



Laan van Westenenk 501
Postbus 342
7300 AH Apeldoorn

www.mep.tno.nl

T 055 549 34 93
F 055 549 32 01
info@mep.tno.nl

TNO-rapport

R 2004/475

Veldstudie naar TBT verontreiniging in de Noordzee en risico's voor het mariene milieu

Datum	November 2004
Auteurs	N.H.B.M. Kaag R.G. Jak J. Jol (RIVO) C.A. Schipper (RWS-RIKZ)
Projectnummer	35830
Trefwoorden	TBT Alikruik Intersex Ecologische Risico Evaluatie
Bestemd voor	RWS-RIKZ C.A. Schipper Middelburg
Rapport RIKZ	2004.039



Alle rechten voorbehouden.

Niets uit deze uitgave mag worden vermenigvuldigd en/of openbaar gemaakt door middel van druk, fotokopie, microfilm of op welke andere wijze dan ook zonder voorafgaande toestemming van TNO.

Indien dit rapport in opdracht werd uitgebracht, wordt voor de rechten en verplichtingen van opdrachtgever en opdrachtnemer verwezen naar de Algemene Voorwaarden voor onderzoeksopdrachten aan TNO, dan wel de betreffende terzake tussen de partijen gesloten overeenkomst. Het ter inzage geven van het TNO-rapport aan direct belanghebbenden is toegestaan.

Samenvatting

In dit rapport worden de resultaten gerapporteerd van drie jaar monitoring van intersex bij alikruiken in Nederlandse kustwateren en havens in relatie tot TBT-gehalten in de milieucompartimenten water, zwevend stof, sediment en baggerspecie en in biota. De alikruik is een alternatief voor bekende tributyltin(TBT)-gevoelige soorten als purperslak en wulk. De wulk is vooral karakteristiek voor dieper water en daarmee moeilijk te verzamelen. De purperslak komt maar heel beperkt voor in de Nederlandse kustwater en is daarom niet geschikt voor een brede monitoring. Wel zijn deze soorten aanzienlijk gevoeliger voor TBT dan de alikruik, zodat ze wel in beeld (moeten) komen als de TBT-belasting zo laag is dat alikruiken er niet meer op reageren.

De resultaten laten zien dat langs open water nauwelijks verhoogde ISI-waarden worden gevonden en dat effecten zich vooral voordoen bij alikruiken in havengebieden, waar de belasting met TBT ook het hoogst is. Aanvullend onderzoek is nodig om na te gaan in welke mate de belasting met TBT ook buiten de haven merkbaar is.

Er zijn geen duidelijke dosis-effect relaties gevonden tussen TBT-gehalten in verschillende milieu compartimenten en de mate van intersex op de verschillende locaties, ook niet als gegevens uit andere monitoring programma's (MWTL, SPECIE) erbij betrokken werden.

Alikruiken worden vooral via het water blootgesteld aan TBT. Water concentraties zijn niet direct te voorspellen vanuit TBT-gehalten in verschillende compartimenten, hoewel met behulp van verdelingscoëfficiënten wel een schatting gemaakt kan worden. Er is wel een goede relatie tussen ISI en blootstellingsconcentratie in water, geformuleerd door Oehlmann (2002). Door deze te relateren aan een gevoeligheidscurve van soorten (SSD) kan berekend worden welk percentage van de soorten in een ecosysteem niet meer beschermd wordt bij een bepaalde ISI. Op dezelfde manier zouden waterconcentraties, berekend met behulp van verdelingscoëfficiënten, omgerekend kunnen worden naar een risico voor het ecosysteem. Ook zou experimenteel onderzoek uitgevoerd moeten worden om het effect van de huidige TBT-belasting in het marien milieu te bepalen, aangezien de TBT-gehalten in de verschillende milieu compartimenten vele malen hoger zijn dan de kwaliteitsnormen (MTR, SQC).

De auteurs bevelen aan nader onderzoek te verrichten naar de reden voor het afwezig zijn van alikruiken langs de Zuid-Hollandse kust tussen Hoek van Holland en Scheveningen. De beschikbare gegevens wijzen erop dat dit te maken zou kunnen hebben met de aanwezigheid van de loswallen voor de kust. Als dit het geval is, zouden ook effecten gevonden moeten worden bij alikruiken ten noorden van Scheveningen.

Concluderend kan gesteld worden dat intersex bij alikruiken een geschikte parameter is om de effecten van TBT te monitoren in gebieden met een relatief hoge TBT-belasting, zoals in havengebieden. Voor monitoring in gebieden met een lagere TBT-belasting is de alikruik niet geschikt, maar moeten gevoeliger soorten als purperslak en wulk worden gebruikt.

Inhoud

	pagina
Samenvatting	2
1. Inleiding	5
1.1 Doel	5
1.2 Achtergronden	5
1.2.1 Kader voor risicobeoordeling	5
1.2.2 Doelstellingen	6
1.2.3 Risicobeoordelingsmethodiek	6
1.3 Opbouw van het rapport	7
2. Dosis-effectrelatie TBT concentratie - Intersex bij Alikruik	9
2.1 Intersex	9
2.2 Grenswaarden	11
2.3 Relatieve gevoeligheid alikruiken	13
3. Huidige situatie in Nederland	14
3.1 Overzicht van beschikbare informatie	14
3.2 Intersex en TBT in sediment	18
3.3 Relatie met TBT in andere compartimenten	22
4. Doorvertaling naar ecosystemen	29
5. Discussie	32
5.1 Effecten van TBT in Nederlandse zoute wateren	32
5.2 Dosis-effect relaties	34
5.3 Risico-analyse en doorvertaling naar ecosysteemniveau	36
5.4 Conclusies en aanbevelingen	37
6. Literatuur	40
7. Verantwoording	44

1. Inleiding

1.1 Doel

In het kader van het project ‘Implementatie Chemie-Toxiciteit-Toets’ (opdrachtgever V&W DGW), het project ‘Veldeffecten’ (opdrachtgever RWS HK/Stuurboord) en ‘Toestand van de Zee (opdrachtgever RWS DNZ) zijn ondermeer gegevens beschikbaar gekomen van concentraties van tributyltin (TBT) in het Nederlandse kustwater en het optreden van biologische effecten van TBT bij de Alikruik (*Littorina littorea*). Naast de ontwikkeling van monitoringstrategieën en -methoden zijn recent ook beoordelingscriteria ontwikkeld voor de afzonderlijke beoordeling van chemische concentraties en van biologische effecten. Hierdoor wordt het mogelijk de beschikbare gegevens te toetsen aan criteria, maar ook om tot een meer integrale analyse van de risico’s van TBT te komen.

Het doel van de studie is

1. het interpreteren van monitoring-gegevens van TBT in het Nederlandse kustwater de milieucompartimenten zwevend stof, sediment, water en biota (alikruiken en mosselen);
2. het interpreteren van de waargenomen biologische effecten als gevolg van blootstelling aan TBT bij Alikruiken (intersex), en
3. het beschrijven van een methodiek om deze gegevens te kunnen doorvertalen naar consequenties voor het marine ecosysteem.

