							
a-HBCDD	ng/g v.v.	0.06	0.13	0.28	6.49	12.5	12.0	5.1.1.1.1 sum:
b-HBCDD	ng/g v.v.	<0.01	<0.01	<0.01	0.04	0.04	0.04	
g-HBCDD	ng/g v.v.	<0.01	<0.01	0.01	0.13	0.23	0.24	167
TBBPA	ng/g v.v.	<1	<1	<1	<1	<1	<1	
SCCP	ng/g v.v.	1.10	1.70	0.90	3.00	4.70	3.90	6000
MCCP	ng/g v.v.	3.00	1.40	0.50	0.60	1.60	0.60	170
o,p'-DDE	ng/g v.v.	0.00	0.00	0.00	0.01	<0.02	<0.02	
p,p'-DDE	ng/g v.v.	0.45	0.77	1.32	20.3	43.6	42.1	
o,p'-DDD	ng/g v.v.	0.00	0.01	0.01	0.09	0.15	0.21	
p,p'-DDD	ng/g v.v.	0.01	0.03	0.03	1.12	1.87	1.93	
o,p'-DDT	ng/g v.v.	0.01	0.03	0.05	0.58	1.14	1.06	

p,p'-DDT ng/g v.v.	0.04	0.06	0.10	4.40	5.71	6.28	
Sum DDT ng/g v.v.	0.51	0.89	1.50	26.5	52.4	51.6	609
Ni mg/kg v.v.	0.005	0.008	0.004	0.016	0.006	0.022	
Cd mg/kg v.v.	0.0004	0.0005	0.0006	0.0012	0.0012	0.0011	
Pb mg/kg v.v.	0.003	0.003	0.004	0.002	0.003	0.003	

NILU ID	15/2862	15/2863	15/2864	EQS	
Lokaliter	Randsfjorden	Randsfjorden	Randsfjorden		
art	Ørret	Ørret	Ørret		
lengde, cm		34.40	56.60	54.30	
vekt, g		521	2070	1930	
fisk per prøve		4	4	2	
Analytt Enhet					
a-HBCDD ng/g v.v.		0.51	0.88	1.35	sum:
b-HBCDD ng/g v.v.		0.01	0.02	0.05	
g-HBCDD ng/g v.v.		0.04	0.07	0.12	167
TBBPA ng/g v.v.		<1	<1	<1	
SCCP ng/g v.v.		2.70	1.70	2.60	6000
MCCP ng/g v.v.		0.30	0.20	0.20	170
o,p'-DDE ng/g v.v.		0.01	0.00	0.02	
p,p'-DDE ng/g v.v.		3.42	6.74	9.21	
o,p'-DDD ng/g v.v.		0.02	0.02	0.05	
p,p'-DDD ng/g v.v.		0.24	0.42	0.64	
o,p'-DDT ng/g v.v.		0.08	0.10	0.25	
p,p'-DDT ng/g v.v.		0.86	1.58	2.94	
Sum DDT ng/g v.v.		4.64	8.85	13.1	609
Ni mg/kg v.v.		0.026	0.007	0.008	
Cd mg/kg v.v.		0.0004	0.0010	0.0003	
Pb mg/kg v.v.		0.005	0.005	0.002	

6. Referanser

ATSDR. 2006. Toxicological Profile for PBBs and PBDEs. United States Department of Health and Human Services. Agency for Toxic Substances and Disease Registry. 564 pp.

Benedict R.T., Stapleton H.M., Letcher R.J., and Mitchelmore C.L. 2007. Debromination of polybrominated diphenyl ether-99 (BDE-99) in carp (*Cyprinus carpio*) microflora and microsomes. *Chemosphere* 69: 987-93.

Bengtson Nash, S.M., Waugh, C.A., Schlabach, M. (2013) Metabolic Concentration of Lipid Soluble Organochlorine Burdens in the Blubber of Southern Hemisphere Humpback Whales Through Migration and Fasting. *Environmental Science & Technology*, 47, 9404-9413. doi:10.1021/es401441n

Berge, D., Skurdal, J., Skogheim, O., Qvenild, T. og Hongve, D. 1983. Kvikksølvforurensning og andre tungmetaller. s. 24–129 i: D. Berge (red.): Tyrifjorden, Tyrifjordundersøkelsen 1978-1981, Sammenfattende sluttrapport. ISBN 82-90356-31-5.

Bhavsar, S.P., Gewurtz, S.B., McGoldrick, D.J., Keir, M.J., and Backus, S.M. 2010. Changes in mercury levels in Great Lakes fish between 1970s and 2007. *Environ Sci Technol* 44: 3273-3279

Borgå, K., Kidd, K.A., Muir, D.C.G., Berglund, O., Conder, J.M., Gobas, F.A.P.C., Kucklick, J., Malm, O., and Powell, D.E. 2012a. Trophic magnification factors: Considerations of ecology, ecosystems, and study design. *Integr. Environ. Assess. Manage.*, 8: 64–84.

Borgå, K., Fjeld, E., Kierkegaard, A., and McLachlan, M.S. 2012b. Food Web Accumulation of Cyclic Siloxanes in Lake Mjøsa, Norway. *Environ Sci Technol* 46: 6347-6354.

Borgå, K., Fjeld, E., Kierkegaard A., Løvik, J.E., Rognerud; S., Høgfeldt, A., Bek, K., and McLachlan, M.S. 2013a. Siloxanes in freshwater food webs - a study of three lakes in Norway. Miljødirektoratet rapport M-81/2013. 36 s.

Borgå, K., Fjeld, E., Kierkegaard, A., and McLachlan, M.S. 2013b. Consistency in trophic magnification factors of cyclic methyl siloxanes in pelagic freshwater food webs leading to brown trout. *Environ Sci Technol* 47(24): 14394-14402

Bossi, R. Dam, M. and Riget, F.F. 2015. Perfluorinated alkyl substances (PFAS) in terrestrial environments in Greenland and Faroe Islands. *Chemosphere* 129: 164-169.

Cantillana, T. and Aune, M. 2012. Dioxin- och PCB-halter i fisk och andra livsmedel 2000-2011. Livsmedelsverkets rapportserie nr. 21/2012.

Dudzina, T., Goetz, von, N., Bogdal, C., Biesterbos, J.W.H., and Hungerbühler, K. 2014. Concentrations of cyclic volatile methylsiloxanes in European cosmetics and personal care products: Prerequisite for human and environmental exposure assessment. *Environ Int* 62: 86-94

- ECHA. 2001. European Union Risk Assessment Report Dinophenyl ether, pentabromo derivative, Volume 5. EUR 19730. 282 pp.
- Environment Canada, 2013. Perfluorooctane Sulfonate (PFOS) in Fish and Water data. <http://www.ec.gc.ca/indicateurs-indicators/default.asp?lang=en&n=338E3978-1#pfos2>
- Ellis, D.A., Martin, J.W., De Silva, A.O., Mabury, S.A., Hurley, M.D., Sulbaek Andersen, M.P., and Wallington, T.J. 2004. Degradation of Fluorotelomer Alcohols: A Likely Atmospheric Source of Perfluorinated Carboxylic Acids. **38**(12): 3316-3321. doi: 10.1021/es049860w.
- Fisk, A.T., Hobson, K.A., and Norstrom, R.J. 2001. Influence of chemical and biological factors on trophic transfer of persistent organic pollutants in the northwater polynya marine food web. *Environ. Sci. Technol.*, 35: 732-738.
- Fjeld, E. 1999. Miljøgifter i fisk fra Randsfjorden, 1998. Kvikksølv og klororganiske forbindelser. NIVA rapport, OR-4073. 29 s.
- Fjeld, E., Knutzen, J., Brevik, E., Schlabach, M., Skotvold, T., Borgen, A., Wiborg, M.L, 2001. Halogenerte organiske miljøgifter og kvikksølv i norsk ferskvannsfisk 1995-1999. SFT rapport TA-1813/2001. 48 s.
- Fjeld, E., Lien, L., Rognerud, S., Underdal, B. (NVH), 1999. Miljøgiftundersøkelse i Drammenselva 1997-1998. Tungmetaller og organiske mikroforurensninger i fisk, moser og muslinger. Norsk institutt for vannforskning (NIVA). Rapport 1. nr OR-4060. 37 s.
- Fjeld, E. og Rognerud, S. 2009. Miljøgifter i ferskvannsfisk, 2008. Kvikksølv i abbor og organiske miljøgifter i ørret. Statlig program for forurensningsovervåkning. SFT. TA-2544/2009. 66 s. + vedlegg.
- Fjeld, E., Enge, E.K., Rognerud, S, Rustadbakken, A. og Løvik, J.E. 2009 (a). Miljøgifter i fisk og zooplankton i Mjøsa - 2008. Bromerte flammehemmere (PBDE, HBCDD), PCB, dioksiner, klorerte parafiner, perfluoreerte stoffer og kvikksølv. SFT rapport, TA-2483/2009. 49 s. + vedlegg.
- Fjeld, E. Rognerud, S. og Johansen, I. 2009 (b). Kvikksølv i ørret fra Sør-Norge, 2008. Statlig program for forurensningsovervåkning, SFT. Rapport TA-2580/2009. 20 s. + vedlegg
- Fjeld, E., Rognerud, S., Katrin Enge, E., Borgen, A.R., og Dye, C. 2006. Miljøgifter i sedimenter fra Mjøsa, 2005-2006. SFT Rapport, TA-2210/2006. 53 s.
- Fjeld, E., Enge, E.K., Rognerud, S. Løvik, J.E. 2013. Miljøgifter i fisk og zooplankton i Mjøsa, 2012. Klif Rapport TA-3028/2013. 68 s.
- Fjeld, E., Bæk, K., Rognerud, S., Rundberget, J.T., Schlabach, M. and Warner, N.A. 2014. Miljøgifter i store norske innsjøer, 2013. Miljødirektoratet rapport, M-157/2014. 46 s.
- Forsvarsbygg Futura. 2014. PFAS ved luftforsvarets brannøvingsfelt. Resultater fra undersøkelser ved Rygge, Ørland, Bodø, Andenes, Bardufoss, Evenes, Banak og Høybuktmoen i 2013. Rapport nr. 551/2014.

