

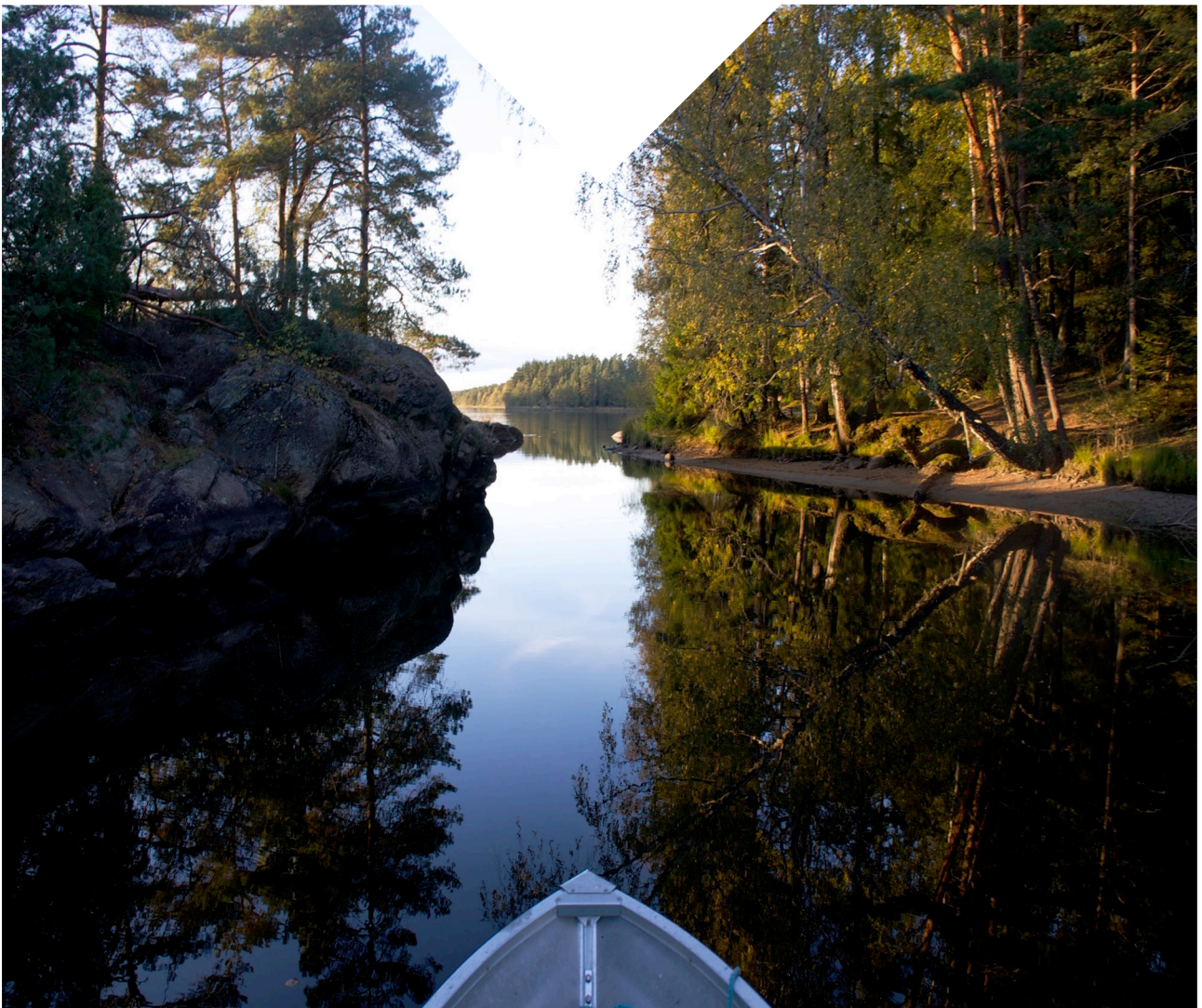


MILJØOVERVÅKNING

M-349 | 2015

Miljøgifter i store norske innsjøer, 2014

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 Farnen

M-nummer

M-349

År

2015

Sidetall

101 s.

Miljødirektoratets kontraktnummer

14078061

Utgiver

NIVA; Rapport 6901-2015; Prosjekt O-13223;
ISBN 978-82-577-6636-8

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, 2014
Environmental pollutants in large Norwegian lakes, 2014

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 2014. Kvikksølv og organiske miljøgifter (cVMS, PCB, PBDE, PFAS, S/MCCP) ble analysert i prøver av fisk fra alle sjøene, samt i zooplankton i Mjøsa og Randsfjorden. Av hovedfunnene nevnes at siloksanforbindelsen D5 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 2014. Mercury and persistent organic pollutants (cVMS, PCBs, PBDEs, PFAS, S/MCCP) were analyzed in samples of fish from all lakes, as well as zooplankton in Mjøsa and Randsfjorden. Among the key findings are that the siloxane D5 shows 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 (Vansjø)

Innhold

1. Extended abstract	5
2. Sammendrag	9
3. Innledning	12
4. Materiale og metoder	14
4.1 Beskrivelse av innsjøene	14
4.2 Prøvetaking av fisk og zooplankton	17
4.3 Analysemetoder	18
4.3.1 Kvikksølv, Hg	18
4.3.2 Sykliske volatile metylerte siloksaner, cVMS	18
4.3.3 Polyklorerte bifenyler og polybromerte difenyletere, PCB og PBDE	19
4.3.4 Klorerte parafiner, S/MCCP	21
4.3.5 Perfluorerte alkylforbindelser, PFAS	21
4.3.6 Stabile N- og C-isotoper, $\delta^{15}\text{N}$ og $\delta^{13}\text{C}$	22
4.4 Beregning av trofisk magnifisering	23
4.5 Kort om de ulike miljøgiftene	23
4.5.1 Kvikksølv	23
4.5.2 Sykliske (flyktige) metylerte siloksaner, cVMS	24
4.5.3 Polyklorerte bifenyler, PCB	24
4.5.4 Polybromerte difenyletere, PBDE	25
4.5.5 Klorerte parafiner, S/MCCP	25
4.5.6 Perfluorerte alkylstoffer, PFAS	25
5. Resultater og diskusjon	27
5.1 Fiskestørrelse, trofiske nivåer og fett	27
5.2 Kvikksølv, Hg	30
5.3 Sykliske flyktige metylerte siloksaner, cVMS	34
5.3.1 Behandling av ikke-kvantifiserbare data	34
5.3.2 Nivåer av cVMS i 2014	34
5.3.3 Årlig variasjon av cVMS i Mjøsa og Randsfjorden	38
5.3.4 Trofisk magnifisering av D5 i Mjøsa og Randsfjorden	39
5.3.5 Samvariasjoner mellom cVMS, PCB, PBDE og trofisk nivå	42
5.4 Polyklorerte bifenyler, PCB	44
5.4.1 Nivåer av PCB i 2014	44
5.4.2 Historisk utvikling av PCB-nivåene i fisk fra Mjøsa	46
5.4.3 Trofisk magnifisering av PCB	47
5.5 Perfluorerte alkylforbindelser, PFAS	49
5.5.1 Nivåer av PFAS i 2014	49

5.5.2	Konsentrasjoner av PFAS i muskel vs. lever.....	52
5.5.3	Tidstrend av PFAS i Mjøsa.....	54
5.6	Polybromerte difenyletere, PBDE.....	56
5.6.1	Konsentrasjoner av PBDE i 2014	56
5.6.2	Tidstrend av PBDE i Mjøsa	58
5.6.3	Trofisk magnifisering av PBDE.....	60
5.7	Klorerte parafiner, S/MCCP.....	61
6.	Referanser	64
7.	Vedlegg - Appendix.....	69
7.1	English translation of cVMS related chapters	69
7.2	Vedlegg 2: cVMS mixed model	85
7.3	Vedlegg 3: Data.....	89

1. Extended abstract

Title: Environmental pollutants in large Norwegian lakes, 2014

Year: 2015

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-349|2015

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 2014 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 and Randsfjorden. 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), perfluorinated alkyl substances (PFASs) and chlorinated paraffins (SCCPs and MCCPs). 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, with average concentrations ranging from 0.27 to 1.08 mg/kg (wet weight), highest in Randsfjorden 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, vendace and whitefish were significantly lower than in brown trout, with average values in the range 0.13 -0.21 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 to 2013/2014 could be detected for brown trout in Randsfjorden, whereas a significant reduction from 2000

to 2013/2014 was observed for Femunden (from 0.40 to 0.25 mg/kg). 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.

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. 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 and Randsfjorden. The majority of the samples (80 %) had D5 concentrations above the quantification limits (LOQ), while for D4 and D6 the majority of the samples showed concentrations below LOQ (70 % and 56 %, respectively). In the further statistical analyses are results less than LOD/Q 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 brown trout from Mjøsa and Randsfjorden. For the remaining lakes, nearly all analytical results of cVMS were less than LOQ (3.4 - 6.4 ng/g wet weight). We suspect local discharges from wastewater treatment plants and industrial activity to be the main source of cVMS to Mjøsa and Randsfjorden.

The compound D5 dominated in samples from Mjøsa and Randsfjorden, with average concentrations in fish in the range of 1400 - 5800 ng/g lipid, whereas the primary consumers (epipelagic zooplankton) had concentrations of 360 and 750 ng/g lipid, respectively. The D5 levels in fish from Mjøsa and Randsfjorden exceed those of legacy POPs in this study. Mean concentrations of D4 and D6 in brown trout from Mjøsa and Randsfjorden were 40 and 140 ng/g lipid, respectively. A significant positive correlation between lipid adjusted D5 concentrations and trophic positions were found for both lakes, indicating trophic magnification of D5. By including previous data from 2010 and 2012, a statistical model confirmed that D5 biomagnified in both lakes with a common trophic magnification factor (TMF) of 2.15 (95% CL: 1.80 - 2.56). A closer examination of trophic magnification of D4 and D6 was not possible because of the large percentage of observations below LOQ.

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-range transported depositions and former local use.

Brown trout from Mjøsa and Randsfjorden had rather similar mean concentrations of Σ PCB7 (830 and 1,100 ng/g lipid), and the concentrations here were significantly higher than for brown trout from Femunden (300 ng/g lipid). The low level of PCBs in fish from Femunden reflects the absence of local sources, and the main source here is most likely long-range transported atmospheric depositions. For Mjøsa and Randsfjorden local sources are probably a significant contributing factor, but the PCB concentrations in fish from these lakes are now reduced compared to the levels of 1998. The PCB concentration increased with trophic level in all three lakes, and the estimated TMF-values for PCB-153 were in the range of 4.89-5.19.

Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs)

PBDEs are a group of brominated flame retardants, used in 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 12 to 600 ng/g lipid, highest in brown trout from Mjøsa and lowest in whitefish from Femunden. Similar concentration in zooplankton from Mjøsa was 19 ng/g lipid. 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 - 2013, 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 2.59 - 9.08, highest in Randsfjorden and lowest in Femunden. Concentrations of BDE-209 were low in the samples from all the lakes (1-7 ng/g lipid) and showed no systematic variation with trophic level.

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-range 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 seven of the 23 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. PFTTrDA was chiefly found with the greatest concentrations, with mean values in liver samples in the range of 22 - 87 ng/g w.w., highest in Femunden and lowest in Mjøsa. This substance accounted for about 40 - 70 % of the sum of PFAS in liver samples. Mean PFOS concentrations in fish liver samples from the three main lakes were in the range of 2 - 11 ng/g w.w. However, the PFOS levels were considerably elevated in perch from Tyrifjorden and Vansjø with mean concentrations of 130 and 173 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 6 (PFTeDA) to 30 (PFOS) times higher than muscle concentrations, but with a large variation around the means. The differences between muscle and liver concentrations seemed to increase with decreasing carbon chain length. Estimations of TMF-values for the quantified PFAS-compounds could not be derived/calculated, as we lack data on PFAS on other tissues/body fluids known to accumulate PFAS (blood, kidney, gall), and liver concentrations most likely are not direct proportional for body burdens of PFAS in fish.

Chlorinated paraffins

Chlorinated paraffins (CPs) are complex mixtures of polychlorinated organic compounds. They are mainly used in metal working fluids, sealants, as flame-retardants in rubbers and textiles, in leather processing and in paints and coatings. Their persistence, bioaccumulation, potential for long-range environmental transport and toxicity mean that they may have harmful environmental effects at a global level.

Mean concentrations of short-chained (SCCP) and medium-chained (MCCP) chlorinated paraffins in fish muscle samples were in the range of 0.2 - 5.7 ng/g wet weight or 20 - 570 ng/g lipid. The lipid-based concentration of the SCCP was approximately 1.5 times higher than the concentrations of MCCP, and the highest concentrations was found in zooplankton from Mjøsa. There were no tendency for the concentrations to increase with trophic position, nor was there any systematic variation between lakes. For Mjøsa, where we have previous data on SCCP in fish, the recent concentrations in trout and vendace seem to have been reduced to approximately 25 - 30% of the levels found in 2008.

2. Sammendrag

Tittel: Miljøgifter i store norske innsjøer, 2014

År: 2015

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-349|2015

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. Det blir her rapportert om resultatene for 2014, med fokus på forekomsten av miljøgifter på ulike trofiske nivå og deres potensial for biomagnifisering blir vurdert.

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

De organiske miljøgiftene omfattet sykliske volatile metylerte siloksaner (cVMS), polyklorerte bifenyler (PCB), bromerte flammehemmere av typen polybromerte difenyletere (PBDE), perfluorerte alkylsubstanser (PFAS) og klorerte parafiner (SCCP, MCCP). 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 0,39-0,96 mg/kg, høyest i Randsfjorden og lavest i Femunden. 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, lågåsild og sik var vesentlig lavere enn hos ørret, med gjennomsnittsverdier i området 0,13-0,21 mg/kg. Kvikksølvinnholdet i ørret fra Mjøsa har vært mer eller mindre uforandret i perioden 2006-2014. For ørreten i Randsfjorden kunne det ikke påvises noen signifikant endring i de lengdejusterte middelkonsentrasjonene av kvikksølv fra 1999 og til 2013/2014. For Femunden kunne det derimot påvises en signifikant reduksjon fra 2000 til 2013/2014 (fra 0,40 til 0,25 mg/kg). For abbor fra Tyrifjorden og Vansjø var midlere kvikksølvkonsentrasjon 0,29 og 0,39 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 alle innsjøene, og i planktoniske krepsdyr i Mjøsa og Randsfjorden. For D5 var majoriteten (80 %) av analysene over kvantifikasjonsgrensene (LOQ), mens for D4 og D6 var flertallet under grensen (henholdsvis 70 % og 56 % < LOQ). Dette skapte utfordringer i den videre statistiske behandlingen av materialet, og de videre beregningene er basert på at resultater under metodens deteksjons- eller kvantifikasjonsgrenser (LOD/Q) er substituert med halve grensene. De høyeste konsentrasjonene i fisk ble funnet hos ørret fra Mjøsa og Randsfjorden, mens for Femunden, Tyrifjorden og Vansjø var nær samtlige analyseresultater av cVMS under metodens kvantifikasjonsgrenser (3,4 - 6,4 ng/g våtvekt). Lokale tilførsler er trolig hovedkilden for cVMS i Mjøsa og Randsfjorden.

Forbindelsen D5 dominerte i prøvene fra Mjøsa og Randsfjorden, og midlere konsentrasjoner i fisk var i området ca. 1400-5800 ng/g lipid, mens de for primærkonsumentene (epipelagisk zooplankton) var henholdsvis 360 og 750 ng/g lipid. For ørret fra Mjøsa var midlere konsentrasjon av D4 og D5 henholdsvis 40 og 140 ng/g lipid. I begge sjøene var det en signifikant korrelasjon mellom de lipidjusterte konsentrasjonene av D5 og trofisk posisjon, hvilket viser at det skjer en trofisk magnifisering av forbindelsen. Ved å inkludere tidligere data fra 2010 og 2012 kunne en statistisk modell bekrefte at D5 biomagnifiserte i begge sjøene med en felles trofisk magnifikasjonsfaktor (TMF) på 2,15 (95 % konfidensintervall: 1,80 -2,56). En nærmere undersøkelse av trofisk magnifisering av D4 og D6 lot seg ikke gjøre på grunn av den store andelen observasjoner under LOQ.

Polyklorerte bifenyler (PCB)

Ørret fra Mjøsa og Randsfjorden hadde på lipidvekstbasis omlag samme midlere konsentrasjoner av Σ PCB7 (830 og 1100 ng/g lipid), og konsentrasjonene her var betydelig høyere enn for ørret fra Femunden (300 ng/g lipid). De lave nivåene av PCB i Femunden avspeiler at lokale kilder her er nær fraværende og tilførslene i hovedsak må skyldes langtransporterte avsetninger. For Mjøsa og Randsfjorden vil lokale kilder komme i tillegg. 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 4,89 - 5,19.

Perfluorerte alkylforbindelsene (PFAS)

I fisk ble det analysert for PFAS hovedsakelig i prøver av lever. For syv av de 23 analyserte forbindelsene hadde nær 100 % av leverprøvene konsentrasjoner over kvantifiseringsgrensene. Dette var de langkjedede perfluorerte karboksylsyrene (PFCA: C9-C14), PFOS og PFOSA. For de øvrige forbindelsene var andelen kvantifiserbare prøver for en stor del under metodens kvantifikasjonsgrenser. I de tre hovedsjøene økte nivået av de ulike PFAS-forbindelsene oppover i næringskjeden, og var generelt høyest hos ørret. Forbindelsen PFTrDA fantes i hovedsak i størst konsentrasjon, med middelverdier i leverprøvene i området 22-87 ng/g våtvekt, høyest i Femunden og lavest i Mjøsa. Dette utgjorde omlag 40-70 % av totalkonsentrasjonen av PFAS i lever. Midlere konsentrasjoner av PFOS i leverprøver av fisk i de tre hovedsjøene lå i område 2-11 ng/g våtvekt, men i Tyrifjorden og Vansjø var imidlertid nivåene av PFOS i abbor betydelig forhøyet med middelkonsentrasjoner på henholdsvis 130 og 173 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 fem ulike PFAS finnes i kvantifiserbare konsentrasjoner, og en sammenlikning viste at konsentrasjonene i lever gjennomsnittlig var 6 (PFTeDA) til 30

(PFOS) ganger høyere enn i muskel, men med en vesentlig variasjon omkring middelverdiene. Forskjellene mellom konsentrasjonene i muskel og lever syntes å øke med minskende kjedelengde for karbon. Konsentrasjonene av de enkelte PFAS-forbindelser steg med trofisk nivå, men vi har ikke beregnet TMF-verdier da verdier i lever ikke nødvendigvis er proporsjonale med helkroppsbelastningen av PFAS i fisk.

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 var i området 12 - 600 ng/g lipid, høyest i ørret fra Mjøsa og lavest i sik fra Femunden. Tilsvarende konsentrasjoner i zooplankton fra Mjøsa var 19 ng/g lipid. 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 2000-2013, 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 2,59 - 9,08, høyest i Randsfjorden og lavest i Femunden. Konsentrasjonen av BDE-209 var lav i prøvene fra alle innsjøene (1 - 7 ng/g lipid) og viste ingen systematisk variasjon med trofisk nivå.

Klorerte parafiner

Midlere konsentrasjoner av kortkjedede (SCCP) og mellomkjedede (MCCP) parafiner var området 0,2 - 5,7 ng/g våtvekt eller 20 - 570 ng/g lipid. På lipidvektbasis var konsentrasjonen av de kortkjedede omlag 1,5 ganger høyere enn konsentrasjonen av de langkjedede, og de høyeste konsentrasjonene funnet i zooplankton fra Mjøsa. I fisk ble det analysert for parafiner i muskelprøver, og det var ingen tegn til at konsentrasjonene økte med trofisk posisjon eller varierte systematisk mellom innsjøene. For Mjøsa, hvor det finnes tidligere data på SCCP i fisk, synes konsentrasjonene i ørret og lågåsild å ha sunket til omlag 25-30 % av nivåene i 2008.

3. Innledning

Miljødirektoratet inngikk i 2013 en konsulentavtale 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 andre 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 tilførselene 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 2014.

Hensikten med overvåkningsprogrammet er å vurdere miljøgifters skjebne og potensiale for effekter av miljøgifter i ferskvannøkosystemer. Resultatene kan også brukes som grunnlag for kostholdsrad. De primære målene for programmet er 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), perfluorerte alkylforbindelser (PFAS), bromerte flammehemmere av type polybromerte difenyletere (PBDE), og klorerte parafiner (SCCP og MCCP) i fisk og zooplankton fra de store innsjøene Mjøsa, Randsfjorden og Femunden. Et fåtall prøver av kvikksølv i abbor fra Tyrifjorden og Vansjø er også inkludert i undersøkelsen.

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.

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

4. Materiale og metoder

4.1 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 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).

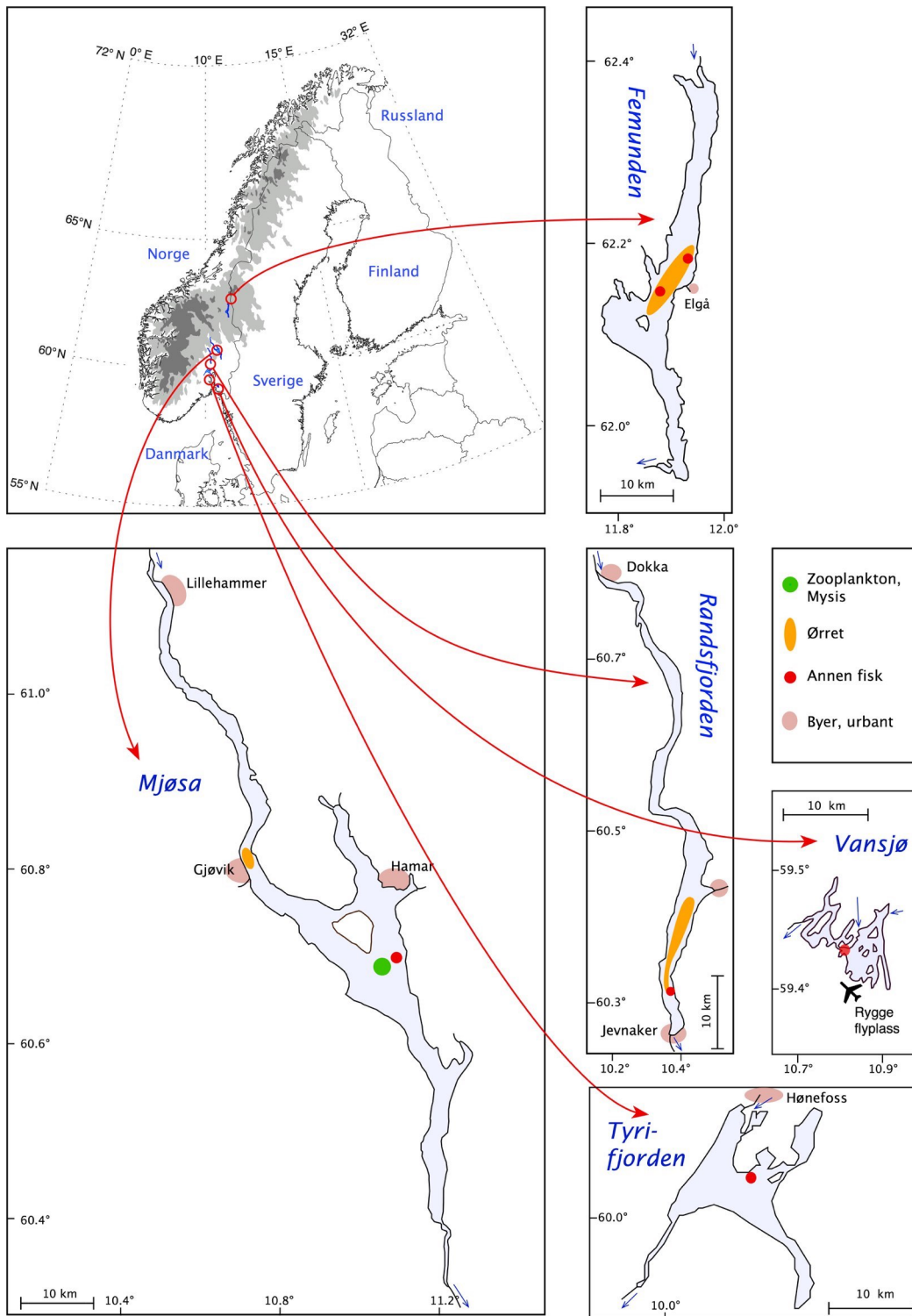
Vansjø er Norges 35. største innsjø og er en del av Mossevassdraget som strekker seg fra Østmarka i Oslo i Nord og til raet gjennom Østfold i sør. Innsjøen har et rikt fiskesamfunn, med 17 arter hvor planktonspisende karpe fisk som mort, brasme og laue dominerer det pelagiske fiskesamfunnet. Innsjøen er resipient for flere renseanlegg og avløp fra spredt bebyggelse,

industri og jordbruk (PE fra renseanlegg er ikke kjent). Vassdraget er sterkt belastet med næringsalter 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 perfluorerte alkylerte substanser (PFAS) fra brannøvingsfelt (Forsvarsbygg Futura 2014).

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, Tyrifjorden og Vansjø. Områdene hvor fisk, zooplankton og Mysis er samlet inn er markert.

4.2 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 engangshansker (nitrilgummi) 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 ørret fra Randsfjorden som ble fisket i juni. 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 registrert 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 krøkle, med individvekt typisk rundt 9-15 g, måtte materiale fra flere individer benyttes for å få tilstrekkelig mengde per prøve (ca. 20-25 g). Hver av disse blandprøvene besto av materiale fra omlag 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. Glassene og aluminiumsfolien var rensset ved gløding til $500\text{ }^{\circ}\text{C}$. Prøvene ble oppbevart nedfrost ($-20\text{ }^{\circ}\text{C}$) fram til analyse.

Zooplankton fra Mjøsa og Randsfjorden ble samlet inn i august med en zooplanktonhåv i nylonduk (maskestørrelse $500\text{ }\mu\text{m}$), påmontert en oppsamlingskopp med sil (begge i messing). 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 ansees som en anti-predasjonstilpasning. Kun naturlig overflatevann ble benyttet under silingen. Zooplanktonprøvene ble deretter overført til samme type prøveglass som fiskeprøvene og oppbevart nedfrost fram til analyse ($-20\text{ }^{\circ}\text{C}$). Alt utstyr som var i direkte kontakt med zooplanktonprøvene var rensset med metanol og aceton (HPLC grade). Det epipelagiske zooplanktonet i Mjøsa ble dominert av vannlopper (*Cladocera*) av artene *Daphnia galeata* og *Bosmina longispina*, men det hypopelagiske ble dominert av hoppekreps, særlig *Limnocalanus macrurus*. I Randsfjorden ble zooplanktonet, både i epilimnion og hypolimnion volummessig dominert av gelekreps (*H. gibberum*), som ble filtrert fra prøvene. Etter å ha fjernet disse besto prøvene i hovedsak av vannloppene *D. galeata* og *B. longispina*.

4.3 Analysemetoder

4.3.1 Kvikksølv, Hg

En prøvemengde på ca. 0,6 gram ble veid inn og tilsatt fortynnet supra pure salpetersyre. Prøven ble ekstrahert ved bruk av UltraClave som er en mikrobølgebasert oppslutningsenhet. Etter ekstraksjon ble prøven fortynnet 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.

4.3.2 Sykliske volatile metylerte siloksaner, cVMS

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 feltarbeide 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. Prøver ble analysert ved GC-MS under samme instrumentelle betingelser som publisert av Warner et al. 2010, 2013).

Metodedeteksjongrenser (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. Deteksjongrenser (LOD), satt lik gjennomsnittet pluss $3 \times$ standardavviket, ble også rapportert for sammenligning med LOQ.

Prøvene ble opparbeidet i tre «ulike batcher» hvor LOQ/D varierte mellom batchene - alt ut fra variabiliteten til analyseresultatene til blankprøvene (Tabell 2). For én batch (No. 2) ble LOD/Q inflatert i forhold til de andre da én blankprøve hadde en avvikende høy analyseverdi. Dette

har forårsaket at mange analyseresultater har blitt såkalt «venstresensurert» og har blitt klassifisert som enten under LOD eller LOQ.

Tabell 2. Resultat fra analyse av siloksaner i blindprøver, deteksjonsgrenser (LOD) og kvantifikasjonsgrenser (LOQ) for de ulike forbindelsene av cVMS

Batch	LOD, ng/g v.v.			LOQ, ng/g v.v.		
	D4	D5	D6	D4	D5	D6
No. 1	0.4	0.3	1.3	0.6	0.5	1.9
No. 2	6.4	2.0	2.0	17.7	5.8	3.4
No. 3	1.9	0.2	2.5	3.4	0.4	3.5

4.3.3 Polyklorerte bifenyler og polybromerte difenyletere, PCB og PBDE

Prøveforberedelse: Ca. 4 – 5 g fiskefilet 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 renset på en 6 g silikakolonne (1 x), behandling med konsentrert svovelsyre (1-6 x) og ny rensing på en 6 g silikakolonne. Det rensete ekstraktet blir oppkonsentrert til et sluttvolum på ca. 100 µL og tilsatt gjenvinningsstandard.

Kvantifisering: PCB- og PBDE-kongenerene (Tabell 3. 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.

Tabell 3. 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

4.3.4 Klorerte parafiner, S/MCCP

Prøveopparbeidelse av SCCP og MCCP blir analysert i to separate GC/HRMS analyser og i electron capture negative (ECNI) ion modus. Et utvalg av de forskjellige formelgruppene blir monitorert og danner grunnlaget for beregning av sum S/MCCP i henhold til en anerkjent metode utviklet av Tomy et al. (1997). En ¹³C merket heksaklordekan benyttes som intern standard for begge analyser.

4.3.5 Perfluorerte alkylforbindelser, PFAS

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 (2,6 mM ammonium acetate) og acetonitril som mobilfase.

Tabell 4. Oversikt over perfluorerte forbindelser analysert, akronymer, formel, CAS nr og kvantifikasjonsgrenser (LOQ) av PFAS bestemt med UPLC-ToF MS

PFAS forbindelse	Forkortelse	Molekyl-formel	CAS-nr.	LOQ (ng/g)
perfluoro-n-butanoic acid	PFBA	C ₄ HF ₇ O ₂	357-,22-4	2
perfluoro-n-pentanoic acid	PFPA	C ₅ HF ₉ O ₂	2706-90-3	2
perfluoro-n-hexanoic acid	PFHxA	C ₆ HF ₁₁ O ₂	307-24-4	0,5
perfluoro-n-heptanoic acid	PFHpA	C ₇ HF ₁₃ O ₂	375-85-9	0,5
perfluoro-n-octanoic acid	PFOA	C ₈ HF ₁₅ O ₂	335-67-1	0,5
perfluoro-n-nonanoic acid	PFNA	C ₉ HF ₁₇ O ₂	375-95-1	0,6
perfluoro-n-decanoic acid	PFDA	C ₁₀ HF ₁₉ O ₂	335-76-2	0,5
perfluoro-n-undecanoic acid	PFUnDA	C ₁₁ HF ₂₁ O ₂	2058-94-8	0,4
perfluoro-n-dodecanoic acid	PFDoDA	C ₁₂ HF ₂₃ O ₂	307-55-1	0,4
perfluoro-n-tridecanoic acid	PFTTrDA	C ₁₃ HF ₂₅ O ₂	72629-94-8	0,4
perfluoro-n-tetradecanoic acid	PFTeDA	C ₁₄ HF ₂₇ O ₂	376-06-7	0,4
perfluoro-1-butanefulfonate	PFBS	C ₄ F ₉ SO ₃ Na	29420-49-3	0,1
perfluoro-1-hexanesulfonate	PFHxS	C ₆ F ₁₃ SO ₃ Na	82382-12-5	0,1
perfluoro-1-octanesulfonate	PFOS	C ₈ F ₁₇ SO ₃ Na	4021-47-0	0,05
perfluoro-1-decanesulfonate	PFDS	C ₁₀ HF ₂₁ SO ₃	335-77-3	0,2
perfluoro-1-dodecansulfonate	PFDoDS	C ₁₂ HF ₂₅ SO ₃	79780-39-5	0,2
perfluoro-7-methyloctanesulfonate	ipPFNS	C ₉ F ₁₉ SO ₃	Ikke tilgjengelig	0,2
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

PFAS forbindelse	Forkortelse	Molekyl- formel	CAS-nr.	LOQ (ng/g)
1H,2H-perfluorooctane sulfonate (6:2)	6:2FTS	C ₈ H ₅ F ₁₃ SO ₃	27619-97-2	0,3

4.3.6 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.

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

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

Her er TL trofisk nivå til konsumentene, $\delta^{15}N_c$ og $\delta^{15}N_{pc}$ er N-isotopforholdet til henholdsvis konsumenter og primærkonsumenter, og $\Delta^{15}N$ 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:

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

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 baselinjusterer $\delta^{15}N_{pc}$ 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:

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

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 $\delta^{15}N$ -baselinje.

4.5 Kort om de ulike miljøgiftene

4.5.1 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 rensiltak for å redusere utslipp av kvikksølv fra industrien. Norge underskrev i 2013 Minamata-konvensjonen (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). Kvikksølv-konsentrasjoner i norske storørretbestander ble kartlagt på slutten av 1990-tallet/begynnelsen av 2000-tallet (Fjeld og Rognerud, 2004). Konsentrasjonene i mange bestander, også fra innsjøer uten kjente punktutslipp, kunne være høye og ofte overskride grensen for omsetning til konsum. Undersøkelser fra 2008 tyder på at kvikksølvkonsentrasjonene i abbor fra skogssjøer har blitt vesentlig forhøyet (60 %) siden tidlig 1990-tallet (Fjeld og Rognerud 2009). Det er derfor av interesse å kartlegge kvikksølvnivåene i storørretbestandene i de undersøkte innsjøene, særlig med tanke på å eventuelle endringer som kan ha skjedd i løpet av de siste 10-15 år.

4.5.2 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 22.04.2015 at D4 og D5 oppfyller kriteriene i REACH for svært persistente (vP) og svært bioakkumulerende (vB) stoffer¹.

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 siloksaner D4 og D5 innen 2020. Det er nylig vist at både D5 og D6 biomagnifiserer i akvatiske næringskjeder (Borgå et al. 2012 og 2013b).

4.5.3 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 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).

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>

4.5.4 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 EU². Norge nominerte i 2013 deca-BDE til Stockholmkonvensjonen.

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).