1.2 Achtergronden

1.2.1 Kader voor risicobeoordeling

De monitoring van TBT-concentraties en de effecten daarvan dient verschillende doelen. Zo dienen metingen aan baggerspecie aan te geven of deze bagger (havenslib) wel of niet offshore geloosd mag worden. Daarnaast worden gehalten in sediment, zwevend stof, water en biota (mosselvlees) bepaald om evaluatie van (inter)nationale doelstellingen rondom stoffen mogelijk te maken. Verder zijn biologische effectmetingen mogelijk die aan kunnen geven wat de mate van effecten in het veld is en wat de (ruimtelijke) reikwijdte van deze effecten is. Een combinatie van chemische en biologische metingen maakt het mogelijk om de risico’s voor het (mariene) milieu te bepalen en te toetsen of de gestelde doelstellingen behaald zijn of dat extra maatregelen nodig zijn die de concentraties in het milieu dienen te realiseren.

Het internationale kader voor de beoordeling van de milieurisico's van TBT in de Noordzee wordt bepaald door OSPAR. Voor de kustzone tot 12 km is verder de EU Kaderrichtlijn Water (KRW, of WFD: Water Framework Directive) van toepassing. Voor de risico-beoordelingsmethodiek sluit OSPAR aan bij die van de EU, namelijk zoals beschreven in de EU-Technical Guidance Document on Risk Assessment (EU-TGD), Part II (ECB, 2003). Daarnaast kan de Europese Mariene Strategie (EMS) van de EC van belang worden. Een voorstel voor de EMS verschijnt begin 2005.

1.2.2 Doelstellingen

Vanuit de OSPAR Strategie is de algemene doelstelling het continu reduceren van lozingen, emissies en verliezen van gevaarlijke stoffen, met voor 'man-made' synthetische stoffen (zoals TBT) het uiteindelijke doel om 'close to zero' concentraties te bereiken. Deze doelstelling zou in 2020 bereikt moeten zijn.

Voor TBT (een prioritaire stof) is het "OSPAR Background Document on Organic Tin Compounds" opgesteld (OSPAR, 2000). Dit document bevat een analyse van bronnen en (voorgenomen) maatregelen, waarvan de status in 2003 is geactualiseerd.

1.2.3 Risicobeoordelingsmethodiek

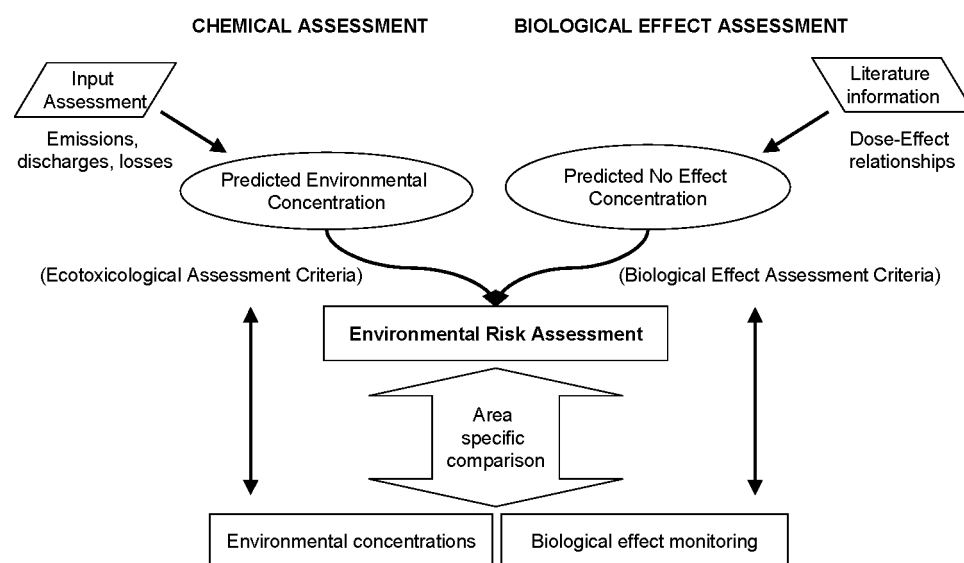
In de OSPAR strategie wordt opgemerkt dat er weinig ervaring is met de wetenschappelijke beoordeling van risico's. De ontwikkeling van relevante wetenschappelijke instrumenten om de risico's van potentieel gevaarlijke stoffen in het mariene milieu te beoordelen wordt als prioriteit aangemerkt, waarbij samenwerking met de EU wordt gezocht. Verwezen wordt daarbij naar de EU-TGD en de ervaring die is opgedaan bij de risico-beoordeling in zoete wateren. De koppeling aan de EU-TGD is in Agreement 2003-20 bekrachtigd. Dit betekent dat hoofdstuk 4 van de TGD ("Environmental Risk Assessment – Marine") als gemeenschappelijke EU/OSPAR risico-beoordelingsmethodiek voor het mariene milieu kan worden beschouwd.

Globaal komt deze risicobeoordeling neer op een vergelijking van de voorspelde concentraties in het milieu (Predicted Environmental Concentrations; PECs) met voorspelde effectniveau's (Predicted No Effect Concentrations; PNECs). Indien de PEC/PNEC ratio groter dan 1 is, dan is dat een indicatie dat er onacceptabele risico's voor het milieu aanwezig kunnen zijn. In OSPAR kader worden ook metingen verricht waardoor niet afgegaan hoeft te worden op voorspelde waarden, maar ook gebruik kan worden gemaakt van actuele waarden. In het kader van de JAMP monitoring-strategie voor Hazardous Substances zijn verschillende toetsingscriteria ontwikkeld voor de beoordeling van stoffen in het milieu (OSPAR, 2003b):

- Ecotoxicological Assessment Criteria (EAC); concentraties in milieucompartimenten.
- Biological Effects Assessment Criteria (BEAC).
- Background/Reference Concentrations (B/RC).
- Ecological Quality Objectives (EcoQOs).

Voor TBT is een EcoQO ontwikkeld die een bepaald niveau van imposex bij de Purperslak aangeeft. Dit vastgestelde niveau van imposex indiceert dat de TBT concentraties lager zijn dan de EAC. De kwantitatieve waarde van de EcoQO voor TBT/imposex wordt dus expliciet gekoppeld aan de chemische beoordeling, waarbij wordt aanbevolen om de EAC voor water en sediment onder respectievelijk 0,0001 µg/l en onder 0,00005 mg/kg dw vast te stellen. De relatie tussen imposex bij de Purperslak en intersex bij de Alikruik wordt beschreven in paragraaf 2.3.

Bij de vergelijking van toetsingscriteria en monitoringgegevens kan het schema worden gebruikt. Dit wordt weergegeven in Figuur 1.



Figuur 1 Algemene procedure voor "Environmental Risk Assessment" op basis van de EU-TGD (ECB, 2003) en aangepast aan de terminologie zoals die binnen OSPAR (JAMP) gehanteerd wordt.

1.3 Opbouw van het rapport

In hoofdstuk 2 worden enkele dosis-effect relaties voor intersex besproken voor TBT in verschillende milieucompartimenten. Op basis van deze gegevens worden grenswaarden afgeleid voor TBT-Sn in verschillende compartimenten. Ook wordt de gevoeligheid van de effectparameter 'intersex' bij alikruiken vergeleken met de gevoeligheid van vergelijkbare parameters (*i.c.* imposex) bij andere slakken.

In hoofdstuk 3 worden de gegevens uit verschillende monitoringprogramma's in de Nederlandse kustzone samengevat en vergeleken met de dosis-effectrelaties en de daaruit afgeleide grenswaarden.