- Forsvarsbygg Futura. 2016. PFAS ved Rygge flystasjon. Tiltaksvurderinger 1. mars 2016. Rapport nr. 867/2016.
- France, R. and Peters, 1997. Ecosystem differences in the trophic enrichment of C-13 in aquatic food webs. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* **54**: 1255-1258.
- Gandhi, N., Tang, R., Bhavsar, S.P., and Arhonditsis, G.B. 2014. Fish mercury levels appear to be increasing lately: a report from 40 years of monitoring in the Province of Ontario, Canada. *Environ Sci Technol*: 140331003843002. doi: 10.1021/es403651x.
- Galway, N.W. 2006. Introduction to mixed modelling. Beyond regression and analysis of variance. John Wiley and Sons, Ltd. West Sussex. England. 376 pp.
- Grande, M. 1987. "Bakgrunnivåer" av metaller i ferskvannsfisk. NIVA, rapport O-85167, Lnr. 1979. 34 s.
- Grandjean, P., Weihe, P., White, R.F., Debes, F., Araki, S., Yokoyama, K., Murata, K., Sorensen, N., Dahl, R., and Jorgensen, P.J. 1997. Cognitive deficit in 7-year-old children with prenatal exposure to methylmercury. *Neurotoxicol. Teratol.* **19**: 417-28.
- Grandjean, P., Weihe, P., White, R.F., and Debes, F. 1998. Cognitive performance of children prenatally exposed to "safe" levels of methylmercury. *Environ. Res.* **77**: 165-72.
- Huse, A. og Aas-Aune, S. 2009. Kartlegging av siloksaner. Kartlegging av bruk i Norge i 2008. COWI. Klif. Rapport TA-2557/2009. 46 s.
- Jia, H., Zhang, Z., Wang, C., and Hong, W.J. 2015. Trophic Transfer of Methyl Siloxanes in the Marine Food Web from Coastal Area of Northern China. *Environ Sci Technol* **49**(5): 2833-2840.
- Kelly, B.C., Ikonomou, M.G., Blair, J.D., SurrIDGE, B., Hoover, D., Grace, R., Gobas, F. A. P. C. 2009. Perfluoroalkyl contaminants in an arctic marine food web: Trophic magnification and wildlife exposure. *Environ. Sci. Technol.* **43**: 4037-4043.
- Kierkegaard, A., Balk, L., Tjärnlund, U., de Wit, C.A., and Jansson, B. 1999. Dietary Uptake and Biological Effects of Decabromodiphenyl Ether in Rainbow Trout (*Oncorhynchus mykiss*). *Environ Sci Technol* **33**(10): 1612-1617.
- Kierkegaard, A., Bignert, A. and McLachlan, M.S., 2013. Bioaccumulation of decamethylcyclopentasiloxane in perch in Swedish lakes. *Chemosphere*, **93**: 789-793.
- Kierkegaard, A., Bignert, A., and McLachlan, M.S. 2013. Cyclic volatile methylsiloxanes in fish from the Baltic Sea. *Chemosphere* **93**: 774-778.
- Kjellberg, G. og Løvik, J.E. 2000. PCB-konsentrasjoner i sedimenter fra NSBs båthavn i Åkersvika og fra Mjøsa utenfor Espern. Rapport fra undersøkelsen i 1999. NIVA rapport 4167-2000. 38 s.

- Lau, C., Anitole, K., Hodes, C., Lai, D., Pfahles-Hutchens, A., and Seed, J. 2007. Perfluoroalkyl Acids: A Review of Monitoring and Toxicological Findings. *Toxicol Sci* **99**(2): 366-394.
- Manchester-Neesvig, J.B., Valters, K., and Sonzogni, W.C, 2001. Comparison of polybrominated difenyl ethers (PBDEs) and polychlorinated biphenyls (PCBs) in Lake Michigan salmonids. *Environ. Sci. Technol.* **35**: 1072-1077.
- Martin, J.W., Smithwick, M.M., Braune, B.M., Hoekstra, P.F., Muir, D., and Mabury, S.A. 2004. Identification of long-chain perfluorinated acids in biota from the Canadian Arctic. *Environ. Sci. Technol.* **38**(2): 373-380.
- McGoldrick, D.J. et al., 2011. Assessing inter-laboratory comparability and limits of determination for the analysis of cyclic volatile methyl siloxanes in whole Rainbow Trout (*Oncorhynchus mykiss*). *Chemosphere* **85**: 1241-1247.
- McGoldrick, J. and Chan, C., and Drouillard, K.G., Keir, M.J, Clark, M.G. and Backus S.M. 2014. Concentrations and trophic magnification of cyclic siloxanes in aquatic biota from the Western Basin of Lake Erie, Canada. *Environmental pollution* **186**: 41-148.
- Miljødirektoratet. 2014. Kvalitetssikring av miljøstandarder. Rapport M-241|2014. 170 s. + vedlegg
- Miljøprøvebanken. 2013. Prosedyre 001: Innsamling og prøvetaking av ferskvannsfisk. 8 s.
- Monson, B. A. 2009. Trend Reversal of Mercury Concentrations in Piscivorous Fish from Minnesota Lakes: 1982–2006. *Environ. Sci. Technol.* **43**: 1750-1755.
- Munthe, J., Wängberg, I., Rognerud, S., Fjeld, E., Verta, M., Porvari, P., and Meili, M. 2007. Mercury in Nordic ecosystems. IVL Report B1761. 43 pp.
- Møskeland, T. 2010. Environmental screening of selected “new” brominated flame retardants and selected polyfluorinated compounds 2009. KLIF TA-2625
- Nash, S.M.B., Poulsen, A.H., Kawaguchi, S., Vetter, W., Schlabach, M. 2008. Persistent organohalogen contaminant burdens in Antarctic krill (*Euphausia superba*) from the eastern Antarctic sector: A baseline study. *Sci. Total Environ.*, **407**, 304-314.
- Naile, J. E. and others 2013. Distributions and bioconcentration characteristics of perfluorinated compounds in environmental samples collected from the west coast of Korea. *Chemosphere* **90**: 387-394.
- Nizzetto, P.B, Aas, P. and Krogseth, I.S. 2014. Monitoring of environmental contaminants in air and precipitation, annual report 2013. Norwegian Environment Agency, Report M202/2014. 72 pp.
- Ng, C.A., and Hungerbühler, K. 2013. Bioconcentration of Perfluorinated Alkyl Acids: How Important Is Specific Binding? *Environ Sci Technol*: **47**: 7214-7223.

- Norconsult. 2015. Fiskeundersøkelse 2014. Oppdragsnummer 5142611. Rapport 5142611-02. 29 s. + vedlegg.
- Noyes, P.D., Lema, S.C., Macaulay, L.J., Douglas, N.K., and Stapleton, H.M. 2013. Low Level Exposure to the Flame Retardant BDE-209 Reduces Thyroid Hormone Levels and Disrupts Thyroid Signaling in Fathead Minnows. *Environ Sci Technol* 47(17): 10012-10021.
- Post, D.M. 2002. Using stable isotopes to estimate trophic position: models, methods, and assumptions. *Ecology* 83:703-718
- Sandlund, O.D., O. Nashoug, G. Norheim, R. Høye og G. Kjellberg. 1981. Kvikksølv i fisk og evertebrater i Mjøsa og noen sjøer i Mjøsområdet, 1979-80. DVF- Mjøsundersøkelsen. Rapport nr. 4. 54 s. + bilag.
- Stapleton, H.M., Alaei, M., Letcher, R.J., and Baker, J.E. 2004a. Debromination of the Flame Retardant Decabromodiphenyl Ether by Juvenile Carp (*Cyprinus carpio*) following Dietary Exposure. *Environ Sci Technol* 38(1): 112-119.
- Stahl, T., Mattern, D., and Brunn, H. 2011. Toxicology of perfluorinated compounds. *Environmental Sciences Europe* 23(1): 38.
- Stapleton, H.M., Letcher, R.J., Li, J., and Baker, J.E. 2004b. Dietary accumulation and metabolism of polybrominated diphenyl ethers by juvenile carp (*Cyprinus carpio*). *Environ Toxicol Chem* 23(8): 1939-1946.
- Stapleton, H.M., Brazil, B., Holbrook, R.D., Mitchelmore, C.L., Benedict, R., Konstantinov, A., and Potter, D. 2006. In Vivo and In Vitro Debromination of Decabromodiphenyl Ether (BDE 209) by Juvenile Rainbow Trout and Common Carp. *Environ Sci Technol* 40(15): 4653-4658.
- Streets S.S., Henderson S.A., Stoner A.D., Carlson D.L., Simcik M.F., Swackhamer D.L. 2006. Partitioning and bioaccumulation of PBDEs and PCBs in Lake Michigan. *Environ Sci Technol*. 40: 7263-9.
- Sweco. 2012. Resultatrapport. PFC i biota. SWECO 168182.
- Tagliaferri, S., Caglieri, A., Goldoni, M., Pinelli, S., Alinovi R., Poli, D., Pellacani, C., Giordano, G., Mutti, A., Costa, L.G. 2010. Low concentrations of the brominated flame retardants BDE-47 and BDE-99 induce synergistic oxidative stress-mediated neurotoxicity in human neuroblastoma cells. *Toxicology in vitro*, vol. 24, pp. 116-122.
- Tomy, G.T., Stern, G.A., Muir, D.C.G., Fisk, A.T., Cymbalisty, C.D. and Westmore, J.B. 1997. Quantifying C10-C13 polychloroalkanes in environmental samples by high resolution gas chromatography/electron capture negative ion mass spectrometry. *Anal Chem* 69: 2762 - 2771
- UNEP. 2006. Risk profile on commercial pentabromodiphenyl ether. United Nations Environment Programme. UNEP/POPS/POPRC.2/17/Add.1. 46 pp.

UNEP. 2013. Minamata convention on mercury. United Nations Environment Programme. http://www.mercuryconvention.org/Portals/11/documents/conventionText/Minamata%20Convention%20on%20Mercury_e.pdf

Underdal, B. 1970a. Undersøkelse av kvikksølvinnholdet i fisk fra Mjøsområdet. Norges veterinærhøgskole, Institutt for næringsmiddelhygiene. Rapport. 18 s.

Underdal, B. 1970b. Kvikksølvundersøkelser av fisk frå Drammensvassdraget og Drammensfjorden. Norges veterinærhøgskole, Institutt for næringsmiddelhygiene. Rapport. 33 s.

Vander Zanden, M.J. and Rasmussen, J.B. 2001. Variation in d15N and d13C trophic fractionation: implication for aquatic food web studies. *Limnol Oceanogr* 46: 2061-2066.

Verreault J, Berger U, Gabrielsen GW, 2007. Trends of Perfluorinated Alkyl Substances in Herring Gull Eggs from Two Coastal Colonies in Northern Norway: 1983-2003. *Environmental Science and Technology* 41:6671-6677.

Warner, N.A., Evenset, A., Christensen, G., Gabrielsen, G.W., Borgå, K., Leknes, H. 2010. Volatile siloxanes in the European Arctic: assessment of sources and spatial distribution. *Environ. Sci. Technol.* 44: 7705-10.

Warner, N.A. et al., 2013. Positive vs. false detection: a comparison of analytical methods and performance for analysis of cyclic volatile methylsiloxanes (cVMS) in environmental samples from remote regions. *Chemosphere* 93: 749-756.

Waugh, C.A., Nichols, P.D., Schlabach, M., Noad, M., Bengtson Nash, S. (2014) Vertical distribution of lipids, fatty acids and organochlorine contaminants in the blubber of southern hemisphere humpback whales (*Megaptera novaeangliae*). *Marine Environmental Research*, 94, 24-31.

Xu, S., and Wania, F. 2013. Chemical fate, latitudinal distribution and long-range transport of cyclic volatile methylsiloxanes in the global environment: a modeling assessment. *Chemosphere* 93: 835-843.

Øberg, T. 2003. Bromerade flamskyddsmedel i fisk från Väneren och Vättern. Supplement till rapporten "Miljøgifter i fisk 2001/2002". Rapport nr. 25 2003.

Åkerblom, S., Nilsson, M., Yu, J., Ranneby, B., and Johansson, K. 2012. Temporal change estimation of mercury concentrations in northern pike (*Esox lucius* L.) in Swedish lakes. *Chemosphere* 86: 439-445.

7. Vedlegg – Appendix

7.1 English translation of cVMS related chapters

3. *Material and methods*

4.1 *Description of lakes*

This investigation was primarily carried out in the lakes Mjøsa, Randsfjorden and Femunden (hereafter referred to as the main lakes, Figure 1, Table 1), with supplementary samples taken from the lakes Tyrifjorden and Vansjø. The study lakes, except Vansjø, are large and deep fjord lakes, but differ in terms of food webs and human impact.

Mjøsa is Norway's largest lake, with a rich fish community of 20 different species. It has a well-defined pelagic food web with brown trout (*Salmo trutta*) as the top predator, smelt (*Osmerus eperlanus*) and vendace (*Coregonus albula*) as main planktivorous species, and a invertebrate community with pelagic crustaceans consisting of water fleas (*Cladocera*), copepods (*Copepoda*) and the opossum shrimp *Mysis relicta*. *Mysis* is an important species in the pelagic food web, as it is a zooplankton predator and an important prey for smelts. Due to the rich species diversity and the complex pelagic food web, the top-predator brown trout reaches a higher trophic level here than the other study lakes. Mjøsa is a recipient of wastewater from municipal treatment plants with a total load of 200,000 population equivalents (PE), in addition to runoff from agricultural, industrial and urban areas.