4.5.5 Klorerte parafiner, S/MCCP

Polyklorerte parafiner eller alkaner (PCA) er en stor stoffgruppe som framstilles ved å klorere parafiner eller alkaner (kjedede hydrokarboner). Klorerte parafiner brukes som myknere og brannhemmende midler i plast, maling, gummimasse og som høytrykksadditiver i kjøle- og smøremidler i metallbearbeidende industri. Polyklorerte parafiner deles inn etter kjedens lengde, og klorinnhold. Kommerielle blandinger av såkalte kortkjede klorparafiner SCCP er basert på C₁₀₋₁₃ parafiner, langkjede er basert på C₁₄₋₁₇ parafiner, og de har et klorinnhold på 30 - 70 % av molekylvekten.

Polyklorerte parafiner er kjemisk relativt stabile og brytes langsomt ned i naturen. Kortkjedede polyklorerte parafiner med 60-70 % kloreringsgrad har omlag samme molekylvekt og fysiske egenskaper (fettløselighet, vannløselighet, damp-trykk) som flere andre persistente klororganiske miljøgifter (PCB). De har derfor et potensiale for atmosfærisk langtransport og for å kunne biomagnifisere. Polyklorerte parafiner er vist å ha kreftframkallende og andre toksiske egenskaper. Kortkjedete klorparafiner ble forbudt i Norge i 2002 og er regulert i produktforskriften. De er foreslått som kandidat til Stockholm-konvensjonen.

4.5.6 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 på metalloverflater i galvanisk industri 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 kreftframkallende, ha reproduksjonsskadelige effekter og påvirke hormonsystemer

² http://echa.europa.eu/restrictions-under-consideration?search_criteria_name=bis%28pentabromophenyl%29%20ether&search_criteria_ecnumber=214-604-9&search_criteria=bis%28pentabromophenyl%29%20ether

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 Stockholm-konvensjonen. 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. De langkjedede perfluoreerte karboksylsyrene med kjedelengde C11 - C14 er ført opp på kandidatlisten under REACH fordi stoffene er svært persistente (vP) og svært bioakkumulerende (vB).

5. Resultater og diskusjon

5.1 Fiskestørrelse, trofiske nivåer og fett

Individstørrelse, trofisk nivå ($\delta^{15}\text{N}$), C-isotoper ($\delta^{13}\text{C}$) 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 middelvekter i de ulike organismegruppene i de ulike innsjøene (Tabell 5), 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 0,9 kg i Femunden og til nær 5,2 kg i Mjøsa. Krøkla i Mjøsa var noe større enn den i Randsfjorden, og deres middelvekter var henholdsvis 15 og 10 g. Siken fra Femunden hadde middelvekt på 480 g, mens abbor fra Tyrifjorden og Vansjø hadde middelvekter på 195 og 240 g.

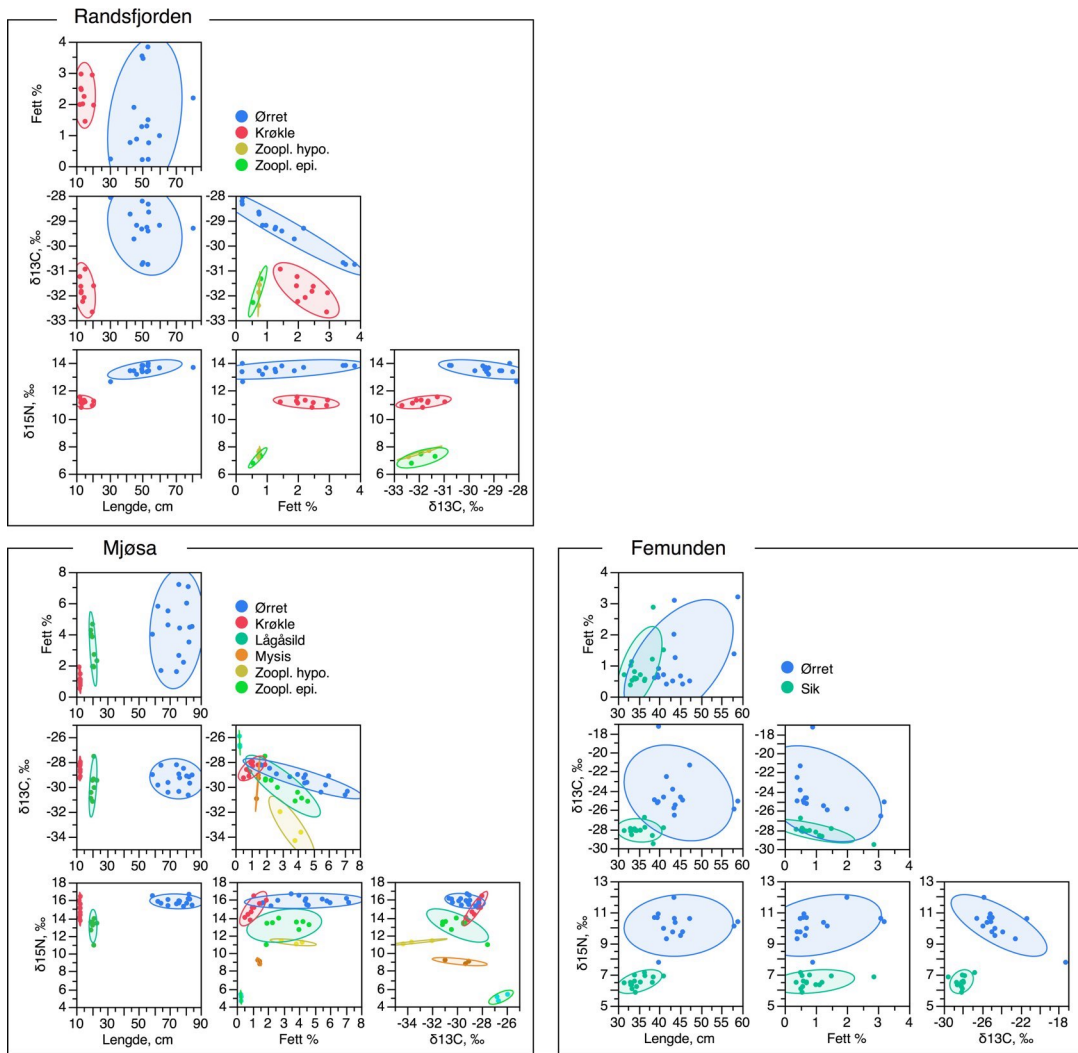
Laksefisk har generelt et mer fettrikt muskelvev enn piggfinnefisk som abbor, og i laksefiskene ørret, krøkle, lågåsild og sik varierte fettinnholdet mellom 0,9 - 4,4 %, høyest hos ørret og lågåsild fra Mjøsa og lavest hos ørret og sik fra Femunden. I Mjøsa og Randsfjorden var det tydelig at fettinnholdet i ørret steg med fiskens størrelse. Andelen fett i epilimnisk zooplankton var lavt, ikke mer enn ca. 0,3 % i Mjøsa og 0,7 % i Randsfjorden.

$\delta^{15}\text{N}$ antas å stige med omlag 3,4 ‰ (poeng) for hvert trofisk nivå, og differansen (‰-poeng) mellom ørret og planktivor fisk (lågåsild, krøkle og sik) i de enkelte innsjøene var i snitt som følger: Mjøsa, 2,8 ‰; Randsfjorden, 2,3 ‰; Femunden, 3,6 ‰. Med unntak av krøkle fra Mjøsa, kunne det ikke spores noen tendens til at $\delta^{15}\text{N}$ steg med fiskens størrelse. Dette er å forvente dersom fiskens diett ikke varierer innenfor den analyserte størrelsesgruppen. For krøkle skyldes økningen i $\delta^{15}\text{N}$ etter all sannsynlighet at vi hadde inkludert noen mellomstore/store kannibalistiske individer i utvalget.

Da det i liten grad skjer noen fraksjonering av C-isotoper med trofisk nivå, vil $\delta^{13}\text{C}$ -signaturen til organismene i første rekke avspeile deres karbonkilder (France and Peters 1997). Pelagisk drevne næringskjeder har mer negative $\delta^{13}\text{C}$ -verdier enn litoralt og terrestrisk drevne kjeder. Dette ser vi et tydelig eksempel på i Mjøsa hvor zooplankton hadde en midlere $\delta^{13}\text{C}$ -verdi på ca. -26 ‰, mens lågåsild, krøkle og ørret hadde verdier mellom -29 og -30 ‰ og med en total variasjonsbredde på 2 - 4 ‰ (poeng). I Femunden hadde ørreten en midlere $\delta^{13}\text{C}$ -verdi på omlag -24 ‰, men med en betydelig større variasjonsbredde på 9 ‰ (poeng). Dette siste indikerer at dietten til ørreten her var mer variert, med karbonkilder fra både pelagiske og littorale/terrestriske næringskjeder.

Tabell 5. Lengde, vekt, fett og forholdet mellom stabile N- og C-isotoper ($\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{15}\text{N}$, i prøver av fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2014. Middelerverdi (\bar{x}), standard avvik (SD) og antall (n) er gitt. For krøkle og abbor er det analysert blandprøver satt sammen av flere fisk, for disse er både totalt antall fisk og antall prøver oppgitt, og statistikkene for lengde og vekt er basert på totalt antall.

Lokalitet	Art		Vekt, g	Lengde, cm	Fett, %	$\delta^{13}\text{C}$, ‰	$\delta^{15}\text{N}$, ‰
Mjøsa	Zoopl., epilimnisk (n: 3)	\bar{x}			0,28	-26,46	5,03
		SD			0,02	0,46	0,37
	Zoopl., hypolimnisk (n: 3)	\bar{x}			1,44	-33,32	11,22
		SD			0,07	1,19	0,18
	Mysis	\bar{x}			3,64	-29,77	9,03
		SD			0,69	1,03	0,21
Lågåsild (n: 9)	\bar{x}	74,7	20,8	3,06	-29,95	13,10	
	SD	10,6	1,2	1,12	1,15	0,87	
Krøkle (n: 47; 9)	\bar{x}	14,8	13,6	1,07	-28,52	15,00	
	SD	9,0	1,8	0,41	0,46	0,90	
Ørret (n: 15)	\bar{x}	5180	74,6	4,34	-29,35	15,87	
	SD	1805	8,1	1,79	0,75	0,39	
Randsfjorden	Zoopl., epilimnisk	\bar{x}			0,72	-31,85	7,14
		SD			0,14	0,48	0,34
	Zoopl., hypolimnisk (n: 3)	\bar{x}			0,75	-31,96	7,49
		SD			0,02	0,42	0,24
Krøkle (n= 34; 9)	\bar{x}	10,2	12,4	2,27	-31,80	11,18	
	SD	0,7	0,4	0,49	0,52	0,22	
Ørret (n: 15)	\bar{x}	1745	51,4	1,53	-29,31	13,53	
	SD	1344	15,0	1,22	0,88	0,33	
Femunden	Sik (n: 15)	\bar{x}	483	35,1	0,91	-28,14	6,55
		SD	122	2,6	0,63	0,57	0,35
Ørret (n: 15)	\bar{x}	891	35,1	1,13	-24,23	10,16	
	SD	122	2,6	0,93	2,33	0,92	
Vansjø	Abbor (n: 25; 5)	\bar{x}	195	21,6	0,26	-29,22	15,01
		SD	170	6,8	0,12	0,29	0,91
Tyrifjorden	Abbor (n: 25; 5)	\bar{x}	238	26,1	0,35	-22,10	11,88
		SD	64,6	2,3	0,06	0,84	0,47



Figur 2. Spredningsplott mellom fiskelengde, forholdet mellom stabile N- og C-isotoper ($\delta^{15}N$, $\delta^{13}C$) og fettinnholdet i prøvene innsamlet i 2014 i de tre hovedsjøene. For fisk er prøvetypen muskelvev, for zooplankton og Mysis er det helkropp. 90 % konfidensellipser er inntegnet for hver prøvetype.

5.2 Kvikksølv, Hg

De høyeste konsentrasjonene av kvikksølv ble funnet i ørret, med gjennomsnittlige konsentrasjoner i området 0,39 - 0,96 mg/kg våtvekt, høyest i Randsfjorden og lavest i Femunden (Tabell 6). Av de 45 analyserte individene hadde to tredjedeler konsentrasjoner som oversteg Mattilsynets omsetningsgrense for konsum (0,5 mg/kg). Generelt er det en stor sannsynlighet for at grensen overskrides når fisken blir omlag 50 cm (\approx 1,4 kg) eller større (Figur 3).

Analyser av stabile N-isotoper indikerte at fisken fra Mjøsa og Randsfjorden var rene fiskespisere, mens det blant fisken fra Femunden var noen som i tillegg ernærte seg på lavere trofiske nivåer eller terrestriske organismer (disse hadde stor spredning i $\delta^{15}\text{N}$ - og $\delta^{13}\text{C}$ -verdiene, se Figur 3). Konsentrasjonene av kvikksølv i krøkle, lågåsild og sik, som er planktonspisende fisk, var vesentlig lavere enn hos ørret med middelkonsentrasjonene i området 0,16-0,21 mg/g våtvekt (Tabell 6). I de epipelagisk zooplanktonprøvene fra Mjøsa og Randsfjorden, samlet inn i overflatelaget av innsjøen, var midlere kvikksølvkonsentrasjon 0,006 - 0,014 mg/kg våtvekt. Dette var i hovedsak herbivort zooplankton, dominert av ulike arter vannlopper (*Cladocera*).

Fra Mjøsa er det gjennom de tidligere overvåkningsprogrammene (2006 - 2013) velkjent at fiskespisende storørret ofte har kvikksølvkonsentrasjoner over omsetningsgrensen (Fjeld et al. 2013 og 2014). Når vi justerer for forskjeller i lengde er ikke midlere konsentrasjoner for 2014 statistisk signifikant forskjellig fra de fra 2006 og seinere (Figur 4). I 2006 inntraff det imidlertid en generell økning i nivåene sammenliknet med tidligere år (Fjeld et al. 2009), uten at vi kan relatere dette til noen spesielle forhold. De siste års resultater, fra 2006 og seinere, viser 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.

Tabell 6. Kvikksølvkonsentrasjon (middelvei, standard avvik, minimum- og maksimum-verdier) i fisk, Mysis og zooplankton, fanget i 2014. Antall prøver (n), midlere lengde og vekt av fisk er òg oppgitt.

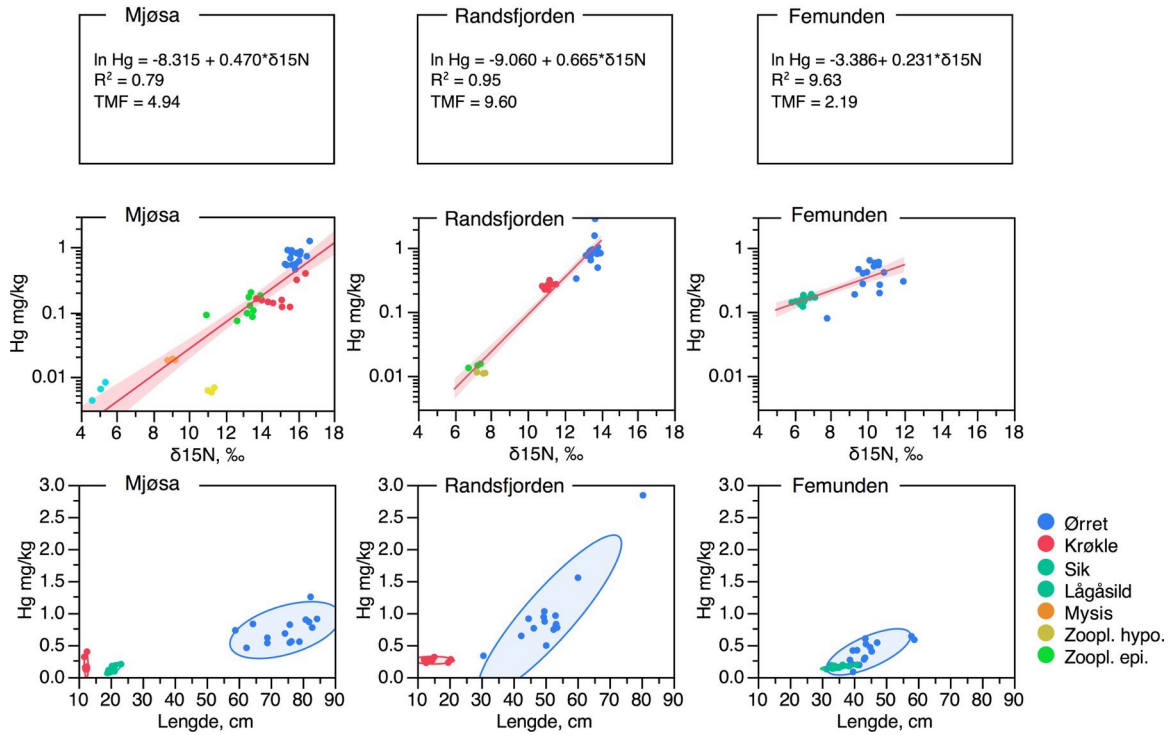
Lokalitet	Art	n	Hg, mg/kg				Lengde, cm	Vekt, g
			middel	SD	min.	maks.		
Mjøsa	Ørret	15	0,73	0,21	0,46	1,25	74,6	5180
	Krøkle	9	0,19	0,10	0,12	0,39	12,4	10
	Lågåsild	9	0,13	0,05	0,07	0,20	20,8	75
	Mysis	3	0,018	0,001	0,018	0,02		
	Zoopl. hypo.	3	0,006	0,001	0,006	0,007		
	Zoopl. epi.	3	0,006	0,002	0,004	0,008		
Randsfjorden	Ørret	15	0,96	0,58	0,33	2,84	51,4	1745
	Krøkle	9	0,21	0,03	0,22	0,31	15,0	23
	Zoopl. hypo.	3	0,011	0,000	0,011	0,011		
	Zoopl. epi.	3	0,014	0,001	0,013	0,015		
Femunden	Ørret	15	0,39	0,17	0,08	0,64	44,6	891
	Sik	15	0,16	0,02	0,12	0,19	35,1	483
Tyrifjorden	Abbor	5	0,29	0,08	0,20	0,37	26,1	238
Vansjø	Abbor	5	0,39	0,25	0,11	0,71	21,6	195

Med unntak fra kartleggingen fra 2013 i foreliggende program (Fjeld et al. 2014) ble de siste systematiske undersøkelser av kvikksølv i storørret fra Randsfjorden og Femunden gjort i henholdsvis 1999 og 2000. Disse dataene finnes i en sammenfattende undersøkelse av kvikksølv i storørretbestander i Norge (Fjeld og Rognerud, 2004) og vi bruker de her for å se hvorvidt det kan påvises noen endring i kvikksølvnivåene siden den tid. Dette er en særlig aktuell problemstilling sett i lys av at vi i to tidligere undersøkelser har vist at kvikksølvkonsentrasjonene i abbor og ørret fra skogssjøer i Sør-Norge har økt siden 1990-tallet (Fjeld og Rognerud 2009, Fjeld et al. 2009).

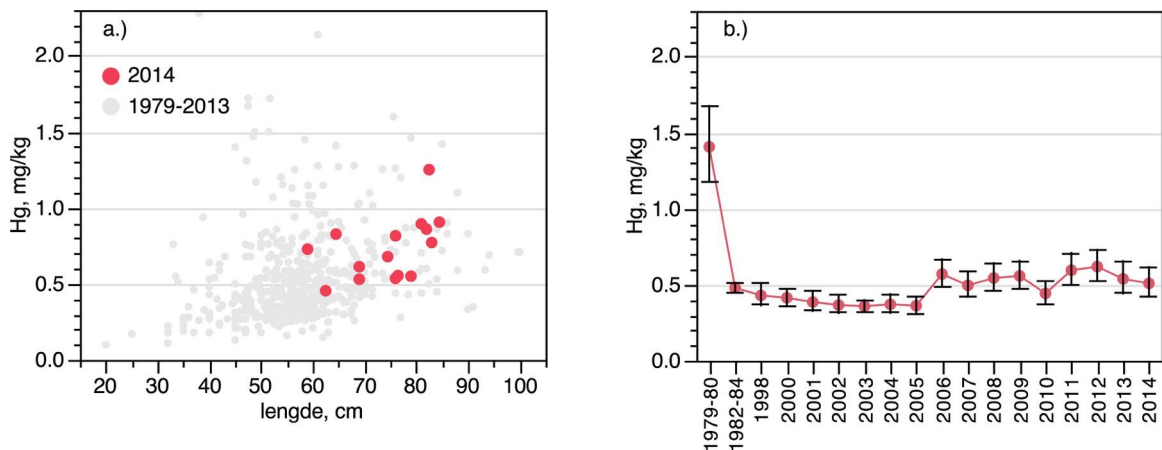
For Randsfjorden kunne en kovariansanalyse forkaste en hypotese om en signifikant endring i nivåene fra 1999 og til 2013 og 2014 ($p = 0,33$), og de lengdejusterte gjennomsnitt (\pm SE) var som følger: 1999, $0,58 \pm 0,20$ mg/kg; 2013/2014, $0,74 \pm 0,10$ mg/kg. Kvikksølvkonsentrasjonene i ørret fra Randsfjorden er høyere enn i Mjøsa ved samme fiskelengde (Figur 3), på tross at vi ikke kjenner noen historiske lokale utslipp til fjorden.

For Femunden var midlere lengdejusterte konsentrasjon i 2013 og 2014 ($0,40 \pm 0,19$ mg/kg) lavere enn i 2000 ($0,25 \pm 0,13$ mg/kg), og en kovariansanalyse kunne påvise at forskjellen er signifikant ($p = 0,05$). Her er imidlertid variansen høy og usikkerheten i estimatene i midlere kvikksølvkonsentrasjon for de to årene (konfidensintervallene) er stor.

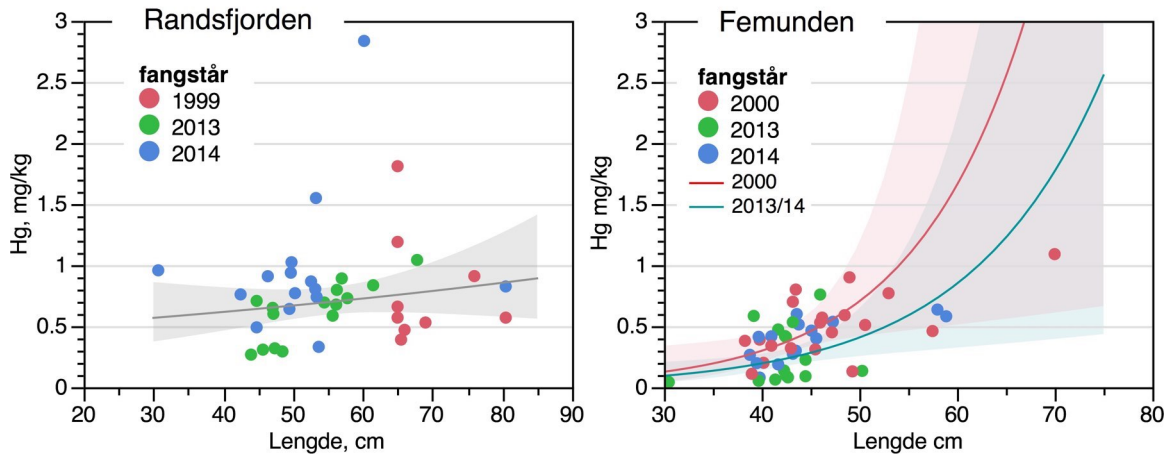
Abborprøvene fra Tyrifjorden og Vansjø hadde en midlere kvikksølvkonsentrasjon på henholdsvis $0,29$ og $0,39$ mg/kg hos fisk med en midlere lengde på omlag 26 og 22 cm. For Vansjø synes det ikke å ha vært noen endring i forhold til de nivåene som ble funnet i en undersøkelse utført i 2000 (Figur 6) (Lien og Brabrandt et al. 2004). For Tyrifjorden har det ikke lyktes oss i å skaffe noen 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 skogssjøer 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). Å si noe nærmere om dagens kvikksølvnivåer i fisk herfra basert på et så vidt fåtallig materiale er vanskelig.



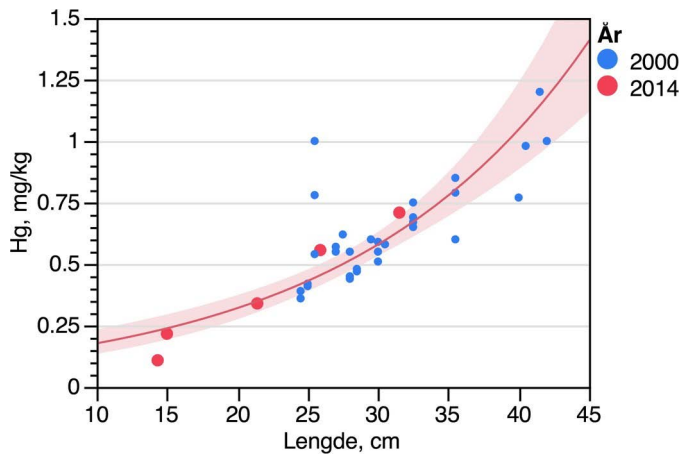
Figur 3. Kvikksølvkonsentrasjonen i fisk (muskel) og zooplankton i de tre hovedsjøene, fanget i 2014, plottet mot $\delta^{15}\text{N}$ og fiskelengde. Regresjonslinjer og 90 % konfidensellipser for de ulike innsjøene er inntegnet. I de øvre panelene er regresjonslikningene og trofisk magnifikasjonsfaktor (TMF) oppgitt.



Figur 4. a): Spredningsdiagram over kvikksølvkonsentrasjon versus fiskelengde for Mjøsørret fanget i perioden 1979-2014 (n = 170). b.): Lengdejustert midlere kvikksølvkonsentrasjon (med 95 % konfidensintervall) beregnet for ørret med en lengde på 60,8 cm ($\approx 2,5$ kg) (utvalgets geometriske gjennomsnitt).



Figur 5. Spredningsdiagram over kvikksølvkonsentrasjon versus fiskelengde for ørret fra Randsfjorden og Femunden fanget i 1999/2000, 2013 og 2014. Regresjoner av log-transformerte konsentrasjoner på fiskelengde er inntegnet (m. 95 % konfidensbånd).



Figur 6. Forholdet mellom kvikksølvkonsentrasjon og fiskelengde hos abbor fra Vansjø, fanget i 2000 (blå punkter) og i 2014 (røde punkter).

5.3 Sykliske flyktige metylerte siloksaner, cVMS

5.3.1 Behandling av ikke-quantifiserbare data

Det ble analysert for siloksan-forbindelsene D4, D5 og D6 i biota fra alle fem innsjøene. I Mjøsa og Randsfjorden ble det analysert i det pelagiske næringsnett (planktoniske krepsdyr og fisk), mens det i Femunden kun ble analysert i pelagisk fisk (sik og ørret). I Tyrifjorden og Vansjø ble det kun analysert i bentisk abbor.

Majoriteten av D4- og D6-analysene var under metodens deteksjons- eller kvantifikasjonsgrenser (LOD/Q), som ble beregnet som middelverdien av analytiske blankverdier pluss henholdsvis 3 x eller 10 x standardavviket. Slike data kalles i statistisk terminologi for (venstre) sensurerte data. Andelen kvantifiserbare analyseresultater for D4, D5 og D6 var henholdsvis 30 %, 80 % og 44 % (Tabell 4). Brutt ned på de enkelte artene/organismegruppene innen hver innsjø var det kun for ørret fra Mjøsa og krøkle fra Randsfjorden at mer enn 50 % av analyseresultatene var kvantifiserbare for alle tre forbindelsene. Videre var det kun for D5 fra disse to innsjøene at det var tilstrekkelig kvantifiserbare resultater til at trofisk magnifisering kunne beregnes.

I det følgende er alle statistikker og beregninger basert på at resultater under metodens deteksjons- eller kvantifikasjonsgrenser (LOD/Q) er substituert med halve grensene. Til dette må det nevnes at de opprinnelige analysene er nøyaktig gjort på våtvektsbasis og at fettinnholdet er bestemt ved en egen analyse. Ved å omregne LOQ/D til lipidvektbasis introduseres den assosierte usikkerheten til lipidanalysene og de lipidbaserte verdiene har derfor en noe større usikkerhet heftet ved seg enn de originale våtvektbaserte. Til beregningene av beskrivende statistikker av midlere lipidbaserte verdier har vi benyttet oss av ett gjeldende siffer for D4 og to gjeldende siffer for D5 og D6.

Tabell 7. Antall og prosentandel av analysene av de enkelte cVMS-forbindelsene som ble kvantifisert (DET) eller var under metodens deteksjons- eller kvantifikasjonsgrenser (LOD/Q):

kategori	D4		D5		D6	
	N	%	N	%	N	%
DET	25	30%	67	80%	37	44%
LOD	54	64%	15	18%	19	23%
LOQ	5	6%	2	2%	28	33%

5.3.2 Nivåer av cVMS i 2014

De høyeste kvantifiserbare konsentrasjonene av cVMS ble funnet i Mjøsa og Randsfjorden. Generelt var D5 den dominerende forbindelsen i biota, etterfulgt av D6 og D4 (Figur 7). En detaljert sammenlikning av D4- og D6-nivåene, både mellom sjøer og mellom organismegrupper innen sjøer, er imidlertid vanskelig, da majoriteten av disse analysene var under metodens LOD/Q - og disse grensene varierte mellom de tre ulike batchene som ble opparbeidet på laboratoriet.

I Mjøsa og Randsfjorden ble de laveste nivåene av D5 (lipidbasert) funnet i epilimnisk zooplankton, mens de høyeste nivåene ble funnet i krøkle fra Mjøsa og i ørret fra Randsfjorden. I Mjøsa var estimerte middelværdier (\pm SD) til epipelagisk zooplankton, krøkle og ørret henholdsvis 360 (\pm 20), 5800 (\pm 3400) og 2500 (\pm 1700) ng/g lipid, mens de i Randsfjorden var 750 (\pm 360), 1400 (\pm 880) og 2400 (\pm 1600) ng/g lipid. Vi har her substituert verdier under LOD/Q med halve grensen (epipelagisk zooplankton: 3 av 3 i Mjøsa, 1 av 3 i Randsfjorden). For ørret kunne det ikke påvises noen statistisk signifikant forskjell mellom midlere konsentrasjon av D5 fra de to sjøene ($p = 0,8$), mens det for krøkle var det en signifikant forskjell mellom sjøene ($p = 0,002$).

Konsentrasjonene av D4 og D6 i prøvene fra disse to innsjøene var i hovedsak under metodenes LOD/Q, med unntak for ørret fra Mjøsa og krøkle fra Randsfjorden. For D4 og D6 i ørret fra Mjøsa var middelværdiene henholdsvis 40 (\pm 20) og 140 (\pm 56) ng/g lipid, mens de i krøkle fra Randsfjorden var henholdsvis 40 (\pm 10) og 110 (\pm 45) ng/g lipid.

For Femunden, Tyrifjorden og Vansjø var nær samtlige analyser av cVMS under metodenes LOD/Q, og vi kan derfor ikke konstatere annet enn at de gjennomsnittlige nivåene må ligge under disse (D4; D5 og D6: 17,7; 5,8 og 4,4 ng/g våtvekt) og en nærmere drøfting av de omregnede lipidjusterte gjennomsnittsverdiene mellom disse sjøene er derfor heller ikke er særlig meningsfullt (D4: 400 - 1000 ng/g lipid; D5: 120 - 330 ng/g lipid; D6: 200 - 400 ng/g lipid).

Konsentrasjonene av D5 var vesentlig lavere i fisk fra Femunden (<240 ng/g lipid, alle prøver under deteksjonsgrensen) enn i fisk fra Mjøsa og Randsfjorden (middelværdier i området 1400 - 5800 ng/g lipid). Dette er som forventet ut fra resultatene fra undersøkelser utført i 2012 (Borgå et al. 2013a og b) og 2013 (Fjeld et al. 2014). De høyere nivåene av D5 i Mjøsa og Randsfjorden 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 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.

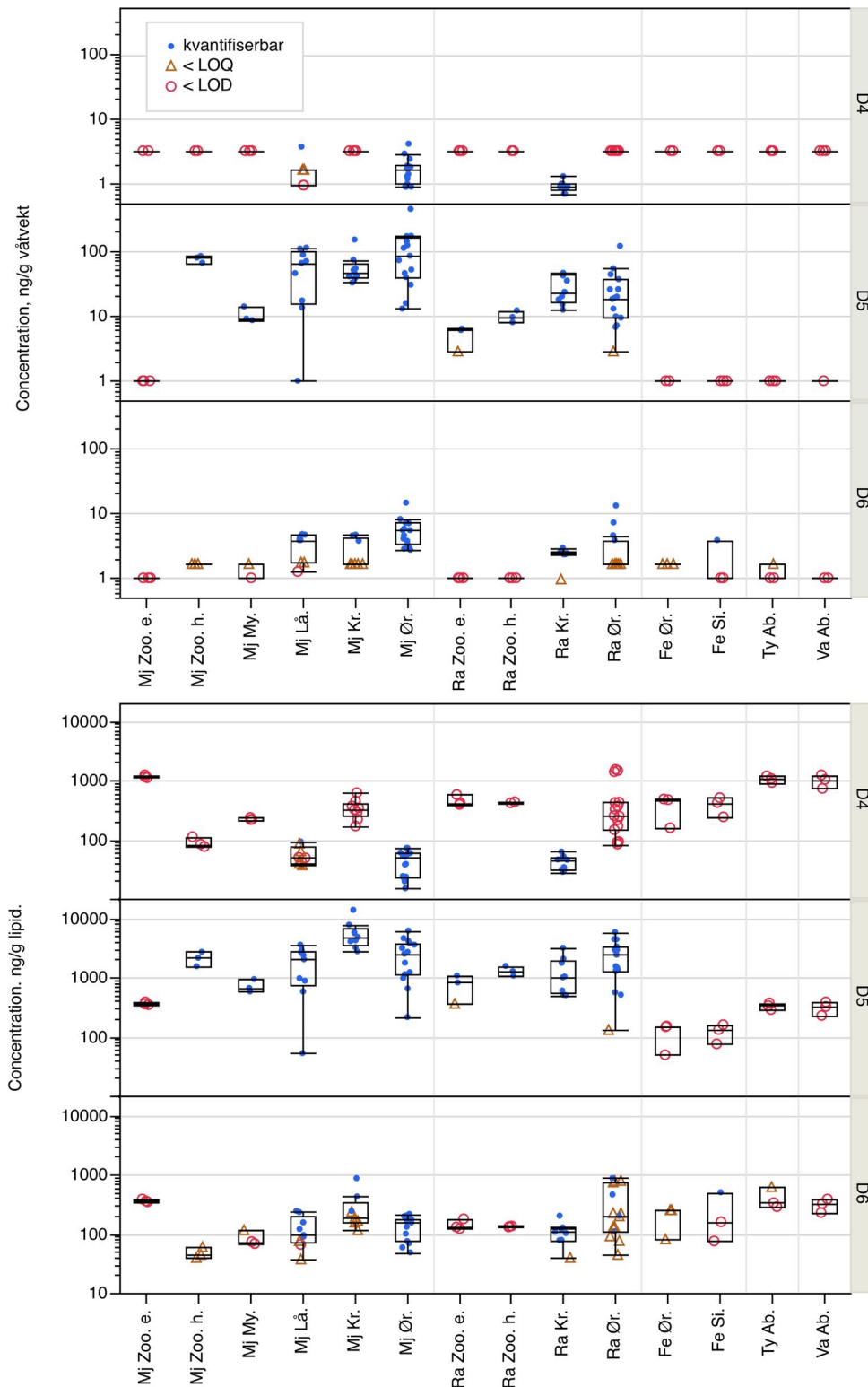
En svensk undersøkelse i muskel av abbor fra innsjøer som mottar avløp fra kloakkrensingsanlegg rapporterer om konsentrasjoner av D5 i området 1,4 - 14,4 ng/g våtvekt (Kierkegaard et al. 2013). Fra Eriesjøen i Nord-Amerika er det funnet konsentrasjoner i området 14 - 36 ng/g våtvekt (Mc Goldrick et al. 2014). Til sammenlikning er middelværdiene for ulike fiskearter fra Mjøsa og Randsfjorden i området 1,2 - 160 ng/g våtvekt, med de høyeste nivåene i Mjøsa (data her; Borgå et al. 2013a og b, Fjeld et al. 2014).