In hoofdstuk 4 worden de gegevens uit de monitoringprogramma's en de grenswaarden voor intersex vergeleken met de gevoeligheid van andere soorten om te kunnen inschatten in hoeverre het mariene (kust)ecosysteem beïnvloed wordt door TBT bij een gegeven niveau van intersex in de alikruiken populaties.

In hoofdstuk 5 worden de resultaten van de verschillende analyses bediscussieerd.

2. Dosis-effectrelatie TBT concentratie - Intersex bij Alikruik

2.1 Intersex

De alikruik ontwikkelt geen imposex, zoals de purperslak. Als gevolg van blootstelling aan TBT ontwikkelen zich echter wel afwijkingen in de vrouwelijke genitaliën. Deze afwijkingen zijn intersex genoemd (Bauer *et al.*, 1995). De afwijkingen kunnen in een gradueel systeem geclassificeerd worden, waarbij 4 stadia worden onderscheiden, lopend van 0 (geen effect) tot 3 (volledige steriliteit).

Als secundaire index kan de gemiddelde lengte van de prostaat bij de vrouwtjes gebruikt worden, de FPrL (Female Prostate Length). Een prostaatklier wordt pas gevormd vanaf intersex stadium 3 en is dus een minder gevoelige maat dan de ISI. Deze index kan gebruikt worden voor een nadere differentiatie van de TBT blootstelling in zwaar verontreinigde gebieden. In dit rapport worden de gemeten FPrL waarden wel gerapporteerd, maar niet verder uitgewerkt.

De mate van intersex in een populatie (het gemiddelde van de intersex stadia) kan beschreven worden aan de hand van de intersex ratio (ISI) in een representatief monster uit een populatie (Tabel 1). Een ISI tot 0,7 kan beschouwd worden als signaleringswaarde. Bij een ISI tussen 0,7 en 1,2 zijn effecten op populatie niveau nog niet duidelijk, maar wel waarschijnlijk. Een ISI hoger dan 1,2 duidt op het optreden van effecten op populatieniveau, terwijl de populatie-omvang afneemt bij een ISI hoger dan 2,5.

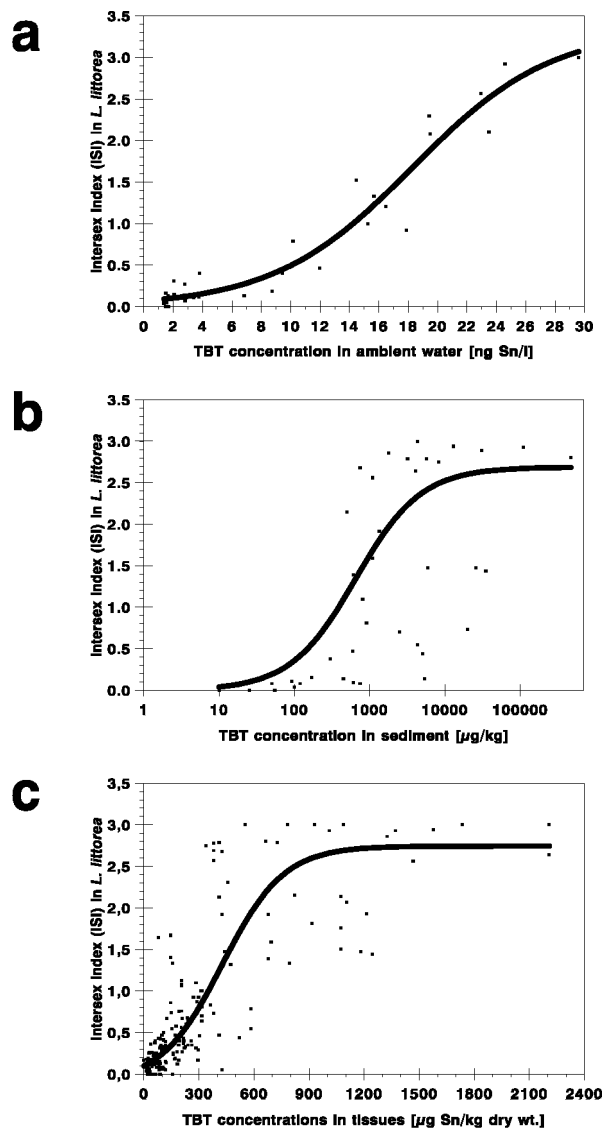
Tabel 1 Relatie ISI en effecten in populatie

ISI waarde	Effect op populatie niveau
0,1	geen effecten
0,3	geen effecten, maar steriele vrouwtjes kunnen aanwezig zijn
0,7	geen effecten, toename aantal steriele vrouwtjes
1,2	tot 30% steriele vrouwtjes, negatief effect op populatie waarschijnlijk
2,5	30-80% steriele vrouwtjes, reproductief succes in populatie slecht
>2,5	geen voortplanting meer mogelijk

Door Oehlman (2002) zijn, op basis van literatuurgegevens en eigen onderzoek, dosis-effectrelaties opgesteld voor de respons van de Intersex Index (ISI) in alikruiken op concentraties in water en sediment en voor de relatie tussen ISI en het TBT gehalte in alikruiken zelf (Figuur 2). Voor het TBT gehalte in zwevend stof is geen dosis-effect relatie opgesteld.

De dosis-effect relatie voor TBT-gehalte in water (Figuur 2a) vertoont zeer weinig variatie. Oehlmann (2002) merkt op dat de concentratie in water niet constant is en dat daar bij monitoring rekening mee moet worden gehouden. Het is echter niet duidelijk op welke wijze dat voor deze dosis-effect relatie is gebeurd. Alle data

voor de relatie met waterconcentraties zijn afkomstig uit het proefschrift van de auteur.



Figuur 2 Dosis-effectrelaties voor de respons op de Intersex Index (ISI) in alikruiken in relatie tot TBT-concentraties in water (a), in sediment (b) en in weefsel van alikruiken (c). Overgenomen uit Oehlmann (2002).

De dosis-effect relatie voor het TBT-gehalte in sediment (Figuur 2b) vertoont een grote variatie in waargenomen ISI bij sedimentconcentraties tussen ongeveer 500 en 50.000 µg /kg (waarschijnlijk als Sn). Deze variatie kan voor een groot deel verklaard worden door het feit dat de alikruik vooral via de waterfase wordt blootgesteld (en mogelijk gedeeltelijk via het voedsel), terwijl de relatie met het sediment heel indirect is. In havengebieden kan de fysieke afstand tussen

alikuiken (in de getijdenzone) en het sediment (op de bodem) zelfs enkele meters bedragen. Een andere factor die een deel van de variatie zou kunnen verklaren is het feit dat alleen juveniele stadia intersex ontwikkelen na blootstelling aan TBT. Geslachtsrijpe alikuiken daarentegen zijn ongevoelig voor TBT met betrekking tot het ontwikkelen van intersex (Oehlmann *et al.*, 1998). Dit betekent dat de ISI bij een toenemend TBT-gehalte achter kan lopen bij de ISI die op basis van de gemeten gehalten verwacht zou worden. Omgekeerd kan de ISI bij afnemende TBT-belasting juist hoger zijn dan verwacht, omdat het ontstaan van intersex een onomkeerbaar proces is. Strikt genomen zou deze bron van variatie juist bij de dosis-effect relatie met water duidelijker op de voorgrond moeten treden. Sediment concentraties zijn, in vergelijking met water, juist stabiel, waardoor deze variatie bron minder een rol zou moeten spelen, tenzij er (recent of regelmatig) sediment verwijderd wordt (door baggerwerkzaamheden of erosie), waardoor de gehalten in sediment veranderen en de concentratie in water (zwevend stof) tijdelijk verhoogd kan worden.