Randsfjorden is Norway's fourth largest lake. The fish community with its 11 different species is not as rich as in Mjøsa, and the human impact is less in terms of local contamination sources. Top predators in the pelagic food web are brown trout and char (*Salvelinus alpinus*), and the planktivorous fish species are primarily smelt and whitefish (*Coregonus lavaretus*). Unlike Mjøsa, *Mysis* is missing in the invertebrate community, and the pelagic food web has therefore fewer trophic levels. The lake is the recipient of wastewater from municipal treatment plants with a load of approximately 30,000 PE.

Femunden is the third largest lake in Norway, and large parts of the lake and its catchment is located to an unpopulated or very sparsely populated area with status as a national park. The fish community consists of six species, of which whitefish, char and trout are found in the pelagic fish community. Like Randsfjorden it is missing the pelagic crustacean *Mysis*. The lake receives no direct runoff from municipal sewage treatment plants, as the plant at Elgå (dimensioned for 200 PE) is an infiltration plant with runoff to sandy ground.

Tyrifjorden is Norway's fifth largest lake. The fish community consists of 13 species, and smelt and whitefish dominate the pelagic community, with a few numbered brown trout population

as the top predator. The crustacean *Mysis* is missing in the pelagic invertebrate community. The lake is a recipient for several treatment plants and sewage from scattered settlements, industry and agriculture (unknown PE-load).

Vansjø is Norway's 35th largest lake and is part of the Moss waterway, stretching from the forest Østmarka, Oslo, in the north and to the moraine running through Østfold in the south. The lake has a rich fish community, with 17 species where planktivorous cyprinid species dominate the pelagic fish community. The lake is a recipient for several treatment plants and in addition to wastewater from scattered settlements, industry and agriculture (unknown PE-load). The waterway is heavily loaded with nutrients from agricultural runoff, making Vansjø a highly eutrophic lake. Southwest of the lake lies Rygge airport, which has been the source of runoff of perfluorinated alkylated substances (PFAS) from a fire training field (NDEA Futura 2014).

Table 1. Information on the study lakes. PE: wastewater load to treatment plants in person equivalents (PE), estimated from maps with discharge data for the different regions (source: The Norwegian Environment Agency)

Attributes	Mjøsa	Randsfjorden	Femunden	Tyrifjorden	Vansjø
Coordinates UTM 33: Degrees:	E: 282000; N: 6746114 60,79 °N 10,10 °E	E: 244543; N: 6717603 61,51 °N 10,35 °E	E: 338500; N: 6898700 62,19 °N 11,90 °E	E: 235062; N: 6663017 60,02 °N 10,25 °E	E: 263080 N:6591490 59,40 °N 10,83 °E
Volume (km ³)	65	7,3	6	13,1	0,264
Area (km ²)	369	134	203	137	35,6
Max. depth (m)	453	120	153	295	37
Catchment (km ²)	17 251	3 665	1 790	9 808	331
PE	206000	28 500	200*	-	-

*Elgå treatment plant, infiltration to ground

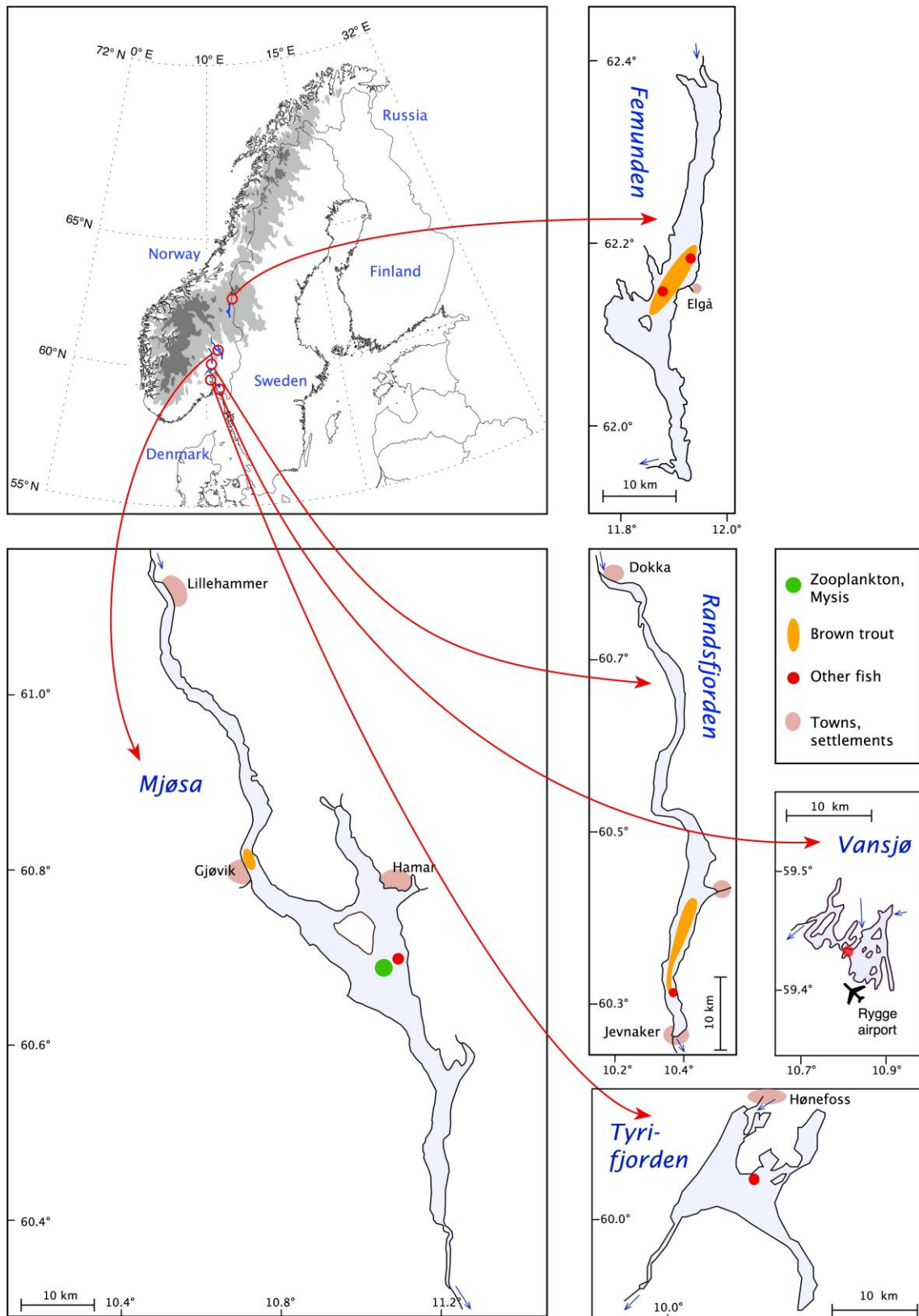


Figure 1. Map over the study lakes Mjøsa, Randsfjorden, Femunden, Tyrifjorden and Vansjø. Areas from where fish, zooplankton and Mysis are sampled are marked on the map.

3.2 Sampling of fish and zooplankton

Collection and sampling of biological material followed the guidelines of the Norwegian Environmental Specimen Bank procedures for freshwater fish (Miljøprøvebanken 2013). This implies that personnel should avoid the use of personal care products, or only use approved products one day prior to sampling. During capture, later handling and sampling the fish must not come into contact with potentially contaminating surfaces or substances. The use of disposable gloves (nitrile rubber) should be used if possible. The fish should be stored in boxes lined with rinsed aluminum foil. Traditional fish boxes in expanded polystyrene (EPS) should be avoided because of the risk of contamination of flame retardants.

The fish were caught in August and September, with the exception of trout from Randsfjorden, which was fished in June. After collection they were wrapped in clean aluminum foil, packed in clean polyethylene bags and kept cold ($\approx 4\text{ }^{\circ}\text{C}$) or frozen ($-20\text{ }^{\circ}\text{C}$) until dissection of samples.

Dissections of fish samples were done in the open in non-urban environment to prevent contamination of cVMS from indoor sources. All surfaces that could come into contact with fish were covered by aluminum foil, rinsed with methanol and acetone (HPLC grade). Fish length, weight, sex and maturation stage were recorded. All tool used for dissection were in steel, cleaned according to the Environmental Specimen Bank cleaning procedures (machine washed, rinsed in Milli-Q water, acetone and methanol). For trout and whitefish were about 20 - 100 g dorsal muscle fillet dissected out from each individual, of this was approximately 2 g transferred to separate test tubes to be analyzed for cVMS. For smelt, with individual weight typically around 9 - 15 g, pooled samples from several individuals had to be made to get adequate amount per sample (about 20 - 25 g). Each of these pooled samples consisted of material from about 5 fish of about the same size group. All samples were stored in glasses sealed with aluminum foil under the lid. Glass and the aluminum foil were cleaned by heating to $500\text{ }^{\circ}\text{C}$. The samples were stored frozen ($-20\text{ }^{\circ}\text{C}$) until analysis.

Zooplankton from Mjøsa were sampled in August, using a nylon mesh net (mesh size 500 microns) equipped with a collecting cup with a sieve (both in brass). The epilimnic zooplankton in Mjøsa was dominated by the cladocerans *Daphnia galeata* and *Bosmina longispina* and the copepod *Eudiaptomus gracilis*. Aggregates of diatoms and individuals of *Holopedium gibberum*, a water flea with a huge, gelatinous and hydrated mantle, were filtered from the samples on board. *H. gibberum* is a less selected prey item for fish, as their large gelatinous capsule function as an anti-predation adaption. Only natural surface water were used during the filtering of zooplankton. The zooplankton samples were transferred to the same type of sample glasses as the fish samples and kept frozen until analysis ($-20\text{ }^{\circ}\text{C}$). All equipment in direct contact with zooplankton samples were cleaned with methanol and acetone (HPLC grade).

3.3 Analytical methods

3.3.2. Cyclic volatile methyl siloxanes

The samples were analyzed by NILU according to methods published by Warner et al. (2010, 2013). A short summary is given in the following paragraphs.

Field blanks for sample siloxanes were prepared using 2 - 3 grams of XAD-2 sorbent packed into a polypropylene/cellulose filter bag. Before use in the field, XAD-2 sorbent was cleaned by ultrasonification in hexane for 30 minutes. Hexane was removed and replaced with dichloromethane and XAD sorbent was sonicated again for 30 minutes. After sonification, XAD-2 sorbent was dried overnight in clean cabinet equipped with a HEPA and carbon filter to prevent contamination of the XAD-2 sorbent from indoor air. XAD-2 sorbent was then packed into the previously described filter bags and placed in polypropylene tubes and sent to field personnel for sampling purposes.

Several field blanks prepared were kept at NILU's laboratories and analyzed to determine reference concentrations present in the field blanks prior to exposure within the field. Comparison of concentrations between reference levels and field blank levels was done to assess if contamination during sampling had occurred.

Extraction of all sample material was done in a clean cabinet to prevent contamination from indoor air. All laboratory personnel involved in sample extraction avoid use of personal care products (i.e., skin and hair creams/products, deodorant).

Samples were extracted using a mixture of 3:1 hexane:acetonitrile with ultrasonification for 15 min. Samples were then shaken for 1 hour followed by centrifugation at 2500 RPM. A small aliquot of hexane supernatant was transferred to a GC vial followed by addition of tris(trimethylsiloxy)silane as a recovery standard.

Samples were analyzed by GC-MS equipped with DB-5MS column using large volume injection (10 μ L). Instrumental conditions have been previously described by Krogesth et al. (2013).