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. I lys av dette er det derfor spesielt at D6 og D4 utgjør en så vidt stor andel av mengden cVMS i prøvene av fisk fra Femunden, Tyrifjorden og Vansjø.

Tabell 8. Konsentrasjoner ($\bar{x} \pm$ standard avvik, maksimum og minimumsverdier) for siloksaner (cVMS: D4, D5 og D6) i prøver av fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2014. For beregning av middelværdier er konsentrasjoner under kvantifikasjons- eller deteksjonsgrensen byttet ut med halve grensen. Oransje fargede celler indikerer at 50 % av målingene er over grensene.

Innsjø	Prøvetype (n)	statistikk	ng/g våtvekt			ng/g lipid		
			D4	D5	D6	D4	D5	D6
Mjøsa	Ørret (15)	$\bar{x} \pm SD$	2±0,9	110±100	5,6±3	40±20	2500±1700	140±56
		Min-Max	0,9–4,1	13–434	2,7–14,3	20–70	210–6100	48–220
	Krøkle (9)	$\bar{x} \pm SD$	3,2	58±35	2,6±1,3	300±100	5800±3400	280±240
		Min-Max	3,2–3,2	32–147	1,7–4,6	200–600	2800–14000	120–870
	Lågåsild (9)	$\bar{x} \pm SD$	1,7±0,8	57±41	3,4±1,4	60±20	1800±1200	120±73
		Min-Max	1,0–3,7	1,0–110	1,3–4,7	40–90	53–3600	38–240
	Mysis (3)	$\bar{x} \pm SD$	3,2±0,0	10±2,9	1,2±0,4	200±10	720±190	85±26
		Min-Max	3,2–3,2	8,5–13,8	1,0–1,7	200–200	580–930	68–110
	Zoopl. hypo. (3)	$\bar{x} \pm SD$	3,2±0,0	75±9	1,7±0,0	90±20	2100±580	48±9,9
		Min-Max	3,2–3,2	65–82	1,7–1,7	80–100	1500–2700	40–59
	Zoopl. epi. (3)	$\bar{x} \pm SD$	3,2±0,0	1,0±0,0	1,0±0,0	1000±70	360±20	360±20
		Min-Max	3,2–3,2	1,0–1,0	1,0–1,0	1000–1000	340–380	340–380
Randsfjorden	Ørret (15)	$\bar{x} \pm SD$	3,2±0,0	27±29	3,1±3,1	500±500	2400±1600	340±300
		Min-Max	3,2–3,2	2,9–117	1,7–12,9	80–2000	130–5800	44–870
	Krøkle (9)	$\bar{x} \pm SD$	0,9±0,2	28±13	2,3±0,5	40±10	1400±880	110±45
		Min-Max	0,7–1,3	12,3–45	1,0–2,9	30–60	500–3100	39–200
	Zoopl. hypo. (3)	$\bar{x} \pm SD$	3,2±0,0	9,8±2,1	1,0±0,0	400±9	1300±250	130±2,7
		Min-Max	3,2–3,2	7,9–12	1,0–1,0	400–400	1100–1600	130–140
	Zoopl. epi. (3)	$\bar{x} \pm SD$	3,2±0,0	5,1±1,9	1,0±0,0	500±100	750±360	140±31
		Min-Max	3,2–3,2	2,9–6,3	1,0–1,0	400–600	350–1100	120–180
Femunden	Ørret (3)	$\bar{x} \pm SD$	3,2±0,0	1,0±0,0	1,7±0,0	400±200	120±57	200±98
		Min-Max	3,2–3,2	1,0–1,0	1,7–1,7	200–500	49–150	84–260
	Sik (3)	$\bar{x} \pm SD$	3,2±0,0	1,0±0,0	1,9±1,6	400±100	120±43	240±230
		Min-Max	3,2–3,2	1,0–1,0	1,0–3,8	200–500	75–160	75–500
Tyrifjorden	Abbor (3)	$\bar{x} \pm SD$	3,2±0,0	1,0±0,0	1,2±0,4	1000±100	330±42	420±190
		Min-Max	3,2–3,2	1,0–1,0	1,0–1,7	900–1000	290–370	290–630
Vansjø	Abbor (3)	$\bar{x} \pm SD$	3,2±0,0	1,0±0,0	1,0±0,0	1000±300	310±79	310±79
		Min-Max	3,2–3,2	1,0–1,0	1,0–1,0	700–1000	230–380	230–380



Figur 7. Box-plot av cVMS-konsentrasjoner i biota fra de enkelte innsjøene i 2014 (våttvektbasert: øvre figur, lipidvektbasert nedre figur). De ulike symbolene representerer kvantifiserbare nivåer og nivåer under metodens kvantifikasjons- og deteksjonsgrenser (LOD/Q). Nivåer under grenseverdiene er substituert med halve grensene. Forkortelsene for de enkelte innsjøene og gruppene er: Mjøsa: Mj; Randsfjorden: Ra; Femunden: Fe; Tyrifjorden: Ty; Vansjø: Va, zooplankton epilimisk: Zoo. e.; zooplankton hypolimnisk: Zoop. h.; Mysis: My; lågåsild: Lå; krøkle: Kr;Ørret: Ør; abbor: Ab.

5.3.3 Årlig variasjon av cVMS i Mjøsa og Randsfjorden

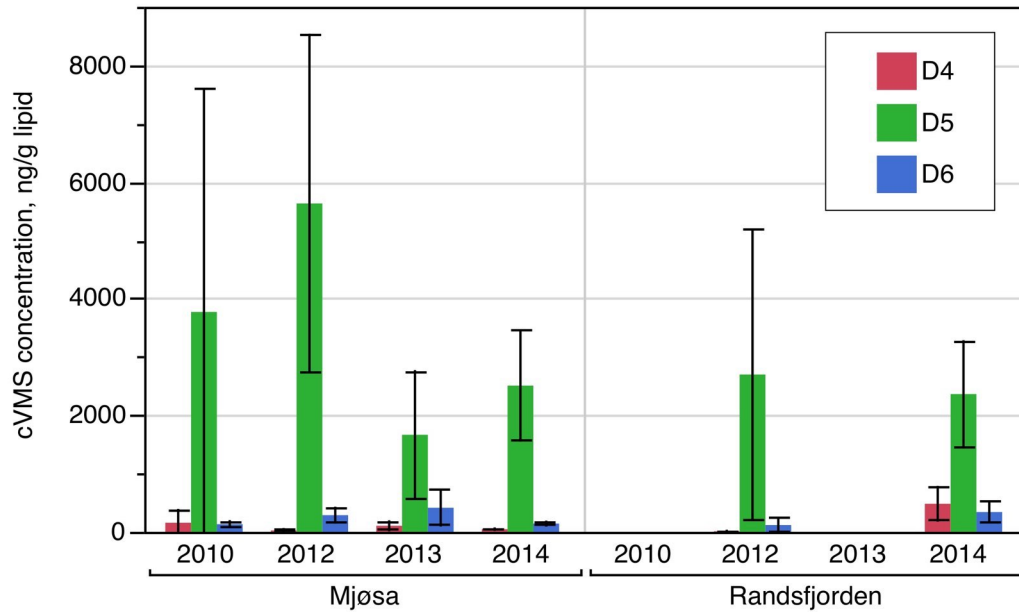
For ørret fra Mjøsa og Randsfjorden har vi nok data over kvantifikasjonsgrensene (LOQ) for enkelte cVMS-forbindelsene til at vi kan sammenlikne konsentrasjonene mellom ulike år (Tabell 9, Figur 8).

D5 var den dominerende forbindelsen i begge sjøene. For Mjøsa, hvor mer enn 50 % av samtlige analyser av de enkelte cVMS forbindelsene er kvantifisert i 2010, 2012 og 2014 var prosentandelen av de enkelte forbindelse som følger: D5: 93-96 %; D6: 3-5 %; D4: 0-4 %. For Randsfjorden i 2012, hvor mer enn 50 % av analysene av D5 og D6 var kvantifisert, var estimert prosentandel av D5 lik 96 %, det vil si om lag som i Mjøsa. Variansanalyser viste at det for Mjøsa var signifikante forskjeller mellom konsentrasjoner av D5 i ørret mellom årene (log-transformerte data: $p = 0,006$) og parvise tester viste at konsentrasjonene i 2013 var signifikant lavere enn i 2012 ($p = 0,001$). For D4 og D6 kunne det ikke påvises statistisk signifikante forskjeller ($p > 0,05$).

Nyere undersøkelser viser at D6 antakeligvis brukes i større grad enn tidligere av industrien, som erstatning for D4 som er klassifisert som reproduksjonstoksisk (Dudzina et al. 2014), men kjenner ikke til noen brå endringer i bruken av D5 som kan forklare eventuelle reduksjoner av denne forbindelsen i ørret fra Mjøsa. Ett mulig årsaksforhold kan ligge i skiftet 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 ekstreme analytisk utfordringer med cVMS. Vi vil derfor foreløpig være forsiktige med tolkningen av trend-data for cVMS.

Tabell 9. Årlig midlere konsentrasjoner av cVMS (lipidnormalisert) i ørret fra Mjøsa og Femunden, samt prosentandelen av de ulike forbindelsene som utgjør total konsentrasjon (Σ cVMS). Konsentrasjoner under kvantifiserings- eller deteksjonsgrensene (LOQ/D) er bytte ut med halve grensene. Oransje fargede celler indikerer at 50 % av målingene er over LOQ/D. Prøvene fra 2010 og 2012 er analysert ved Universitetet i Stockholm, prøvene fra 2013 og 2014 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%
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%



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 grensen, 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 og 2014 ved NILU.

5.3.4 Trofisk magnifisering av D5 i Mjøsa og Randsfjorden

Vi har tidligere påvist trofisk magnifisering (biomagnifisering) av forbindelsen D5 i de pelagiske nærings-nettene i Mjøsa og Randsfjorden (Borgå et al. 2012b; Borgå et al. 2013a og b; Fjeld et al. 2014). I Tabell 10 har vi vist regresjonene av D5-konsentrasjonen på trofisk nivå for de ulike årene vi har data fra, og vi ser her at for Mjøsa finner vi statistisk signifikante sammenhenger alle fire årene, mens vi for Randsfjorden for 2012 og 2014 finner at kun regresjonen for 2012 er signifikant.

Tabell 10. Lineære regresjoner av konsentrasjoner av D5 (\log_e -transformert, lipidnormalisert) på trofisk nivå i det pelagiske næringsnettet i Mjøsa og Randsfjorden. Trofisk magnifikasjonsfaktor (TMF) med konfidensintervallet (95% KI) er beregnet ut fra regresjonskoeffisienten (e^b). Regresjonens konstantledd (a), determinasjonskoeffisienten (R^2 , mengden forklart varians) og regresjonens signifikansnivå (F - og p -verdier) er òg oppgitt. For 2013 og 2014 er konsentrasjoner under kvantifikasjons- eller deteksjonsgrensene (<LOD/Q: omlag 10% av materialet) byttet ut med halve grensen.

Innsjø	År	n (w^*)	a	b	TMF	TMF 95 % KI	R^2	F	p
Mjøsa	2010	23,1	5,21	0,83	2,28	1,22 - 4,29	0,33	7,73	0,013
	2012	33	4,009	1,139	3,12	2,28 - 4,29	0,64	54,03	<0,0001
	2013	33	3,481	0,681	1,98	1,25 - 3,12	0,23	9,26	0,0047
	2014	42	4,485	0,647	1,91	1,40 - 2,61	0,20	17,40	0,0002
Randsfjorden	2012	17	3,720	1,024	2,78	1,72 - 4,52	0,58	20,34	0,0004
	2014	30	6,051	0,334	1,40	0,90 - 2,17	0,08	2,42	0,13

*sum av vektor knyttet til hver prøve hvor vekten er kvadratrotten av antall replikate analyser

Vi ønsket å kombinere dette omfattende datamaterialet for å gjøre en statistisk analyse av trofisk magnifisering av D5 med større generalitet. Under arbeidet med sammenstillingen kom det imidlertid fram at $\delta^{15}\text{N}$ i epipelagisk zooplankton fra Mjøsa (primærkonsumentene) varierte mellom årene, noe som har konsekvenser for beregningen av trofisk nivå (TL) for de ulike konsumentene. Vi benyttet de årlige minimumsverdiene i bunnlinjejusteringen, og disse lå i området 4,63 - 8,43 ‰.

Årsaken til denne variasjonen er uvisst, men det er kjent at det kan være sesongmessige endringer i $\delta^{15}\text{N}$ 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 $\delta^{15}\text{N}$ til primærkonsumentene varierer mellom årene innebærer baselinjejusteringen 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 $\delta^{15}\text{N}$ 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 $\delta^{15}\text{N}$.

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

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

Dette innebærer at vi ser på de årlige variasjonene i $\delta^{15}\text{N}$ til primærkonsumentene som tilfeldige og ikke lar de influere beregningene av høyere trofisk nivå. Vi unngår da at trofisk nivå til høyere konsumenter som ørret forskyves fra år til år. Ved å bruke relativt trofisk nivå framfor absolutt, 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 absolute posisjon eller til å sammenlikne trofisk nivå til organismer fra lokaliteter med ulik $\delta^{15}\text{N}$ -baselinje.

I den videre statistiske analysen av materialet har vi utelatt resultatene fra Mjøsa for 2013, da det etter oppdragsgivers ønske ikke ble gjort en balansert prøvetaking over hele det pelagiske næringsnettet, men fokus var lagt på fisk (ørret, krøkle) med kun et fåtall prøver av 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 ikke er data for alle innsjøene i alle 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:

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

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 var:

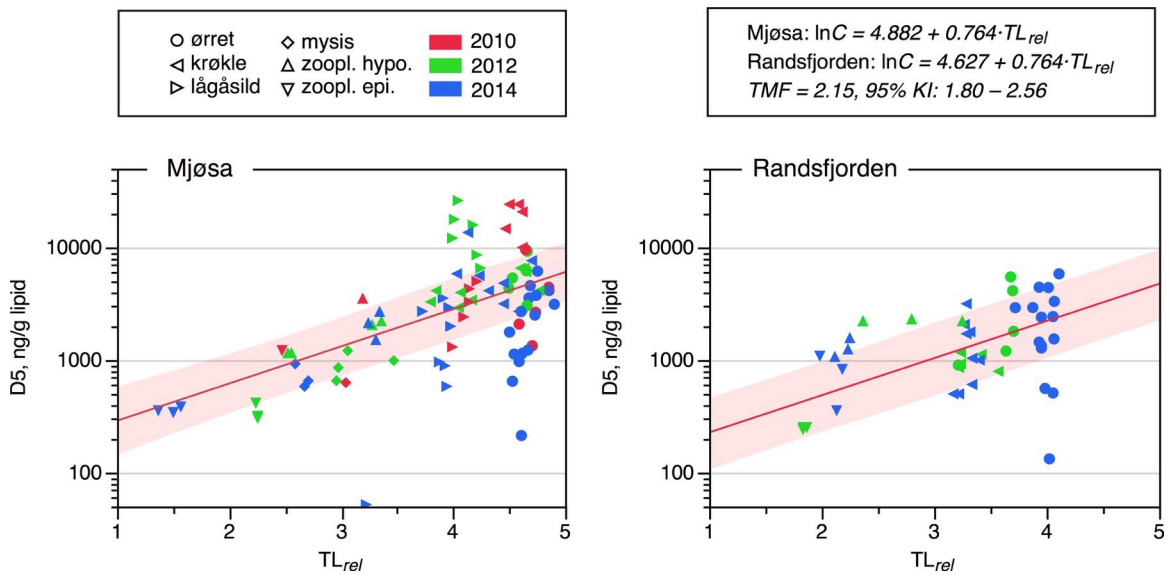
$$\log C = a + b \cdot TL_{rel} + c \cdot Innsjø + e \cdot \text{År}[Innsjø]_{random}$$

Her er det en felles stigningskoeffisient for - eller respons - på relativt tropisk 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 2,15 (95% KI: 1,80 -2,56). Det kunne ikke påvises noen signifikant forskjell mellom midlere D5-konsentrasjoner justert for forskjeller i $\delta^{15}N$ for næringsnettene i Mjøsa og Randsfjorden (2200 vs. 1700 ng/g lipid, $p = 0,8$), 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.

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 næringsnettets 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 nylig publisert 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-forbindelsen D5 (lipidnormalisert) og relativt trofisk nivå (TL_{rel}) i fisk (muskel) og zooplankton, fanget i Mjøsa og Randsfjorden i 2010, 2012 og 2014 ($n = 141$). Regresjonslinjene med 95 % konfidensbånd mellom konsentrasjon (\log_e -transformert) og trofisk nivå er inntegnet. Regresjonene er resultater fra en «mixed linear model» (se tekst). Konsentrasjoner under kvantifikasjons- eller deteksjonsgrensene (LOD/Q, 5 av 72 prøver fra 2014) er byttet ut med halve grensen.

5.3.5 Samvariasjoner mellom cVMS, PCB, PBDE og trofisk nivå

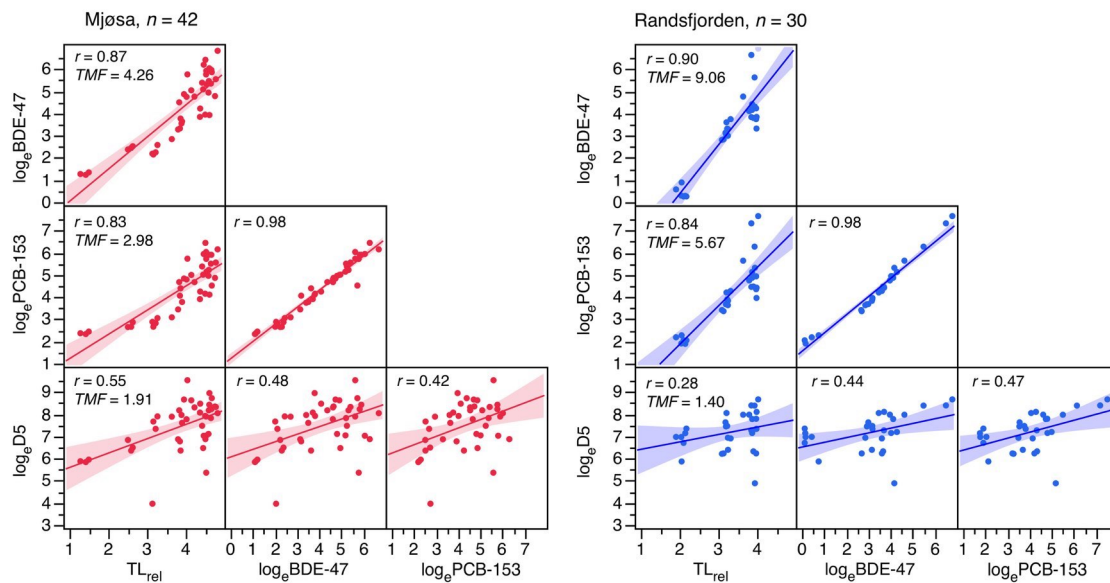
Miljøgifter med liknende fysisk-kjemiske egenskaper kan forventes å vise et felles mønster for oppkonsentrering i økologiske næringsnett. Vi har derfor undersøkt samvariasjonen mellom cVMS-forbindelsen D5, PCB-153, BDE-47 og relativt trofisk nivå (TL_{rel} , basert på $\delta^{15}N$) i Mjøsa og Randsfjorden for 2014 (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 i næringsnett. Vi har brukt \log -transformerte lipidnormaliserte konsentrasjoner i undersøkelsen av samvariasjonene og til beregning av trofisk magnifikasjonsfaktor (TMF).

Vi har kun sett på D5 fra Mjøsa og Randsfjorden, da konsentrasjonene av D5 i ørret fra Femunden var i så stor grad under LOQ at vi valgte å utelate denne innsjøen. For D4 og D6 fra alle tre hovedsjøene var en så stor andel under LOQ at en nærmere analyse av variasjonen mellom de undersøkte stoffene og trofisk magnifisering heller ikke ville være meningsfull. For tre zooplanktonprøver fra Mjøsa, samt én zooplanktonprøve og én fiskeprøve fra Randsfjorden, hvor konsentrasjonene av D5 var under LOD, har vi benyttet oss av halve grensen som antatt konsentrasjon.

For D5 var det en signifikant og moderat samvariasjon med trofisk nivå (TL_{rel}), med en korrelasjon (Pearsons r) på 0,55 og 0,28 for henholdsvis Mjøsa og Randsfjorden, og - som tidligere vist - en trofisk magnifikasjonsfaktor TMF på henholdsvis 1,91 og 1,40.

PCB-153 og BDE-47 samvarierte også med trofisk nivå, med korrelasjonskoeffisienter i området 0,83-0,98. De biomagnifiserte i begge innsjøene, og TMF for disse forbindelsene var vesentlig større enn for D5 (2,98 - 9.06)

D5 i prøvene viste en moderat, men signifikant samvariasjon med PCB-153 og BDE-47 ($r = 0,28 - 0,55$). Dette er som forventet ut fra de foregående resultatene: D5, PCB-153 og BDE-47 er alle forbindelser som biomagnifiserer og de vil derfor også samvariere. Den ekstremt sterke korrelasjon mellom PCB-153 og BDE-47 ($r = 0,98$) viser at disse to forbindelsene oppfører seg svært likt i næringsnettet.



Figur 10. Spredningsplott og regresjoner for siloksanforbindelsen D5, BDE-47, PCB-153 og relativt trofisk nivå (TL_{rel}) i fisk (muskel) og zooplankton fra Mjøsa og Randsfjorden, fanget i 2014. Konsentrasjonene er oppgitt som \log_e -transformerte verdier på lipidvektbasis (ng/g lipid). Konsentrasjoner under deteksjons- eller kvantifiseringsgrensen (<LOD/Q) er byttet ut med halve grensen. TMF: trofisk magnifikasjonsfaktor; r: korrelasjonskoeffisient.

5.4 Polyklorerte bifenyler, PCB

5.4.1 Nivåer av PCB i 2014

For epilimnisk zooplankton, dvs. primærkonsumentene, var middelveiene av ΣPCB7 på våtvektsbasis i Randsfjorden nær tre ganger høyere enn i Mjøsa på våtvektsbasis (0,05 vs. 0,17 ng/g våtvekt), men på grunn av forskjeller i fettinnhold var de lipidjusterte nivåene svært like (19 vs. 23 ng/g lipid). For hypolimnisk zooplankton var konsentrasjonene i Mjøsa høyere enn i Randsfjorden, både på våtvektsbasis og lipidvektbasis, noe som i første rekke må tilskrives at de i Mjøsa består av mer omnivore copepoder (hoppekreps) med ett- til toårig livssyklus, mens de i Randsfjorden besto av herbivore cladocerer med flere generasjoner i løpet av sommerhalvåret.

Ørret fra Mjøsa hadde på våtvektsbasis markert høyere konsentrasjoner av PCB enn ørret fra Randsfjorden og Femunden (Tabell 11, Figur 11). Midlere konsentrasjon av ΣPCB7 (syv vanlig analyserte kongenere)³ var nær fem ganger høyere i Mjøsa enn i Randsfjorden og ti ganger høyere enn i Femunden (32,2 vs. 6,8 og 3,6 ng/g våtvekt). På lipidvektbasis var imidlertid gjennomsnittet noe lavere i Mjøsa enn i Randsfjorden (830 vs. 1100 ng/lipid), men variasjonen innen hver sjø var så stor at det ikke er grunnlag for å hevde at det er forskjeller mellom dem. For Femunden var gjennomsnittet på lipidvektsbasis fortsatt vesentlig lavere enn for de to andre sjøene (300 ng/g lipid). Ørreten i Mjøsa hadde et betydelig høyere fettinnhold enn ørret i Randsfjorden og Femunden (middelvei: 4,34 vs. 1,53 og 1,13 %), noe som demper forskjellene mellom de lipidjusterte konsentrasjonene.

Krøkle fra Mjøsa hadde en gjennomsnittlig konsentrasjon av ΣPCB7 på våtvektsbasis omlag som i Randsfjorden (2,97 vs. 2,82 ng/g våtvekt). På lipidvektbasis hadde imidlertid krøkla i Mjøsa en statistisk signifikant høyere konsentrasjon enn i Randsfjorden (650 vs. 300 ng/g lipid, $p = 0,01$). Lågåsilda i Mjøsa hadde omlag samme middelkonsentrasjon som krøkla på våtvektsbasis (4,79 ng/g våtvekt), men på grunn av sitt høyere fettinnhold var den lipidjusterte verdien lavere (170 ng/g lipid).

Nivåene av ΣPCB7 i lågåsild Mjøsa var vesentlig høyere enn for sik i Femunden, både på våtvektsbasis (4,79 vs. 0,91 ng/g våtvekt) og lipidvektbasis (170 vs. 63 ng/g lipid). Begge bestandene er planktivor fisk med nær samme økologisk nisje.

I gjennomsnitt utgjorde ΣPCB7 52 - 66 % av total mengde PCB i fisk, med unntak for sik i Femunden hvor andelen utgjorde 25 %.

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.

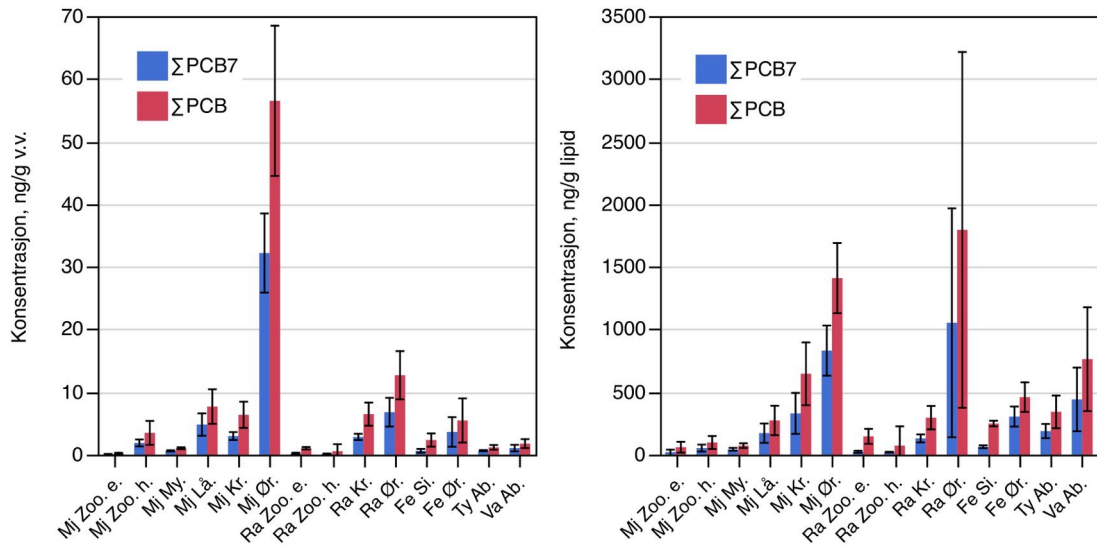
³ ΣPCB7 : sum av PCB-28, -52, -101, -118, -138, -153 og -180

De midlere lipidjusterte konsentrasjonene av Σ PCB7 i krøkle og ørret fra Randsfjorden i 2014 var noe høyere enn de vi fant i 2013 (Fjeld et al. 2014), med en økning på henholdsvis 1,5 og 2,4 ganger. På våtvektbasis var den nær uforandret for ørret, men hadde økt med en faktor nær 3 for krøkle. Dette viser at den årlige variasjonen i PCB-innholdet kan være betydelig, og at en lipidjustering ikke fullt ut kan kompensere for temporære variasjoner i fisken fettinnhold. På kort sikt er det ikke en nødvendigvis en likevekt mellom inntak av den biomagnifiserende, lipofile kontaminanten gjennom føden og konsentrasjonen i fiskens fett, da forbrenning og reduksjon av fettinnholdet kan skjer raskere enn utskillingen av kontaminanten.

Til sammenlikning, så ble det for sjøørret fra Drammensfjorden fisket i 2008 rapportert om konsentrasjoner av Σ PCB7 i området 500 - 2400 ng/g lipid, og for seks blandprøver fra indre og ytre fjord var midlere konsentrasjon av Σ PCB7 omlag 900 ng/g lipid (Fjeld et al. 2008). Det vil si omlag det som vi finner i ørret fra Randsfjorden og Mjøsa. Fra storørret-bestandene i Vänern og Vättern, Sverige, synes middelkonsentrasjonene 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 11. Midlere konsentrasjon av polyklorerte bifenyler (PCB) og lipid i fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2014. Konsentrasjonene er gitt på våtvekt- og lipidvektbasis. Σ PCB7: syv vanlige kongenere, se teksten, Σ PCB: total PCB. Prosentandelen Σ PCB7 utgjør av total PCB er øg vist. N: antall, \bar{x} : middelerverdi, SD: standard avvik.

Innsjø	Art	N	lipid, %	ng/g våtvekt				ng/g lipid					
				Σ PCB7		Σ PCB		Σ PCB7		Σ PCB		Σ PCB7,%	
				\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD
Mjøsa	Zoopl. epi.	3	0.28	0.05	0.02	0.16	0.05	19	8	59	17	32	4
	Zoopl. hypo.	3	3.64	1.87	0.22	3.47	0.77	53	11	97	21	55	5
	Mysis	3	1.44	0.60	0.04	1.02	0.06	42	5	71	8	58	0
	Lågåsild	12	3.06	4.79	2.32	7.67	3.59	170	100	270	150	62	2
	Krøkle	13	1.07	2.97	0.82	6.35	2.72	330	210	650	330	52	15
	Ørret	18	4.34	32.18	11.41	56.48	21.65	830	360	1400	500	59	11
Randsfjorden	Zopl. epi.	3	0.72	0.17	0.05	1.02	0.08	23	3	150	24	16	4
	Zoopl. hypo.	3	0.75	0.15	0.01	0.54	0.45	19	1	72	62	41	24
	Krøkle	12	2.27	2.82	0.64	6.46	2.40	130	41	300	121	48	16
	Ørret	18	1.53	6.77	4.15	12.68	6.95	1100	1700	1800	2600	53	12
Femunden	Sik	18	0.91	0.61	0.55	2.33	1.90	63	20	250	41	25	4
	Ørret	18	1.13	3.62	4.26	5.46	6.36	300	140	460	210	66	1
Tyrifjorden	Abbor	5	0.4	0.63	0.08	1.15	0.30	188	45	341	105	56	8
Vansjø	Abbor	5	0.3	1.05	0.42	1.76	0.57	441	205	761	334	58	8



Figur 11. Midlere konsentrasjon (med 95 % konfidensintervall) av polyklorete bifenyler (PCB) i fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2014. Konsentrasjonene er oppgitt som våtvekt (v.v.) og lipidvekt. Σ PCB7: syv vanlige kongenere, Σ PCB: total PCB. Forkortelsene for de enkelte innsjøene og gruppene er: Mjøsa: Mj; Randsfjorden: Ra; Femunden: Fe; Tyrifjorden: Ty; Vansjø, Va; zooplankton epilimisk: Zoo. e.; zooplankton hypolimnisk: Zoop. h.; Mysis: My; lågåsild: Lå; sik; Si; krøkle: Kr; ørret: Ør; Abbor: Ab.