Bij de dosis-effect relatie met interne TBT-gehalten in alikuiken (Figuur 2c) is de variatie duidelijk minder dan ten opzichte van sediment, maar nog steeds aanzienlijk. Hier zou “historische vertraging” zeker een belangrijke rol kunnen spelen. Dit wordt ook aangegeven als verklaring door Oehlmann *et al.* (1998). Het interne gehalte beschrijft de actuele uitkomst van accumulatie en eliminatieprocessen (met elk hun eigen snelheid), terwijl de ISI het resultaat is van blootstelling van het juveniele stadium gemeten bij (liefst jong-) adulten.

2.2 Grenswaarden

Op basis van de hierboven weergegeven dosis-effect relaties berekent Oehlmann grenswaarden voor TBT bij ISI-waarden van 0,1; 0,3 en 2,5 (Tabel 2).

Tabel 2 Grenswaarden voor TBT concentraties berekend uit dosis-effectrelaties voor water, sediment en interne gehalten (uit Oehlmann, 2002)

ISI	TBT-water (ng Sn/L)	TBT-sed (µg Sn/kg)	TBT-intern (µg Sn/Kg)
0,1	2	20	40
0,3	6	80	150
2,5	23	8000	800

Met behulp van de door Oehlmann (2002) gerapporteerde dosis-effect relaties zijn grenswaarden berekend voor ISI-waarden 0,7 en 1,2 (Tabel 3), omdat dit op populatie-niveau relevante ISI-waarden zijn (Tabel 1).

Tabel 3 Grenswaarden voor TBT concentraties berekend uit dosis-effectrelaties voor water, sediment en interne gehalten, berekend met behulp van regressievergelijkingen uit Oehlmann (2002).*

ISI	TBT-water (ng Sn/L)	TBT-sed (µg Sn/kg)	TBT-intern (µg Sn/Kg)
0,1	1,8	25	0,76
0,3	7,3	82	127
0,7	12,0	229	272
1,2	15,5	525	399
2,5	23,4	8600	820

*Regressie formule voor inwendige concentraties bevat fout. +427 gewijzigd in -427

Bij de berekening van deze grenswaarden is geen rekening gehouden met de grote spreiding in de waarnemingen voor de dosis-effect relaties voor sediment- en interne-gehalten, omdat geen betrouwbaarheidsintervallen zijn gerapporteerd. Ter illustratie hiervan: als grenswaarde voor een ISI van 0,3 wordt een concentratie in sediment van ca. 80 µg/kg berekend en voor een ISI van 0,7 een grenswaarde van 230 µg/kg, terwijl de laagste sedimentconcentratie waarbij een ISI >0,3 werd aangetroffen ongeveer 300 µg/kg bedraagt en de hoogste concentratie in sediment waarbij de ISI <0,7 was 6000 µg/kg bedroeg. Hetzelfde geldt voor een ISI van 2,5, waarvoor een grenswaarde van 8000/8600 µg/kg berekend kan worden. Al bij een sediment concentratie van 700 µg/kg is een ISI >2,5 aangetroffen, terwijl nog tot 40.000 µg/kg ISI waarden <2,5 (ongeveer 1,5) gevonden kunnen worden.

Het is realistischer om rekening te houden met de waargenomen variatie. De datapunten in Figuur 2b lijken eerder bij een blokfunctie te horen dan bij een sigmoïde functie, zoals is gebruikt om grenswaarden te berekenen. Vanaf een concentratie in sediment van ongeveer 300 µg Sn/kg kunnen alle ISI waarden van 0,1 tot 3 voorkomen, daaronder is de ISI nooit hoger dan 0,4 (bij de gebruikte 40 monsters van 19 stations). Vanaf ongeveer 6000 µg/kg is de ISI >0,7. Is de concentratie in het sediment hoger dan 40.000 µg Sn/kg dan is de ISI altijd >2,5 en is de populatie alikruiken aan het weggwijnen (of al verdwenen).

Voor de interne TBT gehalten is deze relatie minder duidelijk. Gesteld kan worden dat een ISI >2,5 voor kan komen vanaf een interne concentratie van 300 µg Sn/kg, maar dat een ISI van 0,1 is geconstateerd bij een gehalte van >400 µg Sn/kg en ISI waarden tot 1,7 voor kunnen komen bij een intern gehalte lager dan 100 µg Sn/kg. De ISI is altijd ≥1,3 vanaf een intern gehalte van 600 µg/kg. Pas bij interne gehalten >1200 µg Sn/kg is de ISI structureel >2,5.

Samengevat levert dit de volgende waarden op (Tabel 4):

Tabel 4 Grenswaarden voor TBT concentraties, afgeleid uit Figuur 2b (sediment) en Figuur 2c (gehalte in alikruik). Concentraties in $\mu\text{g Sn/kg ds}$.

	sediment	alikruik
Signaalniveau (serieuze effecten mogelijk)	300	100
Alarmniveau (probleem waarschijnlijk)	6000	300
Probleem niveau	40000	1200

2.3 Relatieve gevoeligheid alikruiken

Alikruiken zijn vooral in beeld gekomen als organisme om de effecten van TBT te monitoren bij “gebrek aan beter”. Veel slakken zijn gevoeliger dan de alikruik, maar komen van nature niet of nauwelijks voor in de Nederlandse kustzone. De meest bekende soort is de purperslak, *Nucella lapillus*. Deze soort vertoont al een verhoogde mate van imposex na langdurige blootstelling aan concentraties rond of iets hoger dan 1 ng TBT-Sn/L, terwijl voortplanting bij TBT tin concentraties van 7-10 ng/L al onmogelijk is (Gibbs *et al.*, 1987; Barosso *et al.*, 2000; Oehlmann & Schulte-Oehlmann, 2002).

In Tabel 5 is de relatieve gevoeligheid van de alikruik (*Littorina litorea*) ten opzichte van enkele andere Noordzee soorten weergegeven op basis van Tabel 2 uit OSPAR (2003a). De soorten zijn vergeleken op basis van ‘Biological Assessment’ klassen, die zijn gebaseerd op de gevoeligste soort, de purperslak. Het is overigens niet duidelijk waarom in deze tabel een ISI van 0,5 wordt opgevoerd voor de overgang van klasse D naar E. In tabel 3 van hetzelfde document en in de studie voor RIKZ (Oehlmann, 2002) ligt de grens tussen ‘moderate’ en ‘poor’ bij 0,7.

Tabel 5 Relatieve gevoeligheid van enkele mariene slakken (uit OSPAR, 2003a)

Assessment class	Nucella (VDSI)	Neptunea (VDSI)	Nassarius/Buccinum (VDSI)	Littorina (ISI)
A	<0,3	<0,3		
B	0,3-<2,0	0,3-<2,0	<0,3	
C	2,0-<4,0	2,0-<4,0	0,3-<2,0	<0,3
D	4,0-5,0	4,0 (max)	2,0-3,5	0,3-<0,5
E	>5,0	4,0	>3,5	0,5-1,2
F	-	4,0	>3,5	>1,2

In ieder geval is het verschil met de purperslak heel duidelijk. Waar de ISI nog altijd lager dan 0,3 blijft, stijgt de VDSI bij purperslakken al naar 4. Dit treedt op bij TBT concentraties in het milieu kleiner dan 2 ng Sn/L. Bij hogere TBT concentraties stijgt de VDSI boven de 4 en wordt de populatie purperslakken steriel. Pas dan is er ontwikkeling van intersex waarneembaar in populaties alikruiken en stijgt de ISI boven wat door Oehlmann *et al.* (1998) achtergrond ruis genoemd wordt.