Method detection limits (MDLs) have been shown to be ideal for the analysis of siloxanes in environmental samples as they account for the variation introduced to the analytical signal from the extracted matrix (Warner et al. 2013). Due to the various different matrices investigated in this study, it was not possible logistically to determine MDL for all matrices. Therefore, limit of quantification (LOQ) described as the average plus 10 \times standard deviation of the procedural blank signal was used as a conservative detection limit for reporting concentrations. Limits of detection described as 3 \times standard deviation of the procedural blank signal was also reported to for comparison with LOQ.

4. Results and discussion

4.3 Cyclic volatile methylated siloxanes, cVMS

4.3.1 Levels of cVMS in 2015

Concentrations of siloxanes (D4, D5 and D6) were determined in biota (crustaceans and fish muscle samples) from the three main lakes. For Mjøsa we sampled across a wide range of trophic levels in the pelagic food web (planktonic crustaceans and fish), but from Randsfjorden and Femunden we sampled only pelagic fish.

The percentage quantifiable results for D4, D5 and D6 were 83 %, 88 % and 84 %, respectively (Table 2). Broken down to individual species or groups of organisms within each lake, only for Femunden did we find that less than 50% of the analytical results were below limit of quantification (LOQ). In the following, all results below LOQ (0.5 to 2.9 ng/g wet weight) are substituted by half the limits. The cVMS results of one trout sample from Randsfjorden were rejected, as all concentrations were below the LOQ and these results were statistical outliers in a multivariate view.

Table 2. Number of samples analyzed for cVMS and percent of samples with concentrations above the quantification limits (LOQ):

Lake	D4		D5		D6	
	N	≥LOQ, %	N	≥LOQ, %	N	≥LOQ, %
Mjøsa	30	87%	30	93%	30	90%
Randsfjorden	23	96%	23	100%	23	96%
Femunden	6	17%	6	17%	6	17%
Total	59	83%	59	88%	59	84%

The highest concentrations of cVMS were found in Mjøsa and Randsfjorden and D5 was in general the dominant compound (Table 3, Figure 2).

In Mjøsa, the lowest mean D5 concentration was found in zooplankton with 170 ng/g lipid (0.7 ng/g wet weight), while the highest was found in smelt with 8800 ng/g lipid (78.7 ng/g wet weight). In Randsfjorden, the lowest mean concentration was found in smelt with 1100 ng/g lipid (22.6 ng/g wet weight), while the highest was found in char with 5300 ng/g lipid (41.5 ng/g wet weight). Char in Randsfjorden occupy a higher trophic level than trout, which may have contributed to their generally higher cVMS levels. Trout and smelt from Mjøsa were approximately at the same trophic level as many smelts were cannibalistic, so this matter cannot explain their generally higher cVMS levels. The Water Framework Directive's EQS value for D5 in biota is 15 000 ng/g wet weight (River Basin Specific Pollutants: Miljødirektoratet 2014) and no fish samples exceeded this.

D4 and D6 levels in zooplankton samples from Mjøsa were all <LOQ, and substituted mean values were respectively 150 and 75 ng/g lipid (0.6 and 0.7 ng/g wet weight). Mean D4 and D6 levels in Mjøsa trout were respectively 140 and 220 ng/g lipid (2.7 and 5.2 ng/g wet weight). For Randsfjorden, the highest concentrations of these two compounds were found in char at concentrations of respectively 230 and 220 ng/g lipid (1.7 and 1.8 ng/g wet weight).

Concentrations of the different cVMS compounds in fish from Femunden (24 - 640 ng/g lipid or from 0.6 to 4.5 ng/g wet weight) were lower than in fish from the other two main lakes. Femunden trout had higher concentrations than whitefish, but the due to the large proportion of results <LOQ (all samples in whitefish, two-thirds of trout) are the estimates of average levels uncertain. We therefore do not comment the results from Femunden any further.

The elevated levels of cVMS in fish from Mjøsa and Randsfjorden compared to Randsfjorden are as expected from previous studies (Borgå et al. 2012b and 2013b) and 2013 (Fjeld et al. 2014 and 2015), and probably reflects the importance of local sources from the surrounding urban areas with a relatively large population. For Femunden, a remote lake situated in a sparsely populated nature reserve, we can expect local sources of cVMS to be near absent. Here, atmospheric deposition is therefore probably the main source for cVMS.

According to Xu and Wania (2013), the potential for such atmospheric deposition is significantly less for cVMS than other persistent organic pollutants because of their volatility and relatively rapid breakdown in the atmosphere under the influence of UV radiation. The occurrence of atmospheric cVMS has since 2013 been measured at the Zeppelin station in Ny-Ålesund, Svalbard (Nizzetto et al. 2014). The results show a seasonal variation, with extremely elevated concentrations in winter (“the polar night”), where levels are approximately as for PAH. That is three orders of magnitude higher than those of other legacy POPs, such as PCB, PBDE, PFC and organochlorine pesticides.

Table 3. Concentrations (mean \pm SD, maximum - minimum) of siloxanes (cVMS: D4, D5 and D6) in samples of fish (muscle) and crustacean zooplankton, collected in 2015. Concentrations below quantification limits (LOQ) are substituted with half the limits

Lake	Species/Group	cVMS	N	\geq LOQ, %	Conc., ng/g w.w.				Conc., ng/g lipid			
					\bar{x}	SD	Min	Max	Mean	SD	Min	Max
Mjøsa	Zooplankton.	D4	3	0	0.6	0.0	0.6	0.6	150	72	69	210
		D5	3	33	0.7	0.4	0.5	1.1	170	130	52	310
		D6	3	0	0.3	0.0	0.3	0.3	75	36	34	100
	Mysis	D4	3	100	1.6	0.1	1.5	1.6	52	10	42	62
		D5	3	100	25.9	0.7	25.4	26.7	860	180	670	1000
		D6	3	100	1.4	0.1	1.4	1.5	47	7	39	54
	Smelt	D4	9	89	3.5	3.8	0.7	13.1	500	900	70	2800
		D5	9	100	78.7	45.1	25.5	152.0	8800	7600	1700	20000
		D6	9	100	5.1	3.8	2.1	12.4	630	730	110	2200
	Brown trout	D4	15	100	2.7	2.0	0.8	6.8	140	180	19	540
		D5	15	100	73.5	50.6	15.1	178.0	2800	2800	510	11000
		D6	15	100	5.2	2.7	1.4	11.1	220	240	58	960
Randsfjorden	Smelt	D4	9	100	1.5	0.3	1.1	2.0	71	23	40	110
		D5	9	100	22.6	9.0	14.5	43.0	1100	460	470	1700
		D6	9	89	1.5	0.5	0.5	2.5	77	43	13	140
	Arctic char	D4	5	100	1.7	0.2	1.5	1.9	230	160	81	470
		D5	5	100	41.5	5.8	32.2	46.0	5300	3000	2104	9500
		D6	5	100	1.8	0.3	1.4	2.0	220	130	100	410
	Brown trout	D4	10	80	2.0	2.2	0.4	8.0	120	84	13	260

Lake	Species/Group	cVMS	N	≥ LOQ, %	Conc., ng/g w.w.				Conc., ng/g lipid			
					\bar{x}	SD	Min	Max	Mean	SD	Min	Max
		D5	10	90	29.8	21.0	0.4	70.7	1800	1600	77	5500
		D6	10	90	1.6	0.8	0.3	3.0	96	48	12	190
Femunden	Whitefish	D4	3	0	0.6	0.0	0.6	0.6	57	1	56	58
		D5	3	0	0.3	0.0	0.3	0.3	24	1	23	24
		D6	3	0	0.5	0.0	0.5	0.5	47	1	47	49
	Brown trout	D4	3	33	4.5	5.2	1.5	10.5	540	640	170	1300
		D5	3	33	1.3	1.4	0.5	2.9	150	170	53	350
		D6	3	33	1.0	0.8	0.6	1.9	120	90	70	230

A Swedish study from lakes receiving effluents from sewage treatment plants reports of D5 concentrations in the range of 1.4 - 14.4 ng/g wet weight in muscle of perch (Kierkegaard et al. 2013). From Lake Erie, North America, it is found concentrations in the range of 14 - 36 ng/g wet weight (Mc Goldrick et al. 2014). By comparison, the average values for different fish species from Mjøsa and Randsfjorden measured during the years 2010 - 2015 are in the range of 1.2 to 160 ng/g wet weight, with the highest levels in Mjøsa (data here; Borgå et al. 2013a and b; Fjeld et al. 2014). The reason for the higher concentrations in Lake Mjøsa compared to the Swedish lakes and Lake Erie remains uncertain.

From the Baltic Sea, it is known that concentrations of D4, D5 and D6 in the muscle of the herring are respectively about 10, 200 and 40 ng/g lipid (Kierkegaard et al. 2013), and the authors argue that the ratio between the different compounds largely reflect the relationship between the yearly emission volumes in Europe. For fish from Mjøsa and Randsfjorden, where the share of samples with quantifiable cVMS values were high, we find roughly the same relationship between the different compounds.

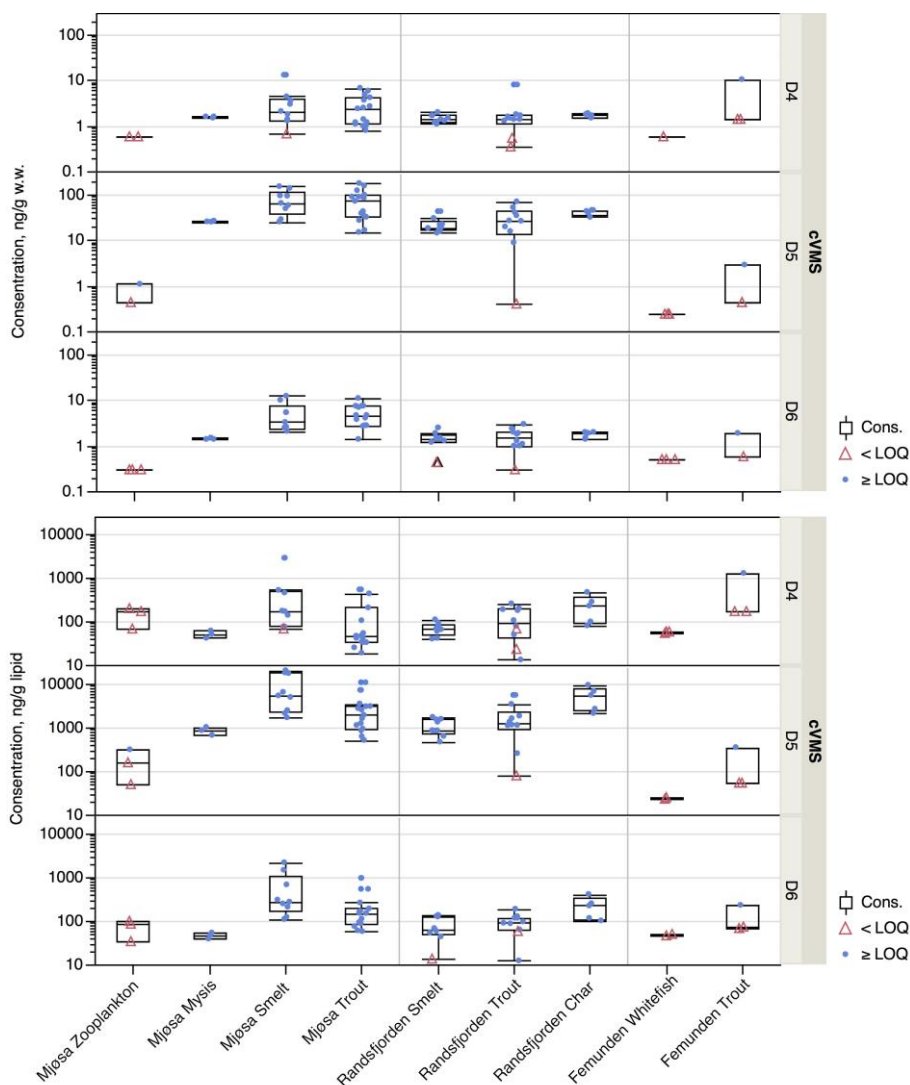


Figure 2. Box-plot of cVMS concentrations in biota from the study lakes, sampled in 2015 (wet weight: upper figure; lipid weight lower figure). Concentrations <LOQ (level of quantification) are substituted with half the limits and are marked with red triangle symbols, whereas concentrations \geq LOQ are marked with blue dots.