5.4.2 Historisk utvikling av PCB-nivåene i fisk fra Mjøsa

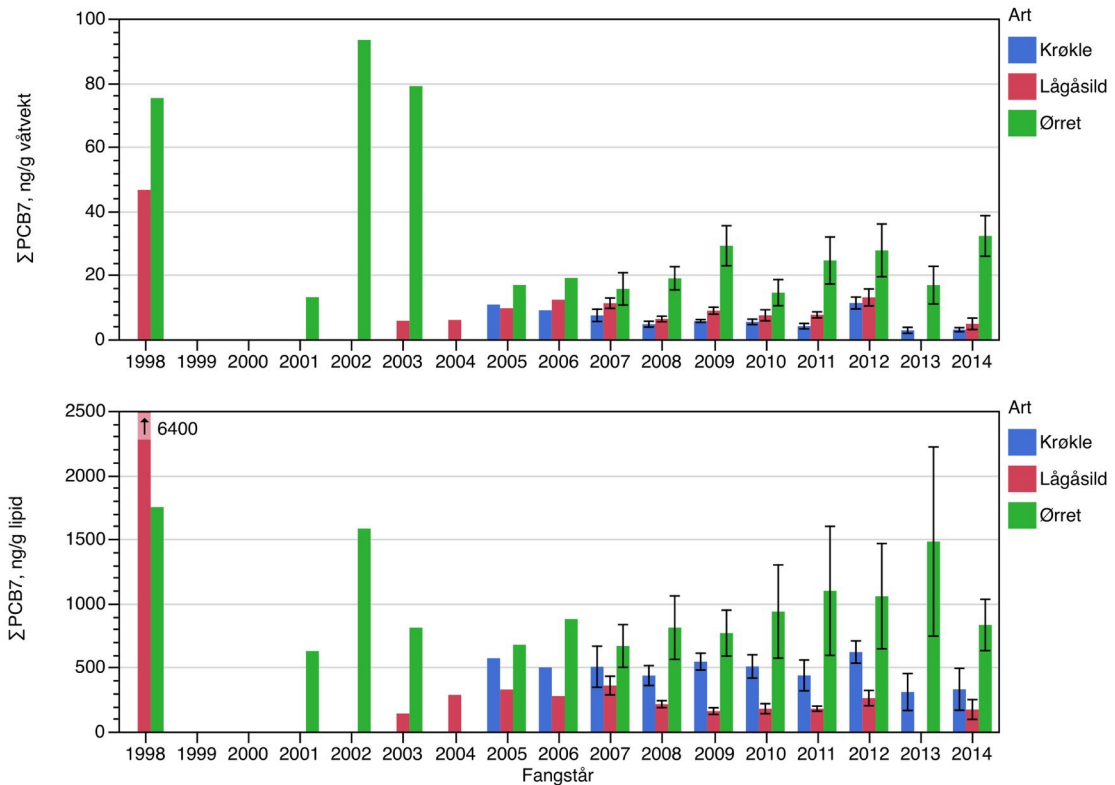
Vi har analysert PCB i ørret fra Mjøsa siden 1998, og i Figur 12 har vi vist midlere konsentrasjon for de enkelte årene. For to av årene, 2002 og 2003, var prøvene basert på til dels svært store individer (middelvekt: 6,6 kg og 10,3 kg) sammenliknet med de øvrige årene (1,9 - 5,2 kg). Dette kan trolig ha bidratt til at disse har avvikende høye konsentrasjoner. For perioden 2005-2014, hvor vi har årlige prøver, varierte midlere konsentrasjoner av Σ PCB7 usystematisk i området 600 - 900 ng/g lipid.

For krøkle i Mjøsa har det blitt analysert for PCB i store kannibalistiske individer (middelvekt 75 - 92 g) i perioden 2005-2012, og midlere konsentrasjon av Σ PCB7 var da i området 400 - 600 ng/g lipid. For 2013 og 2014, hvor vi har analysert prøver av små krøkle (middelvekt 12 g), var de gjennomsnittlige konsentrasjonene lavere på omlag 300 ng/g lipid.

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 våtvekstbasis 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 systematiske endringer siden 2003.

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 - 4 ganger høyere enn midlere konsentrasjoner i 2013 og 2014 som var henholdsvis 450 og 1100 ng/g lipid.

For Femunden har vi 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 og 2014, med middelerverdier på henholdsvis 390 og 300 ng/g lipid er øg innenfor dette området.

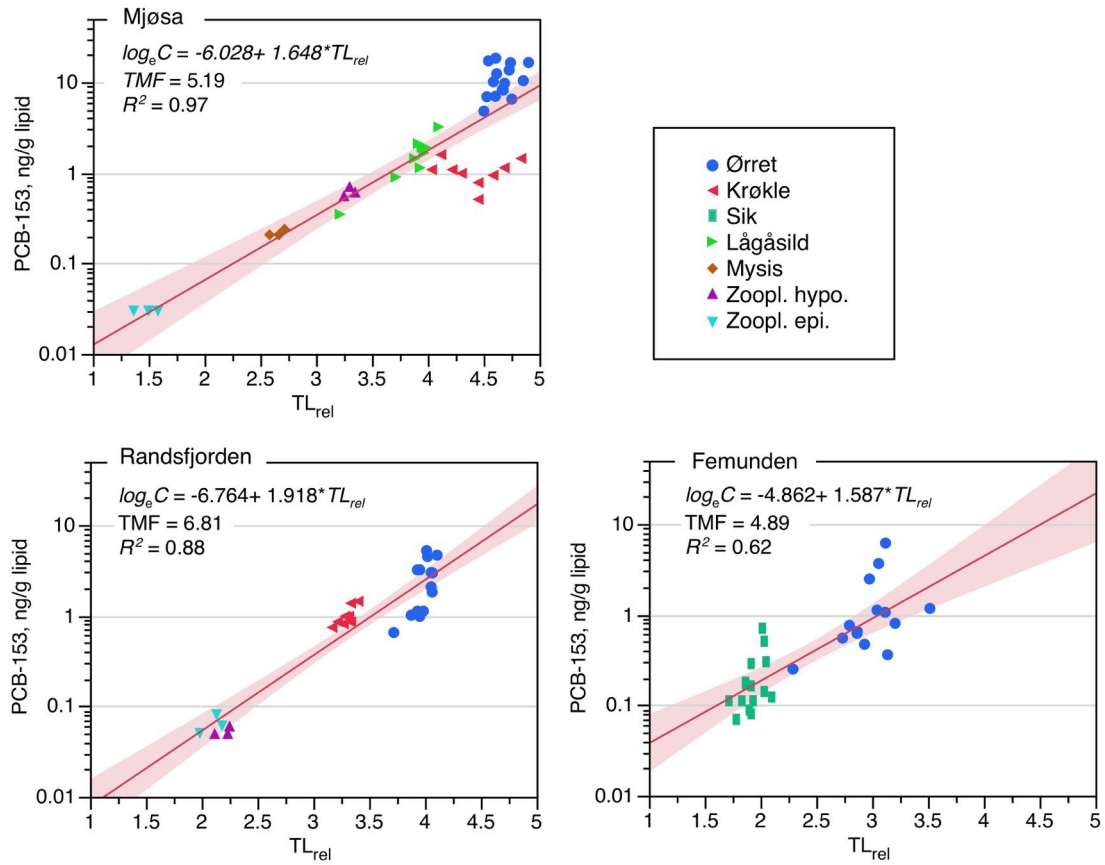


Figur 12. Konsentrasjoner av polyklorerte bifenyler (Σ PCB7) i muskelprøver av fisk fanget i Mjøsa i perioden 1998-2013. Øvre figur viser nivåene på våtvektsbasis, nedre figur viser nivåene på lipidvektsbasis. Konsentrasjonene er resultater fra enkelte blandprøver (1998-2006) eller gjennomsnitt av individuelle prøver (2007-2013). Data fra før 2013 er fra Fjeld et al. (2013).

5.4.3 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 11). Regresjonene var signifikante, det vil si at PCB biomagnifiserte i næringskjeden og de beregnede TMF -verdiene var i området 4,89 - 5,19.

For Femunden 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).



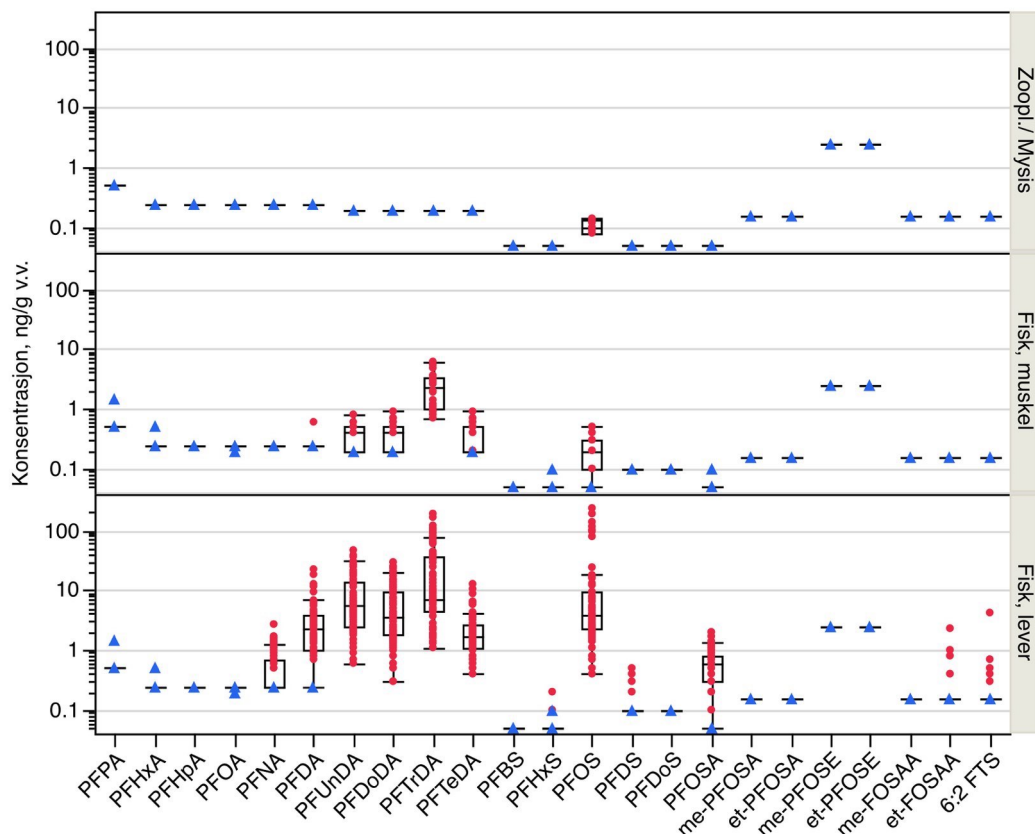
Figur 13. Forholdet mellom PCB-153 (lipidnormalisert) og relativt trofisk nivå (TL_{rel}) i fisk (muskel) og zooplankton, fanget 2014. Regresjonslinje med 95 % konfidensbånd mellom konsentrasjon (\log_e -transformert) og TL_{rel} er inntegnet.

5.5 Perfluorerte alkylforbindelser, PFAS

5.5.1 Nivåer av PFAS i 2014

Det ble analysert for perfluorerte alkylforbindelsene (PFAS) i prøver av zooplankton, Mysis og fisk. For fisk ble det valgt å bruke lever som hovedmatriks, da tidligere undersøkelser viste at nivåene i muskel ofte var 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 gallesalter (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 syv av de 23 analyserte forbindelsene hadde nær 100 % av leverprøvene konsentrasjoner over kvantifiseringsgrensene. Dette var de langkjedede perfluorerte karboksylsyrene (PFCA; C9-C14), PFOS (perfluoroktansulfonat) og PFOSA (perfluoroktansulfonamid). For de øvrige forbindelsene var andelen kvantifiserbare prøver i hovedsak svært lave. For ni forbindelser viste samtlige prøver konsentrasjoner under LOQ, for fem andre forbindelser varierte andelen mellom 2 og 47 % (Figur 14).



Figur 14. Fordelinger (box-plot) av PFAS-konsentrasjoner i ulike vevstyper/organismer for samtlige innsjøer, innsamlet i 2014. Analyseresultater under kvantifiseringsgrensene er byttet ut med halve grensene. Blå trekantede markører markerer analyseresultater under kvantifiseringsgrensene, røde 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 syv PFAS-forbindelsene hvor nær 100 % av analyseresultatene var >LOQ er presentert i Figur 14 og Tabell 12. 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. Forbindelsen PFTTrDA (C13-perfluorert karboksylsyre), hadde gjennomgående størst konsentrasjon med middelverdier i leverprøvene i området 22–87 ng/g våtvekt, høyest i Femunden og lavest i Mjøsa. Dette utgjorde omlag 37–67 % av totalkonsentrasjonen av PFAS i lever.

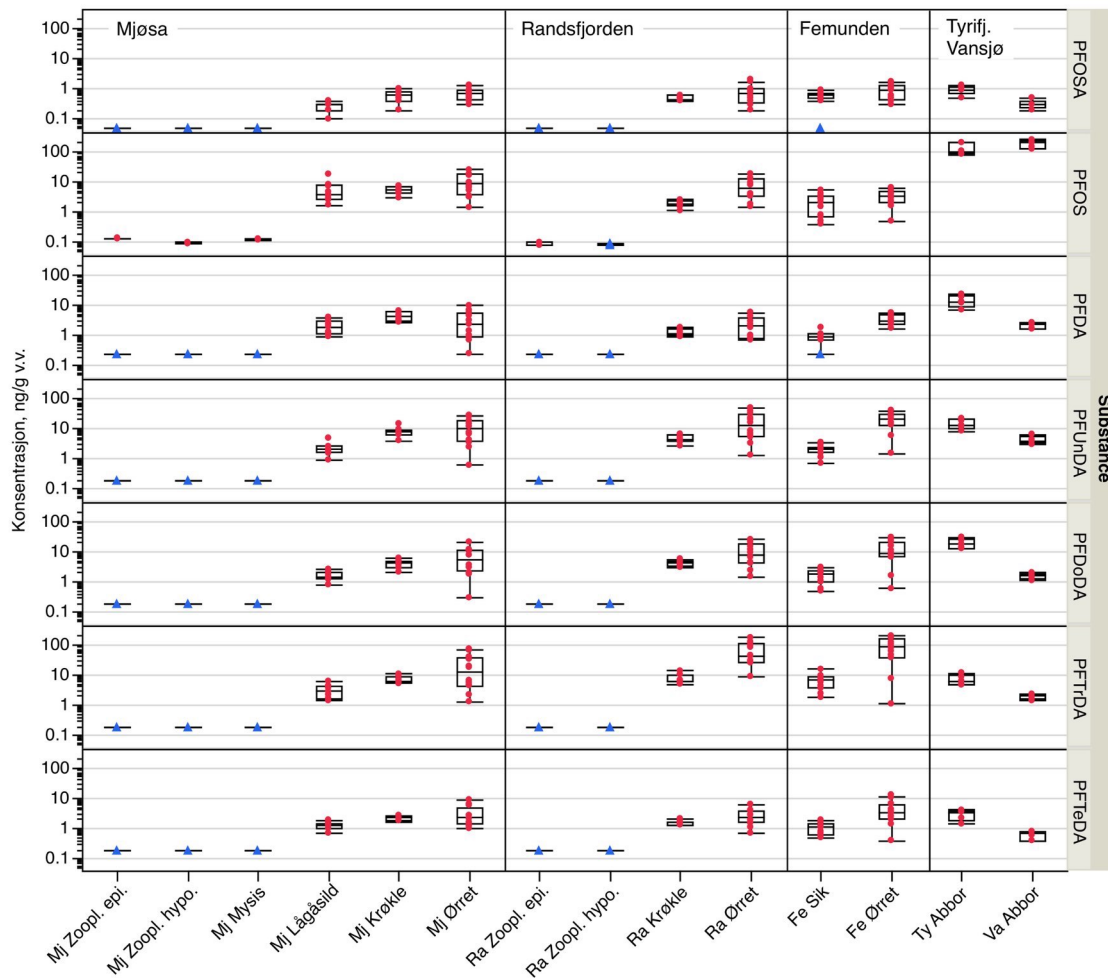
For de andre langkjedede perfluorerte karboksylsyrene (PFDA, PFUnDA, PFDoDA of PFTeDA) var middel-konsentrasjonene i leverprøvene fra ørret i området 1,2–19 ng/g våtvekt, høyest for PFUnDA og lavest for PFTeDA.

Tabell 12. Konsentrasjoner av utvalgte PFAS-forbindelse, gitt som middelverdier \pm standardavvik ($\bar{x} \pm SD$, ng/(g våtvekt) i fisk og zooplankton, innsamlet i 2014. Analyseresultater under kvantifikasjonsgrensen er byttet ut med halve grensen. I fisk er det analysert i muskel (M) og lever (L).

Prøve	N	PFOSA		PFOS		PFDA		PFUnDA		PFDoDA		PFTTrDA		PFTeDA	
		\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD
Mjøsa Zoopl. epi.	3	0,05	0,00	0,13	0,01	0,25	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00
Mjøsa Zoopl. hypo.	3	0,05	0,00	0,10	0,01	0,25	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00
Mjøsa Mysis	3	0,05	0,00	0,12	0,01	0,25	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00
Mjøsa Lågåsil L	3	0,05	0,00	0,23	0,06	0,25	0,00	0,27	0,12	0,20	0,00	1,00	0,10	0,20	0,00
Mjøsa Lågåsil M	9	0,26	0,09	5,68	4,87	2,12	0,98	2,24	1,06	1,62	0,54	2,93	1,55	1,24	0,36
Mjøsa Krøkle M	4	0,10	0,00	0,40	0,08	0,34	0,18	0,55	0,06	0,50	0,14	0,88	0,22	0,28	0,15
Mjøsa Krøkle L	7	0,59	0,26	5,17	1,46	4,27	1,40	8,10	3,12	4,01	1,30	7,10	1,98	2,16	0,34
Mjøsa Ørret M	3	0,05	0,00	0,27	0,06	0,25	0,00	0,37	0,15	0,63	0,12	2,90	0,30	0,47	0,23
Mjøsa Ørret L	12	0,70	0,32	11,11	8,05	3,16	2,82	11,23	8,65	7,84	6,89	22,22	24,23	3,13	2,48
Randsfjord Zoopl. epi.	3	0,05	0,00	0,09	0,01	0,25	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00
Randsfjord Zoopl. hypo.	3	0,05	0,00	0,08	0,01	0,25	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00
Randsfjord Krøkle M	3	0,05	0,00	0,20	0,00	0,25	0,00	0,67	0,12	0,43	0,21	2,93	0,83	0,37	0,15
Randsfjord Krøkle L	9	0,53	0,09	1,93	0,45	1,26	0,34	4,66	1,23	4,11	0,84	7,69	2,81	1,58	0,25
Randsfjord Ørret M	3	0,05	0,00	0,17	0,06	0,25	0,00	0,37	0,15	0,40	0,17	4,37	1,31	0,60	0,36
Randsfjord Ørret L	12	0,79	0,56	7,93	6,02	2,29	1,64	16,61	14,59	10,50	8,26	63,42	49,67	2,72	1,56
Femunden Sik M	3	0,05	0,00	0,05	0,00	0,25	0,00	0,20	0,00	0,20	0,00	1,37	0,55	0,20	0,00
Femunden Sik L	12	0,56	0,21	2,18	1,51	0,90	0,36	2,03	0,73	1,67	0,77	6,63	3,61	1,06	0,46
Femunden Ørret M	3	0,05	0,00	0,10	0,00	0,25	0,00	0,37	0,15	0,43	0,40	4,20	1,68	0,30	0,17
Femunden Ørret L	12	0,88	0,46	3,44	1,78	3,40	1,24	18,95	10,44	11,89	8,98	87,54	61,99	4,47	3,69
Tyrifjorden Abbor L	5	0,94	0,30	130,20	52,97	14,36	6,08	13,96	5,11	19,22	7,12	7,16	2,92	2,90	1,07
Vansjø Abbor L	5	0,32	0,11	173,00	46,82	2,14	0,46	4,14	1,29	1,56	0,34	1,76	0,35	0,52	0,18

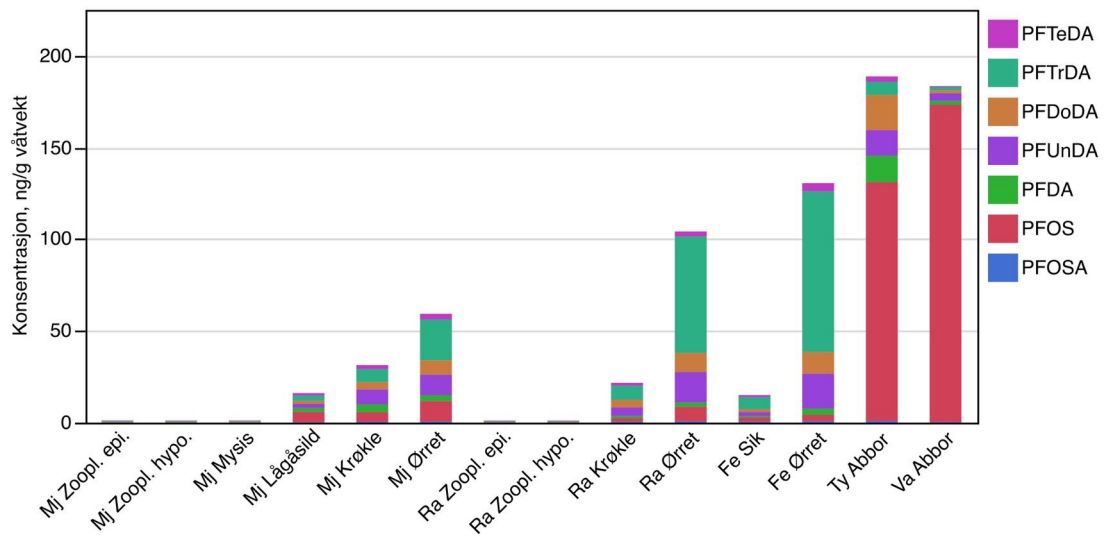
For de perfluorerte karboksylsyrene (PFCA) i fisk finner vi generelt at oddetalls-kjedene foreligger i høyere konsentrasjoner enn den neste lavere liketalls-kjeden, i likhet med blant annet Martin et al. (2004a) og Bossi et al. (2015). Det betyr følgende parvise rangering av

konsentrasjoner: PFUnDA > PFDA, PFTrDA > PFDoDA. Årsaken til dette fenomenet antas å være at fluortelomer-alkoholer (FTOH) i atmosfæren er en viktig forløper for disse forbindelsene. FTOH produseres kun som liketalls-kjeder (n:2 FTOH, med n fluorerete 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 (Eillis et al. 2004). Eksempelvis vil 10:2 FTOH brytes ned til PFUnDa og PFDA. Da de lengre liketalls-kjedene av PFCA biomagnifiserer mer effektivt enn de kortere oddetalls-kjedene, vil de derfor finnes i større konsentrasjoner i organismene (Martin et al. 2004a).



Figur 15. Fordelinger (box-plot) av PFAS-konsentrasjoner i fisk og zooplankton fra de undersøkte innsjøene i 2014. Analyseresultater under kvantifikasjonsgrensen (blå symboler) er byttet ut med halve grensen. For fisk vises resultatene fra leverprøvene. Mjøsa: Mj; Randsfjorden: Ra; Femunden: Fe; Tyrifjorden: Ty; Vansjø: Va.

Midlere konsentrasjoner av PFOS i leverprøver av fisk i de tre hovedsjøene, lå i område 2-11 ng/g våtvekt. I Tyrifjorden og Vansjø var imidlertid nivåene av PFOS i abbor betydelig forhøyet med middelkonsentrasjoner i lever på henholdsvis 130 og 173 ng/g våtvekt, noe som utgjør 69 og 93 % 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 3-19 %. For Vansjø er det kjent at bruk av brannslukkeskum med PFOS ved Rygge flyplass har ført til forurensinger av grunn og resipient (Forsvarsbygg Futura 2014), men for Tyrifjorden er vi ikke kjent med lokale kilder.



Figur 16. Midlere konsentrasjoner av ulike PFAS-forbindelser i fisk (lever) og zooplankton fra de undersøkte innsjøene i 2014. Analyseresultater under kvantifikasjonsgrensen er byttet ut med halve grensen. Mjøsa: Mj; Randsfjorden: Ra; Femunden: Fe; Tyrifjorden: Ty; Vansjø: Va.

5.5.2 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, anbefalte vi at det burde vurderes å analysere PFAS i andre matriker enn muskel, for eksempel lever, galle eller blod, hvor konsentrasjonene kan forventes å være høyere på grunn av bindinger til proteiner i blod og til galledalter (Martin et al. 2004; Naile et al. 2013; Ng and Hungerbühler 2013). Dette ville kunne redusere problemene med nivåer under deteksjons- og kvantifikasjonsgrenene.

Undersøkelsen i 2014 hadde derfor lever som hovedmatriks for analyser av PFAS, og det ble kun analysert på et mindre antall blandprøver av muskel ($n = 22$) for å kunne kartlegge forholdet mellom nivåene i lever og muskel, samt for å kunne sammenlikne nivåene i 2014 mot tidligere resultater. Til blandprøvene av muskel ble det brukt samme individer som det ble tatt individuelle leverprøver fra.

For fem forskjellige PFAS-forbindelser ble det funnet tilstrekkelig med analyser over kvantifikasjonsgrensene til at vi kunne sammenlikne nivåene i lever mot muskel (Tabell 13, Figur 17), og konsentrasjonene i lever var til dels betydelig høyere enn i muskel. For PFOS var gjennomsnittsnivåene i lever nær 30 ganger høyere enn i muskel; for de langkjedede perfluorerte karboksyl-syre sank forholdstallet med kjedelengden, fra omlag 25 i PFUnDa (C11) og til omlag 6 i PFTeDA (C14).

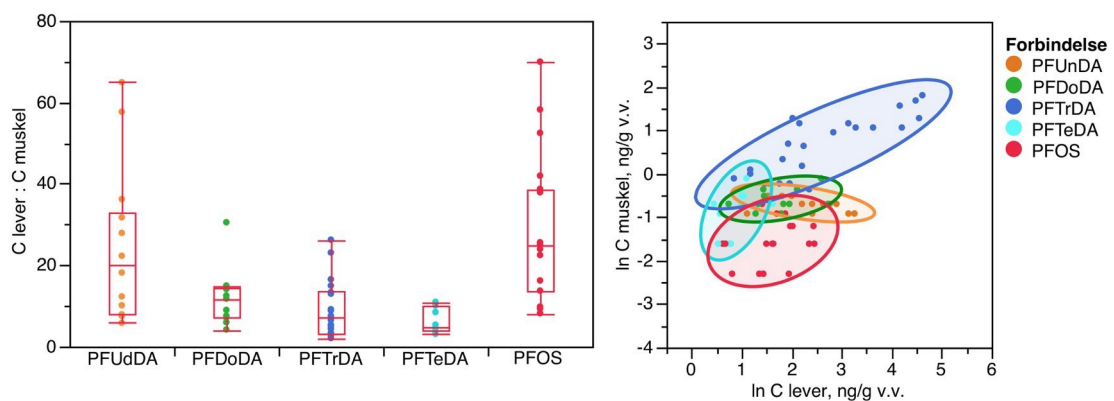
Korrelasjonene mellom nivåene i lever og muskelprøvene varierte for de ulike forbindelsene: for PFTTrDA var korrelasjonen svært høyt og statistisk signifikant ($r = 0,81$) mens det for de øvrige kun ble påvist lavere og ikke-signifikante verdier. De svake korrelasjonene skyldes trolig delvis at den relative analyse-usikkerheten blir stor når det er så vidt lave nivåer som påvises i muskelprøvene (mange var like over kvantifikasjonsgrensene). 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 at det gjennomsnittlige forholdstallet varierer med kjedelengden (6 til 24 ganger mer i lever enn i muskel), og kan derfor ikke gi noe enkel skaleringsfaktor for omregning av lever- til muskelkonsentrasjoner.

De store konsentrasjonsforskjellene mellom ulike vevstyper har også implikasjoner for beregning av trofisk magnifikasjonsfaktor (TMF) for ulike PFAS. Vi har ingen etablert normaliseringsfaktor, slik som lipider for fettløselige miljøgifter som PCB og PBDE. De store forskjellene mellom ulike vevstyper gjør at man ikke kan basere TMF-beregningene på relasjoner mellom konsentrasjoner og trofisk nivå når man bruker så ulike vevstyper som hele organismer på pelagiske krepsdyr og lever eller muskel hos fisk. I tillegg til lever og muskel, vil blod, nyrer og galle være viktige matrikser som styrer fiskens totale innhold («body burden») av PFAS. Muligens bør man bruke en helkroppsbelastning (total konsentrasjon) for de enkelte organismene, inntil man har funnet en egnet normaliseringsfaktor, når man skal beregne en gyldig TMF for PFAS i akvatiske næringsnett.

Tabell 13. Forholdet (ratio) mellom PFAS-konsentrasjoner i lever- og i muskelprøver av fisk fanget i Mjøsa, Randsfjorden og Femunden 2014. Korrelasjonene (r) og signifikansnivået (p) er og gitt.

forbindelse	n	ratio, gjennomsnitt	ratio, SD	r	p
PFUnDA	14	24.2	18.7	-0.52	0.06
PFDoDA	12	12.0	6.8	0.41	0.19
PFTTrDA	22	9.2	6.8	0.81	<.0001
PFTeDA	11	6.3	3.1	0.48	0.14
PFOS	19	28.9	17.7	0.31	0.20

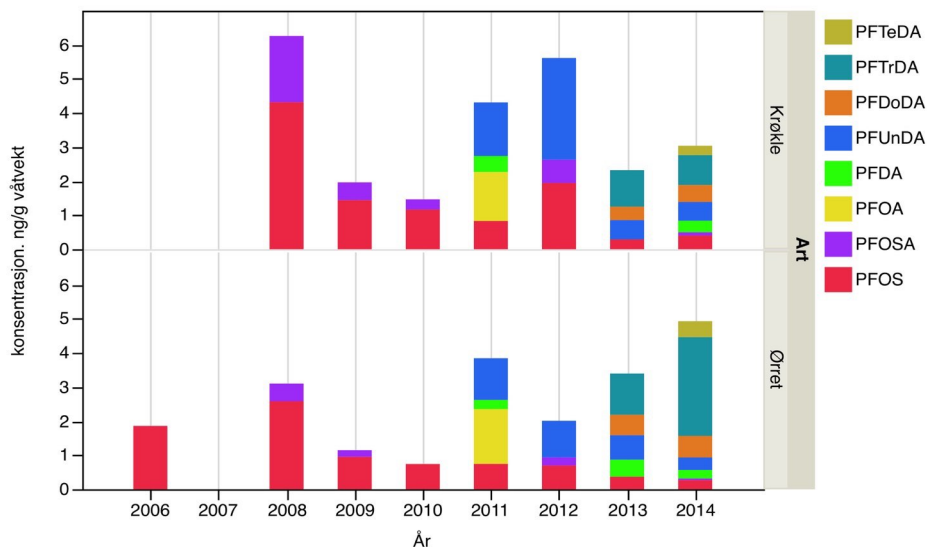


Figur 17. Forholdet mellom konsentrasjoner (C) av perfluorerte stoffer (PFAS) i lever- og i muskelprøver av fisk fanget i Mjøsa, Randsfjorden og Femunden 2014. Venstre figur viser ratio mellom konsentrasjonene i de to prøvetypene, beregnet ut fra blandprøver av muskel og middelverdier av leverprøver fra de samme individene. Høyre figur viser et spredningsplot (m. 90 % konfidensellipser) mellom konsentrasjoner i lever- og muskelprøver.

5.5.3 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 (Figur 18). For ørret er konsentrasjonen i muskelvev i denne perioden redusert fra omlag 0,9 til 0,3 ng/g våtvekt. For krøkle er konsentrasjonen redusert fra omlag 4,3 ng/g i 2006 og til 0,4 ng/g i 2014. Et forhold som imidlertid må tas i betraktning under vurderingen av trend-dataene er at det før 2013 ble analysert i stor kannibalistisk krøkle, noe som kan ha bidratt til de noe høye konsentrasjonene av PFOS i krøkle fra denne perioden.

Videre ser vi at andre mer langkjedede PFAS-forbindelser dukker opp i kvantifiserbare konsentrasjoner, noe som kan skyldes en kombinasjon av endrede bruksmønstre og forbedrede analyseteknikker. Her må det nevnes at den C13-baserte karboksylsyren PFTrDA nå er den dominerende forbindelsen i muskelprøvene, med konsentrasjoner i krøkle og ørret på henholdsvis 0,9 og 2,3 ng/g våtvekt. For data før 2011 var imidlertid kvantifiseringsgrensene for forbindelsene utenom PFOS og PFOA så høye at vi ikke har noen pålitelige data for disse for denne perioden.



Figur 18. Midlere konsentrasjon av perfluorerte stoffer (PFAS) i muskelprøver av fisk fanget i Mjøsa i perioden 2006–2014. Middelerdiene er beregnet på grunnlag av 15–20 individuelle prøver fra hvert år hvor mer enn 50 % av prøvene hadde konsentrasjoner større enn kvantifiseringsgrensen (> LOQ), med unntak av 2006 hvor det er analysert en blandprøve. Konsentrasjoner under kvantifiseringsgrensen er byttet ut med halve grensen. Data fra før 2013 er fra Fjeld et al. (2013), og det ble da analysert på stor kannibalistisk krøkle.

Nivåene av PFOS i muskelprøver vi rapporterer for Mjøsa er innenfor variasjonsbredden funnet i tidligere undersøkelser av ferskvannsfisk i Norge fra lokaliteter uten kjente store punktutslipp. I en screening-undersøkelse fra 2004 var konsentrasjonene av PFOS i muskel fra ulike arter ferskvannsfisk <0,002 – 3,99 ng/g 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 0,3 – 17,4 ng/g våtvekt (median: 1 ng/g våtvekt) og konsentrasjoner av PFUnDA i området <0,45 – 7,6 ng/g (median 1,1 ng/g våtvekt). Konsentrasjonene i de undersøkte størørretbestandene er også lave sammenliknet med nivåene i muskel fra fiskespisende

kanadarøye (*Salvelinus namaycush*) i Ontariosjøen (Nord-Amerika). Her har konsentrasjonene i perioden 1997-2010 variert i området 44-109 ng/g våtvekt (Environment Canada, 2013).

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 33 - 100 ng/g våtvekt i muskel og 2100 - 2400 ng/g våtvekt i lever (Møskeland 2010, Sweco 2012). Dette er vesentlig høyere enn hva vi finner hos ørret fra Mjøsa hvor midlere PFOS-konsentrasjonene i muskel og lever var henholdsvis 0,27 og 11 ng/g våtvekt, og i lever fra abbor fra Vansjø, med kjente kilder til PFOS-forurensning, hvor midlere konsentrasjon var 173 ng/g våtvekt .

5.6 Polybromerte difenyletere, PBDE

5.6.1 Konsentrasjoner av PBDE i 2014

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 14 har vi vist prosentandelen analyser >LOQ for de seks vanligst forekommende PBDE-kongenerene og for den fullbromerte BDE-209.