3. Huidige situatie in Nederland

3.1 Overzicht van beschikbare informatie

In 2002, 2003 en 2004 zijn op verschillende locaties langs de hele Nederlandse kust alikruiken bemonsterd om de intersex ratio (ISI) te bepalen. Voor zover mogelijk zijn op die locaties ook alikruiken, water en sediment bemonsterd voor analyse van het actuele TBT-gehalte. De methode om de ISI te bepalen is beschreven in Jol (2002).

In diverse monitoringprogramma's is informatie over TBT gehalten beschikbaar. In de MWTL betreft dit gehalten in sediment, water, zwevend stof en mosselen. Deze informatie is fragmentarisch en niet direct gerelateerd aan de locaties waar alikruiken zijn bemonsterd. De SPECIE-database (Schipper & Schout, 2004), opgebouwd met gegevens die verzameld worden naar aanleiding van onderhoudsbaggerwerkzaamheden, bevat gegevens over TBT in de baggerspecie. Deze gegevens komen gedeeltelijk overeen met de locaties waar alikruiken zijn verzameld (voor een deel zijn de alikruiken juist daar gezocht waar op basis van baggerspecie gegevens effecten verwacht konden worden).

In 2003 is langs de hele kust, van de Frans-Belgische grens tot in de Eems-Dollard, het organotin gehalte in zwevend stof bepaald (Åkerman *et al.*, 2004). Deze dataset is niet direct te relateren aan de locaties waar alikruiken zijn bemonsterd.

In de Westerschelde is door De Wolf (Universiteit Antwerpen) onderzoek gedaan naar de mate van intersex bij alikruiken. Dit onderzoek betreft de periode 1999-2002 (De Wolf *et al.*, 2001 & 2004).

Tabel 6 Overzicht van de herkomst van gebruikte data

Programma/project	Jaar	Lokaties	Compartment
SPECIE ¹⁾	1999-2002	600 Havenvakken	Baggerspecie (TBT, DBT, MBT)
MWTL ²⁾		15 Noordzee locaties	Zwevend Stof
SPECIE ³⁾	2003	Noordzee kust locaties	
MWTL ²⁾		7 Noordzee locaties	Sediment
MWTL ⁴⁾	2000-2004	8 locaties, mrt+nov	Biota (Mossel)
Intersex monitoring ⁵⁾	2002-2004	10 havenlocaties	ISI en TBT
Intersex monitoring ⁵⁾		kust locaties	
SPECIE ³⁾	2003	kustgebied	Zwevend stof

¹⁾ Schipper & Schout, 2004

²⁾ Donar: www.waterBase.nl en/of www.WaterStat.nl (per stroomgebied)

³⁾ Åkerman *et al.*, 2004

⁴⁾ Zande, 2004

⁵⁾ RIKZ

In Tabel 7 en Tabel 8 zijn de resultaten van de intersex monitoring in de Nederlandse kustwateren weergegeven voor respectievelijk locaties in open water en havengebieden.

Tabel 7 Overzicht gegevens uit intersex monitoring op locaties in open water langs de Nederlandse kust. ISI: intersex index; FPrL: relatieve penislengte; TBT-Sn TBT-gebonden tin; water: concentratie in water op de monsterlocatie (ng/L); sediment: concentratie in sediment op de monsterlocatie (µg/kg droge stof); weefsel: concentratie in alikruiken op de monsterlocatie (µg/kg ds); #: geen gegevens.

Code	Locatie	Jaar	ISI	FPrL	TBT-Sn water	TBT-Sn sediment	TBT-Sn weefsel
A	Noordzee kustzone						
A1	Hondsbosche zeeuwering	2002	0,00	-	<1,2	#	252,6
A2	IJmuiden zuidpier	2003	0,05	-	#	#	49,7
A3	Hoek van Holland-Scheveningen	2004	geen alikruiken	-	#	#	-
A4	Oostende (B)	2003	0,00	-	#	#	43,7
B	Waddenzee						
B1	Zwarte Haan	2003	0,00	-	#	#	41,5
B2	Afsluitdijk	2003	0,00	-	#	#	#
C	Eems-Dollard						
C1	Bocht van Watum	2003	0,00	-	#	#	134,3
D	Oosterschelde						
D1a	Oesterput	2002	0,00	-	<1,2	10,7	8,94
D1b	Oesterput	2003	0,00	-	#	#	25,6
E	Westerschelde						
E1	Fort De Ruijter	2002	0,05	-	#	#	#
E2	Fort Zoutman	2002	0,04	-	#	#	#
E3	Sloehaven mond west	2002	0,05	-	15,5	66,9	196,6
E4	Sloehaven mond oost	2002	0,04	-	#	#	#
E5	Kaloot west	2002	0,00	-	#	#	#
E6	Kaloot oost	2002	0,00	-	#	#	#
E7a	Inlaat kerncentrale west (juli)	2002	0,00	-	#	#	#
E7b	Inlaat kerncentrale west (oktober)	2002	0,15	-	1,6	#	74,2
E8	Inlaat kerncentrale oost	2002	0,00	-	#	#	#

Op de locaties in open water (Tabel 7) werden niet of nauwelijks alikruiken met intersex aangetroffen. Locatie E7 werd in 2002 twee maal onderzocht, omdat op basis van het onderzoek van De Wolf *et al.* (2001) een hogere ISI werd verwacht. Bij de tweede bemonstering werd wel een iets hogere ISI gevonden (0,15), maar dat is nog altijd veel lager dan de door De Wolf *et al.* (2001) in 1998 gevonden waarde van 1,26. Mogelijk is de TBT belasting in het gebied tussen 1998 en 2002 dusdanig afgenomen dat ook de mate van intersex sterk is afgenomen (Jol & Schipper, 2002).

De ISI waarden op deze locaties zijn zo laag, dat geen duidelijke relatie te verwachten valt met de TBT gehalten in de verschillende milieucompartimenten. Wat opvalt is het relatief hoge TBT gehalte in alikruiken die werden verzameld langs de Hondsbossche zeekering bij Petten. Berekend met de dosis-effect relatie van Oehlmann (2002) zou hier een ISI van 0,64 bij horen. Indien echter ook de spreiding in beschouwing wordt genomen (Figuur 2c) is ook te zien dat tot ongeveer 400 µg/kg nog ISI waarden <0,1 kunnen voorkomen.

Een tweede opmerkelijk punt is dat er, ondanks herhaaldelijk gericht zoeken, geen alikruiken gevonden konden worden op de strekdammen tussen Hoek van Holland en Scheveningen.

Tabel 8 Overzicht gegevensuit intersex monitoring in havengebieden langs de Nederlandse kust. ISI: intersex index; FPrL: relatieve penislengte; TBT-Sn TBT-gebonden tin; water: concentratie in water op de monsterlocatie (ng/L); sediment: concentratie in sediment op de monsterlocatie (µg/kg droge stof); weefsel: concentratie in alikruiken op de monsterlocatie (µg/kg ds); #: geen gegevens.