4.3.2 Annual variation of cVMS in Mjøsa and Randsfjorden

For brown trout from Mjøsa and Randsfjorden we have enough results above the quantification limits for each cVMS compound to compare the levels between years (Table 4, Figure 3).

D5 was the predominant compound in both lakes. For trout from Mjøsa, with samples from 2010, 2012, 2014 and 2015, the percentage of each compound was as follows: D5: 92%; D6: 5%; D4: 3%. For Randsfjorden, with samples from 2012, 2014 and 2015, estimated percentages were about the same: D5: 82%, D6: 8%; D4: 10%. Analysis of variance (log-transformed data) showed that mean concentrations of cVMS compounds could differ between years: for Mjøsa significant differences were found for D4 ($p = 0.004$) and D5 ($p = 0.009$), while for Randsfjorden significant differences were found for D4 ($p < 0.001$) and D6 ($p = 0.02$). We will, however, be cautious in the interpretation of the inter-annual variability of cVMS. Possible sources of variation may lie in the change of analytical laboratories and analytical challenges in determining concentrations. Compared with analyses for legacy POPs, where methods have

been perfected over time and there are established certified reference materials, there are far greater analytical challenges regarding cVMS.

Table 4. Annual mean concentrations of cVMS (D4, D5 and D6, lipid normalized) in brown trout from Mjøsa and Femunden, and the percentage of the different compounds that make up total concentration (Σ cVMS). Concentrations less than quantification limits (LOQ) are substituted with half the limits. Orange colored cells indicates that 50 % of the measurements are above LOQ. Samples from 2010 and 2012 have been analyzed at the University of Stockholm, samples from 2013 - 2015 have been analyzed at NILU.

År	Lake	n	Concentration (mean \pm SD), ng/g lipid				percentage		
			D4	D5	D6	Σ cVMS	D4	D5	D6
2010	Mjøsa	5	180 \pm 190	3800 \pm 3400	130 \pm 44	4100 \pm 3600	4%	93%	3%
2012	Mjøsa	5	23 \pm 17	5600 \pm 2300	285 \pm 100	5900 \pm 2400	0%	95%	5%
2013	Mjøsa	15	100 \pm 130	1700 \pm 2000	410 \pm 550	2200 \pm 2000	5%	76%	19%
2014	Mjøsa	15	40 \pm 20	2500 \pm 1700	140 \pm 60	2700 \pm 1800	1%	94%	5%
2015	Mjøsa	15	140 \pm 180	2800 \pm 2800	140 \pm 180	3100 \pm 3200	4%	89%	7%
2012	Randsfjorden	5	10 \pm 5	2700 \pm 2000	120 \pm 90	2800 \pm 2100	0%	96%	4%
2014	Randsfjorden	15	500 \pm 500	2400 \pm 1600	340 \pm 300	3200 \pm 2700	15%	74%	11%
2015	Randsfjorden	10	120 \pm 80	1800 \pm 1600	96 \pm 48	2200 \pm 1700	6%	89%	5%

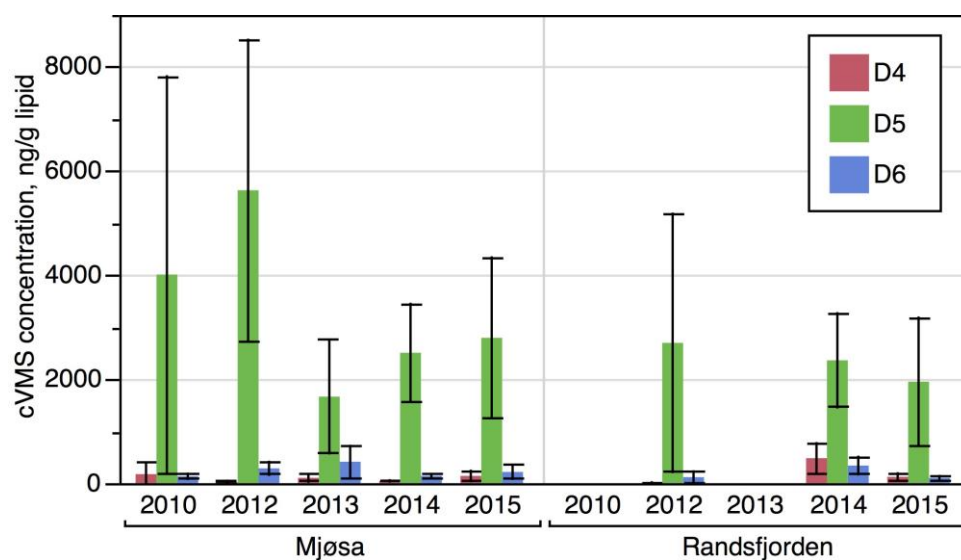


Figure 3. Annual mean concentrations (with 95% confidence intervals) of cVMS in muscle of trout from Lake Mjøsa and Randsfjorden. Concentrations less than quantifying limits (LOQ) are replaced by half the limit, and this makes particularly the estimates for D4 and D6 uncertain. The samples from 2010 and 2012 are analyzed at the University of Stockholm, samples from 2013- 2015 at NILU. No samples from Lake Randsfjorden were analyzed in 2010 and 2013.

4.3.3 Trophic magnification of D5 and D6 in Mjøsa and Randsfjorden

We here combine earlier data with those of 2015 to make statistical analyzes of trophic magnification (biomagnification) of D5 and D6 with greater generality. We have previously demonstrated trophic magnification of these compounds in the pelagic food webs of Mjøsa and Randsfjorden (Borgå et al. 2012b; Borgå et al. 2013a and b; Fjeld et al. 2014, 2015).

In Fjeld et al. (2015) we showed that $\delta^{15}N$ in epilimnic zooplankton from Mjøsa (primary consumers) varied between years (4.63 to 8.43 ‰), which has consequences for the calculation of the trophic level (TL) for the different consumers. The reason for this variability is uncertain, but it is known that there may be seasonal changes in $\delta^{15}N$ in herbivorous zooplankton. This may be due to changes in the N-isotope ratio of phytoplankton's nitrogen sources (Grey et al. 2000; Legget et al., 2000; Matthews and Mazumder 2005), but also because the trophic fractionation of N-isotopes in zooplankton is dependent on the C:N ratio in phytoplankton they consume (Vander Zanden and Rasmussen 2001).

When the $\delta^{15}N$ of primary consumers varies between years, yearly baseline adjustments will introduce an annual variation in the trophic level of consumers higher up in the food chain. This is not appropriate for perennial and larger consumers, as their $\delta^{15}N$ levels are not in an instantaneous equilibrium with the N-isotope ratio of primary consumers, but will have a significantly slower and damped response to seasonal or annual fluctuations in the primary consumer's $\delta^{15}N$ levels.

We have therefore avoided to baseline adjust the consumer's $\delta^{15}N_c$ when calculating their trophic levels, but instead estimated their relative trophic levels (TL_{rel}) by simply dividing their $\delta^{15}N$ by the N-enrichment factor ($\Delta^{15}N = 3.4$ ‰) (Post 2002):

$$TL_{rel} = \delta^{15}N_c / \Delta^{15}N$$

This implies that we regard the annual variations in $\delta^{15}N$ of primary consumers as random fluctuations and do not allow them to influence the estimation of higher trophic levels. We then avoid the trophic levels of higher consumers, such as brown trout, to vary from year to year. The estimated trophic magnification factor (TMF) is not changed by using the relative trophic level instead of the baseline corrected level in the regression; only the regression's constant term will be influenced. TL_{rel} can be used to determine trophic distance between groups of organisms within a site, but not to determine their absolute position or to compare trophic level of organisms from sites with different $\delta^{15}N$ baseline.

In the further statistical analysis of the material we have excluded the results from Mjøsa for 2013 and from Randsfjorden for 2015, as the sampling design didn't provide a broad selection of samples from the pelagic food web, but focused on fish (trout, smelt) with only a few or none samples of zooplankton. We formulated a "mixed linear model" (for an introduction, see Galway 2006), which also allows us to analyze an unbalanced data set with missing data for a lake within a year. We defined the effects of lake (nominal variable) and TL_{rel} (covariate, continuous variable), and the interactions between them as fixed effects. The effect of year (nominal), nested under the lake, and the interaction between years and TL_{rel} , nested under lake, were defined as random effects:

$$\log C = a + b \cdot TL_{rel} + c \cdot Lake + d(TL_{rel} \cdot Lake) + e \cdot Year[Lake]_{random} + f(Year \cdot TL_{rel})[Lake]_{random}$$

We reduced this full model stepwise until we were left with a model containing only significant or a priori important effects. For every step were Akaike and Schwarz' Bayesian information criterion (AIC, BIC) checked for indications of an improved solution. The reduced model we arrived at was:

$$\log C = a + b \cdot TL_{rel} + c \cdot Lake + e \cdot Year[Lake]_{random}$$

Here there is a common slope coefficient for - or response on - relative tropical level, a lake specific effect, and we allow the lakes to respond differently to the factor year. This latter effect is defined as a random effect. The model implies that D5 shows the same trophic magnification in the two pelagic food webs, i.e. a common TMF and parallel regression lines. It also means that we allow regressions to have different intersections with the Y-axis, which allows for different loads of D5 and/or different baselines for $\delta^{15}N_c$ (fixed effect of lake). Lake specific effect of years (random effect) may be due to random variations in D5 supplies or differences introduced due to change of analytical laboratories. The fixed lake effect was not statistically significant, but there are good theoretical reasons to allow for it (different loads of D5, different baseline for $\delta^{15}N_c$). An exclusion of this factor had little influence on the TMF estimate, but contributed primarily to narrow its confidence limits.

The reduced model explained 45 % of the variance in D5 concentrations (log-transformed) and produced a common TMF of 2.29 (95 % CI: 1.83 - 2.88). It could not demonstrate any significant difference between mean D5 concentrations after adjusting for differences in $\delta^{15}N$ between Mjøsa and Randsfjorden (2100 vs. 1970 ng/g lipid, $p = 0.9$), but a comparison is otherwise little meaningful as the $\delta^{15}N_c$ values are not baseline adjusted. The reduced model with its fixed effects is shown in Figure 4, while the results from the statistical models are given in Appendix 3.

For D6 did we arrive at the following reduced model:

$$\log C_{D6} = a + b \cdot TL_{rel} + c \cdot Lake$$

The model explained 52 % of the variance in the D6 concentrations (log transformed) and gave a TMF for both lakes of 2.28 (95% CI: 1.93 to 2.70). No significant difference between mean D6 concentrations in Mjøsa and Randsfjorden could be demonstrated after adjusting for differences in $\delta^{15}N$ (130 vs. 100 ng/g lipid, $p = 0.2$), but again - a comparison is otherwise little meaningful as the $\delta^{15}N$ values are not baseline adjusted. The reduced model with its permanent effects is shown Figure 4 while the results from the statistical models are given in Appendix 3.