Tabell 14. Andel (%) av prøver hvor konsentrasjonene av de seks vanligste kongener av polybrominerte difenyletere (PBDE) i tetra-, penta- og hekso-gruppen (BDE-47 : BDE-154) og den fullbromerte kongeneren BDE-209 oversteg kvantifikasjonsgrensen (LOQ) i prøver av fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2014. (LOQ for BDE-47 - BDE-154: 0,01 ng/g våtvekt; LOQ for BDE-209: 0,01-0,08 ng/g våtvekt)

Lokalitet	Art	n	BDE-47	BDE-49	BDE-99	BDE-100	BDE-153	BDE-154	BDE-209
Mjøsa	Zoopl. epi.	3	100 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	100 %
Mjøsa	Zoopl. hypo.	3	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	0 %
Mjøsa	Mysis	3	100 %	67 %	100 %	100 %	0 %	100 %	100 %
Mjøsa	Lågåsil	9	100 %	89 %	100 %	100 %	89 %	100 %	89 %
Mjøsa	Krøkle	9	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %
Mjøsa	Ørret	15	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	87 %
Randsfjorden	Zoopl. epi.	3	100 %	0 %	100 %	0 %	0 %	0 %	67 %
Randsfjorden	Zoopl. hypo.	3	100 %	0 %	100 %	0 %	0 %	0 %	100 %
Randsfjorden	Krøkle	9	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	78 %
Randsfjorden	Ørret	15	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	100 %	93 %
Femunden	Zoopl. epi.	15	100 %	7 %	73 %	27 %	0 %	20 %	100 %
Femunden	Ørret	15	100 %	33 %	100 %	100 %	67 %	93 %	87 %
Tyrifjorden	Abbor	5	100 %	0 %	100 %	100 %	0 %	100 %	80 %
Vansjø	Abbor	5	100 %	20 %	80 %	80 %	20 %	60 %	40 %

Konsentrasjonen av PBDE i fisk, målt som summen av de seks vanligst forekommende kongener av tetra-, penta- og hekso-BDE, var høyest i Mjøsa og lavest i Femunden (Tabell 15, Figur 19). Midlere sum varierte mellom 0,11-24 ng/g våtvekt eller 12-600 ng/g lipid, høyest i ørret fra Mjøsa og lavest i sik fra Femunden. Tilsvarende konsentrasjoner i epipelagisk zooplankton fra Mjøsa var 0,06 ng/g våtvekt og 20 ng/g lipid.

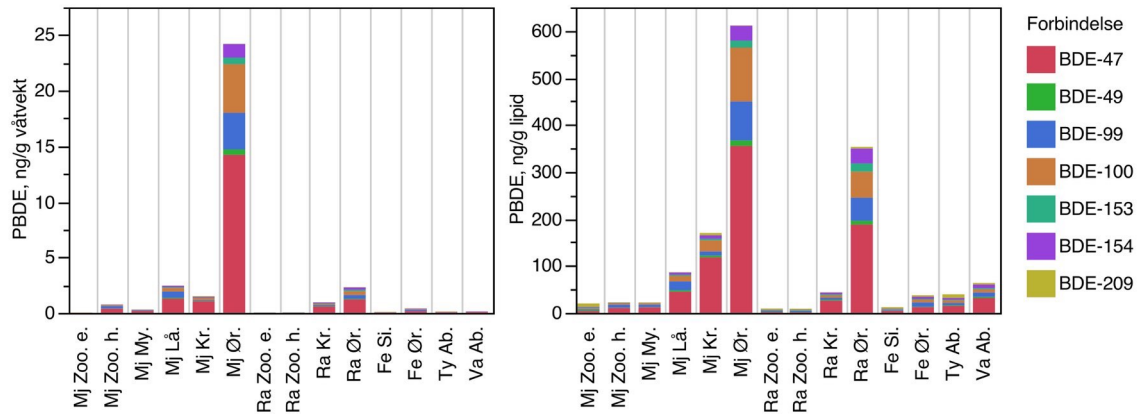
Den fullbromerte kongeneren BDE-209 var tilstede i kvantifiserbare konsentrasjoner i omlag 85 % av prøvene, med middelkonsentrasjoner for de ulike organismene fra de enkelte sjøene i området 0,01-0,4 ng/g våtvekt (1-7 ng/g lipid). Hos zooplankton i Mjøsa (epipelagisk) og Randsfjorden (epi- og hypopelagisk) utgjorde BDE-209 omlag 20-30 % av sum PBDE, og denne kongeneren har derfor potensiale til å gi et ikke ubetydelig bidrag til biomagnifisering av PBDE på høyere trofiske nivåer. 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 15. Midlere konsentrasjon og prosentandel seks vanligste kongener av polybrominerte difenyletere (PBDE) i tetra-, penta- og heksa-gruppen (BDE-47 : BDE-154) og den fullbromerte kongeneren BDE-209 i prøver av fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2014. Konsentrasjoner under kvantifikasjonsgrensen er byttet ut med halve grensen (LOQ/2). \bar{x} : middelværdi, 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.	0,01	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,06	0,00
	Zoopl. hypo.	0,37	0,04	0,02	0,00	0,22	0,02	0,09	0,01	0,02	0,00	0,03	0,00	0,04	0,04	0,79	0,09
	Mysis	0,17	0,01	0,01	0,00	0,07	0,01	0,03	0,01	0,01	0,00	0,01	0,00	0,02	0,01	0,32	0,02
	Lågåsild	1,28	0,87	0,08	0,05	0,56	0,33	0,32	0,23	0,07	0,04	0,12	0,08	0,02	0,01	2,45	1,54
	Krøkle	1,03	0,35	0,04	0,01	0,08	0,01	0,21	0,09	0,03	0,01	0,07	0,03	0,04	0,02	1,50	0,47
	Ørret	14,22	8,03	0,48	0,24	3,30	1,92	4,38	3,07	0,58	0,36	1,22	0,74	0,02	0,02	24,21	14,07
Randsfjorden	Zoopl. epi.	0,01	0,01	0,01	0,00	0,02	0,01	0,01	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,02	0,01	0,07	0,00
	Zoopl. hypo.	0,01	0,00	0,01	0,00	0,02	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,01	0,00	0,02	0,01	0,07	0,01
	Krøkle	0,56	0,15	0,04	0,01	0,10	0,02	0,12	0,03	0,05	0,01	0,08	0,02	0,01	0,01	0,95	0,23
	Ørret	1,20	0,73	0,06	0,04	0,35	0,27	0,34	0,22	0,12	0,08	0,21	0,14	0,03	0,05	2,32	1,46
Femunden	Sik	0,04	0,03	0,01	0,00	0,02	0,02	0,01	0,01	0,01	0,00	0,01	0,01	0,03	0,04	0,11	0,10
	Ørret	0,14	0,16	0,01	0,02	0,11	0,13	0,07	0,08	0,02	0,02	0,05	0,06	0,02	0,02	0,43	0,46
Tyrifjorden	Abbor	0,05	0,00	0,01	0,00	0,02	0,01	0,02	0,00	0,01	0,00	0,01	0,01	0,03	0,02	0,14	0,02
Vansjø	Abbor	0,07	0,04	0,01	0,00	0,02	0,02	0,02	0,01	0,01	0,00	0,03	0,04	0,01	0,00	0,16	0,08
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.	4	0	2	0	2	0	2	0	2	0	2	0	7	0	20	1
	Zoopl. hypo.	10	2	1	0	6	1	3	1	1	0	1	0	1	1	23	6
	Mysis	12	1	1	0	5	0	2	0	0	0	1	0	2	0	22	1
	Lågåsild	45	35	3	2	19	12	12	10	2	2	4	4	1	1	86	63
	Krøkle	118	85	4	2	9	4	24	19	3	2	8	5	5	3	170	119
	Ørret	355	205	12	5	83	48	115	89	15	10	31	21	1	1	611	374
Randsfjorden	Zoopl. epi.	2	1	1	0	2	0	1	0	1	0	1	0	2	2	9	1
	Zoopl. hypo.	1	0	1	0	3	0	1	0	1	0	1	0	2	1	9	1
	Krøkle	26	9	2	0	4	1	5	2	2	1	4	1	1	0	44	14
	Ørret	188	297	8	11	49	72	55	91	18	26	32	49	4	5	353	546
Femunden	Sik	4	1	1	0	2	1	1	0	1	0	1	0	3	2	12	3
	Ørret	12	5	1	0	9	5	6	3	2	1	5	2	3	3	38	15
Tyrifjorden	Abbor	15	3	1	0	5	2	5	2	1	0	4	1	8	5	39	7
Vansjø	Abbor	31	15	3	1	9	8	7	5	3	1	8	7	3	1	64	27



Figur 19. Midlere konsentrasjon av polybromerte difenyletere (PBDE) i fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2014. Det er her vis de syv vanligst forekommende kongenerne. Konsentrasjonene er oppgitt på henholdsvis våtvekt- (høyre figur) og lipidvektbasis (venstre figur). Konsentrasjoner under kvantifiseringsgrensen (< LOQ) er byttet ut med halve kvantifiseringsgrensen (LOQ/2).

5.6.2 Tidstrend av PBDE i Mjøsa

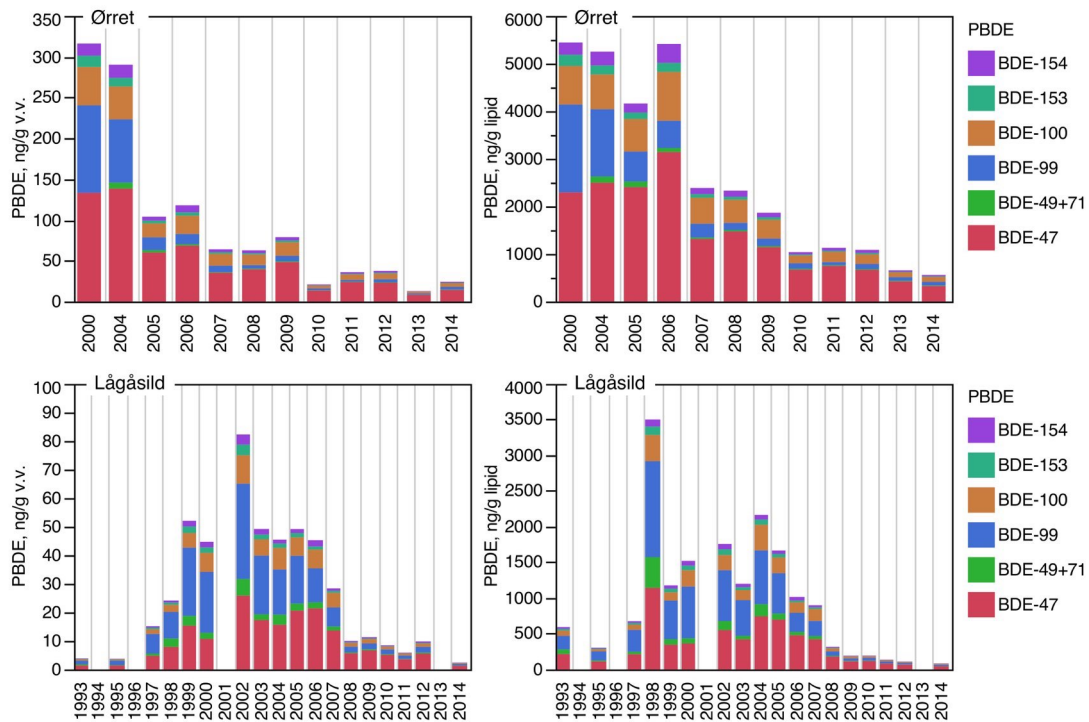
Konsentrasjonene av PBDE i ørret fra Mjøsa har sunket markert siden de maksimale nivåene på omlag 5400 ng/g lipid på begynnelsen av 2000-tallet, da det var betydelige lokale tilførsler fra en tekstilbedrift ved Lillehammer, og til dagens nivå på nær 600 ng/g lipid (Figur 20). Utslippene pågikk trolig i perioden fra midten av 1990-tallet til tidlig 2000-tallet. En Mann-Kendal test viste at det var en signifikant negativ trend (Kendall $\tau = -0,88$, $p = <0,0001$).

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 (gjennomsnittsvikt: 3,5 kg), var 5 450 ng/g lipid (Figur 20). 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 600 ng/g lipid i 2014, det vil si 10 % av de høye nivåene som ble funnet på begynnelsen av 2000-tallet, så er de fortsatt markert 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 tydelig 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-kongeneren BDE-47 (Streets et al. 2006, Benedict et al. 2007). Et godt eksempel på dette kan trolig sees i den lange tidsserien av PBDE i lågåsild fra Mjøsa som starter i 1993. Her økte andelen BDE-99 da de lokale utslippene begynte på siste halvdel av 1990-tallet. Da utslippene ble stanset på begynnelsen av 2000-tallet sank andelen BDE-99 fra 40 % og til omlag 22 % i 2014, mens andelen BDE-47 økte fra 24 % og til 52 %. Samme fenomen kan vi også

observere i den kortere tidsserien av ørret i Mjøsa hvor andelen BDE-47 har økt fra 42 % i år 2000 og til 59 % i år 2014 (Figur 20). Den kommersielle pentaBDE-blandingen, som disse kongenerene 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.

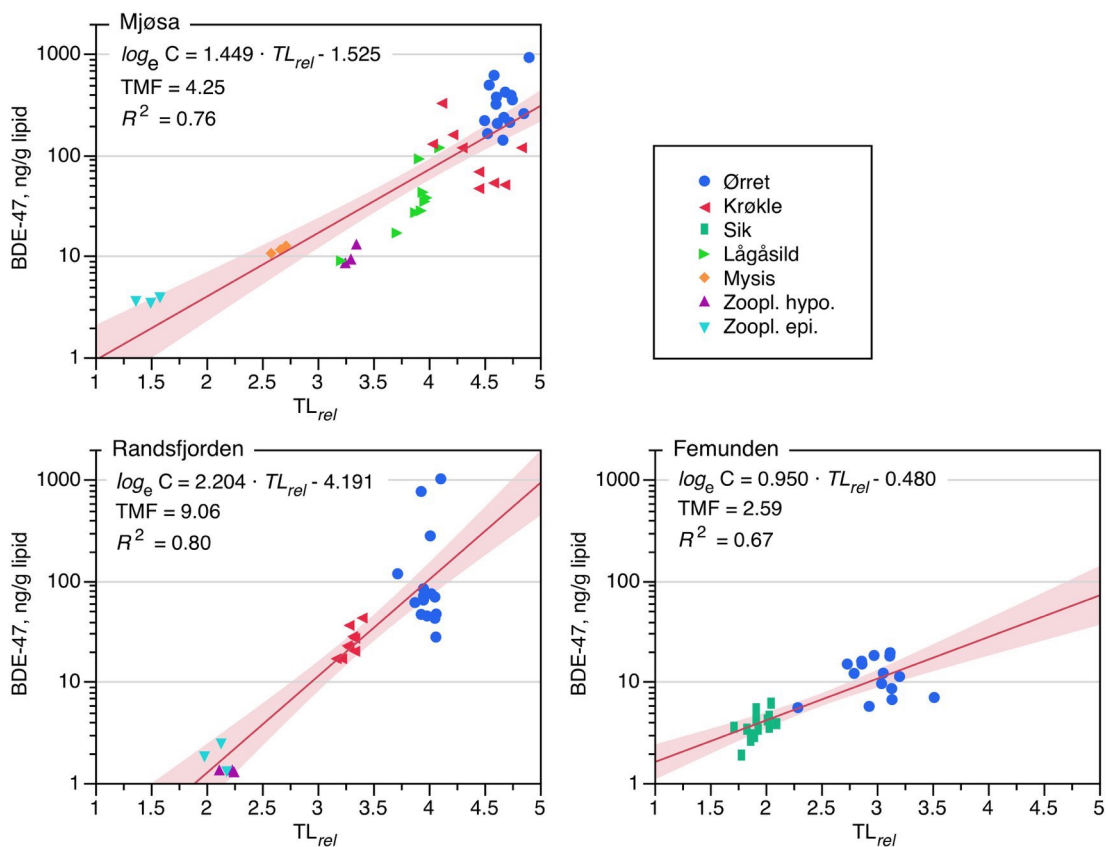


Figur 20. Midlere konsentrasjon av polybromerte difenyletere (PBDE) i muskelprøver av ørret og lågåsild fra Mjøsa, fanget i perioden 1993-2014. Det er her vist de vanligst forekommende kongenerene. Konsentrasjonene er oppgitt på henholdsvis våtvekt (høyre figurer) og lipidvektbasis (venstre figur). Konsentrasjoner under kvantifiseringsgrensen (< LOQ) er byttet ut med halve grensen). Data fra 2000-2012 er fra Fjeld et al. (2013).

5.6.3 Trofisk magnifisering av PBDE

I både Mjøsa, Randsfjorden og Femunden økte konsentrasjonen av de seks vanligst forekommende PBDE-kongenerene med $\delta^{15}\text{N}$ -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 21). Regresjonene var signifikante, det vil si at BDE-47 biomagnifiserte.

For 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 $\delta^{15}\text{N}$ -forholdet i Mjøsa også viser årlige variasjoner, og vi derfor ikke har fullt ut pålitelige data for bunnlinjekorrigerings 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 2,59 i Femunden og til 9,06 i Randsfjorden. Dette er TMF-verdier, som i likhet med PCB, er til dels betydelig større enn en den vi beregnet for siloksanforbindelsen D5 i Mjøsa og Randsfjorden (2,15).



Figur 21. Forholdet mellom BDE-47 (lipidnormalisert) og relativt trofisk nivå (TL_{rel}) i fisk (muskel) og zooplankton, fanget 2014. Regresjonslinje med 95 % konfidensbånd mellom konsentrasjon (\log_e -transformert) og relativt trofisk nivå er inntegnet.

5.7 Klorerte parafiner, S/MCCP

Konsentrasjonene av klorerte parafiner var i hovedsak lave, og for flere av de ulike organisme-gruppene var konsentrasjonene under kvantifikasjonsgrensen (LOQ, Tabell 16). I det følgende har vi erstattet verdier under LOQ med halve grensen.

Midlere konsentrasjoner av kortkjedede (SCCP) og mellomkjedede (MCCP) parafiner var området 0,2 - 5,7 ng/g våtvekt eller 20 - 570 ng/g lipid (Tabell 17, Figur 22). På lipidvektbasis var konsentrasjonen av de kortkjedede omlag 1,5 ganger høyere enn konsentrasjonen av de langkjedede, og de høyeste konsentrasjonene ble funnet i zooplankton fra Mjøsa. I fisk ble det analysert for klorerte parafiner i muskelprøver, og det var ingen tegn til at konsentrasjonene økte med trofisk posisjon eller varierte systematisk mellom innsjøene.

For Mjøsa har vi data på klorerte parafiner i fisk fra enkelte år i perioden 2003 - 2014. I Figur 23 har vi framstilt middelverdiene av SCCP i ørret, krøkle og lågåsild, og vi ser her at de høyeste nivåene ble registrert i 2008. De klorerte parafinene ble dominert av SCCP (kortkjedede forbindelser) og middel-konsentrasjonene i 2008 var 430 - 910 ng/g lipid, og har i årene etter variert usystematisk mellom 30 og 290 ng/g lipid. For ørret og lågåsild, hvor det har vært fanget på de samme størrelsesgruppene eller samme trofisk nivå, har konsentrasjonene sunket til omlag 25 - 30 % av nivåene i 2008. For MCCP var stor andel av analysene fra samme periode under LOQ (høyere grenser), så en sammenstilling av trend-data er således av liten verdi.

Det har tidligere blitt gjort to mer omfattende undersøkelser av forekomsten av ulike persistente miljøgifter, klorerte parafiner inkludert, i norsk ferskvannsfisk. I en nasjonal undersøkelse av Fjeld et al. (2001) ble det vist at et vanlig forekommende nivå (25 - 75 prosentil) av SCCP i muskelprøver av ørret var i området 200 - 800 ng/g lipid. I en regional undersøkelse fra Sør-Norge (Fjeld et al. 2009b) ble det funnet et vanlig forekommende nivå i ørret på omlag 40 - 600 ng/g lipid. Resultatene fra foreliggende undersøkelse faller innenfor disse tidligere rapporterte vanlige nivåene.

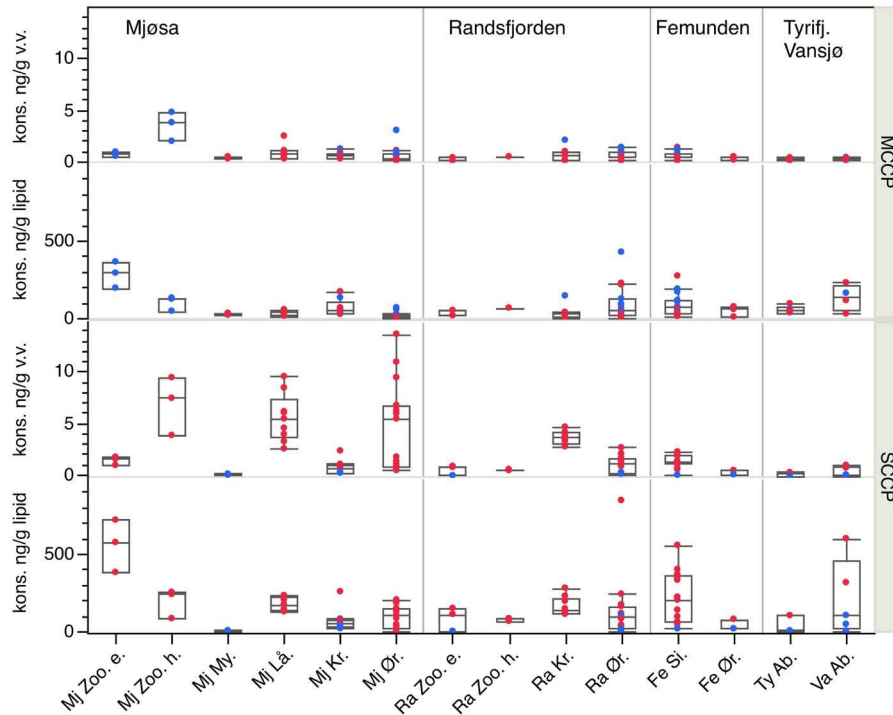
Tabell 16. Andel (%) av prøver hvor konsentrasjonene av klorerte parafiner (kort- og mellomkjedede: SCCP, MCCP) oversteg kvantifikasjonsgrensen (LOQ) i prøver av fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2014. Minste og største grenseverdier for LOQ er gitt.

Lokalitet	Art	n	andel > LOQ (%)		LOQ, ng/g våtvekt	
			SCCP DET %	MCCP DET %	SCCP	MCCP
Mjøsa	Zoopl. epi.	3	100	0		1,1 - 1,9
	Zoopl. hypo.	3	100	0		4 - 9,6
	Mysis	3	0	100	0,3 - 0,5	
	Lågåsild	9	100	100		
	Krøkle	9	56	67	0,6 - 0,9	0,8 - 2,5
	Ørret	15	100	47		0,6 - 6,1
Randsfjorden	Zoopl. epi.	3	67	100	0,2	
	Zoopl. hypo.	3	100	100		
	Krøkle	9	100	89		4,2 - 4,2
	Ørret	15	60	53	0,4 - 0,8	1 - 2,8

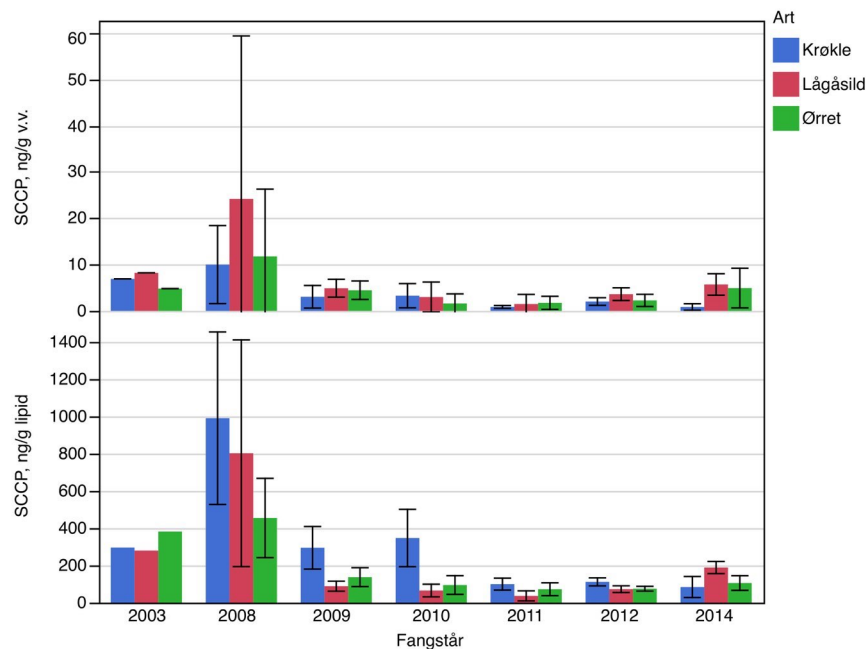
Lokalitet	Art	n	andel > LOQ (%)		LOQ, ng/g våtvekt	
			SCCP DET %	MCCP DET %	SCCP	MCCP
Femunden	Sik	15	93	60	0,3	1,2 - 2,4
	Ørret	3	67	100	0,4	
Tyrifjorden	Abbor	5	40	80	0,1	0,4
Vansjø	Abbor	4	50	75	0,13 - 0,36	0,85 - 0,85

Tabell 17. Midlere konsentrasjon av klorerte parafiner (kort- og mellomkjededede: SCCP, MCCP) i prøver av fisk (muskel) og zooplankton, fanget i 2014. Cellene er farget oransje der hvor mer enn 50 % av analysene var over kvantifikasjonsgrensene (LOQ). Verdier under LOQ er erstattet med halve grensen. \bar{x} : middelvei, SD: standard avvik.

Lokalitet	Art	SCCP, ng/g v.v.		MCCP, ng/g v.v.		SCCP, ng/g lipid		MCCP, ng/g lipid	
		\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD	\bar{x}	SD
Mjøsa	Zoopl. epi.	1,6	0,4	0,8	0,2	570	170	290	85
	Zoopl. hypo.	7,1	2,8	3,5	1,4	200	90	100	50
	Mysis	0,2	0,1	0,4	0,1	20	3	30	7
	Lågåsild	5,7	2,3	0,9	0,7	190	40	30	20
	Krøkle	0,8	0,7	0,6	0,3	80	70	70	50
	Ørret	4,9	4,3	0,6	0,7	100	70	20	20
Randsfjorden	Zoopl. epi.	0,7	0,5	0,3	0,2	100	80	40	20
	Zoopl. hypo.	0,7	0,1	0,5	0,0	90	10	70	1
	Krøkle	3,8	0,6	0,7	0,6	180	60	40	40
	Ørret	1,1	0,9	0,6	0,4	150	210	100	120
Femunden	Sik	1,6	0,7	0,6	0,4	230	160	90	70
	Ørret	0,5	0,2	0,4	0,2	50	40	50	30
Tyrifjorden	Abbor	0,2	0,2	0,2	0,1	50	50	50	20
Vansjø	Abbor	0,5	0,5	0,3	0,1	230	250	140	80



Figur 22. Fordelinger (box-plot) av kort- og mellomkjedede parafiner (SCCP, MCCP) i fisk (muskel) og zooplankton fanget i 2014. Verdier under LOQ er erstattet med halve grensen. Blå punkter markerer analyseresultater under kvantifikasjonsgrensene, røde punkter markerer resultater over grensene. Forkortelsene for de enkelte gruppene er: zooplankton epilimnisk: Zoo. e.; zooplankton hypolimnisk: Zoo. h.; Mysis: My; lågåsild: Lå; krøkle: Kr; Ørret: Ør.



Figur 23. Middelerverdi av kortkjedede parafiner (SCCP) i fisk fra Mjøsa (muskelprøver), fanget i perioden 2003-2014. Verdier under LOQ er erstattet med halve grensen. Øvre figur: våtvektbaserte verdier. Nedre figur: lipidvektbaserte verdier.

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.

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., Høgfjeldt, 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

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>

- 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 forurensningsovervåking. 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 forurensningsovervåking, 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.
- 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.

- 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
- 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. 2004a. Identification of long-chain perfluorinated acids in biota from the Canadian Arctic. *Environ. Sci. Technol.* 38(2): 373-380.
- Martin, J.; Whittle, D.; Muir, D.; Mabury, S. 2004b. Perfluoroalkyl contaminants in a food web from Lake Ontario. *Environ. Sci. Technol.* 38: 5379-5385.
- 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.
- 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
- 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.
- 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., Cymbalisky, 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

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.

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 Vänern och Vättern. Supplement till rapporten "Miljøgifter i fisk 2001/2002". Rapport nr. 25 2003.

Åkerblom, S., Nilsson, M., Yu, J., Ranney, 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

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	E: 282000; N: 6746114	E: 244543; N: 6717603	E: 338500; N: 6898700	E: 235062; N: 6663017	E: 263080 N: 6591490
Degrees:	60,79 °N 10,10 °E	61,51 °N 10,35 °E	62,19 °N 11,90 °E	60,02 °N 10,25 °E	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

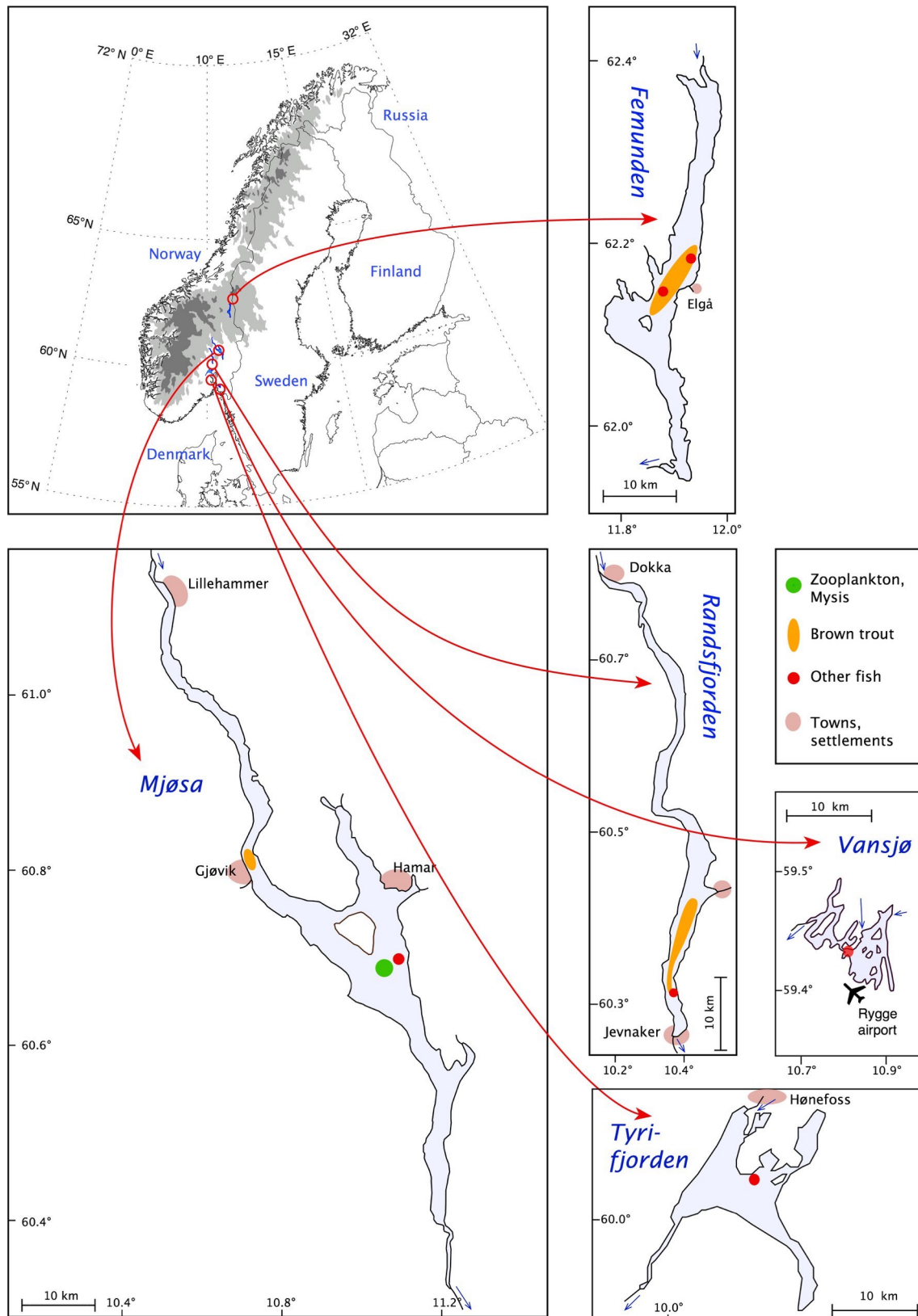


Figure 1. Map over the study lakes Mjøsa, Randsfjorden, Femunden, Tyrifjorden and Vansjø. Areas from where fish, zooplankton and Mysis are sampled are marked on the map.

4.2 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.

Dissection 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 and Randsfjorden were sampled in August, using a nylon mesh net (mesh size 500 microns) equipped with a collecting cup with a sieve (both in brass). 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). The epilimnic zooplankton in Mjøsa was dominated by the cladocerans *Daphnia galeata* and *Bosmina longispina*, whereas the hypolimnic zooplankton was dominated by copepods, especially *Limnocalanus macrurus*. In Randsfjorden was both the epilimnic and hypolimnic zooplankton volumetric dominated by *H. gibberum*, which was filtered from the samples. After removing these, the samples mainly of consisted the cladocerans *D. galeata* and *B. longispina*.

4.3 Analytical methods

4.3.2. Cyclic volatile methyl siloxanes

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 ultrasonication 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 ultrasonication 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.

Samples were extracted in three separate batches where LOQ/D varied between the batches where separate LOQ/D were reported for each batch (Table 2). For one batch (number 2) the LOQ/D was much higher compared to the other batches due to one blank sample having elevated concentrations. Source of elevated concentration in the blank sample could not be determined, and, thus, was included in the determination of LOQ/D. This caused many of the samples from batch number 2 to be left censored and have been reported as below LOD or LOQ.

Table 2. Analysis of cVMS in field blanks: detection limits (LOD) and quantification limits (LOQ) for the different extraction batches.

Batch	LOD, ng/g wet weight			LOQ, ng/g wet weight		
	D4	D5	D6	D4	D5	D6
No. 1	0.4	0.3	1.3	0.6	0.5	1.9
No. 2	6.4	2.0	2.0	17.7	5.8	3.4
No. 3	1.9	0.2	2.5	3.4	0.4	3.5

5.3 Cyclic volatile methylated siloxanes, cVMS

5.3.1 Treatment of non-quantifiable data

Concentrations of siloxanes (D4, D5 and D6) were determined in biota from all five lakes. For Mjøsa and Randsfjorden we sampled across a wide range of trophic levels in the pelagic food web (planktonic crustaceans and fish), but from Femunden we sampled only pelagic fish (whitefish and brown trout). From Tyrifjorden and Vansjø only samples from benthic perch were analyzed.