Code	Locatie	Jaar	ISI	FPrL	TBT-Sn water	TBT-Sn sediment	TBT-Sn weefsel
F	Delfzijl						
F1	Vak 8	2004	geen alikuiken	-	#	#	-
F2	Vak 10	2004	geen alikuiken	-	#	#	-
F3	Vak Z1 (havenmond)	2004	0,14	-	#	#	#
G	Eemshaven						
G1	Vak 10	2004	0,10	-	#	#	#
H	Lauwersoog						
H1	Vak 4	2004	2,58	2,69	#	#	#
I	Harlingen						
I1	Vak 1	2004	geen alikuiken	-	#	#	-
I2	Vak 4	2004	geen alikuiken	-	#	#	-
I3	Vak 16	2004	geen alikuiken	-	#	#	-
J	Den Helder						
J1	Vak 1	2004	geen alikuiken	-	#	#	-
J2	Vak 4 (Nwe Diep)	2004	geen alikuiken	-	#	#	-
J3	Vak 5	2004	2,86	3,20	#	#	#
J4	Vak 8	2004	3,00	4,88	#	#	#
J5	Vak 10 (Nwe Diep)	2004	geen alikuiken	-	#	#	-

Code	Locatie	Jaar	ISI	FPrL	TBT-Sn water	TBT-Sn sediment	TBT-Sn weefsel
K	IJmuiden						
K1a	Vak 13U Blokkensteiger	2002	1,18	0,71	1,6	#	362,5
K1b	Vak 13U Blokkensteiger	2004	1,38	1,90	#	#	#
K2	Vak Q	2004	geen aliquiken	-	#	#	-
K3	Vak 20ZJ	2004	geen aliquiken	-	#	#	-
L	Scheveningen						
L1	Vak 2 Oude zuiderhoofd	2004	0,48	0,15	#	#	#
L2	Vak 7	2004	geen aliquiken	-	#	#	-
L3	Vak 9	2004	geen aliquiken	-	#	#	-
M	Rijnmond						
M1	Vak 96 Calandkanaal	2004	0,70	0,76	#	#	#
M2-10	Europoort	2004	geen aliquiken	-	#	#	-
N	Yerseke						
N1	Vak 2(J) Kon. Julianahaven	2004	0,86	1,16	#	#	#
N2	Vak 4 (B) Prinses Beatrixhaven	2004	0,80	0,74	#	#	#
N3	Vak 6 PWA haven	2004	1,15	1,93	#	#	#
O	Vlissingen						
O1	Scheldepootwerf (land)	2002	1,93	1,71	93,3	41765	1596
O2	Vak 2A (Scheldepoot)	2004	2,60	4,01	#	#	#
O3	Vak 5 (Quarleshaven)	2004	0,90	0,48	#	#	#
O4	Vak 8 (Quarleshaven)	2004	0,52	0,42	#	#	#
O5	Vak 13 (Kaloorthaven)	2004	1,52	1,61	#	#	#

Op veel locaties in de havengebieden (Tabel 8) werden geen aliquiken gevonden, zodat geen ISI bepaald kon worden. Historische gegevens over het voorkomen van aliquiken op die locaties ontbreken echter, zodat niet duidelijk is of de populaties zijn verdwenen als gevolg van een (te) hoge TBT belasting, of dat ze er niet voorkomen omdat de milieu omstandigheden niet geschikt zijn. Bij dit laatste valt ondermeer te denken aan de saliniteit, die in (delen van) deze havengebieden waarschijnlijk structureel of periodiek te laag is voor aliquiken.

Daar waar wel aliquiken aanwezig waren, bleken de ISI-waarden structureel hoger te zijn dan op de ‘open water’ locaties. Alleen in de Eemshaven (G1, nabij de monding) en de haven van Delfzijl (F3, monding van het havenkanaal) werden ISI

waarden gevonden die vergelijkbaar waren met de (hoge) ISI-waarden van de ‘open water’ locaties.

Een vergelijking van de ISI waarden met TBT-gehalten is niet mogelijk, omdat maar van twee locaties TBT metingen beschikbaar zijn. De ISI waarde in IJmuiden (K1a) is iets hoger dan op basis van de dosis-effect relaties voor de verschillende milieucompartimenten verwacht zou mogen worden (ca. 1), maar bij de Scheldepoortwerf (O1) juist veel lager. Hier zijn de gemeten TBT concentraties zo hoog dat eigenlijk geen alikruiken meer verwacht zouden worden.

Aangezien er uit de intersex monitoring te weinig gegevens beschikbaar zijn om de gevonden ISI-waarden direct te relateren aan TBT gehalten in de milieucompartimenten ter plaatse, zijn ook gegevens uit andere monitoring projecten (MWTL en SPECIE) gebruikt om de ISI te relateren aan TBT-gehalten in het milieu.

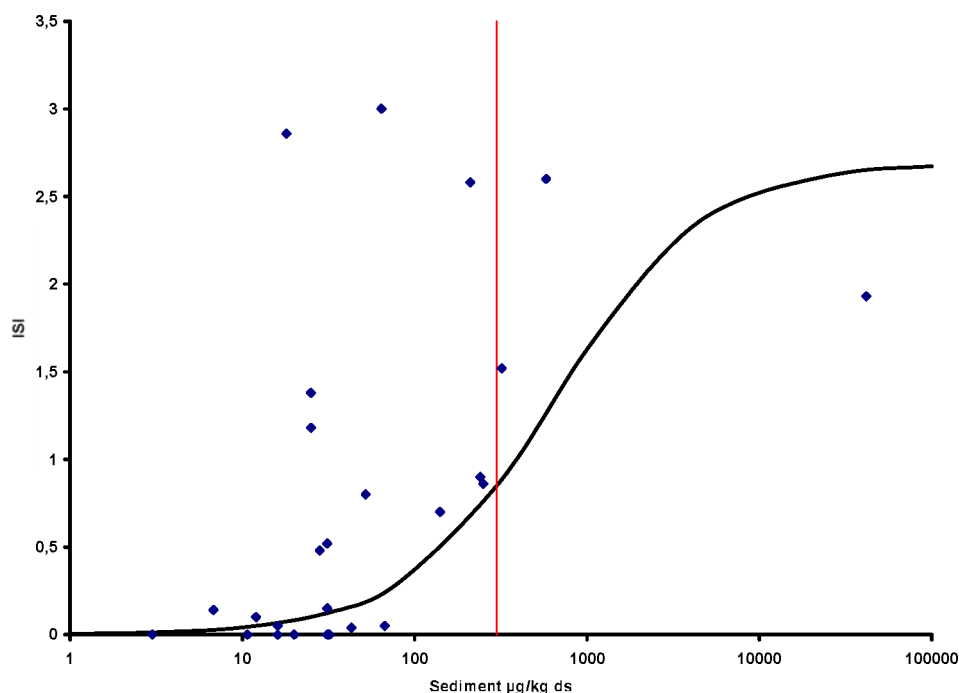
3.2 Intersex en TBT in sediment

Om de ISI waarden te kunnen relateren aan TBT gehalten in sediment zijn voor de havenvakken de gegevens uit het programma SPECIE gebruikt (Tabel 9). De beschikbare dataset bevatte TBT metingen uit de jaren 1999-2002 (Schipper & Schout, 2004). Voor de vakken waarvoor gegevens beschikbaar waren is het hoogste TBT gehalte uit deze periode gebruikt. Indien van een vak geen gegevens beschikbaar waren is de hoogste waarde uit een naburig vak gehanteerd. In het Rijnmond gebied (Europoort) varieerden de TBT gehalten sterk. Hier is voor de vakken waarvoor geen TBT gehalte bekend was uit de intersex monitoring alleen de range van maximale TBT gehalten in de onderzochte (M2-M10) vakken aangegeven. Het hoogst gemeten TBT gehalte in het Rijnmond gebied was 1000 µg/kg.