There are few published studies on trophic magnification of cyclic siloxanes, but from Lake Erie it is reported that D4 and D5 biomagnification seems to be very sensitive to the food web configuration (McGoldrick et al., 2014). Here the TMFs for D4 and D5 were >1 for only one of five combinations of groups of organisms. TMF estimates for PCB-180 were also dependent on food web configuration, but did not correspond with those for cVMS material. The authors discuss whether differences in environmental exposure and/or lipid partitioning between PCBs and cVMS may have contributed to the results, without drawing any final conclusions.

A recently published study from coastal areas in North China (Jia et al. 2015) describes trophic magnification of D5, and with a TMF of approximately the same size (1.77; 95 % CI: 1.41 - 2.24) that we report from Mjøsa and Randsfjorden. As a reference substance, they used BDE-99, which biomagnified as expected with a TMF of 3.27 (95 % CI: 2.49 to 4.30). These two studies, together with our from Mjøsa and Randsfjorden (Borgå et al. 2012b, Borgå et al. 2013a) is to our best knowledge the only studies demonstrating trophic magnification of cVMS in aquatic food chains which are published in peer-reviewed journals.

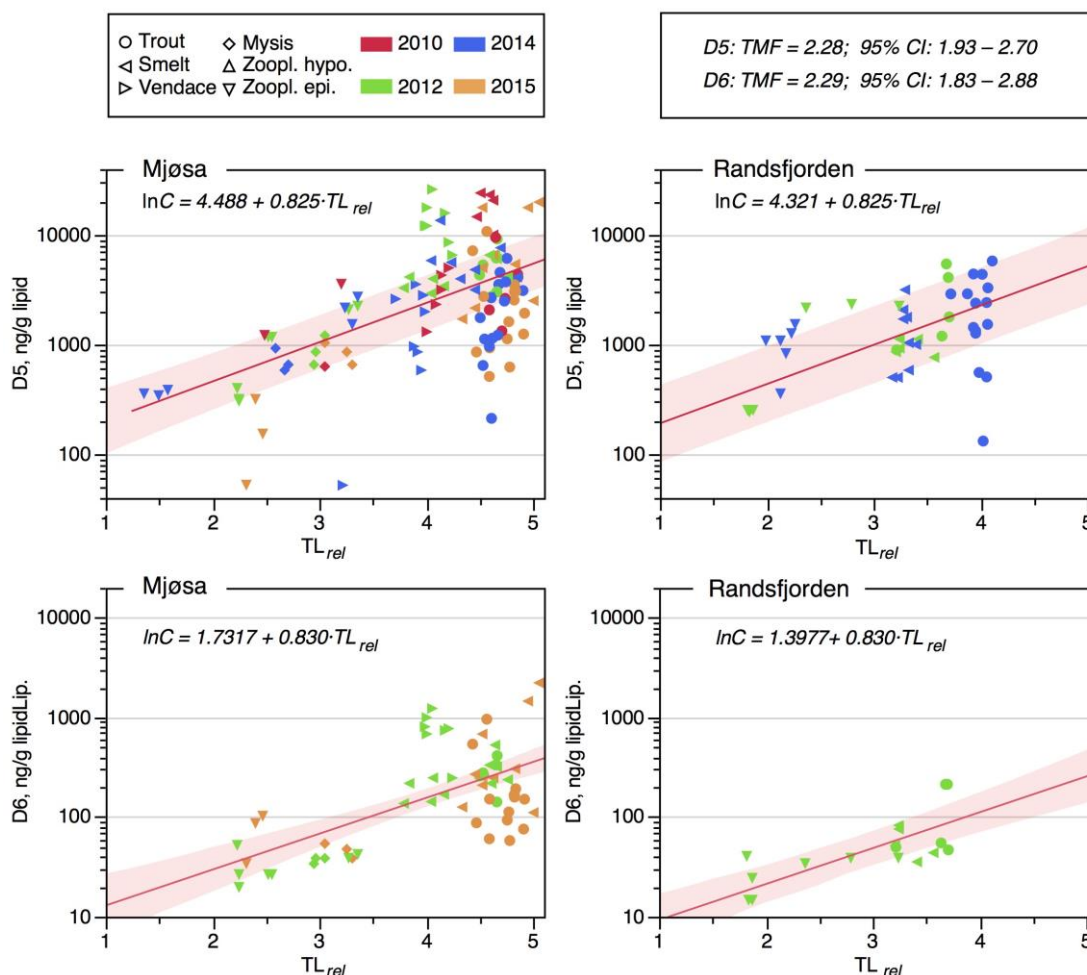


Figure 4. Relations between cVMS compounds D5 and D6 (lipid normalized) and relative trophic level (TL_{rel}) in fish (muscle) and crustacean zooplankton, caught in Mjøsa and Randsfjorden in different years. Regressions of concentration (\log_e -transformed) on trophic levels, with 95 % confidence band, are shown. Regressions are from a "mixed linear model" (see text). Concentrations less than quantification or detection limits (<LOD/Q) have been replaced with half the limits.

4.3.4 Correlations between cVMS, PCBs, PBDEs and trophic level

Contaminants with similar physio-chemical properties can be expected to show a common accumulation pattern in ecological food webs. We therefore investigated the correlation between the cVMS compounds D5 and D6, PCB-153, BDE-47 and relatively trophic level (TL_{rel} , based on $\delta^{15}N$) in Mjøsa and Randsfjorden 2015 (Figure 5). PCB 153 and BDE-47 are environmental persistent compounds, they are also highly lipophilic and very bioaccumulative. We use them here as reference substances when examining D5 and D6 levels in the pelagic food webs. We have used log-transformed lipid normalized concentrations when estimating correlation coefficients and TMFs. We've only used data from Mjøsa and Randsfjorden, as concentrations of cVMS in fish from Femunden in general was below LOQ.

For D5 there was a significant and good to moderate correlation with trophic level (TL_{rel}), with correlation coefficients (Pearson's r) of 0.70 and 0.50 for Mjøsa and Randsfjorden, and lake specific TMFs of 3.24 and 2,52, respectively.

The association between D6 and trophic level (TL_{rel}) was slightly weaker, with correlation coefficients of 0.50 and 0.38 for Mjøsa and Randsfjorden, and TMFs of 1.88 and 1.94, respectively.

PCB-153 and BDE-47 correlates well with trophic level, with correlation coefficients in the range of 0.42 - 0.90. They biomagnified in both lakes, and TMFs for these compounds, 2.09 to 4.93, were mostly greater than those of D5 and D6.

D5 and D6 concentration showed moderate to good correlations with PCB-153 and BDE-47 (r : 0.52 to 0.80). This is as expected, as they are all biomagnifying compounds and will therefore also covariate in the food webs. The extremely strong correlations between PCB-153 and BDE-47 ($r = 0.87 - 0.98$) show that these two compounds behave very similarly in the food webs.

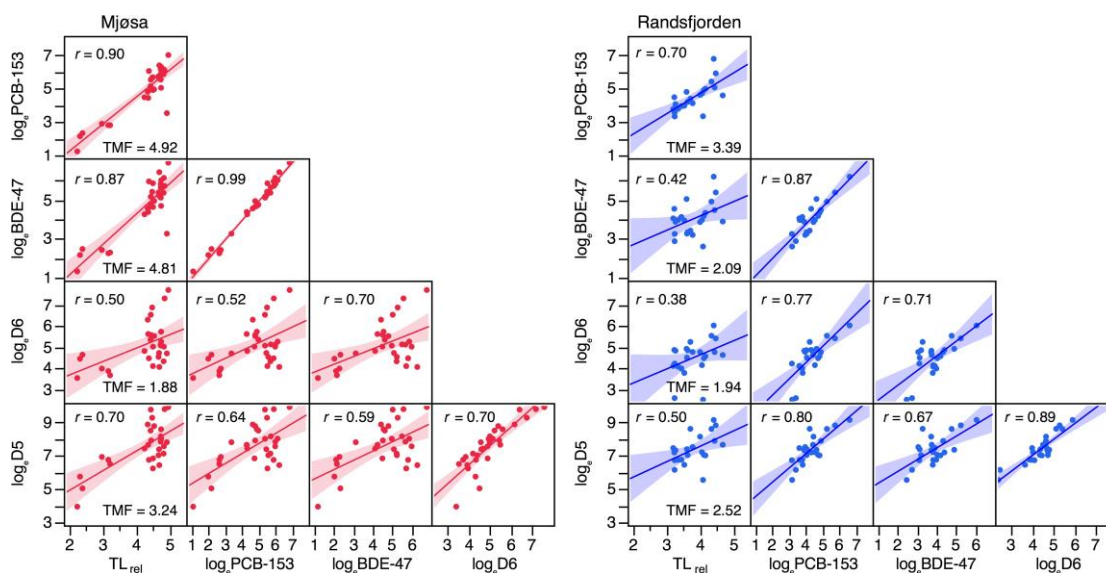


Figure 5. Scatter plots and regressions between D5 and D6, BDE-47, PCB-153 and relatively trophic level (TL_{rel}) in fish (muscle) and zooplankton from Mjøsa and Randsfjorden, captured in 2015. The concentrations are log_e-transformed (lipid weight basis; ng/g lipid). Concentrations below limit of quantification (<LOQ) are replaced by half the limit. TMF: trophic magnification factor; r : correlation coefficient.

7.2 Vedlegg 2 - Kjemisk komponentliste

Tabell A. Oversikt over de analyserte PCB- og PBDE-kongenerene, angitt ved deres IUPAC-navn, CAS-nr. og kongenernummer.

IUPAC-navn	CAS-nr	Kongener-nr.
PCB		
2,2',5-Trichlorobiphenyl	37680-65-2	18
2,4,4'-Trichlorobiphenyl	7012-37-5	30
2,4',5-Trichlorobiphenyl	16606-02-3	33
2,2',4,4'-Tetrachlorobiphenyl	2437-79-8	47
2,2',5,5'-Tetrachlorobiphenyl	35693-99-3	52
2,3',4,4'-Tetrachlorobiphenyl	32598-10-0	66
2,4,4',5-Tetrachlorobiphenyl	32690-93-0	75
2,2',4,4',5-Pentachlorobiphenyl	38380-01-7	99
2,2',4,5,5'-Pentachlorobiphenyl	37680-73-2	101
2,3,3',4,4'-Pentachlorobiphenyl	32598-14-4	105
2,3,4,4',5-Pentachlorobiphenyl	74472-37-0	114
2,3',4,4',5-Pentachlorobiphenyl	31508-00-6	119
2,3,3',4',5'-Pentachlorobiphenyl	76842-07-4	110
2,3',4,4',5'-Pentachlorobiphenyl	65510-44-3	120
2,2',3,3',4,4'-Hexachlorobiphenyl	38380-07-3	128
2,2',3,4,4',5'-Hexachlorobiphenyl	35065-28-2	138
2,2',3,4,5,5'-Hexachlorobiphenyl	52712-04-6	141
2,2',3,4',5,6-Hexachlorobiphenyl	38380-04-0	149
2,2',4,4',5,5'-Hexachlorobiphenyl	35065-27-1	153
2,3,3',4,4',5-Hexachlorobiphenyl	38380-08-4	156
2,3,3',4,4',5'-Hexachlorobiphenyl	69782-90-7	157
2,3',4,4',5,5'-Hexachlorobiphenyl	52663-72-6	167
2,2',3,3',4,4',5-Heptachlorobiphenyl	35065-30-6	170
2,2',3,4,4',5,5'-Heptachlorobiphenyl	35065-29-3	180
2,2',3,4,4',5,6-Heptachlorobiphenyl	52663-69-1	183
2,2',3,4',5,5',6-Heptachlorobiphenyl	52663-68-0	187
2,3,3',4,4',5,5'-Heptachlorobiphenyl	39635-31-9	189
2,2',3,3',4,4',5,5'-Octachlorobiphenyl	35694-08-7	194
2,2',3,3',4,4',5,5',6-Nonachlorobiphenyl	40186-72-9	206
2,2',3,3',4,4',5,5',6,6'-Decachlorobiphenyl	2051-24-3	209
PBDE		
2,2',4-Tribromodiphenyl ether	147217-75-2	17
2,4,4'-Tribromodiphenyl ether	41318-75-6	28
2,2',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether	5436-43-1	47
2,2',4,5'-Tetrabromodiphenyl ether	243982-82-3	49
2,3',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether	189084-61-5	66
2,3',4',6-Tetrabromodiphenyl ether	189084-62-6	71