The majority of D4 and D6 analyses were below the method detection or quantification limits (LOD/Q), calculated as the mean of the analytical blank values with respectively 3 x or 10 x the standard deviation. In statistical terminology such data is called (left) censored data. The proportion quantifiable results for D4, D5 and D6 were 30 %, 80 % and 44 %, respectively (Table 7). Only for trout from Mjøsa and smelt from Randsfjorden did we find that more than 50 % of the samples had quantifiable results for all three compounds. Moreover, only for D5 from these two lakes did we have sufficient quantifiable data to make it possible to calculate trophic magnification.

In the following are all statistics and calculations based on that results < LOD/Q are substituted with half the limits. To this it must be noted that the original analyses were done on wet weight basis and that the lipid content were determined by a separate analysis. The conversion of original LOQ/Ds to lipid weight based numbers will introduce the associated uncertainty for the lipid analysis, hence the lipid based LOD/Q will have a greater uncertainty than the wet weight based. Descriptive statistics for lipid based concentrations are therefore given with one significant digit for D4 and two for D5 and D6.

Table 7. Number and percent of cVMS analyses with determined (quantified) concentrations (DET) and concentrations below the methods detection or quantification limits (LOQ/D):

category	D4		D5		D6	
	N	%	N	%	N	%
DET	25	30%	67	80%	37	44%
LOD	54	64%	15	18%	19	23%
LOQ	5	6%	2	2%	28	33%

5.3.2 Levels of cVMS in 2014

The highest quantifiable concentrations of cVMS were found in Mjøsa and Randsfjorden. D5 was in general the dominant compound in biota, followed by D6 and D4 (Table 8, Figure 7). A detailed comparison of the D4 and D6 levels, both between lakes and between groups of organisms in lakes, is difficult since the majority of these analyzes were below the methods LOD/Q - and these limits vary between the three different batches prepared in the laboratory.

In Mjøsa and Randsfjorden the lowest levels of D5 (lipid) were found in epilimnic zooplankton, while the highest levels were found in smelts from Mjøsa and brown trout from Randsfjorden. The mean D5 concentrations (\pm SD) of epilimnic zooplankton, smelt and trout from Mjøsa were respectively 360 (\pm 20), 5800 (\pm 3400) and 2500 (\pm 1700) ng/g lipid, whereas they in Randsfjorden were 750 (\pm 360) 1400 (\pm 880) and 2,400 (\pm 1600) ng/g lipid. We here substituted values below LOD/Q with half the limit (epilimnic zooplankton: 3 of 3 in Mjøsa, 1 of 3 in Randsfjorden). No statistically significant difference between the mean concentration of D5 in brown trout from the two lakes could be detected ($p = 0.8$), whereas for smelt there was a significant difference ($p = 0.002$).

Concentrations of D4 and D6 in samples from these two lakes were by and large less than LOD/Q, except for brown trout from Mjøsa and smelt from Randsfjorden. For D4 and D6 in trout from Mjøsa mean values were respectively 40 (\pm 20) and 140 (\pm 56) ng/g lipid, whereas they for smelt from Randsfjorden were respectively 40 (\pm 10) and 110 (\pm 45) ng/g lipid.

Nearly all samples from Femunden, Tyrifjorden and Vansjø had concentrations less than LOD/Q, (D4; D5 and D6: 17.7; 5.8 and 4.4 ng/g wet weight) and a more detailed discussion of the converted lipid normalized average values for the different sample types from these lakes are therefore not particularly meaningful (D4: 400 - 1000 ng/g lipid; D5: 120 - 330 ng/g lipid; D6: 200 - 400 ng/g lipid).

The concentrations of D5 in fish Mjøsa and Randsfjorden (average values in the range 1400 to 5800 ng/g lipid) were clearly elevated compared to fish from Femunden (<240 ng/g lipid, all samples below detection limit. This is in accordance with results from surveys conducted in 2012 (Borgå et al. 2013a and b) and 2013 (Fjeld et al. 2014). The higher levels of D5 in Mjøsa and Randsfjorden most likely reflect the importance of local sources from a relatively large population, industry and traffic. For Femunden, with its sparsely population and traffic, and no industry, we can expect local sources of cVMS to be near absent. Atmospheric deposition is here 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 8. Concentrations (mean \pm SD, maximum - minimum) of siloxanes (cVMS: D4, D5 and D6) in samples of fish (muscle) and crustacean zooplankton, collected in 2014. Concentrations below quantification or determination limits (LOQ/D) are substituted with half the limits. Orange colored cells indicate that 50 % of the samples have concentrations > LOQ/D.

Lake	Sample type (n)	Statistics	ng/g wet weight			ng/g lipid		
			D4	D5	D6	D4	D5	D6
Mjøsa	Brown trout (15)	$\bar{x}\pm$ SD	2 \pm 0,9	110 \pm 100	5,6 \pm 3	40 \pm 20	2500 \pm 1700	140 \pm 56
		Min-Max	0,9–4,1	13–434	2,7–14,3	20–70	210–6100	48–220
	Smelt (9)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2	58 \pm 35	2,6 \pm 1,3	300 \pm 100	5800 \pm 3400	280 \pm 240
		Min-Max	3,2–3,2	32–147	1,7–4,6	200–600	2800–14000	120–870
	Vendace (9)	$\bar{x}\pm$ SD	1,7 \pm 0,8	57 \pm 41	3,4 \pm 1,4	60 \pm 20	1800 \pm 1200	120 \pm 73
		Min-Max	1,0–3,7	1,0–110	1,3–4,7	40–90	53–3600	38–240
	Mysis (3)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2 \pm 0,0	10 \pm 2,9	1,2 \pm 0,4	200 \pm 10	720 \pm 190	85 \pm 26
		Min-Max	3,2–3,2	8,5–13,8	1,0–1,7	200–200	580–930	68–110
	Zoopl. hypolimnic. (3)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2 \pm 0,0	75 \pm 9	1,7 \pm 0,0	90 \pm 20	2100 \pm 580	48 \pm 9,9
		Min-Max	3,2–3,2	65–82	1,7–1,7	80–100	1500–2700	40–59
	Zoopl. epilimnic (3)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2 \pm 0,0	1,0 \pm 0,0	1,0 \pm 0,0	1000 \pm 70	360 \pm 20	360 \pm 20
		Min-Max	3,2–3,2	1,0–1,0	1,0–1,0	1000–1000	340–380	340–380
Randsfjorden	Brown trout (15)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2 \pm 0,0	27 \pm 29	3,1 \pm 3,1	500 \pm 500	2400 \pm 1600	340 \pm 300
		Min-Max	3,2–3,2	2,9–117	1,7–12,9	80–2000	130–5800	44–870
	Smelt (9)	$\bar{x}\pm$ SD	0,9 \pm 0,2	28 \pm 13	2,3 \pm 0,5	40 \pm 10	1400 \pm 880	110 \pm 45
		Min-Max	0,7–1,3	12,3–45	1,0–2,9	30–60	500–3100	39–200
	Zoopl. hypolimnic. (3)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2 \pm 0,0	9,8 \pm 2,1	1,0 \pm 0,0	400 \pm 9	1300 \pm 250	130 \pm 2,7
		Min-Max	3,2–3,2	7,9–12	1,0–1,0	400–400	1100–1600	130–140
	Zoopl. epilimnic. (3)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2 \pm 0,0	5,1 \pm 1,9	1,0 \pm 0,0	500 \pm 100	750 \pm 360	140 \pm 31
		Min-Max	3,2–3,2	2,9–6,3	1,0–1,0	400–600	350–1100	120–180
Femunden	Brown trout (3)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2 \pm 0,0	1,0 \pm 0,0	1,7 \pm 0,0	400 \pm 200	120 \pm 57	200 \pm 98
		Min-Max	3,2–3,2	1,0–1,0	1,7–1,7	200–500	49–150	84–260
	Whitefish (3)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2 \pm 0,0	1,0 \pm 0,0	1,9 \pm 1,6	400 \pm 100	120 \pm 43	240 \pm 230
		Min-Max	3,2–3,2	1,0–1,0	1,0–3,8	200–500	75–160	75–500
Tyrifjorden	Perch (3)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2 \pm 0,0	1,0 \pm 0,0	1,2 \pm 0,4	1000 \pm 100	330 \pm 42	420 \pm 190
		Min-Max	3,2–3,2	1,0–1,0	1,0–1,7	900–1000	290–370	290–630
Vansjø	Perch (3)	$\bar{x}\pm$ SD	3,2 \pm 0,0	1,0 \pm 0,0	1,0 \pm 0,0	1000 \pm 300	310 \pm 79	310 \pm 79
		Min-Max	3,2–3,2	1,0–1,0	1,0–1,0	700–1000	230–380	230–380

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 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).

Muscle concentrations of D4, D5 and D6 in herring from the Baltic Sea are reported to have mean concentrations of 10, 200 and 40 ng/g lipid, respectively (Kierkegaard et al. 2013), and the authors argue that the ratio between the different compounds largely reflect the relationship between the annual emissions quantities in Europe. It is therefore noteworthy the D6 and D4 constitute such a large proportion of the cVMS in samples of fish from Femunden, Tyrifjorden and Vansjø.

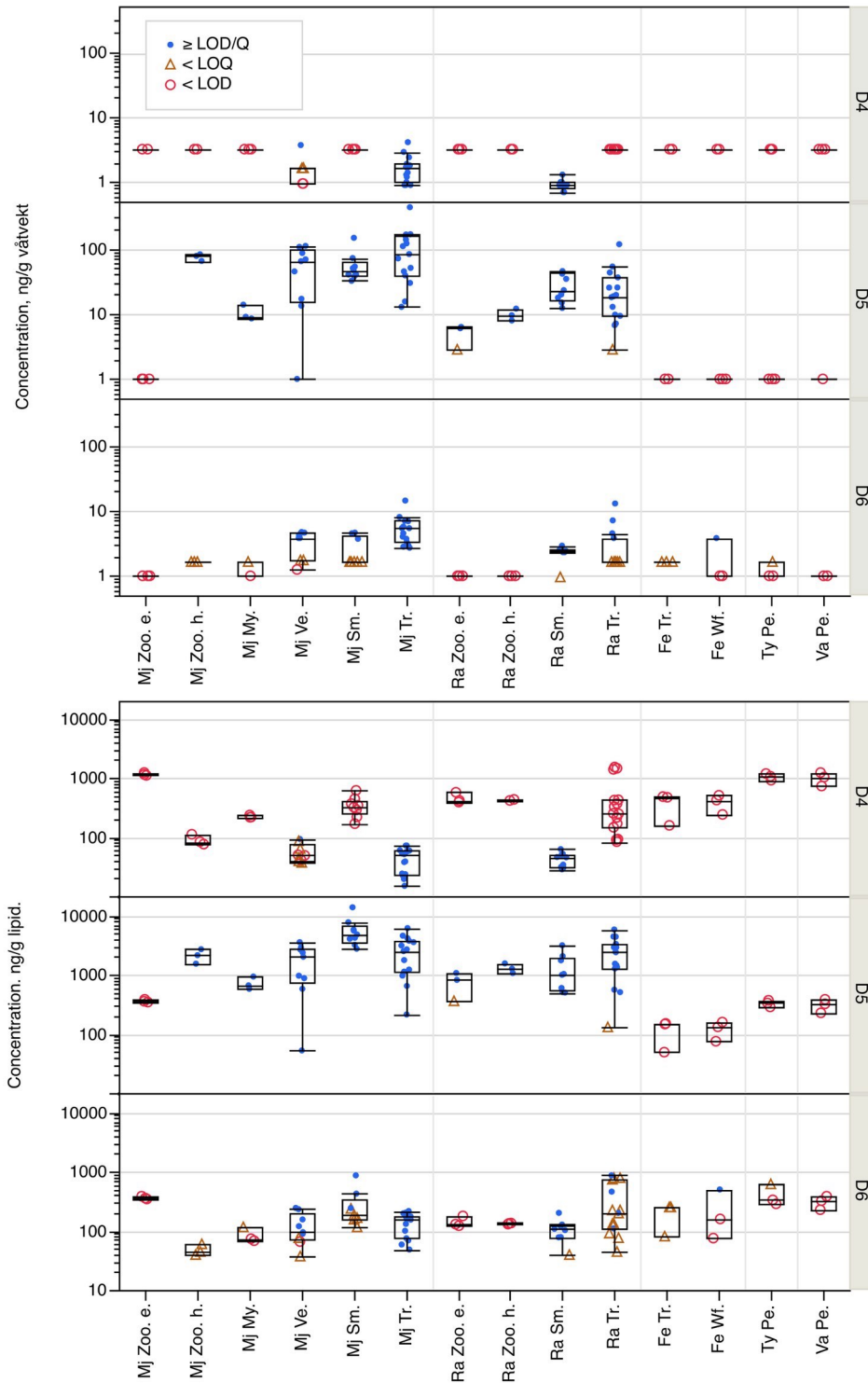


Figure 7. Box-plot of cVMS concentration in fish (muscle) and crustacean zooplankton from the study lakes, sampled in 2014 (wet weight: upper figure, lipid based: lower figure). Concentrations below detection or quantification limits (LOD/Q) are substituted with half the limits. The abbreviations for the different lakes and organisms are: Mjøsa: Mj; Randsfjorden: Ra; Femunden: Fe; Tyrifjorden: Ty; Vansjø: Va, Zooplankton epilimnic: Zoo. e.; Zooplankton hypolimnic: Zoop. h.; Mysis: My; Vendace: Ve; Smelt: Sm; Brown trout: Tr; Perch: Pe.

5.3.3 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 9, Figure 8).

D5 was the predominant compound in both lakes. For Mjøsa, with more than 50 % of the cVMS concentrations > LOQ in 2010, 2012 and 2014, the percentage of each compound was as follows: D5: 93 - 96 %; D6: 3 - 5 %; D4: 0 - 4 %. For Randsfjorden in 2012, with more than 50 % of the concentrations of D5 and D6 quantified, the percentage of D5 was 96 %, i.e. approximately the same as in Mjøsa. Significant differences between years could be detected for D5 in trout from Mjøsa (ANOVA on log-transformed data, $p = 0.006$) and pairwise tests showed the mean concentration in 2013 to be significantly lower than in 2012 ($p = 0.001$). No statistical differences between years could be detected for D4 and D6 ($p > 0.05$).

Recent surveys show that D6 probably is used to a greater extent than before by the industry as a substitute for D4 that are classified as reproductive toxicant (Dudzina et al. 2014), but we are not aware of any sudden changes in the use of D5 that can explain the reduced concentrations of this compound in trout from Lake Mjøsa. Other possible causes may lie in the shift of analytical laboratories and challenges in analytical methods. Compared with analytical methods for other established POPs that have been perfected over time and with established certified reference material, there are extreme analytical challenges with cVMS. We are therefore somewhat cautious in the interpretation of trend data for cVMS.

Table 9. Yearly 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 or detection limits (LOQ/D) are substituted with half the limits. Orange colored cells indicates that 50 % of the measurements are above LOQ/D. Samples from 2010 and 2012 have been analyzed at the University of Stockholm, samples from 2013 and 2014 have been analyzed at NILU.

Year	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%
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%

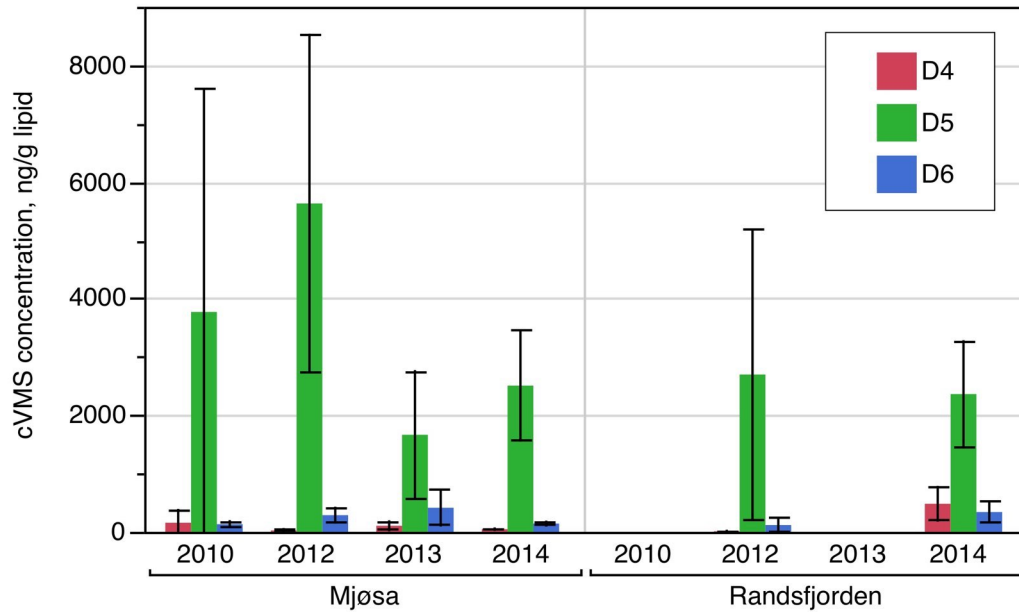


Figure 8. Yearly mean concentrations (with 95% confidence intervals) of cVMS (D4, D5 and D6) in muscle of brown trout from Mjøsa and Randsfjorden. Concentrations less than quantification or detection limit (<LOQ/D) is replaced by half the limits, and this makes especially the estimates for D4 and D6 uncertain. Samples from 2010 and 2012 have been analyzed at the University of Stockholm, samples from 2013 and 2014 have been analyzed at NILU.

5.3.4 Trophic magnification of D5 in Mjøsa and Randsfjorden

We have previously demonstrated trophic magnification of D5 in the pelagic food webs of Mjøsa and Randsfjorden (Borgå et al. 2012b; Borgå et al. 2013a and b; Fjeld et al. 2014). In Table 10 we show that for Mjøsa there are statistically significant regressions of D5 concentration on trophic levels for all four years (2010, 2012 - 2014), while we for Randsfjorden (2012 and 2014) only find the regression for 2012 to be significant.

Table 10. Linear regressions of D5 concentration (\log_e -transformed, lipid normalized) on trophic level in the pelagic food web of Mjøsa and Randsfjorden, calculated for each survey year. Trophic magnification factors (TMFs) with confidence interval (95% CI) are calculated from the regression coefficients (e^b). n: number of samples; a: regression constant term; R^2 : coefficient of determination; regression F-ratio: F; significance level: p. Concentrations under quantification or detection limits (<LOD/Q) are replaced by half the limits (approximately 10% of the material sampled in 2013 and 2014).

Lake	Year	n (w*)	a	b	TMF	TMF 95 % CI	R^2	F	p
Mjøsa	2010	23,1	5,21	0,83	2,28	1,22 - 4,29	0,33	7,73	0,013
	2012	33	4,009	1,139	3,12	2,28 - 4,29	0,64	54,03	<0,0001
	2013	33	3,481	0,681	1,98	1,25 - 3,12	0,23	9,26	0,0047
	2014	42	4,485	0,647	1,91	1,40 - 2,61	0,20	17,40	0,0002
Randsfjorden	2012	17	3,720	1,024	2,78	1,72 - 4,52	0,58	20,34	0,0004
	2014	30	6,051	0,334	1,40	0,90 - 2,17	0,08	2,42	0,13

*sum of weights associated to each sample (square root of number replicate analyses)

We wanted to combine these extensive data to make a statistical analysis of trophic magnification of D5 with greater generality. During the data compilation it became evident

that $\delta^{15}\text{N}$ in epilimnic zooplankton from Mjøsa (the primary consumers) varied between years, which has consequences for the calculation of the trophic level (TL) for the different consumers. The annual minimum ^{15}N values used in the base line adjustments ranged from 4.63 to 8.43 ‰.

The reason for this variability is uncertain, but it is known that there may be seasonal changes in $\delta^{15}\text{N}$ 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 $\delta^{15}\text{N}$ 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 $\delta^{15}\text{N}$ are not in an instantaneous equilibrium with the N-isotope ratio of primary consumers, but will have a significantly slower and muted response to seasonal or annual fluctuations in the primary consumer's $\delta^{15}\text{N}$.

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

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

This implies that we regard the annual variations in $\delta^{15}\text{N}$ 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 in the regression instead of the baseline corrected trophic level, only the regression's constant term. 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 $\delta^{15}\text{N}$ baseline.

In the further statistical analysis of the material we have excluded the results from Mjøsa for 2013, 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 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 Randsfjorden in 2010. 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:

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

We reduced this full model stepwise until we were left with a model containing only significant or a priori important effects. For every step was 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 trophic 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 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 of 45 % of the variance in D5 concentrations (log-transformed) and produced a common TMF of 2.15 (95 % CI: 1.80 - 2.56). It could not demonstrate any significant difference between mean D5 concentrations adjusted for differences in $\delta^{15}N$ between Mjøsa and Randsfjorden (2200 vs. 1700 ng/g lipid, $p = 0.8$), 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 are shown Figure 9, while the results from the statistical models are given in Appendix 2.

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.

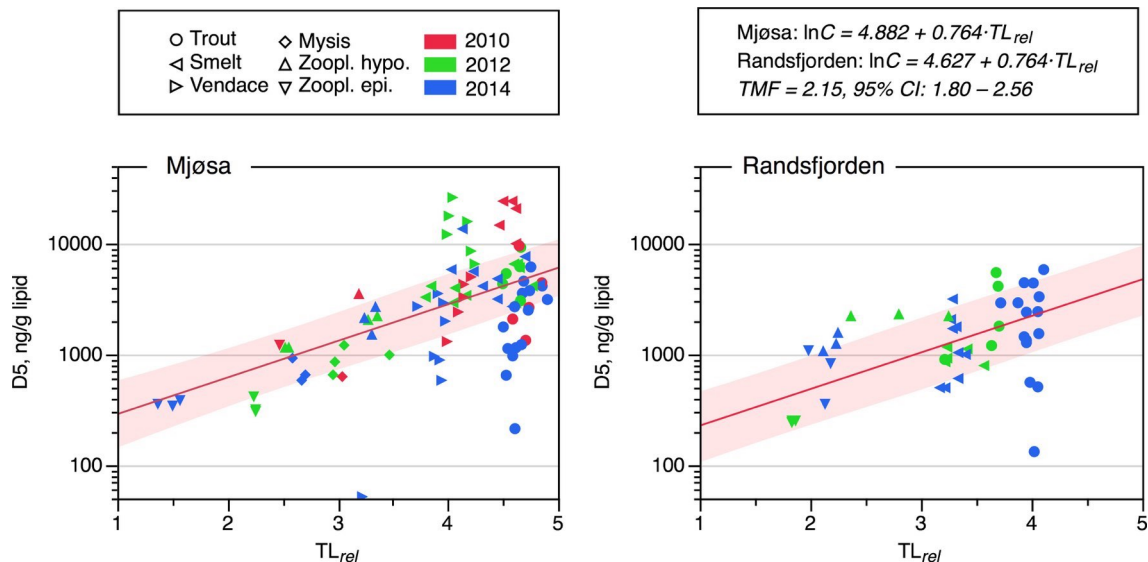


Figure 9. Relations between cVMS compound D5 (lipid normalized) and relative trophic level (TL_{rel}) in fish (muscle) and crustacean zooplankton, caught in Mjøsa and Randsfjorden in 2010, 2012 and 2014 ($n = 141$). Regressions of concentration (\log_e -transformed) on trophic levels, with 95 % confidence band, are shown. Regressions are from a "mixed linear model" (see text). Concentrations less than quantification or detection limits (<LOD/Q; 5 of 72 samples from 2014) have been replaced with half the limits.

5.3.5 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 compound D5, PCB-153, BDE-47 and relatively trophic level (TL_{rel} , based on $\delta^{15}N$) in Mjøsa and Randsfjorden 2014 (Figure 10). PCB 153 and BDE-47 are stable compounds, they are highly lipophilic and very bioaccumulative. We use them here as reference substances when examining the concentration of D5 in the pelagic food webs. We have used the log-transformed lipid normalized concentrations for estimations of correlation coefficients and trophic magnification factors (TMFs).

We have only used data on D5 from Mjøsa and Randsfjorden, as D5 concentrations in trout from Femunden mainly were less than LOQ. In addition, a detailed analysis of D4 and D6 would neither be meaningful because a large proportions of the analytical results showed concentrations less than LOQ. For three samples of zooplankton from Mjøsa and one zooplankton sample and one fish sample from Randsfjorden with D5 concentrations less than LOD, we have substituted the numbers with half the levels.

For D5 there was a significant and moderate correlation with trophic level (TL_{rel}), with a correlation coefficients (Pearson's r) of 0.55 and 0.28 for Mjøsa and Randsfjorden, and a lake specific TMF of 1.91 and 1.40, respectively.

PCB-153 and BDE-47 correlates well with trophic level, with correlation coefficients in the range of 0.83 - 0.98. They biomagnified in both lakes, and TMFs for these compounds, 2.98 to 9.06, were substantially greater than those of D5.

D5 concentration showed a moderate, but significant, correlation with PCB-153 and BDE-47 (r : 0.28 to 0.55). This is as expected from the preceding results: D5, PCB-153 and BDE-47 are all biomagnifying compounds and they will therefore also covariate. The extremely strong correlation between PCB-153 and BDE-47 ($r = 0.98$) shows that these two compounds behave very similarly in the food web.

7.2 Vedlegg 2: cVMS mixed model

D5 - mixed linear model, full model

Response Log(D5 Lip.)

Fit Model

(Weight(:weight cVMS),
Y(Log(:D5' Lip.)),
Effects(:Lokalitet, :TL', :Lokalitet * :TL', :År[:Lokalitet] & Random, :År * :TL'[:Lokalitet] & Random),
Personality("Standard Least Squares"),
Emphasis(Minimal Report),
Method(REML),
Set Alpha Level(0.05));

Summary of Fit

RSquare	0.482375
RSquare Adj	0.470957
Root Mean Square Error	0.846166
Mean of Response	7.599909
Observations (or Sum Wgts)	145.0711

AICc	BIC
381.216	400.959

Parameter Estimates

Term	Estimate	Std Error	DFDen	t Ratio	Prob> t	Lower 95%	Upper 95%
Intercept	4.8152516	0.576632	3.723	8.35	0.0015*	3.1661353	6.464368
Lokalitet[Mjøsa]	0.14525	0.165511	3.927	0.88	0.4306	-0.317672	0.6081721
TL'	0.7393291	0.155654	3.714	4.75	0.0107*	0.2937278	1.1849304
Lokalitet[Mjøsa]*(TL'-3.71265)	0.1238125	0.155654	3.714	0.80	0.4741	-0.321789	0.5694139

Random Effect Predictions

Term	BLUP	Std Error	DFDen	t Ratio	Prob> t	Lower 95%	Upper 95%
Lokalitet[Mjøsa]:År[2010]	0.1249111	0.209643	3.409	0.60	0.5886	-0.499231	0.7490535
Lokalitet[Mjøsa]:År[2012]	0.2215543	0.203284	3.24	1.09	0.3501	-0.399062	0.8421701
Lokalitet[Mjøsa]:År[2014]	-0.346465	0.201252	3.185	-1.72	0.1783	-0.966387	0.2734562
Lokalitet[Randsfjorden]:År[2012]	0.0619352	0.242733	2.758	0.26	0.8164	-0.750419	0.8742891
Lokalitet[Randsfjorden]:År[2014]	-0.061935	0.242733	2.758	-0.26	0.8164	-0.874289	0.7504187
Lokalitet[Mjøsa]:År[2010]*(TL'-3.71265)	-0.004493	0.194888	2.118	-0.02	0.9836	-0.799767	0.7907801
Lokalitet[Mjøsa]:År[2012]*(TL'-3.71265)	0.1828918	0.187879	2.113	0.97	0.4282	-0.585311	0.9510942
Lokalitet[Mjøsa]:År[2014]*(TL'-3.71265)	-0.178398	0.18262	2.109	-0.98	0.4271	-0.926557	0.5697601
Lokalitet[Randsfjorden]:År[2012]*(TL'-3.71265)	0.1515202	0.213804	1.659	0.71	0.5647	-0.97573	1.27877
Lokalitet[Randsfjorden]:År[2014]*(TL'-3.71265)	-0.15152	0.213804	1.659	-0.71	0.5647	-1.27877	0.9757296

REML Variance Component Estimates

Random Effect	Var Ratio	Var Component	Std Error	95% Lower	95% Upper	Pct of Total
År[Lokalitet]	0.1217923	0.087203	0.0892549	-0.087733	0.2621393	10.081
År*TL'[Lokalitet]	0.0863877	0.0618534	0.0817358	-0.098346	0.2220526	7.150
Residual		0.7159975	0.0886216	0.5697164	0.9271848	82.769
Total		0.8650539				100.000

-2 LogLikelihood =
366.36747679

Covariance Matrix of Variance Component Estimates

Random Effect	År[Lokalitet]	År*TL'[Lokalitet]	Residual
År[Lokalitet]	0.0079664	0.0001287	-0.000168
År*TL'[Lokalitet]	0.0001287	0.0066807	-0.0004
Residual	-0.000168	-0.0004	0.0078538

Fixed Effect Tests

Source	Nparm	DF	DFDen	F Ratio	Prob > F
Lokalitet	1	1	3.927	0.7702	0.4306
TL'	1	1	3.714	22.5607	0.0107*
Lokalitet*TL'	1	1	3.714	0.6327	0.4741

Effect Details**Lokalitet****Least Squares Means Table**

Level	Least Sq Mean	Std Error	Lower 95%	Upper 95%
Mjøsa	2220.2460	0.19435670	1214.6847	4058.2484
Randsfjorden	1660.4987	0.26795802	813.5850	3389.0204

* Std Errors are on transformed Y's

År[Lokalitet]**Least Squares Means Table**

Level	Least Sq Mean	Std Error	Lower 95%	Upper 95%
[Mjøsa]2010	2515.6446	0.16860464	1790.8116	3533.8546
[Mjøsa]2012	2770.9003	0.13808155	2104.7313	3647.9186
[Mjøsa]2014	1570.1209	0.12721838	1219.5033	2021.5441
[Randsfjorden]2012	1766.5936	0.23617932	1091.9098	2858.1599
[Randsfjorden]2014	1560.7755	0.15955233	1138.0837	2140.4579

* Std Errors are on transformed Y's

D5 - mixed linear model, reduced model

Response Log(D5 Lip.)

Fit Model(

```
Weight( :weight cVMS ),
Y( Log( :D5 Lip. ) ),
Effects( :Lokalitet, :TL', :År[:Lokalitet] & Random ),
Keep dialog open( 1 ),
Personality( "Standard Least Squares" ),
Emphasis( Minimal Report ),
Method( REML ),
Set Alpha Level( 0.05 );
```

Summary of Fit

RSquare	0.451029
RSquare Adj	0.443014
Root Mean Square Error	0.862682
Mean of Response	7.599909
Observations (or Sum Wgts)	145.0711

AICc	BIC
377.6429	391.9034

Parameter Estimates

Term	Estimate	Std Error	DFDen	t Ratio	Prob> t	Lower 95%	Upper 95%
Intercept	4.7543393	0.358715	58.33	13.25	<.0001*	4.036378	5.4723006
Lokalitet[Mjøsa]	0.1272911	0.164561	3.738	0.77	0.4852	-0.342512	0.5970943
TL'	0.7639476	0.089926	135.9	8.50	<.0001*	0.5861131	0.941782

Random Effect Predictions

Term	BLUP	Std Error	DFDen	t Ratio	Prob> t	Lower 95%	Upper 95%
Lokalitet[Mjøsa]:År[2010]	0.1412323	0.214182	3.514	0.66	0.5503	-0.48732	0.7697848
Lokalitet[Mjøsa]:År[2012]	0.2349025	0.209422	3.37	1.12	0.3355	-0.392007	0.8618116
Lokalitet[Mjøsa]:År[2014]	-0.376135	0.206753	3.289	-1.82	0.1583	-1.002542	0.2502726
Lokalitet[Randsfjorden]:År[2012]	0.0280387	0.244542	2.824	0.11	0.9164	-0.778304	0.8343812
Lokalitet[Randsfjorden]:År[2014]	-0.028039	0.244542	2.824	-0.11	0.9164	-0.834381	0.7783039

REML Variance Component Estimates

Random Effect	Var Ratio	Var Component	Std Error	95% Lower	95% Upper	Pct of Total
År[Lokalitet]	0.1263752	0.0940511	0.0937417	-0.089679	0.2777814	11.220
Residual		0.7442211	0.09081	0.5939842	0.959984	88.780
Total		0.8382722				100.000

-2 LogLikelihood =
367.19515678

Covariance Matrix of Variance Component Estimates

Random Effect	År[Lokalitet]	Residual
År[Lokalitet]	0.0087875	-0.000158
Residual	-0.000158	0.0082465

Fixed Effect Tests

Source	Nparm	DF	DFDen	F Ratio	Prob > F
Lokalitet	1	1	3.738	0.5983	0.4852
TL'	1	1	135.9	72.1706	<.0001*

Effect Details

Lokalitet

Least Squares Means Table

Level	Least Sq Mean	Std Error	Lower 95%	Upper 95%
-------	---------------	-----------	-----------	-----------

Level	Least Sq Mean	Std Error	Lower 95%	Upper 95%
Mjøsa	2248.2374	0.19968149	1219.1464	4145.9923
Randsfjorden	1742.9243	0.25779377	845.2975	3593.7465

* Std Errors are on transformed Y's

År[Lokalitet]

Least Squares Means Table

Level	Least Sq Mean	Std Error	Lower 95%	Upper 95%
[Mjøsa]2010	2589.2774	0.16549456	1858.3775	3607.6402
[Mjøsa]2012	2843.5379	0.14064123	2149.5624	3761.5598
[Mjøsa]2014	1543.4371	0.12808891	1197.0253	1990.0982
[Randsfjorden]2012	1792.4851	0.19985724	1201.8486	2673.3839
[Randsfjorden]2014	1694.7338	0.15292644	1251.8694	2294.2668

* Std Errors are on transformed Y's

7.3 Vedlegg 3: Data

Alle konsentrasjoner er i ng/g våtvekt.

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). For siloksaner det markert hvorvidt konsentrasjonene var under kvantifikasjonsgrensene (LOQ) eller deteksjonsgrensene (LOD).