De gegevens uit Tabel 9 zijn weergegeven in Figuur 3. De monsterpunten waar geen alikruiken gevonden werden zijn weggelaten. Ter vergelijking is ook de dosis-effectrelatie voor sediment (Oehlmann, 2002) in de figuur geplot, evenals de grenswaarde (signaalniveau) van 300 µg/kg (Tabel 4).

Tabel 9 Overzicht van TBT gehalten in sediment (als TBT-Sn in µg/kg ds). Zie Tabel 7 en Tabel 8 voor de betekenis van de codes.

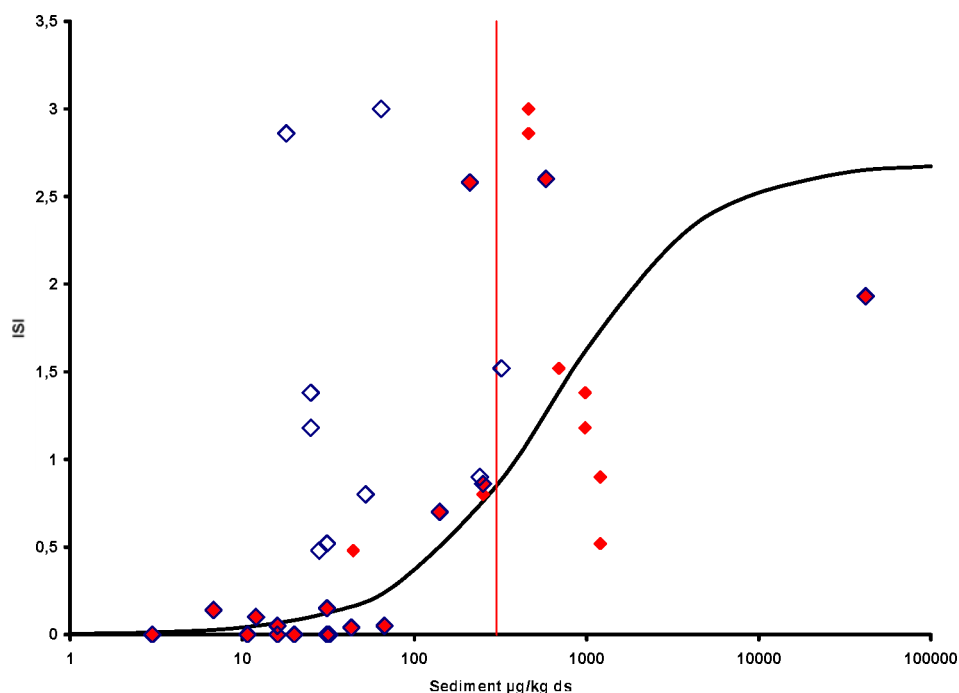
Code	ISI	TBT sediment	Opmerkingen
A	0,00-0,05	16	
B	0,00	32	
C	0,00	20	maximale waarde 1999-2002
D	0,00	10,7	intersex monitoring D1
E1	0,05	16	Max Vak 15 Vlissingen
E3	0,05	66,9	intersex monitoring
E4	0,04	43	Max Vak 1 Vlissingen Sloehaven
E5	0,00	3	Max Vak 14 Vlissingen
E5-E8	0,00-0,15	31	Max Vak 16 Vlissingen
F1	geen alikruiken	464	Max 1999-2002
F2	geen alikruiken	562	Max 1999-2002
F3	0,14	6,8	Max 1999-2002
G	0,10	12	Max vak 1-3, 1999
H	2,58	210	1999
I	geen alikruiken	1700	Max in haven
J1	geen alikruiken	84	Max 1999-2002
J2	geen alikruiken	150	2000
J3	2,86	18	1999
J4	3,00	64	1999
J5	geen alikruiken	460	2000
K1	1,18-1,38	25	Max 1999-2002
K2	geen alikruiken	100	Max 1999-2002
K3	geen alikruiken	290	2000
L1	0,48	28	Max 1999-2002
L2-L3	geen alikruiken	212-3800	Resp. max 1999-2002
M1	0,70	140	Max 1999-2002
M2-M10	geen alikruiken	10-615	Lokale maxima 1999-2002
N1	0,86	250	2000
N2	0,80	52	2001
O1	1,93	41765	intersex monitoring
O2	2,60	580	Max 1999-2002
O3	0,90	240	Vak 11 Max 1999-2002
O4	0,52	31	Max 1999-2002
O5	1,52	320	Max 1999-2002



Figuur 3 Relatie tussen TBT gehalte in sediment (data uit Tabel 9) en ISI. Curve: dosis-effect relatie Oehlmann (2002); verticale rode lijn: Grenswaarde 300 $\mu\text{g/kg}$.

Figuur 3 laat eigenlijk hetzelfde beeld zien als Figuur 2b: er is geen sprake van een duidelijk sigmoïde curve, maar meer van een grenswaarde. Onder deze grenswaarde zijn de ISI waarden laag, daarboven kunnen ze variëren tussen 0 (geen intersex) en 3 (maximale intersex). Vergelijken met Figuur 2b ligt de grenswaarde echter ruim een factor 10 lager.

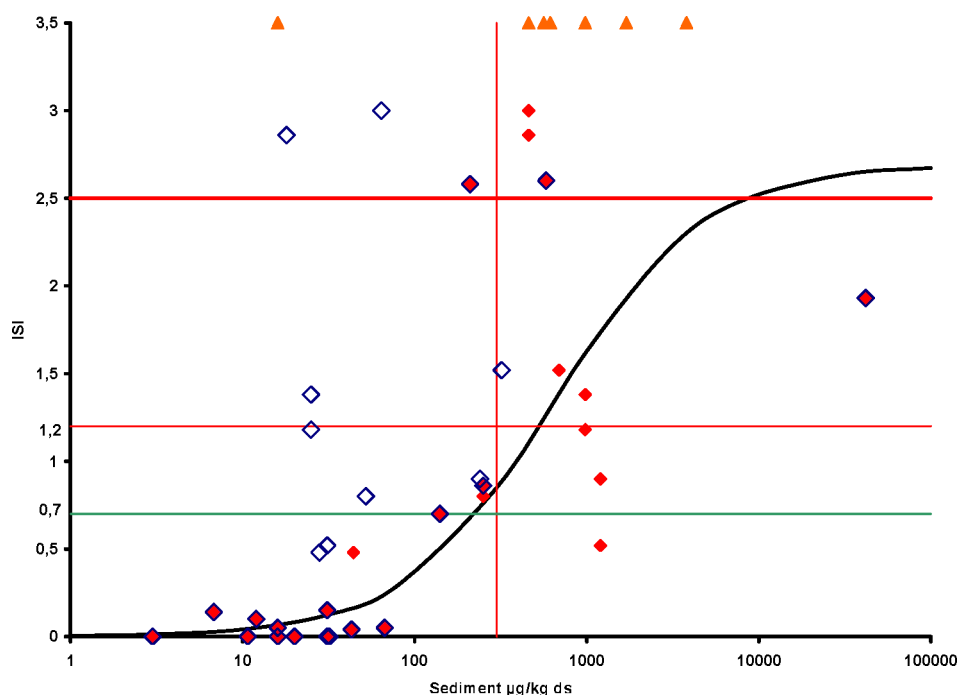
Voor een andere analyse van de relatie tussen TBT-gehalte in sediment en waargenomen ISI is voor enkele locaties in havens de ISI-waarde gekoppeld aan het hoogste sediment gehalte van een naburig vak (L1, O3-5), of zelfs het hoogste gehalte in het hele havengebied (J3-4, K1, N2) (Figuur 4). Voor de andere locaties was geen alternatief beschikbaar.