3,3',4,4'-Tetrabromodiphenyl ether	93703-48-1	77
2,2',3,4,4'-Pentabromodiphenyl ether	182346-21-0	85
2,2',4,4',5-Pentabromodiphenyl ether	60328-60-9	99
2,2',4,4',6-Pentabromodiphenyl ether	189084-64-8	100
2,3',4,4',6-Pentabromodiphenyl ether	189084-66-0	119
3,3',4,4',5-Pentabromodiphenyl ether	366791-32-4	126
2,2',3,4,4',5'-Hexabromodiphenyl ether	182677-30-1	138
2,2',4,4',5,5'-Hexabromodiphenyl ether	68631-49-2	153
2,2',4,4',5,6'-Hexabromodiphenyl ether	207122-15-4	154
2,3,3',4,4',5-Hexabromodiphenyl ether	N/A	156
2,2',3,4,4',5,6'-Hetpabromodiphenyl ether	207122-16-5	183
2,2',3,4,4',6,6'-Hetpabromodiphenyl ether	117948-63-7	184
2,3,3',4,4',5,6'-Hetpabromodiphenyl ether	446255-30-7	191
2,2',3,3',4,4',5,6'-Octtabromodiphenyl ether	N/A	196
2,3,3',4,4',5,6'-Heptabromodiphenyl ether	N/A	197
2,2',3,3',5,5',6,6'-Octtabromodiphenyl ether	N/A	202
2,2',3,3',4,4',5,5',6-Nonabromodiphenyl ether	63387-28-0	206
2,2',3,3',4,4',5,6,6'-Nonabromodiphenyl ether	437701-79-6	207
2,2',3,3',4,4',5,5',6,6'-Decabromodiphenyl ether	1163-19-5	209

Tabell B. Oversikt over perfluorerte forbindelser analysert, akronymer, formel, CAS nr og kvantifikasjonsgrenser (LOQ) av PFAS bestemt med UPLC-ToF MS.

Forbindelse	Forkortelse	Molekyl- formel	CAS-nr.	LOQ (ng/g)
perfluoro-n-pentanoic acid	PFPA	C5HF9O2	2706-90-3	0,5
perfluoro-n-hexanoic acid	PFHxA	C6HF11O2	307-24-4	0,5
perfluoro-n-heptanoic acid	PFHpA	C7HF13O2	375-85-9	0,5
perfluoro-n-octanoic acid	PFOA	C8HF15O2	335-67-1	0,5
perfluoro-n-nonanoic acid	PFNA	C9HF17O2	375-95-1	0,5
perfluoro-n-decanoic acid	PFDA	C10HF19O2	335-76-2	0,5
perfluoro-n-undecanoic acid	PFUnDA	C11HF21O2	2058-94-8	0,5
perfluoro-n-dodecanoic acid	PFDoDA	C12HF23O2	307-55-1	0,4
perfluoro-n-tridecanoic acid	PFTTrDA	C13HF25O2	72629-94-8	0,4
perfluoro-n-tetradecanoic acid	PFTeDA	C14HF27O2	376-06-7	0,4
perfluoro-1-butanesulfonate, K salt	PFBSK	C4F9SO3K	29420-49-3	0,1
perfluoro-1-hexanesulfonate, Na salt	PFHxSNa	C6F13SO3Na	82382-12-5	0,1
perfluoro-1-octanesulfonate, Na salt	PFOSNa	C8F17SO3Na	4021-47-0	0,1
perfluoro-1-decanesulfonate	PFDS	C10HF21SO3	335-77-3	0,2
perfluoro-1-dodecansulfonate	PFDoDS	C12HF25SO3	79780-39-5	0,2

Forbindelse	Forkortelse	Molekyl- formel	CAS-nr.	LOQ (ng/g)
perfluoro-1-octanesulfonamide	PFOSA	C ₈ H ₂ F ₁₇ NO ₂ S	754-91-6	0,1
N-methylperfluoro-1-octanesulfonamide	N-MeFOSA	C ₉ H ₄ F ₁₇ NO ₂ S	31506-32-8	0,3
N-ethylperfluoro-1-octanesulfonamide	N-EtFOSA	C ₁₀ H ₆ F ₁₇ NO ₂ S	4151-50-2	0,3
2-(N-methylperfluoro-1-octanesulfonamido)-ethanol	N-MeFOSE	C ₁₁ H ₈ F ₁₇ NO ₃ S	24448-09-7	5
2-(N-ethylperfluoro-1-octanesulfonamido)-ethanol	N-EtFOSE	C ₁₂ H ₁₀ F ₁₇ NO ₃ S	1691-99-2	5
N-methylperfluoro-1-octanesulfamidoacetic acid	N-meFOSAA	C ₁₁ H ₆ F ₁₇ NO ₄ S	2355-31-9	0,3
N-ethylperfluoro-1-octanesulfamidoacetic acid	N-etFOSAA	C ₁₂ H ₈ F ₁₇ NO ₄ S	2991-50-6	0,3
1H,1H,2H,2H-perfluorooctane sulfonate (6:2)	6:2FTS	C ₈ H ₄ F ₁₃ SO ₃ Na	27619-97-2	0,3
1H,1H,2H,2H-perfluorodecan sulfonate (8:2)	8:2FTS	C ₁₀ H ₄ F ₁₇ SO ₃ Na	39108-34-4	0,3

7.3 Vedlegg 3 - Statistiske modeller, cVMS

```

D5 analysis full model.lm
Response Log(D5 Lip.)
Fixed Effect Tests
Source      Nparm  DF  DFDen  F Ratio  Prob > F
Lokalitet  1      1    4794    0.1168    0.7492
Lokalitet  1      1    4794    0.0000    0.9999
Lokalitet*TL  1      1    5755    1.2266    0.3117
Effect Details
Lokalitet
Least Squares Means Table
Level      Least      Std Error  Lower 95%  Upper 95%
Messa2010 2708.1711  0.17525734  1913.0117  3533.8452
Messa2012 3159.7699  0.14770900  2359.1779  4232.0419
Messa2014 1635.7198  0.13161894  1237.9395  2022.7642
Randsfjorden 1867.7861  0.16622252  1655.3425  2080.2297
Randsfjorden|2012 1645.4511  0.28672825  1101.7700  2324.5557
Randsfjorden|2014 1645.4511  0.17627008  1161.7732  2330.4974
* Std Errors are on transformed Y's

```

```

D5 analysis full model.lm
Response Log(D5 Lip.)
Fit Model
Weight (weight=cVMS),
Y(Log(D5 Lip.)),
Effects
Lokalitet
TL
Lokalitet*TL
A*TL[Lokalitet] & Random
A*TL[Lokalitet] & Random
Personality (Standard Least Squares ),
Method (REML),
Estimate (Minimum Report),
Run
D5 Lip. << (Analysis of Variance) ( ), Lack of Fit (0 ),
Pilot Actual by Predicted (0 ), Pilot Regression (0 ),
Pilot Residual by Predicted (0 ), Pilot Effect Leverage (0 ),
AICc (1 ), Show All Confidence Intervals (1 )
)
Weight: weight=cVMS
Summary of Fit
R Square      0.482272
R Square Adj  0.472659
R Square Error 0.517341
Mean of Residuals 7.937448
Observations (or Sum Wgts) 174.0711
AICc      BIC      469.388      499.388
Parameter Estimates
Term          Estimate  Std Error  DFDen  t Ratio  Prob>|t|  Lower 95%  Upper 95%
Intercept    4.6191244  0.535169  5.672  8.63  0.0002*  3.2310078  5.947241
Lokalitet[Messa] 0.0704469  0.207908  4.764  0.34  0.7492  -0.472071  0.6129649
TL            0.766008  0.193296  5.755  5.50  0.0017*  0.4216223  1.1103937
Lokalitet[Messa]*TL -3.81953  0.1544606  5.755  1.11  0.3117  -0.189925  0.4889463
Random Effect Predictions
Term          BLUP      Std Error  DFDen  t Ratio  Prob>|t|  Lower 95%  Upper 95%
Lokalitet[Messa]*A[2010] 0.286701  0.253437  5.409  1.14  0.3026  -0.344268  0.9256064
Lokalitet[Messa]*A[2012] 0.4428654  0.245753  5.021  1.80  0.1311  -0.188037  1.0758092
Lokalitet[Messa]*A[2014] 0.1662225  0.1662225  5.021  1.00  0.3117  -0.133266  0.4657110
Lokalitet[Randsfjorden]*A[2010] -0.67734  0.241120  5.267  -1.98  0.1015  -1.133366  -0.1392077
Lokalitet[Randsfjorden]*A[2012] 0.0686951  0.328193  3.917  0.21  0.8446  -0.850133  0.8775257
Lokalitet[Randsfjorden]*A[2014] -0.029378  0.328193  3.917  -0.21  0.8446  -0.897524  0.8501335
Lokalitet[Messa]*A[2010]*TL -3.81953  0.1662225  5.021  -2.28  0.0236*  -4.151414  -3.487646
Lokalitet[Messa]*A[2012]*TL -3.81953  0.1662225  5.021  -2.28  0.0236*  -4.151414  -3.487646
Lokalitet[Messa]*A[2014]*TL -3.81953  0.1662225  5.021  -2.28  0.0236*  -4.151414  -3.487646
Lokalitet[Randsfjorden]*A[2010]*TL -3.81953  0.149331  2.378  0.65  0.5736  -4.485144  0.7050102
Lokalitet[Randsfjorden]*A[2012]*TL -3.81953  0.1224077  1.574  0.66  0.5630  -4.828562  1.1743772
Lokalitet[Randsfjorden]*A[2014]*TL -3.81953  0.1224077  1.574  0.66  0.5630  -4.828562  1.1743772
REML Variance Component Estimates
Random Effect      Var      Component  Std Error  95% Lower  95% Upper  Pct of Total
A*TL[Lokalitet]    0.2287806  0.1754236  0.1455228  -0.109796  0.4608431  17.789
A*TL[Lokalitet]*TL 0.0572085  0.04387  0.0383553  -0.070504  0.1582442  4.449
Residual           0.664939  0.0866596  0.8217603  0.9686708  100.000
-2 Log Likelihood = 454.4885230
Covariance Matrix of Variance Component Estimates
Random Effect      A*TL[Lokalitet]  Residual
A*TL[Lokalitet]    0.0211769  -0.0010368  -0.000489
A*TL[Lokalitet]*TL 0.0010368  0.0034053  -0.000431
Residual           -0.000489  -0.000431  0.0075108
Fixed Effect Tests
Source      Nparm  DF  DFDen  F Ratio  Prob > F

```

D5 analysis reduced model.jrn
 Response Log(D5 Lip.)
 Effect Details
 Lokallet
 A1[Lokallet]
 Least Squares Means Table

Level	Sq Mean	Least	Std Error	Lower 95%	Upper 95%
[Messaj2010	2725.7988	0.17300754	1932.8928	3843.7724	
[Messaj2011	1539.6259	0.13248869	1230.4403	2078.6866	
[Messaj2015	1369.4077	0.15817196	1000.8789	1873.6367	
[Randsfjorden]2012	2049.0159	0.21314725	1342.8072	3126.6388	
[Randsfjorden]2014	1886.2483	0.16144523	1371.2046	2394.7487	