Lokalitet	Art	Sample-ID	n. individer i blandprøve	Lengde, cm	Vekt, g	SD Lengde	SD Vekt	$\delta^{13}C, \text{‰}$	$\delta^{15}N, \text{‰}$	Fett %	Veystype	Hg	PeCB	HCB	PCB-18	PCB-28	PCB-31	PCB-33	PCB-37	Sum-TriCB	PCB-47	PCB-52	PCB-66	PCB-74	Sum-TeiCB	PCB-99	
1 Randsfjorden	Ørret	RØ-1-M-14	1	44,8	900	-	-	-29,74	13,44	1,89	Muskel	909	0,03	0,52	0,02	0,08	0,05	0,01	<-0,01	6,79	0,08	0,22	0,24	0,13	0,68	0,36	
2 Randsfjorden	Ørret	RØ-2-M-14	1	46,4	1250	-	-	-28,19	13,18	0,87	Muskel	760	0,01	0,21	<-0,01	0,03	0,02	<-0,01	<-0,01	2,61	0,07	0,08	0,04	0,04	0,22	0,11	
3 Randsfjorden	Ørret	RØ-3-M-14	1	42,5	810	-	-	-28,74	13,44	0,76	Muskel	641	0,01	0,21	<-0,01	0,03	0,02	<-0,01	<-0,01	2,51	0,02	0,07	0,08	0,04	0,21	0,12	
4 Randsfjorden	Ørret	RØ-4-M-14	1	49,5	1240	-	-	-29,34	13,55	1,27	Muskel	938	0,02	0,24	<-0,01	0,03	0,02	<-0,01	<-0,01	2,76	0,03	0,08	0,08	0,04	0,24	0,13	
5 Randsfjorden	Ørret	RØ-5-M-14	1	49,7	1615	-	-	-30,76	13,83	3,54	Muskel	1024	0,04	0,74	0,03	0,1	0,06	0,02	<-0,01	9,43	0,08	0,23	0,12	0,12	0,67	0,34	
6 Randsfjorden	Ørret	RØ-6-M-14	1	49,8	1270	-	-	-28,22	13,37	0,21	Muskel	866	<-0,01	0,14	<-0,01	0,04	0,02	<-0,01	<-0,01	0,07	0,06	0,15	0,26	0,14	0,6	0,34	
7 Randsfjorden	Ørret	RØ-7-M-14	1	52,6	1895	-	-	-29,27	13,37	1,29	Muskel	739	0,02	0,32	0,01	0,04	0,03	<-0,01	<-0,01	4,05	0,09	0,05	0,05	0,27	0,13	0,13	
8 Randsfjorden	Ørret	RØ-8-M-14	1	53,4	1510	-	-	-28,34	13,97	0,22	Muskel	825	<-0,01	0,18	<-0,01	0,07	0,03	<-0,01	<-0,01	0,13	0,09	0,23	0,36	0,19	0,99	0,54	
9 Randsfjorden	Ørret	RØ-9-M-14	1	80,5	6200	-	-	-29,31	13,68	2,19	Muskel	2836	0,02	0,33	0,01	0,04	0,03	<-0,01	<-0,01	0,11	0,18	0,13	0,13	0,57	0,39	0,39	
10 Randsfjorden	Ørret	RØ-10-M-14	1	60,2	2105	-	-	-29,19	13,65	0,98	Muskel	1549	0,02	0,67	0,02	0,15	0,09	0,01	<-0,01	0,33	0,14	0,41	0,51	0,26	1,51	0,59	
11 Randsfjorden	Ørret	RØ-11-M-14	1	53,3	1630	-	-	-29,42	13,79	1,49	Muskel	805	0,02	0,45	0,01	0,06	0,03	<-0,01	<-0,01	0,14	0,05	0,14	0,17	0,09	0,52	0,23	
12 Randsfjorden	Ørret	RØ-12-M-14	1	53,2	1790	-	-	-30,76	13,79	3,83	Muskel	957	0,04	0,67	0,02	0,1	0,06	0,01	<-0,01	0,25	0,08	0,25	0,27	0,13	0,84	0,36	
13 Randsfjorden	Ørret	RØ-13-M-14	1	30,7	405	-	-	-28,07	12,65	0,23	Muskel	331	<-0,01	0,14	<-0,01	0,01	<-0,01	<-0,01	<-0,01	<-0,01	0,04	0,04	0,05	0,03	0,14	0,07	
14 Randsfjorden	Ørret	RØ-14-M-14	1	53,7	1620	-	-	-28,66	13,44	0,75	Muskel	770	0,01	0,24	<-0,01	0,03	0,02	<-0,01	<-0,01	0,08	0,07	0,09	0,05	0,27	0,12	0,12	
15 Randsfjorden	Ørret	RØ-15-M-14	1	50,3	1615	-	-	-30,69	13,82	3,46	Muskel	491	0,05	0,66	0,02	0,07	0,04	0,01	<-0,01	0,19	0,06	0,15	0,16	0,09	0,54	0,23	
16 Mjessa	Krøkle	MK-2-M-14	9	12,8	9,1	0,3	0,7	-29,28	14,02	0,52	Muskel	152	<-0,01	0,15	<-0,01	0,02	0,01	<-0,01	<-0,01	0,06	0,04	0,07	0,09	0,05	0,28	0,25	
17 Mjessa	Krøkle	MK-1-M-14	10	12,8	10,7	0,21	0,8	-28,61	14,36	0,72	Muskel	143	<-0,01	0,15	<-0,01	0,02	0,01	<-0,01	<-0,01	0,06	0,03	0,07	0,08	0,04	0,25	0,16	
18 Mjessa	Krøkle	MK-3-M-14	7	13	11,7	0,2	0,6	-29,14	13,72	0,87	Muskel	161	0,01	0,23	0,01	0,02	0,02	<-0,01	<-0,01	0,08	0,04	0,08	0,09	0,04	0,3	0,17	
19 Mjessa	Krøkle	MK-4-M-14	7	13,9	16	0,29	0,4	-28,32	15,14	1,11	Muskel	120	0,01	0,23	<-0,01	0,02	0,01	<-0,01	<-0,01	0,07	0,03	0,07	0,06	0,03	0,23	0,13	
20 Mjessa	Krøkle	MK-5-M-14	4	15,4	21,6	0,12	0,2	-28,1	15,12	1,11	Muskel	153	0,01	0,21	<-0,01	0,02	0,01	<-0,01	<-0,01	0,06	0,02	0,05	0,04	0,01	0,15	0,06	
21 Mjessa	Krøkle	MK-6-M-14	1	20,5	57,4	0,17	0,5	-27,99	16,44	1,1	Muskel	394	0,01	0,25	0,01	0,02	0,01	<-0,01	<-0,01	0,06	0,03	0,07	0,07	0,02	0,22	0,1	
22 Mjessa	Krøkle	MK-7-M-14	1	19,7	45,2	0,47	1	-28,22	15,95	1,9	Muskel	313	0,02	0,37	0,02	0,03	0,02	<-0,01	<-0,01	4,89	0,04	0,09	0,06	0,02	0,22	0,11	
23 Mjessa	Krøkle	MK-8-M-14	4	14,8	19,8	0,39	0,5	-28,24	15,58	1,46	Muskel	120	0,02	0,42	0,03	0,05	0,03	0,01	<-0,01	5,76	0,05	0,16	0,1	0,05	0,37	0,19	
24 Mjessa	Krøkle	MK-9-M-14	4	12,9	11,6	0,3	0,7	-28,79	14,64	0,93	Muskel	137	0,01	0,23	0,02	0,03	0,02	<-0,01	<-0,01	3,65	0,04	0,08	0,08	0,04	0,25	0,16	
25 Mjessa	Lågsålid	ML-1-M-14	1	20,5	80	-	-	-31,16	13,2	4,65	Muskel	96	0,03	0,64	0,04	0,09	0,08	0,03	0,01	0,34	0,07	0,22	0,15	0,09	0,65	0,26	
26 Mjessa	Lågsålid	ML-2-M-14	1	21,3	90	-	-	-27,54	10,95	1,9	Muskel	90	0,01	0,16	0,02	0,05	0,05	0,02	<-0,01	0,2	0,03	0,09	0,08	0,04	0,29	0,09	
27 Mjessa	Lågsålid	ML-3-M-14	1	19,4	67	-	-	-30,91	13,55	4,26	Muskel	105	0,03	0,59	0,03	0,08	0,07	0,02	<-0,01	0,27	0,08	0,22	0,19	0,12	0,73	0,32	
28 Mjessa	Lågsålid	ML-4-M-14	1	20,5	70	-	-	-29,47	13,3	1,93	Muskel	170	0,01	0,19	0,01	0,03	0,02	<-0,01	<-0,01	0,09	0,03	0,07	0,09	0,05	0,28	0,26	
29 Mjessa	Lågsålid	ML-5-M-14	1	23,3	90	-	-	-29,47	13,42	2,3	Muskel	200	0,01	0,25	0,01	0,03	0,02	<-0,01	<-0,01	0,01	0,02	0,06	0,06	0,04	0,22	0,19	
30 Mjessa	Lågsålid	ML-6-M-14	1	21,5	78	-	-	-30,05	13,94	2,7	Muskel	179	0,02	0,35	0,02	0,06	0,05	0,01	<-0,01	0,2	0,06	0,17	0,19	0,11	0,62	0,46	
31 Mjessa	Lågsålid	ML-7-M-14	1	19,5	59	-	-	-30,44	12,65	4	Muskel	73	0,03	0,45	0,02	0,05	0,04	0,01	<-0,01	<-0,01	0,17	0,04	0,13	0,09	0,06	0,39	0,15
32 Mjessa	Lågsålid	ML-8-M-14	1	20,3	70	-	-	-31,14	13,5	3,84	Muskel	84	0,03	0,5	0,02	0,06	0,05	0,01	<-0,01	<-0,01	0,21	0,06	0,2	0,15	0,09	0,61	0,28
33 Mjessa	Lågsålid	ML-9-M-14	1	21,1	68	-	-	-26,66	13,36	1,94	Muskel	125	0,01	0,21	0,01	0,02	0,02	<-0,01	<-0,01	0,08	0,02	0,05	0,04	0,03	0,16	0,12	
34 Mjessa	Zoopl. epi.	ZE-M-1-14	-	-	-	-	-	-26,78	6,3	0,28	Heikropp	4	<-0,01	0,02	<-0,01	0,01	<-0,01	<-0,01	<-0,01	0,03	0,01	<-0,01	<-0,01	0,01	0,06	0,01	
35 Mjessa	Zoopl. epi.	ZE-M-2-14	-	-	-	-	-	-25,93	5,36	0,26	Heikropp	6	<-0,01	0,02	<-0,01	0,01	<-0,01	<-0,01	<-0,01	0,03	0,01	<-0,01	<-0,01	<-0,01	0,02	<-0,01	
36 Mjessa	Zoopl. epi.	ZE-M-3-14	-	-	-	-	-	-25,93	5,36	0,26	Heikropp	6	<-0,01	0,02	<-0,01	0,01	<-0,01	<-0,01	<-0,01	0,03	0,01	<-0,01	<-0,01	<-0,01	0,02	<-0,01	
37 Mjessa	Zoopl. hyp.	ZH-M-1-14	-	-	-	-	-	-33,65	11,23	4,21	Heikropp	6	0,94	1,03	0,03	0,05	0,03	0,02	<-0,01	0,18	0,21	0,08	0,27	0,13	1,02	0,12	
38 Mjessa	Zoopl. hyp.	ZH-M-2-14	-	-	-	-	-	-32	11,39	2,87	Heikropp	7	0,04	0,86	0,03	0,03	0,02	0,01	<-0,01	0,13	0,05	0,11	0,07	0,03	0,34	0,1	
39 Mjessa	Zoopl. hyp.	ZH-M-3-14	-	-	-	-	-	-34,32	11,03	3,83	Heikropp	6	0,04	0,76	0,02	0,03	0,02	<-0,01	<-0,01	0,11	0,04	0,09	0,05	0,02	0,26	0,09	
40 Mjessa	Mysis	MY-M-1-14	-	-	-	-	-	-30,95	9,22	1,36	Heikropp	18	0,01	0,05	<-0,01	0,02	0,01	<-0,01	<-0,01	0,05	0,02	0,02	0,02	0,01	0,09	0,04	
41 Mjessa	Mysis	MY-M-2-14	-	-	-	-	-	-29,31	8,8	1,48	Heikropp	18	0,01	0,04	<-0,01	0,01	0,01	<-0,01	<-0,01	0,05	0,01	0,02	0,02	0,01	0,08	0,04	
42 Mjessa	Mysis	MY-M-3-14	-	-	-	-	-	-29,05	9,08	1,47	Heikropp	19	0,01	0,04	<-0,01	0,01	0,01	<-0,01	<-0,01	0,05	0,01	0,02	0,04	0,01	0,08	0,04	
43 Vansjø	Abbor	VA-15-M-14	5	14,3	35,4	0,48	3,5	-29,56	13,74	0,44	Muskel	108	<-0,01	0,05	<-0,01	<-0,01	<-0,01	<-0,01	<-0,01	0,02	0,01	0,03	0,02	0,11	0,06	0,06	
44 Vansjø	Abbor	VA-6-10-M-14	5	15	38,8	0,85	5,6	-29,47	14,43	0,31	Muskel	216	<-0,01	0,07	<-0,01	0,03	0,02	<-0,01	<-0,01	0,23	0,09	0,22	0,35	0,45	2,24	2,19	
45 Vansjø	Abbor	VA-11-15-M-14	5	21,4	154,2	0,92	40,5	-29,17	15,29	0,26	Muskel	340	<-0,01	0,05	<-0,01	0,08	0,06	0,01	<-0,01	0,39	0,22	0,55	0,73	0,45	2,24	2,19	
46 Vansjø	Abbor	VA-15-20-M-14	5	31,5	458	2,94	75	-28,87	15,96	0,18	Muskel	709	<-0,01	0,04	<-0,01	0,11	0,08	0,02	<-0,01	0,33	0,14	0,34	0,44	0,24	1,34	0,94	
47 Vansjø	Abbor	VA-21-25-M-14	5	25,9	286,8	1,73	77,4	-29,02	15,62	0,13	Muskel	556	<-0,01	0,03	<-0,01	0,06	0,05	<-0,01	<-0,01	0,35	0,01	0,02	0,02	0,01	0,06	0,03	
48 Mjessa	Ørret	MØ-1-M-14	1	76	5450	-	-	-30,36	15,7	7,2	Muskel	536	0,08	1,42	0,07	0,26	0,19	0,04	<-0,01	0,73	0,27	0,69	0,86	0,48	2,66	1,75	
49 Mjessa	Ørret	MØ-2-M-14	1	82	6275	-	-	-30,65	16,16	7,06	Muskel	860	0,07	1,47	0,08	0,3	0,21	0,04	<-0,01	3,16	0,35	0,97	0,97	0,59	2,91	2,76	
50 Mjessa																											

	PCB-101	PCB-105	PCB-114	PCB-118	PCB-122	PCB-123	Sum-PentCB	PCB-128	PCB-138	PCB-141	PCB-149	PCB-153	PCB-156	PCB-157	PCB-167	Sum-HexCB	PCB-170	PCB-180	PCB-183	PCB-187	PCB-189	Sum-HepCB	PCB-194	PCB-206	PCB-209	ΣPCB	ΣPCB7	ΣPCB
1	0.79	0.31	0.03	0.82	<0.01	0.02	2.34	0.39	2.25	0.38	0.93	3.21	0.16	0.03	0.1	7.46	0.43	1.49	0.44	1.38	0.02	3.76	0.3	0.06	0.04	8.57	21.4	
2	0.24	0.1	<0.01	0.26	<0.01	<0.01	0.71	0.12	0.71	0.12	0.29	1.01	0.05	<0.01	0.03	2.34	0.16	0.52	0.11	0.31	<0.01	1.06	0.09	0.02	0.01	2.8	7.06	
3	0.25	0.1	0.01	0.27	<0.01	0.01	0.76	0.13	0.76	0.12	0.31	1.07	0.05	<0.01	0.03	2.49	0.17	0.52	0.11	0.35	<0.01	1.16	0.08	0.03	0.02	2.96	7.26	
4	0.29	0.11	0.01	0.3	<0.01	<0.01	0.85	0.14	0.8	0.13	0.34	1.12	0.06	<0.01	0.04	2.65	0.14	0.52	0.13	0.38	<0.01	1.17	0.1	0.02	0.01	3.14	7.8	
5	0.74	0.3	0.03	0.78	<0.01	0.02	2.2	0.36	2.12	0.35	0.89	2.96	0.16	0.03	0.1	6.96	0.42	1.41	0.33	0.98	0.02	3.17	0.27	0.07	0.04	8.35	22.8	
6	0.77	0.31	0.03	0.81	0.06	0.02	2.35	0.38	2.18	0.34	0.84	3.2	0.16	0.03	0.09	7.21	0.52	1.44	0.31	0.84	0.02	3.13	0.15	0.05	0.03	8.58	13.6	
7	0.3	0.11	0.01	0.3	<0.01	<0.01	0.86	0.14	0.79	0.13	0.35	1.12	0.06	<0.01	0.04	2.64	0.17	0.51	0.11	0.31	<0.01	1.1	0.09	0.02	0.01	3.15	9.05	
8	1.18	0.46	0.05	1.24	0.09	0.02	3.58	0.56	3.33	0.54	1.29	4.65	0.23	0.04	0.14	10.8	0.81	2.16	0.37	1.07	0.03	4.44	0.27	0.1	0.04	12.8	20.3	
9	0.93	0.3	0.04	0.94	<0.01	0.01	2.6	0.47	3.12	0.43	0.69	4.49	0.22	0.03	0.12	9.57	0.87	2.49	0.42	1.06	0.03	4.17	0.4	0.13	0.07	12.1	18.3	
10	1.41	0.53	0.05	1.37	<0.01	0.03	3.97	0.61	3.67	0.62	1.52	5.22	0.26	0.04	0.16	12.1	0.9	2.5	0.47	1.26	0.04	5.17	0.36	0.12	0.06	14.7	23.6	
11	0.5	0.2	0.02	0.53	<0.01	0.01	1.49	0.24	1.46	0.24	0.63	2.08	0.1	0.02	0.06	4.83	0.36	0.96	0.17	0.48	0.01	2	0.14	0.05	0.03	5.74	9.2	
12	0.8	0.3	<0.01	0.79	<0.01	0.02	2.29	0.35	2.14	0.37	0.93	2.99	0.15	0.03	0.09	7.05	0.49	1.41	0.26	0.72	0.02	2.9	0.22	0.07	0.03	8.47	13.7	
13	0.15	0.06	<0.01	0.15	0.01	<0.01	0.45	0.07	0.46	0.07	0.19	0.65	0.03	<0.01	0.02	1.5	0.12	0.35	0.06	0.2	<0.01	0.73	0.05	0.02	<0.01	1.81	2.92	
14	0.26	0.1	<0.01	0.26	<0.01	<0.01	0.75	0.12	0.74	0.12	0.3	0.98	0.05	<0.01	0.03	2.35	0.16	0.47	0.09	0.27	<0.01	0.89	0.07	0.02	0.01	2.81	4.54	
15	0.5	0.18	0.02	0.48	<0.01	<0.01	1.43	0.22	1.38	0.22	0.61	1.82	0.09	0.02	0.06	4.42	0.26	0.88	0.17	0.56	0.01	1.88	0.15	0.04	0.02	5.29	8.66	
16	0.38	0.2	0.02	0.5	<0.01	<0.01	1.36	0.23	1.22	0.2	0.54	1.61	0.09	0.02	0.05	3.96	0.15	0.55	0.14	0.43	<0.01	1.27	0.06	0.01	<0.01	4.35	7	
17	0.31	0.12	0.01	0.31	<0.01	<0.01	0.92	0.14	0.78	0.14	0.42	1.07	0.05	<0.01	0.03	2.64	0.11	0.39	0.09	0.27	<0.01	0.86	0.04	<0.01	<0.01	2.94	4.75	
18	0.37	0.14	0.01	0.35	<0.01	<0.01	1.05	0.16	0.88	0.15	0.46	1.1	0.06	0.01	0.04	2.85	0.11	0.4	0.1	0.29	<0.01	0.9	0.05	<0.01	<0.01	3.21	5.21	
19	0.27	0.09	<0.01	0.23	<0.01	<0.01	0.74	0.11	0.61	0.1	0.34	0.78	0.04	<0.01	0.02	2.01	0.07	0.29	0.07	0.21	<0.01	0.64	0.03	<0.01	<0.01	2.28	3.7	
20	0.18	0.05	<0.01	0.14	<0.01	0.03	0.43	0.06	0.35	0.06	0.23	0.5	0.02	<0.01	0.01	1.25	0.06	0.19	0.04	0.13	<0.01	0.42	0.02	<0.01	<0.01	1.43	2.31	
21	0.32	0.14	0.01	0.32	<0.01	<0.01	0.89	0.17	0.91	0.18	0.5	1.43	0.08	0.01	0.05	3.33	0.17	0.61	0.12	0.38	<0.01	1.29	0.07	0.02	<0.01	3.68	5.88	
22	0.34	0.11	0.01	0.27	<0.01	<0.01	0.85	0.15	0.75	0.15	0.45	1.16	0.06	0.01	0.04	2.77	0.13	0.48	0.12	0.34	<0.01	1.07	0.07	0.01	<0.01	3.13	9.87	
23	0.4	0.13	0.01	0.33	<0.01	<0.01	1.06	0.11	0.66	0.12	0.4	0.93	0.05	<0.01	0.03	2.3	0.08	0.31	0.1	0.27	<0.01	0.76	0.04	<0.01	<0.01	2.63	10.3	
24	0.35	0.12	0.01	0.3	<0.01	<0.01	0.95	0.13	0.74	0.13	0.42	1	0.05	0.01	0.03	2.52	0.09	0.34	0.09	0.26	<0.01	0.79	0.04	<0.01	<0.01	2.84	8.17	
25	0.72	0.18	0.01	0.66	<0.01	<0.01	1.66	0.21	1.16	0.2	0.66	1.46	0.08	0.01	0.04	3.85	0.15	0.55	0.13	0.35	<0.01	1.17	0.08	0.02	<0.01	4.88	7.76	
26	0.22	0.07	<0.01	0.17	<0.01	<0.01	0.56	0.06	0.31	0.06	0.14	0.34	0.02	<0.01	<0.01	0.95	0.04	0.12	0.03	0.07	<0.01	0.26	0.02	<0.01	<0.01	1.31	2.26	
27	0.87	0.22	0.02	0.89	<0.01	0.01	2.03	0.27	1.49	0.27	0.89	1.87	0.11	0.02	0.06	4.95	0.21	0.71	0.15	0.41	<0.01	1.5	0.09	0.02	<0.01	5.84	9.59	
28	0.65	0.2	0.02	0.55	<0.01	<0.01	1.69	0.29	1.61	0.26	0.66	2.08	0.12	0.02	0.07	5.1	0.27	0.83	0.17	0.47	0.01	1.73	0.03	0.01	0.01	5.81	9.03	
29	0.46	0.14	0.02	0.41	<0.01	<0.01	1.21	0.24	1.37	0.22	0.44	1.87	0.11	0.02	0.06	4.36	0.27	0.96	0.19	0.47	0.01	1.9	0.17	0.05	0.02	5.15	8.03	
30	1.16	0.36	0.03	0.97	<0.01	0.02	3	0.46	2.56	0.4	1.04	3.27	0.19	0.03	0.11	8.07	0.42	1.26	0.26	0.72	0.02	2.67	0.16	0.04	0.01	9.45	14.8	
31	0.42	0.09	<0.01	0.26	<0.01	<0.01	0.94	0.12	0.7	0.12	0.44	0.88	0.04	<0.01	0.03	2.33	0.1	0.34	0.07	0.2	<0.01	0.72	0.05	0.01	<0.01	2.77	4.59	
32	0.72	0.18	0.02	0.49	<0.01	0.01	1.73	0.22	1.27	0.22	0.65	1.63	0.09	0.02	0.05	4.14	0.18	0.6	0.13	0.35	<0.01	1.27	0.08	0.02	<0.01	5	8.05	
33	0.28	0.09	<0.01	0.25	<0.01	<0.01	0.75	0.14	0.83	0.13	0.29	1.13	0.07	0.01	0.04	2.64	0.14	0.59	0.12	0.28	<0.01	1.13	0.12	0.03	0.01	3.14	4.92	
34	0.01	<0.01	<0.01	0.02	<0.01	<0.01	0.05	<0.01	0.02	<0.01	0.02	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	0.09	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	0.08	0.22	
35	0.01	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	0.03	<0.01	0.02	<0.01	0.01	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	0.07	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.04	0.13	
36	0.01	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	0.03	<0.01	0.02	<0.01	0.01	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	0.07	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.04	0.14	
37	0.31	0.06	<0.01	0.18	<0.01	<0.01	0.68	0.09	0.51	0.09	0.4	0.71	0.04	<0.01	0.02	1.86	0.08	0.26	0.06	0.18	<0.01	0.57	0.03	<0.01	<0.01	2.09	4.32	
38	0.27	0.06	<0.01	0.15	<0.01	<0.01	0.58	0.07	0.46	0.08	0.34	0.61	0.03	<0.01	0.02	1.61	0.07	0.22	0.08	0.23	<0.01	0.6	0.02	<0.01	<0.01	1.85	3.27	
39	0.24	0.05	<0.01	0.14	<0.01	<0.01	0.52	0.07	0.4	0.07	0.29	0.55	0.03	<0.01	0.02	1.42	0.07	0.2	0.06	0.18	<0.01	0.51	0.02	<0.01	<0.01	1.65	2.82	
40	0.08	0.03	<0.01	0.07	<0.01	<0.01	0.23	0.15	0.02	0.14	0.24	0.21	<0.01	<0.01	<0.01	0.59	<0.01	0.05	0.02	0.08	<0.01	0.16	<0.01	<0.01	<0.01	0.64	1.09	
41	0.07	0.02	<0.01	0.07	<0.01	<0.01	0.21	0.02	0.14	0.02	0.12	0.24	<0.01	<0.01	<0.01	0.52	0.01	0.05	0.02	0.08	<0.01	0.16	<0.01	<0.01	<0.01	0.57	0.98	
42	0.07	0.02	<0.01	0.07	<0.01	<0.01	0.21	0.02	0.14	0.02	0.12	0.24	<0.01	<0.01	<0.01	0.54	0.01	0.05	0.02	0.08	<0.01	0.16	<0.01	<0.01	<0.01	0.58	1	
43	0.11	0.04	<0.01	0.1	<0.01	<0.01	0.31	0.04	0.22	0.03	0.09	0.31	0.02	<0.01	0.02	1.66	0.04	0.13	0.02	0.08	<0.01	0.27	0.02	<0.01	<0.01	0.88	1.44	
44	0.16	0.06	<0.01	0.16	<0.01	<0.01	0.48	0.07	0.4	0.06	0.18	0.58	0.03	<0.01	0.02	1.35	0.07	0.24	0.05	0.16	<0.01	0.52	0.03	<0.01	<0.01	1.57	2.51	
45	0.1	0.04	<0.01	0.1	<0.01	<0.01	0.31	0.04	0.24	0.04	0.1	0.33	0.02	<0.01	0.01	0.77	0.05	0.15	0.03	0.08	<0.01	0.31	0.02	<0.01	<0.01	1.35	2.19	
46	0.13	0.05	<0.01	0.14	<0.01	<0.01	0.41	0.06	0.34	0.06</																		

TBA	BDE-17	BDE-28	BDE-47	BDE-49	BDE-66	BDE-71	BDE-77	BDE-85	BDE-99	BDE-100	BDE-119	BDE-126	BDE-138	BDE-153	BDE-154	BDE-156	BDE-183	BDE-184	BDE-191	BDE-196	BDE-197	BDE-202	BDE-206	BDE-207	BDE-209	SCCP	MCCP	DA, ng/g
1	<0.01	<0.01	1.58	0.07	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	0.4	0.38	<0.01	<0.01	<0.01	0.16	0.3	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	1	<1	< LOD (6.4)	
2	<0.01	<0.01	0.53	0.03	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.11	0.15	<0.01	<0.01	<0.01	0.05	0.09	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	2.2	<1.4	< LOD (6.4)	
3	<0.01	<0.01	0.49	0.02	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.11	0.14	0.01	<0.01	<0.01	0.05	0.08	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	1.4	<1.4	< LOD (6.4)	
4	<0.01	<0.01	0.57	0.03	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.15	0.13	<0.01	<0.01	<0.01	0.05	0.1	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	2.2	<2.2	< LOD (6.4)	
5	<0.01	<0.01	1.66	0.09	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	0.38	0.41	0.03	<0.01	<0.01	0.16	0.29	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	1.1	1.6	0.7	
6	<0.01	<0.01	1.61	0.05	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	0.4	0.48	0.04	<0.01	<0.01	0.13	0.23	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	1.8	<1.8	< LOD (6.4)	
7	<0.01	<0.01	0.6	0.03	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.14	0.16	0.01	<0.01	<0.01	0.05	0.09	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	1.2	<1.2	< LOD (6.4)	
8	<0.01	<0.01	2.25	0.09	0.06	<0.01	<0.01	<0.01	0.54	0.69	0.05	<0.01	<0.01	0.21	0.39	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.5	0.5	< LOD (6.4)	
9	<0.01	<0.01	1.63	0.11	0.07	<0.01	<0.01	<0.01	0.84	0.73	0.03	<0.01	<0.01	0.25	0.42	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	2.8	<2.8	< LOD (6.4)	
10	<0.01	<0.01	0.02	2.73	0.13	0.08	<0.01	<0.01	0.97	0.66	0.03	<0.01	<0.01	0.29	0.5	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	1.2	0.1	< LOD (6.4)	
11	<0.01	<0.01	1.03	0.05	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	0.24	0.27	0.02	<0.01	<0.01	0.09	0.17	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.5	0.5	< LOD (6.4)	
12	<0.01	<0.01	1.63	0.09	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	0.4	0.41	0.03	<0.01	<0.01	0.15	0.25	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.2	<0.2	< LOD (6.4)	
13	<0.01	<0.01	0.27	0.02	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.09	0.09	<0.01	<0.01	<0.01	0.03	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.5	0.5	< LOD (6.4)	
14	<0.01	<0.01	0.53	0.03	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.12	0.14	0.01	<0.01	<0.01	0.05	0.09	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.4	0.4	< LOD (6.4)	
15	<0.01	<0.01	0.96	0.05	0.03	0.03	<0.01	<0.01	0.3	0.24	0.02	<0.01	<0.01	0.1	0.14	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.8	0.4	< LOD (6.4)	
16	<0.01	<0.01	1.66	0.02	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.09	0.36	<0.01	<0.01	<0.01	0.04	0.1	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.9	0.9	< LOD (6.4)	
17	<0.01	<0.01	1.12	0.04	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.09	0.22	<0.01	<0.01	<0.01	0.03	0.06	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.6	<0.7	< LOD (6.4)	
18	<0.01	<0.01	1.14	0.04	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.09	0.21	<0.01	<0.01	<0.01	0.03	0.07	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.8	0.3	< LOD (6.4)	
19	<0.01	<0.01	0.47	0.03	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.07	0.14	<0.01	<0.01	<0.01	0.02	0.04	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.8	0.3	< LOD (6.4)	
20	<0.01	<0.01	0.76	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.06	0.1	<0.01	<0.01	<0.01	0.02	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.3	0.3	< LOD (6.4)	
21	<0.01	<0.01	1.32	0.03	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.06	0.33	<0.01	<0.01	<0.01	0.04	0.12	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.6	0.6	< LOD (6.4)	
22	<0.01	<0.01	0.97	0.04	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.08	0.21	<0.01	<0.01	<0.01	0.03	0.09	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<1.2	<1.2	< LOD (6.4)	
23	<0.01	<0.01	0.76	0.04	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.1	0.12	<0.01	<0.01	<0.01	0.02	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.6	<0.8	< LOD (6.4)	
24	<0.01	<0.01	1.09	0.04	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.08	0.16	<0.01	<0.01	<0.01	0.03	0.06	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.4	2.5	< LOD (6.4)	
25	<0.01	<0.01	1.24	0.08	0.04	<0.01	<0.01	<0.01	0.65	0.25	<0.01	<0.01	<0.01	0.06	0.1	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.2	8.6	< LOD (3.4)	
26	<0.01	<0.01	0.17	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.66	0.28	<0.01	<0.01	<0.01	0.07	0.1	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.3	4.1	0.4	
27	<0.01	<0.01	1.63	0.12	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	0.79	0.38	<0.03	<0.01	<0.01	0.08	0.11	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.2	9.7	0.5	
28	<0.01	<0.01	1.75	0.15	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	0.57	0.54	0.01	<0.01	<0.01	0.07	0.16	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.4	7.4	0.3	
29	<0.01	<0.01	1	0.08	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.48	0.34	<0.01	<0.01	<0.01	0.09	0.2	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.4	3.4	0.3	
30	<0.01	<0.01	3.14	0.13	0.08	<0.01	<0.01	<0.01	1.21	0.78	<0.01	<0.01	<0.01	0.14	0.27	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	6.3	0.8	< LOD (3.4)	
31	<0.01	<0.01	0.69	0.05	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.38	0.14	<0.01	<0.01	<0.01	0.04	0.06	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.2	6.2	0.9	
32	<0.01	<0.01	1.34	0.08	0.04	<0.01	<0.01	<0.01	0.66	0.28	<0.01	<0.01	<0.01	0.07	0.1	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	5.6	1.1	< LOD (3.4)	
33	<0.01	<0.01	0.54	0.05	0.02	<0.01	<0.01	<0.01	0.25	0.16	<0.01	<0.01	<0.01	0.04	0.08	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.1	7.1	1.1	
34	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<1.1	<1.1	< LOD (1.9)	
35	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<1.7	<1.7	< LOD (6.4)	
36	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<1.9	<1.9	< LOD (6.4)	
37	<0.01	<0.01	0.4	0.02	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.24	0.1	<0.01	<0.01	<0.01	0.02	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	4	<4	< LOD (6.4)	
38	<0.04	<0.03	2.36	0.38	0.02	0.01	<0.01	<0.01	0.23	0.08	<0.01	<0.01	<0.01	0.02	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<7.6	<7.6	< LOD (6.4)	
39	<0.01	<0.01	0.33	0.02	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.2	0.09	<0.01	<0.01	<0.01	0.02	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	9.6	<9.6	< LOD (6.4)	
40	<0.01	<0.01	0.17	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.07	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.2	0.3	< LOD (6.4)	
41	<0.01	<0.01	0.16	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.07	0.03	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.2	<0.5	< LOD (6.4)	
42	<0.01	<0.01	0.17	0.01	<0.01	<0.01	<0.																					

	D5, ng/g	D6, ng/g	PFPA	PFHxA	PFHpA	PFOA	PFNA	PFDA	PFUdA	PFDoA	PFTA	PFTeA	PFBS	PFHxS	PFOS	PFDS	PFDoS	PFOSA	me-PFOSA	et-PFOSA	me-PFOSE	et-PFOSE	me-FOSAA	et-FOSAA	6:2 FTS
1	25.3	< LOQ (3.4)																							
2	25.4	< LOQ (3.4)																							
3	9.7	< LOQ (3.4)																							
4	7.1	< LOQ (3.4)																							
5	117.2	7.1																							
6	9.3	< LOQ (3.4)																							
7	18.6	< LOQ (3.4)																							
8	12.8	< LOQ (3.4)																							
9	< LOQ (6.8)	< LOQ (3.4)																							
10	43.1	4.5																							
11	36.2	12.9																							
12	19.5	< LOQ (3.4)																							
13	6.7	< LOQ (3.4)																							
14	18.0	< LOQ (3.4)																							
15	53.2	3.8																							
16	71.8	4.5	<1	<0.5	<0.4	<0.5	0.6	0.6	0.7	1.2	0.5	<0.1	<0.2	0.4	<0.2	<0.2	<0.2	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
17	40.2	< LOQ (3.4)	<3	<1	<0.5	<0.4	<0.5	0.5	0.4	0.8	0.2	<0.1	<0.2	0.4	<0.2	<0.2	<0.2	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
18	50.3	3.7	<3	<1	<0.5	<0.4	<0.5	0.6	0.5	0.8	0.2	<0.1	<0.2	0.5	<0.2	<0.2	<0.2	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
19	53.2	< LOQ (3.4)	<3	<1	<0.5	<0.4	<0.5	0.5	0.4	0.7	0.2	<0.1	<0.2	0.3	<0.2	<0.2	<0.2	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
20	32.1	< LOQ (3.4)																							
21	46.5	< LOQ (3.4)																							
22	146.8	4.6																							
23	40.2	< LOQ (3.4)																							
24	37.7	< LOQ (3.4)																							
25	44.8	< LOQ (3.5)																							
26	1.0	< LOD (2.5)																							
27	85.9	3.8																							
28	68.6	4.7																							
29	13.3	< LOQ (3.5)																							
30	64.2	4.2																							
31	106.6	3.8																							
32	110.4	4.6																							
33	17.0	4.5	< LOQ (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.14	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
34	< LOD (2.0)	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.13	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
35	< LOD (2.0)	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.13	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
36	< LOD (2.0)	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.09	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
37	64.8	< LOQ (3.4)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.11	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
38	77.5	< LOQ (3.4)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.11	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
39	82.1	< LOQ (3.4)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.11	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
40	9.0	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.12	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
41	13.8	< LOQ (3.4)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.12	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
42	8.5	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.12	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
43	< LOD (2.0)	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.13	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	
44	< LOD (2.0)	< LOD (2.0)																							
45	< LOD (2.0)	< LOD (2.0)																							
46																									
47																									
48	82.7	5.4																							
49	433.9	14.3																							
50	108.4	5.4																							
51	38.9	3.7																							
52	29.8	2.7																							
53	44.9	3.3																							
54	71	4.0																							
55	165.5	6.9																							
56	15.5	2.8																							
57	120.8	5.7																							
58	156.6	7.0																							
59	137.8	7.2																							
60	12.8	2.9																							
61	166.9	8.0																							
62	50.8	4.5																							
63																									
64																									
65																									
66																									
67																									
68																									
69																									

	PCB-101	PCB-105	PCB-114	PCB-118	PCB-122	PCB-123	Sum-PentCB	PCB-128	PCB-138	PCB-141	PCB-149	PCB-153	PCB-156	PCB-157	PCB-167	Sum-HexCB	PCB-170	PCB-180	PCB-183	PCB-187	PCB-189	Sum-HepCB	PCB-194	PCB-206	PCB-209	ΣPCB7	ΣPCB
70	1.3	0.36	0.05	1.19	<0.01	0.02	3.48	0.67	4.52	0.71	1.19	6.16	0.27	0.04	0.18	13.7	0.7	2.86	0.56	1.75	0.03	5.89	0.38	0.08	0.07	16.3	24.4
71	0.15	0.4	<0.01	0.14	<0.01	<0.01	0.4	0.06	0.42	0.07	0.14	0.62	0.02	<0.01	0.01	1.34	0.08	0.27	0.05	0.16	<0.01	0.56	0.02	0.01	<0.01	1.6	2.42
72	0.34	0.09	0.01	0.28	<0.01	<0.01	0.86	0.12	0.82	0.14	0.31	1.17	0.05	<0.01	0.03	2.85	0.15	0.49	0.1	0.31	<0.01	1.06	0.06	0.02	0.01	3.21	4.97
73	0.11	0.03	<0.01	0.1	<0.01	<0.01	0.29	0.05	0.34	0.05	0.1	0.47	0.02	<0.01	0.01	1.06	0.07	0.22	0.04	0.13	<0.01	0.46	0.02	<0.01	<0.01	1.25	1.89
74	0.18	0.05	<0.01	0.17	<0.01	<0.01	0.5	0.08	0.54	0.09	0.16	0.76	0.03	<0.01	0.02	1.68	0.12	0.37	0.07	0.21	<0.01	0.77	0.04	0.01	0.01	2.04	3.14
75	0.12	0.04	<0.01	0.13	0.01	<0.01	0.36	0.06	0.43	0.07	0.1	0.65	0.03	<0.01	0.02	1.36	0.08	0.29	0.05	0.15	<0.01	0.57	0.03	<0.01	<0.01	1.62	2.38
76	0.14	0.04	<0.01	0.12	<0.01	<0.01	0.35	0.06	0.4	0.07	0.13	0.55	0.02	<0.01	0.01	1.25	0.09	0.27	0.06	0.18	<0.01	0.6	0.03	0.01	<0.01	1.49	2.34
77	0.26	0.07	<0.01	0.24	<0.01	<0.01	0.69	0.12	0.84	0.13	0.25	1.12	0.05	<0.01	0.03	2.54	0.16	0.52	0.1	0.31	<0.01	1.08	0.06	0.02	0.02	3.03	4.61
78																											
79																											
80																											
81	0.33	0.14	0.01	0.38	<0.01	<0.01	1.05	0.18	1.05	0.16	0.41	1.43	0.07	0.01	0.04	3.36	0.16	0.65	0.15	0.44	<0.01	1.41	0.13	0.02	0.01	3.97	10.1
82	0.25	0.11	0.01	0.28	<0.01	<0.01	0.81	0.13	0.75	0.12	0.31	0.99	0.05	<0.01	0.03	2.39	0.1	0.44	0.14	0.42	<0.01	1.1	0.1	0.01	<0.01	2.85	8.97
83	0.22	0.08	<0.01	0.2	<0.01	<0.01	0.59	0.09	0.59	0.1	0.26	0.78	0.04	<0.01	0.02	1.79	0.08	0.36	0.12	0.36	<0.01	0.93	0.09	0.01	<0.01	2.18	7.92
84	0.26	0.09	<0.01	0.24	<0.01	<0.01	0.73	0.1	0.59	0.1	0.29	0.8	0.04	<0.01	0.02	1.85	0.08	0.34	0.13	0.41	<0.01	0.86	0.07	<0.01	<0.01	2.36	8.28
85	0.24	0.1	<0.01	0.26	<0.01	<0.01	0.75	0.12	0.74	0.12	0.29	0.97	0.05	<0.01	0.03	2.33	0.11	0.43	0.1	0.3	<0.01	0.84	0.08	0.01	<0.01	2.73	4.42
86	0.24	0.1	<0.01	0.26	<0.01	<0.01	0.74	0.12	0.71	0.12	0.3	0.97	0.04	<0.01	0.03	2.3	0.11	0.43	0.09	0.26	<0.01	0.89	0.08	0.01	0.01	2.74	4.43
87	0.25	0.09	<0.01	0.24	<0.01	<0.01	0.72	0.1	0.63	0.11	0.28	0.85	0.04	<0.01	0.03	2.05	0.1	0.38	0.08	0.23	<0.01	0.8	0.07	0.01	<0.01	2.5	4.12
88	0.19	0.08	<0.01	0.21	<0.01	<0.01	0.57	0.1	0.57	0.1	0.25	0.85	0.04	<0.01	0.03	1.84	0.1	0.36	0.09	0.27	<0.01	0.85	0.09	0.01	<0.01	2.29	3.75
89	0.32	0.14	0.01	0.37	<0.01	<0.01	1.03	0.17	1	0.17	0.4	1.37	0.06	0.01	0.04	3.22	0.15	0.58	0.13	0.38	<0.01	1.25	0.12	0.02	0.01	3.8	6.17
90	0.07	0.02	<0.01	0.05	<0.01	<0.01	0.17	0.02	0.12	0.02	0.05	0.16	<0.01	<0.01	<0.01	0.39	0.02	0.06	0.02	0.05	<0.01	0.14	<0.01	<0.01	<0.01	0.47	1.99
91	0.05	0.01	<0.01	0.03	<0.01	<0.01	0.11	0.01	0.09	0.02	0.04	0.11	<0.01	<0.01	<0.01	0.27	0.01	0.04	<0.01	0.03	<0.01	0.09	<0.01	<0.01	<0.01	0.33	1.3
92	0.04	0.01	<0.01	0.03	<0.01	<0.01	0.1	0.01	0.08	0.02	0.04	0.11	<0.01	<0.01	<0.01	0.26	0.01	0.04	<0.01	0.04	<0.01	0.1	<0.01	<0.01	<0.01	0.31	1.45
93	0.07	0.02	<0.01	0.05	<0.01	<0.01	0.17	0.02	0.14	0.02	0.06	0.18	<0.01	<0.01	<0.01	0.43	0.02	0.07	0.02	0.05	<0.01	0.15	<0.01	<0.01	<0.01	0.54	2.32
94	0.11	0.03	<0.01	0.08	<0.01	<0.01	0.26	0.03	0.23	0.04	0.06	0.3	0.01	<0.01	<0.01	0.7	0.03	0.11	0.03	0.09	<0.01	0.27	0.01	<0.01	<0.01	0.86	2.57
95	0.04	<0.01	<0.01	0.03	<0.01	<0.01	0.1	0.01	0.08	0.01	0.03	0.11	<0.01	<0.01	<0.01	0.25	0.01	0.04	<0.01	0.03	<0.01	0.09	<0.01	<0.01	<0.01	0.3	1.27
96	0.03	<0.01	<0.01	0.02	<0.01	<0.01	0.08	<0.01	0.06	0.01	0.03	0.09	<0.01	<0.01	<0.01	0.21	0.01	0.03	<0.01	0.02	<0.01	0.07	<0.01	<0.01	<0.01	0.25	1.23
97	0.03	<0.01	<0.01	0.02	<0.01	<0.01	0.07	<0.01	0.06	0.01	0.02	0.08	<0.01	<0.01	<0.01	0.19	0.01	0.03	<0.01	0.02	<0.01	0.07	<0.01	<0.01	<0.01	0.2	1
98	0.03	<0.01	<0.01	0.02	<0.01	<0.01	0.07	<0.01	0.05	<0.01	0.02	0.07	<0.01	<0.01	<0.01	0.17	<0.01	0.02	<0.01	0.02	<0.01	0.06	<0.01	<0.01	<0.01	0.19	1.02
99	0.07	0.02	<0.01	0.05	<0.01	<0.01	0.16	0.02	0.13	0.02	0.06	0.17	<0.01	<0.01	<0.01	0.4	0.02	0.06	0.03	0.09	<0.01	0.2	<0.01	<0.01	<0.01	0.48	2.3
100	0.04	0.01	<0.01	0.04	<0.01	<0.01	0.11	0.01	0.09	0.02	0.03	0.12	<0.01	<0.01	<0.01	0.28	0.01	0.05	0.01	0.04	<0.01	0.11	<0.01	<0.01	<0.01	0.34	1.24
101	0.05	0.01	<0.01	0.04	<0.01	<0.01	0.12	0.02	0.11	0.02	0.04	0.14	<0.01	<0.01	<0.01	0.32	0.02	0.06	0.02	0.05	<0.01	0.14	<0.01	<0.01	<0.01	0.39	1.51
102	0.3	0.07	<0.01	0.21	<0.01	<0.01	0.69	0.09	0.56	0.1	0.25	0.71	0.03	<0.01	0.02	1.76	0.09	0.27	0.06	0.19	<0.01	0.44	0.02	<0.01	<0.01	1.45	4.49
103	0.11	0.03	<0.01	0.08	<0.01	<0.01	0.28	0.03	0.22	0.04	0.08	0.29	0.01	<0.01	<0.01	0.68	0.04	0.11	0.02	0.07	<0.01	0.24	<0.01	<0.01	<0.01	2.18	8.32
104	0.18	0.05	<0.01	0.14	<0.01	<0.01	0.45	0.06	0.36	0.07	0.13	0.5	0.02	<0.01	0.01	1.15	0.06	0.19	0.04	0.13	<0.01	0.44	0.02	<0.01	<0.01	1.45	4.49
105	0.03	0.01	<0.01	0.03	<0.01	<0.01	0.08	0.01	0.06	0.01	0.03	0.08	<0.01	<0.01	<0.01	0.2	0.01	0.04	<0.01	0.03	<0.01	0.09	<0.01	<0.01	<0.01	0.22	1.11
106	0.02	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	0.05	<0.01	0.04	<0.01	0.02	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	0.12	<0.01	0.02	<0.01	0.01	<0.01	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	0.12	0.97
107	0.02	<0.01	<0.01	0.02	<0.01	<0.01	0.05	<0.01	0.05	<0.01	0.02	0.06	<0.01	<0.01	<0.01	0.13	0.01	0.03	<0.01	0.02	<0.01	0.07	<0.01	<0.01	<0.01	0.16	0.99
108	0.02	<0.01	<0.01	0.02	<0.01	<0.01	0.05	<0.01	0.04	<0.01	0.02	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	0.15	0.01	0.03	<0.01	0.01	<0.01	0.06	<0.01	<0.01	<0.01	0.14	1.06
109	0.02	<0.01	<0.01	0.02	<0.01	<0.01	0.05	<0.01	0.04	<0.01	0.02	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	0.13	<0.01	0.03	<0.01	0.02	<0.01	0.06	<0.01	<0.01	<0.01	0.14	0.25
110	0.02	<0.01	<0.01	0.02	<0.01	<0.01	0.06	<0.01	0.05	<0.01	0.02	0.06	<0.01	<0.01	<0.01	0.16	0.01	0.04	<0.01	0.02	<0.01	0.07	<0.01	<0.01	<0.01	0.16	0.3
111	0.09	0.04	<0.01	0.11	<0.01	<0.01	0.32	0.03	0.18	0.03	0.09	0.25	0.01	<0.01	<0.01	0.6	0.03	0.08	0.02	0.06	<0.01	0.2	0.01	<0.01	<0.01	0.73	1.22
112	0.09	0.04	<0.01	0.1	<0.01	<0.01	0.29	0.03	0.17	0.03	0.09	0.23	0.02	<0.01	<0.01	0.57	0.03	0.09	0.03	0.09	<0.01	0.24	0.02	<0.01	<0.01	0.7	1.66
113	0.06	0.03	<0.01	0.08	<0.01	<0.01	0.22	0.03	0.15	0.02	0.07	0.19	0.01	<0.01	<0.01	0.48	0.03	0.08	0.02	0.06	<0.01	0.19	0.01	<0.01	<0.01	0.58	0.95
114	0.07	0.03	<0.01	0.08	<0.01	<0.01	0.22	0.02	0.14	0.02	0.06	0.19	0.01	<0.01	<0.01	0.47	0.02	0.08	0.02	0.07	<0.01	0.19	0.01	<0.01	<0.01	0.57	0.94
115	0.06	0.03	<0.01	0.08	<0.01	<0.01	0.21	0.03	0.15	0.02	0.07	0.2	0.01	<0.01	<0.01	0.49	0.03	0.09	0.03	0.08	<0.01	0.23	0.02				

	D5, ng/g	D6, ng/g	PFPA	PFHxA	PFHpA	PFOA	PFNA	PFDA	PFUdA	PFDoA	PFTtA	PFTeA	PFBS	PFHxS	PFOS	PFDS	PFDoS	PFOSA	me-PFOSA	et-PFOSA	me-PFOSE	et-PFOSE	me-FOSAA	et-FOSAA	6:2 FTS	
70																										
71																										
72																										
73																										
74																										
75																										
76																										
77																										
78	< LOD (2.0)	< LOQ (3.4)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.1	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
79	< LOD (2.0)	< LOQ (3.4)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.1	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
80	< LOD (2.0)	< LOQ (3.4)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	0.5	0.9	6.1	0.5	<0.1	<0.1	<0.1	0.1	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
81	19.8	2.4																								
82	43	2.7																								
83	12.3	< LOQ (1.9)																								
84	41.3	2.4																								
85	45.3	2.9																								
86	34.4	2.5																								
87	14.9	2.3																								
88	23.1	2.3																								
89	17.7	2.3																								
90																										
91																										
92																										
93																										
94																										
95																										
96																										
97																										
98																										
99																										
100																										
101																										
102																										
103																										
104																										
105	< LOD (6.8)	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
106	6.0	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.08	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
107	6.3	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.08	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
108	7.9	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.09	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
109	9.5	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.08	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
110	12.0	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	0.08	<0.1	<0.1	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
111	< LOD (2.0)	< LOD (2.0)																								
112	< LOD (2.0)	< LOD (2.0)																								
113	< LOD (2.0)	< LOQ (3.4)																								
114																										
115																										
116	< LOD (2.0)	3.8	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	1.9	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	<0.1	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
117	< LOD (2.0)	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	1.4	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	<0.1	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
118	< LOD (2.0)	< LOD (2.0)	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.4	<0.4	0.8	<0.4	<0.4	<0.1	<0.1	<0.1	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
119										4.8	0.9	<0.1	<0.1	<0.1	0.1	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
120										5.4	0.7	<0.1	<0.1	<0.1	0.2	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
121										2.9	<0.4	<0.1	<0.1	<0.1	0.2	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
122										0.9	<0.4	<0.1	<0.1	<0.1	0.3	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
123										1.1	<0.4	<0.1	<0.1	<0.1	0.2	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
124										1	<0.4	<0.1	<0.1	<0.1	0.2	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
125										2.6	0.6	<0.1	<0.1	<0.1	0.3	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
126										2.9	0.6	<0.1	<0.1	<0.1	0.3	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
127										0.7	3.2	<0.4	<0.1	<0.1	0.2	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
128										3.6	0.4	<0.1	<0.1	<0.1	0.2	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
129										3.2	0.5	<0.1	<0.1	<0.1	0.2	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	
130										2	<0.4	<0.1	<0.1	<0.1	0.2	<0.2	<0.2	<0.1	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3	

Lokalitet	Art	Sample-ID	n. individer i blandprøve	Lengde, cm	Vekt, g	SD Lengde	SD Vekt	δ13C, ‰	δ15N, ‰	Fett %	Veivstype	PFA	PFHxA	PFHpA	PFOA	PFNA	PFDA	PFUDA	PFDOA	PFTTA	PFT6A	PFBS	PFHKS	PFOS	PFDS	PFDoS	PFOSA
131 Randsfjorden	Ørret	RA-1-L-14	1	44.8	900	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.9	6.7	4.1	24.6	1.5	<-0.1	<-0.1	3.3	<-0.2	<-0.2	0.5	
132 Randsfjorden	Ørret	RA-2-L-14	1	46.4	1250	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	0.7	4.1	30.3	20.2	109.3	2.7	<-0.1	<-0.1	13	<-0.2	<-0.2	0.9	
133 Randsfjorden	Ørret	RA-3-L-14	1	42.5	810	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1	5.1	4	43.2	3.8	<-0.1	<-0.1	4	<-0.2	<-0.2	0.8	
134 Randsfjorden	Ørret	RA-4-L-14	1	49.5	1240	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	0.8	2.3	21.4	11.5	79.8	4	<-0.1	<-0.1	1.8	<-0.2	<-0.2	0.6	
135 Randsfjorden	Ørret	RA-5-L-14	1	49.7	1615	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.7	5.7	4.4	38.8	1.8	<-0.1	<-0.1	1.8	<-0.2	<-0.2	0.2	
136 Randsfjorden	Ørret	RA-6-L-14	1	49.8	1270	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.5	2.3	15.3	9.2	28.9	1.8	<-0.1	<-0.1	9.1	<-0.2	<-0.2	0.3
137 Randsfjorden	Ørret	RA-7-L-14	1	52.6	1895	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	0.8	5.7	46.6	120.1	3.5	<-0.1	<-0.1	17.8	<-0.2	<-0.2	1.7		
138 Randsfjorden	Ørret	RA-8-L-14	1	53.4	1510	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	0.6	4.2	36.3	22.9	165.5	3.6	<-0.1	<-0.1	17.9	<-0.2	<-0.2	0.3	
139 Randsfjorden	Ørret	RA-9-L-14	1	80.5	6320	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.8	3.2	2.4	8.5	1.1	<-0.1	<-0.1	3.2	<-0.2	<-0.2	0.4	
140 Randsfjorden	Ørret	RA-10-L-14	1	60.2	2105	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.8	1.3	1.5	8.7	0.7	<-0.1	<-0.1	1.5	<-0.2	<-0.2	0.4	
141 Randsfjorden	Ørret	RA-11-L-14	1	53.3	1630	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	0.6	2.9	19.2	14.7	93.1	6.2	<-0.1	<-0.1	12.2	<-0.2	<-0.2	1	
142 Randsfjorden	Ørret	RA-12-L-14	1	53.2	1790	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.8	8.2	6.5	40.5	1.9	<-0.1	<-0.1	3.6	<-0.2	<-0.2	0.8	
143 Mjessa	Krøkle	MK-1-2-L-14	19	12.5	9.9	0.61	1.5	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	2.7	7.4	4.2	9.1	2.7	<-0.1	<-0.1	5.5	<-0.2	<-0.2	0.5	
144 Mjessa	Krøkle	MK-3-L-14	14	13.5	13.8	0.7	2.7	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	0.6	3.1	9.1	3.6	7.1	2.1	<-0.1	<-0.1	6.5	<-0.2	<-0.2	0.6	
145 Mjessa	Krøkle	MK-5-L-14	4	15.4	21.6	0.12	0.2	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1	4	6.1	2.1	5.8	1.7	<-0.1	<-0.1	4.1	<-0.2	<-0.2	0.4
146 Mjessa	Krøkle	MK-6-L-14	1	20.5	57.4	0.17	0.5	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	1.5	4.6	13.9	6	10.5	2.2	<-0.1	<-0.1	7.2	<-0.2	<-0.2	1	
147 Mjessa	Krøkle	MK-7-L-14	1	19.7	45.2	0.47	1	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.1	5.9	9	5	6.3	2.3	<-0.1	<-0.1	4.5	<-0.2	<-0.2	0.6
148 Mjessa	Krøkle	MK-8-L-14	4	14.8	19.8	0.39	0.5	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.6	3.3	3.9	2.9	5.1	2.3	<-0.1	<-0.1	2.9	<-0.2	<-0.2	0.2
149 Mjessa	Krøkle	MK-9-L-14	4	12.9	11.6	0.3	0.7	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.1	6.3	7.3	4.3	5.8	1.8	<-0.1	<-0.1	5.5	<-0.2	<-0.2	0.8
150 Mjessa	Lågsålid	ML-1-L-14	1	20.9	80	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.1	0.9	1.3	1.4	1.3	<-0.1	<-0.1	2.7	<-0.2	<-0.2	0.1	
151 Mjessa	Lågsålid	ML-2-L-14	1	21.3	90	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.8	3	1.8	1.2	2.8	1.6	<-0.1	<-0.1	17.4	<-0.2	<-0.2	0.3
152 Mjessa	Lågsålid	ML-3-L-14	1	19.4	67	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	2.8	1.5	1.8	2.8	0.7	<-0.1	<-0.1	2.5	<-0.2	<-0.2	0.3	
153 Mjessa	Lågsålid	ML-4-L-14	1	20.5	70	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.9	2	1.5	1.7	1	<-0.1	<-0.1	3.4	<-0.2	<-0.2	0.2	
154 Mjessa	Lågsålid	ML-5-L-14	1	23.3	90	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.7	1.9	2.5	1.7	3.7	1	<-0.1	<-0.1	3.7	<-0.2	<-0.2	0.3
155 Mjessa	Lågsålid	ML-6-L-14	1	21.5	78	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.7	2.3	2.4	2.2	4.3	1.4	<-0.1	<-0.1	8	<-0.2	<-0.2	0.2
156 Mjessa	Lågsålid	ML-7-L-14	1	19.5	59	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.1	3.9	2.5	1.5	2.2	1.3	<-0.1	<-0.1	4.6	<-0.2	<-0.2	0.4
157 Mjessa	Lågsålid	ML-8-L-14	1	20.3	70	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.1	1.9	4.7	2.6	6.1	1.9	<-0.1	<-0.1	4.1	<-0.2	<-0.2	0.3
158 Mjessa	Lågsålid	ML-9-L-14	1	21.1	68	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.5	1.3	1.9	0.8	1.4	1	<-0.1	<-0.1	1.7	<-0.2	<-0.2	0.2
159 Vansjø	Abbor	VA-1-M-14	5	14.3	35.4	0.48	3.5	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	2.3	3.6	1.6	1.6	0.4	<-0.1	0.1	188	0.4	<-0.2	0.2	
160 Vansjø	Abbor	VA-2-M-14	5	15	38.8	0.85	5.6	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.6	2.9	1.7	1.9	0.4	<-0.1	0.1	138	0.3	<-0.2	0.3	
161 Vansjø	Abbor	VA-3-M-14	5	21.4	154.2	0.92	40.5	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.7	4.2	1.4	1.6	0.4	<-0.1	0.1	188	0.3	<-0.2	0.5	
162 Vansjø	Abbor	VA-4-M-14	5	31.5	458	2.94	75	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	2.6	6.3	2	2.3	0.8	<-0.1	0.2	236	0.5	<-0.2	0.3	
163 Vansjø	Abbor	VA-5-M-14	5	25.9	286.8	1.73	77.4	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	2.5	3.7	1.1	1.4	0.6	<-0.1	0.2	116	0.3	<-0.2	0.3	
164 Vansjø	Ørret	MØ-1-L-14	1	76	5450	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.7	4.4	17.1	11.6	38.5	6.3	<-0.1	<-0.1	16.6	0.2	<-0.2	1.3
165 Mjessa	Ørret	MØ-2-L-14	1	82	6275	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1	6.2	3.6	5.6	1.4	<-0.1	<-0.1	6.3	<-0.2	<-0.2	0.3	
166 Mjessa	Ørret	MØ-3-L-14	2	82.5	5780	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	2.3	7.2	3	6.5	1.6	<-0.1	<-0.1	7	<-0.2	<-0.2	0.7	
167 Mjessa	Ørret	MØ-4-L-14	1	79	5225	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.7	3.1	13.9	10.1	17.5	2.1	<-0.1	<-0.1	15.9	0.2	<-0.2	0.7
168 Mjessa	Ørret	MØ-5-L-14	1	69	3500	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.6	6.7	24.1	19.8	70.5	5.8	<-0.1	<-0.1	23.5	0.2	<-0.2	1.2
169 Mjessa	Ørret	MØ-6-L-14	1	64.5	2350	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.6	0.3	1.3	1	<-0.1	<-0.1	<-0.1	1.4	<-0.2	<-0.2	0.5	
170 Mjessa	Ørret	MØ-7-L-14	1	62.5	3250	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.1	5.5	17.6	10.9	32.5	2.7	<-0.1	<-0.1	17.5	<-0.2	<-0.2	0.9
171 Mjessa	Ørret	MØ-8-L-14	1	59	2650	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.4	2.4	1.8	2.2	1.4	<-0.1	<-0.1	3.1	<-0.2	<-0.2	0.7	
172 Mjessa	Ørret	MØ-9-L-14	1	74.5	4005	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.2	9.4	26.5	20.4	63.9	8.8	<-0.1	<-0.1	24.1	<-0.2	<-0.2	0.8
173 Mjessa	Ørret	MØ-10-L-14	1	76	5550	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.5	0.7	4.1	3	4.7	2.6	<-0.1	<-0.1	5.1	<-0.2	<-0.2	0.3
174 Mjessa	Ørret	MØ-11-L-14	1	76.5	5450	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.5	2.3	11.4	7.6	19	2.6	<-0.1	<-0.1	9.4	<-0.2	<-0.2	0.6
175 Femunden	Ørret	MØ-12-L-14	1	69	5010	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.5	0.9	3.4	2	4.4	1.2	<-0.1	<-0.1	3.4	<-0.2	<-0.2	0.4
176 Femunden	Ørret	FØ-1-L-14	1	39.7	623	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.9	2.2	12.7	7.2	75.8	3.6	<-0.1	<-0.1	2.9	<-0.2	<-0.2	0.5
177 Femunden	Ørret	FØ-2-L-14	1	39.8	694	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.7	1.5	0.6	1.1	0.4	0.4	<-0.1	<-0.1	0.5	<-0.2	<-0.2	0.3
178 Femunden	Ørret	FØ-3-L-14	1	38.8	622	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.7	3.1	29.1	15.3	89.5	3.2	<-0.1	<-0.1	3.3	<-0.2	<-0.2	1.3
179 Femunden	Ørret	FØ-4-L-14	1	39.5	631	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	0.5	2.8	19.3	10.9	101.8	3.1	<-0.1	<-0.1	2.3	<-0.2	<-0.2	1
180 Femunden	Ørret	FØ-5-L-14	1	47.3	947	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.6	2.3	5.7	1.6	7.5	1.4	<-0.1	<-0.1	1.6	<-0.2	<-0.2	0.9
181 Femunden	Ørret	FØ-6-L-14	1	58.9	1229	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.3	4.1	18.8	7.6	44.4	2.5	<-0.1	<-0.1	3.9	<-0.2	<-0.2	1.7
182 Femunden	Ørret	FØ-7-L-14	1	58	1620	-	-	-	-	-	Lever	<-1	<-0.5	<-0.5	<-0.5	1.7	4.7	29.3	21	163.1	6.5	<-0.1	<-0.1	6.3	<-0.2	<-0.2	1.4
183 Femunden	Ørret	FØ-8-L-14	1	43.6																							

Lokalitet	Art	Sample-ID	n. individer i blandprøve	Lengde, cm	Vekt, g	SD Lengde	SD Vekt	δ13C, ‰	δ15N, ‰	Fett %	Veavstype	PFPA	PFHxA	PFHpA	PFOA	PFNA	PFDA	PFUDA	PFDoA	PFTtA	PFTbA	PFBS	PFHxS	PFOS	PFDS	PFDoS	PFOSA
200 Femunden	Sik	FS-4-L-14	1	33.3	410	Lever	<1	<0.5	<0.5	<0.5	0.9	2.2	1.4	8.8	1.1	<0.1	<0.1	2.1	<0.2	<0.2	0.5	
201 Femunden	Sik	FS-5-L-14	1	34	431	Lever	<1	<0.5	<0.5	<0.5	1	2.9	2.1	9.3	1.5	<0.1	<0.1	5.2	<0.2	<0.2	0.5	
202 Femunden	Sik	FS-6-L-14	1	34.2	426	Lever	<1	<0.5	<0.5	<0.5	0.9	1.9	1.8	7.4	0.8	<0.1	<0.1	2.1	<0.2	<0.2	0.6	
203 Femunden	Sik	FS-7-L-14	1	31.5	351	Lever	<1	<0.5	<0.5	<0.5	1.8	2.3	3	6.2	1.2	<0.1	<0.1	3.4	<0.2	<0.2	0.9	
204 Femunden	Sik	FS-8-L-14	1	33	389	Lever	<1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	0.7	0.5	1.8	0.6	<0.1	<0.1	0.4	<0.2	<0.2	0.5	
205 Femunden	Sik	FS-9-L-14	1	33.4	382	Lever	<1	<0.5	<0.5	<0.5	0.8	2	1.1	4.3	0.5	<0.1	<0.1	0.8	<0.2	<0.2	<0.1	
206 Femunden	Sik	FS-10-L-14	1	33.1	403	Lever	<1	<0.5	<0.5	<0.5	0.7	1.1	0.6	2.4	0.7	<0.1	<0.1	0.5	<0.2	<0.2	0.7	
207 Femunden	Sik	FS-11-L-14	1	36.4	479	Lever	<1	<0.5	<0.5	<0.5	0.7	2.4	1	3.6	1.1	<0.1	<0.1	1.5	<0.2	<0.2	0.4	
208 Femunden	Sik	FS-12-L-14	1	36.5	506	Lever	<1	<0.5	<0.5	<0.5	0.8	1.5	1.9	7	1.1	<0.1	<0.1	0.7	<0.2	<0.2	0.8	
209 Tyrifjorden	Abbor	TA-15-L-14	5	27.4	275.8	0.7	11.8	.	.	.	Lever	<3	<1	<0.5	<0.4	2.7	6.8	8.1	12.4	4.9	3.5	<0.1	<0.2	101	0.2	0.5	
210 Tyrifjorden	Abbor	TA-6:10-L-14	5	23.3	153.6	0.29	10.7	.	.	.	Lever	<3	<1	<0.5	<0.4	2.7	18.3	17.5	23.4	8.5	2.2	<0.1	<0.2	185	0.5	<0.2	1.3
211 Tyrifjorden	Abbor	TA-11:15-L-14	5	28.3	308.4	1.13	33.8	.	.	.	Lever	<3	<1	<0.5	<0.4	0.6	12.7	12.3	17.3	6.2	3.4	<0.1	<0.2	96	0.2	<0.2	0.9
212 Tyrifjorden	Abbor	TA-16:20-L-14	5	23.8	176.8	0.67	13.9	.	.	.	Lever	<3	<1	<0.5	<0.4	1.7	22.4	20.8	29.4	11.6	4	<0.1	<0.2	190	0.4	<0.2	0.9
213 Tyrifjorden	Abbor	TA-21:25-L-14	5	28	273.8	0.35	10	.	.	.	Lever	<3	<1	<0.5	<0.4	1	11.6	11.1	13.6	4.6	1.4	<0.1	<0.2	79	0.2	<0.2	1.1

	me-PFOA	et-PFOA	me-PFOSE	et-PFOSE	me-FOSAA	et-FOSAA	6:2-FTS
200	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3
201	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3
202	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3
203	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3
204	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3
205	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3
206	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3
207	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3
208	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	<0.3	<0.3
209	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	0.4	<0.3
210	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	2.3	<0.3
211	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	0.8	<0.3
212	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	1	<0.3
213	<0.3	<0.3	<5	<5	<0.3	0.4	<0.3

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.