* Std Errors are on transformed Y's

D5 analysis reduced model.jrn
 Response Log(D5 Lip.)
 Fit Model
 Weight (weight cVMS),
 Y(Log(D5 Lip.)),
 Effects(Lokallet, TL, A1[Lokallet] & Random),
 Personality Standard Least Squares),
 Method(REML),
 Run(Reset Minimal Report),
)
 D5 Lip. << (Analysis of Variance (0), Lack of Fit (0),
 Plot Actual by Predicted (0), Plot Regression (0),
 Plot Residual by Predicted (0), Plot Effect Leverage (0),
 AICc(1), Show All Confidence Interval(1))
)
 Weight, weight cVMS
 Summary of Fit
 RSquare 0.451155
 RSquare Adj 0.444542
 Root Mean Square Error 0.8691
 Mean Squared Error 7.427613
 Observations for Sum Wgts) 174.0711
 AICC BIC
 -466.0169 481.2983
 Parameter Estimates
 Term Estimate Std Error DFDen I Ratio Prob>|I| Lower 95% Upper 95%
 Intercept 4.461686 0.356723 48.78 12.50 <0.001* 3.743258 5.177135
 Lokallet[Messj] 0.0280573 0.186944 4.572 0.15 0.8871 -0.466335 0.5224493
 TL 0.8251332 0.094646 184.5 8.75 <0.001* 0.658001 0.9922854
 Random Effect Predictions
 Term BLUP Std Error DFDen I Ratio Prob>|I| Lower 95% Upper 95%
 Lokallet[Messj]A1[2010] 0.2706725 0.236902 5.602 1.14 0.2997 -0.319133 0.8604763
 Lokallet[Messj]A1[2012] 0.4083708 0.23016 5.255 1.78 0.1326 -0.17375 0.992492
 Lokallet[Messj]A1[2014] -0.262332 0.224963 4.962 -1.17 0.2954 -0.841898 0.3177034
 Lokallet[Messj]A1[2015] -0.417711 0.234785 3.343 -1.80 0.1276 -1.02224 0.1868016
 Lokallet[Randsfjorden]A1[2012] 0.1581719 0.16811 9.416 3.84 0.0001* 0.81401 0.500334
 Lokallet[Randsfjorden]A1[2014] -0.041385 0.236619 3.814 -0.14 0.8861 -0.88101 0.7982404
 REML Variance Component Estimates
 Var Var Ratio Component 95% Lower 95% Upper Pct of Total
 A1[Lokallet] 0.1832857 0.1461589 0.1229625 -0.093672 0.385898 15.468
 Residual 0.7976275 0.0865975 0.6488282 1.0043053 84.514
 Total 0.9437814 100.000
 -2 LogLikelihood = 455.64891883
 Covariance Matrix of Variance Component Estimates
 Random
 Effect A1[Lokallet] Residual
 A1[Lokallet] 0.0149726 -0.000242
 Residual -0.000242 0.0078485
 Fixed Effect Tests
 Source Nparm DF F Ratio Prob > F
 Lokallet 1 1 4.572 0.0225 0.8871
 TL 1 1 164.5 95.0250 <0.001*
 Effect Details
 Lokallet
 Least Squares Means Table

Level	Sq Mean	Least	Std Error	Lower 95%	Upper 95%
[Messj	2079.4209	0.20948135	1165.8282	3705.4442	
[Randsfjorden	1985.9483	0.30709351	877.7485	4403.2574	

* Std Errors are on transformed Y's

D6 analysis full model.lrn
Response Log(D6 Lip.)

Effect Details

Lokalitet

Least Squares Means Table

Level	Sq Mean	Std Error	Lower 95%	Upper 95%
Messa	141.42869	0.18642854	11.637048	1716.7833
Randsfjorden	89.31601	0.36124629	33.150697	240.6389

* Std Errors are on transformed Y's

A[Lokalitet]

Least Squares Means Table

Level	Sq Mean	Std Error	Lower 95%	Upper 95%
Messa 2012	158.19461	0.12728237	121.62341	205.73647
Messa 2015	126.44444	0.14669311	91.77272	174.21513
Randsfjorden 2012	89.31601	0.30120653	49.00438	102.78849

* Std Errors are on transformed Y's

D6 analysis full model.lrn
Response Log(D6 Lip.)

Fit Model

Weight (weight cVMS),

Y(Log(D6 Lip.)),

Effects

Lokalitet,

TL,

Lokalitet * TL,

A[Lokalitet] & Random,

A* : TL[Lokalitet] & Random

),

Personality (Standard Least Squares),

Method (REML),

Estimate (Normal Report),

Run

D6 Lip. << (Analysis of Variance (0), Lack of Fit (0),

Plot Actual by Predicted (0), Plot Regression (0),

Plot Residual by Predicted (0), Plot Effect Leverage (0),

)

AIC(1), Show All Confidence Intervals(1))

)

Weight: weight cVMS

Summary of Fit

RSquare 0.584705

RSquare Adj 0.580093

Root Mean Square Error 0.161816

Model Sum of Squares 4.630931

Observations (or Sum Wgts) 79

AICc 210.0167

BIC 225.0253

Parameter Estimates

Term Estimate Std Error DFDen t Ratio Prob>|t Lower 95% Upper 95%

Intercept 1.5839412 1.078231 1.154 1.47 0.3554 -8.45516 11.633942

Lokalitet[Messa] 0.2298011 0.201889 2.841 1.14 0.3418 -0.433515 0.8931169

TL 0.8185329 0.290295 1.3 2.82 0.1682 -1.359016 2.9900821

Lokalitet[Messa]*TL -3.82714 0.0686 0.290295 1.3 0.29 0.8125 -2.038949 2.2611462

Random Effect Predictions

Term BLUP Std Error DFDen t Ratio Prob>|t Lower 95% Upper 95%

Lokalitet[Messa] 0.119799 0.165027 1 0.69 0.6205 -1.894891 2.2088508

Lokalitet[Messa]*TL -0.11198 0.165027 1 -0.68 0.6205 -2.208851 1.8948911

Lokalitet[Randsfjorden] 0.264018 0.307977 1 0.86 0.5487 -3.647926 4.1758621

Lokalitet[Messa]*TL -3.82714 -0.264019 0.307977 1 -0.86 0.5487 -4.175962 3.647925

Lokalitet[Randsfjorden]*TL -3.82714 3.628e-14 0.405578 1 0.00 1.0000 -5.153362 5.1533619

REML Variance Component Estimates

Var BLUP Std Error 95% Lower 95% Upper Pct of Total

A[Lokalitet] 0.0651036 0.039735 0.0300602 -0.136741 0.2162883 4.879

A*TL[Lokalitet] 0.269253 0.1644938 0.2769872 -0.378411 0.7073984 20.178

Residual 0.61039285 0.1005576 0.4528962 0.8684043 74.942 100.000

2 Log Likelihood = 194.4391875)

Covariance Matrix of Variance Component Estimates

Random

A[Lokalitet] Residual

A*TL[Lokalitet] -0.003348 -0.000264

A*TL[Lokalitet] 0.0767275 -0.00011

Residual -0.000264 0.0101924

Fixed Effect Tests

Source Nparm DF DFDen F Ratio Prob>F

Lokalitet 1 1 2.841 1.2955 0.3418

TL 1 1 1.3 7.9505 0.1682

Lokalitet*TL 1 1 1.3 0.0629 0.8125

Effect Details

Lokalitet

D6 analysis reduced model.lrn

Response Log(D6' Lip.)

Weight: weight cVMS

Summary of Fit

RSquare 0.524698
 RSquare Adj 0.51219
 Root Mean Square Error 0.822437
 Mean of Response 4.836391
 Observations (or Sum Wgts) 79

AICc

BIC 198.788 207.7253

Analysis of Variance

Source	DF	Squares	Mean Square	F Ratio
Model	2	56.74899	28.3745	41.9491
Error	76	51.40661	0.6764	Prob > F <.0001*
C. Total	78	108.15559		

Lack Of Fit

Source	DF	Squares	Mean Square	F Ratio
Lack Of Fit	74	51.353006	0.693960	25.8932
Pure Error	2	0.053602	0.026801	Prob > F 0.0379*
Total Error	76	51.406608		Max Rsq 0.9995

Parameter Estimates

Term	Estimate	Std Error	t Ratio	Prob> t	Lower 95%	Upper 95%
Intercept	1.5646997	0.415295	3.77	0.0003*	0.7375682	2.3918312
Lokalitet[Mjosa]	0.1670139	0.128794	1.30	0.1986	-0.089501	0.4235289
TL'	0.8300078	0.113761	7.30	<.0001*	0.6034341	1.0565815

Effect Tests

Source	Nparm	DF	Sum of Squares	F Ratio	Prob > F
Lokalitet	1	1	1.137421	1.6816	0.1986
TL'	1	1	36.006878	53.2330	<.0001*

Expanded Estimates

Nominal factors expanded to all levels

Term	Estimate	Std Error	t Ratio	Prob> t	Lower 95%	Upper 95%
Intercept	1.5646997	0.415295	3.77	0.0003*	0.7375682	2.3918312
Lokalitet[Mjosa]	0.1670139	0.128794	1.30	0.1986	-0.089501	0.4235289
Lokalitet[Randsfjorden]	-0.167014	0.128794	-1.30	0.1986	-0.423529	0.0895011
TL'	0.8300078	0.113761	7.30	<.0001*	0.6034341	1.0565815

Effect Details

Lokalitet						
Least Squares Means Table						
Level	Sq Mean	Std Error	Lower 95%	Upper 95%	Mean	
Mjosa	135.40500	0.10786366	109.22841	167.85481	164.795	
Randsfjorden	96.95456	0.22232774	62.26742	150.96477	47.363	

* Std Errors are on transformed Y's

TL'

7.4 Vedlegg 4 - Rådata

Stabile isotoper og fettprosent er analysert i muskelvev av fisk og helkropp hos zooplankton/Mysis.

Analysene av miljøgifter er i hovedsak gjort på muskelvev hos fisk og helkropp hos zooplankton/Mysis. Unntaket er for PFAS hvor majoriteten av analysene av fisk er gjort på lever, men med supplerende analyser av muskelvev. Vevstypen er markert i en egen kolonne.

Konsentrasjoner under kvantifikasjonsgrensene er markert med < (mindre enn).

Miljødirektoratet

Telefon: 03400/73 58 05 00 | Faks: 73 58 05 01

E-post: post@miljodir.no

Nett: www.miljodirektoratet.no

Post: Postboks 5672 Sluppen, 7485 Trondheim

Besøksadresse Trondheim: Brattørkaia 15, 7010 Trondheim

Besøksadresse Oslo: Grensesvingen 7, 0661 Oslo

Miljødirektoratet jobber for et rent og rikt miljø. Våre hovedoppgaver er å redusere klimagassutslipp, forvalte norsk natur og hindre forurensning.

Vi er et statlig forvaltningsorgan underlagt Klima- og miljødepartementet og har mer enn 700 ansatte ved våre to kontorer i Trondheim og Oslo, og ved Statens naturoppsyn (SNO) sine mer enn 60 lokalkontor.

Vi gjennomfører og gir råd om utvikling av klima- og miljøpolitikken. Vi er faglig uavhengig. Det innebærer at vi opptre selvstendig i enkeltsaker vi avgjør, når vi formidler kunnskap eller gir råd. Samtidig er vi underlagt politisk styring. Våre viktigste funksjoner er at vi skaffer og formidler miljøinformasjon, utøver og iverksetter forvaltningsmyndighet, styrer og veileder regionalt og kommunalt nivå, gir faglige råd og deltar i internasjonalt miljøarbeid.