Figuur 4 Relatie tussen TBT gehalte in sediment en ISI. Curve: dosis-effect relatie Oehlmann (2002); verticale rode lijn: Grenswaarde 300 µg/kg. Open ruitjes: gebaseerd op maximaal TBT gehalte bij de meetpunten intersex (Tabel 9); gesloten rode ruitjes: gebaseerd op maximale TBT-gehalten in havengebieden.

Door gebruik te maken van hogere sedimentgehalten komen de ISI-waarden beter in de buurt van de curve voor de dosis-effect relatie te liggen. Er blijft echter sprake van een grote spreiding in ISI-waarden, maar nu vanaf een grenswaarde van ongeveer 200 µg/kg. Er is sprake van een relatief hoge ISI waarde op de locaties G1 (Lauwersoog), J3 en J4 (Den Helder) en O2 (Vlissingen Scheldepoort). De ISI-waarden zijn daarentegen relatief laag op drie andere locaties in Vlissingen (O1, O3 en O4).

Tenslotte zijn ook de meetpunten toegevoegd waar geen alikruiken werden gevonden, gekoppeld aan het maximale TBT-gehalte in de hele (haven)locatie (Figuur 5). Hierbij is de ISI voor ontbrekende alikruiken arbitrair op 3,5 gesteld. Dit laat zien dat het TBT-gehalte in sediment zeker een rol kan spelen bij het ontbreken van alikruiken, aangezien vrijwel alle locaties zonder alikruiken rechts van de grenswaarde van 300 µg/kg liggen. Alleen het kustgebied tussen Hoek van Holland en Scheveningen springt er uit door het ontbreken van alikruiken, terwijl het TBT gehalte in het sediment laag is (1 km uit de kust 16 µg/kg in 2003).



Figuur 5 Relatie tussen TBT gehalte in sediment en ISI als in Figuur 4. Toegevoegd (driehoeken) de locaties zonder alikruiken (ISI 3,5) en lijnen die de ISI grenswaarden van 0,7, 1,2 en 2,5 weergeven.

3.3 Relatie met TBT in andere compartimenten

Uit andere milieucompartimenten dan sediment zijn minder gegevens bekend over TBT concentraties dan voor baggerspecie. De meetlocaties komen nauwelijks overeen met de intersex monitoring.

Water

Tijdens de intersex monitoring zijn in 2002 op 6 locaties watermonsters genomen voor analyse van het TBT gehalte (Tabel 7 en Tabel 8). De TBT gehalten in water vertoonden echter geen duidelijke relatie met de waargenomen ISI. Op 3 locaties met lage ISI (maximaal 0,15 in E7) was de TBT concentratie in water ook laag (maximaal 1,6 ng/L). Daarentegen werd bij de monding van de Sloehaven (E3) bij een ISI van 0,05 een relatief hoog TBT gehalte gevonden (15,5 µg/L). Berekend met de dosis-effect relatie van Oehlmann (2002) zou dit een ISI van ongeveer 1,2 moeten opleveren. Ook bij de Scheldespoortwerf (O1) was de ISI relatief laag (1,93). De dosis-effect relatie van Oehlmann (2002) bereikt al bij 30 ng/L de maximale ISI van 3 (Figuur 2a). Bij de Blokkensteiger in IJmuiden, daarentegen werd juist een relatief lage TBT concentratie gemeten van 0,6 ng/L, waar op basis van de ISI een concentratie van ruim 15 ng/L verwacht kon worden.

In het kader van het MWTL is in de havens van Breskens (Westerschelde) en Colijnsplaat (Oosterschelde) TBT gemeten in de waterfase. De TBT concentraties varieerden van <1,2 tot 40 ng Sn/L. Deze concentraties zijn vergelijkbaar met concentraties die begin jaren '90 werden gemeten (Ritsema, 1994). Er is niet gekeken naar intersex in deze havens, maar op basis van de gemeten concentraties kan een hoge ISI verwacht worden. In Tabel 10 is een overzicht van de TBT concentraties in water weergegeven, alsmede voor Breskens en Colijnsplaat een berekende ISI op basis van de maximale TBT-concentratie in water in 2002.

Tabel 10 Overzicht TBT concentraties in water (ng Sn/L). Hoogst gemeten concentratie per jaar voor Breskens en Colijnsplaat, alsmede een verwachte ISI op basis van de hoogste concentratie in 2002..

		1999	2000	2001	2002	ISI
Breskens	Landzijde	3,6	12,4	37,1	11,2	0,61
	midden	19,5	4,4	14,7	12,0	0,70
	mond	6,8	12,8	14,4	10,8	0,57
O1	Scheldepootwerf				93,3	
E3	mond Sloehaven				15,5	
E7	Borssele				1,6	
Colijnsplaat	Landzijde	7,6	7,2	6,4	17,9	1,60
	midden	14,7	8,4	16,7	6,8	0,27
	mond	39,9	5,2	23,9	23,9	2,56
D1	Oesterput				<1,2	
K1a	IJmuiden				1,6	
A1	Hondsbossche				<1,2	

Zwevend stof

In het MWTL zijn TBT gehalten in zwevend stof bepaald op een aantal locaties in de Westerschelde van de grens met België (Schaar van Oude Doel) tot voor de monding (Wielingen), in het Rijnmond gebied bij Maassluis en bij IJmuiden in het Noordzeekanaal. In 2003 is door het RIKZ (Åkerman *et al.*, 2004) TBT in zwevend stof onderzocht in het hele kustgebied, van de Frans-Belgische grens tot in de Eems-Dollard en in de Buitenhaven bij IJmuiden. De resultaten zijn weergegeven in Tabel 11.

In de kustzone (open water) zijn de TBT gehalten in zwevend stof over het algemeen lager dan in de Westerschelde en de havengebieden. De hoogste TBT gehalten komen voor in de Westerschelde en in het Noordzeekanaal. Vooral in het Noordzeekanaal, vlak voor de sluizen, zijn de TBT gehalten in zwevend stof zeer hoog. Hier is de laagst gemeten concentratie (112,7 µg Sn/L) zelfs vergelijkbaar met de hoogste concentraties in de Westerschelde. Opvallend hoog zijn de TBT gehalten in het open water voor de kust van Zuid-Holland. Deze zijn te vergelijken met, zelfs hoger dan, TBT gehalten bij de monding van de Westerschelde, bij Maassluis en in de Buitenhaven van IJmuiden.

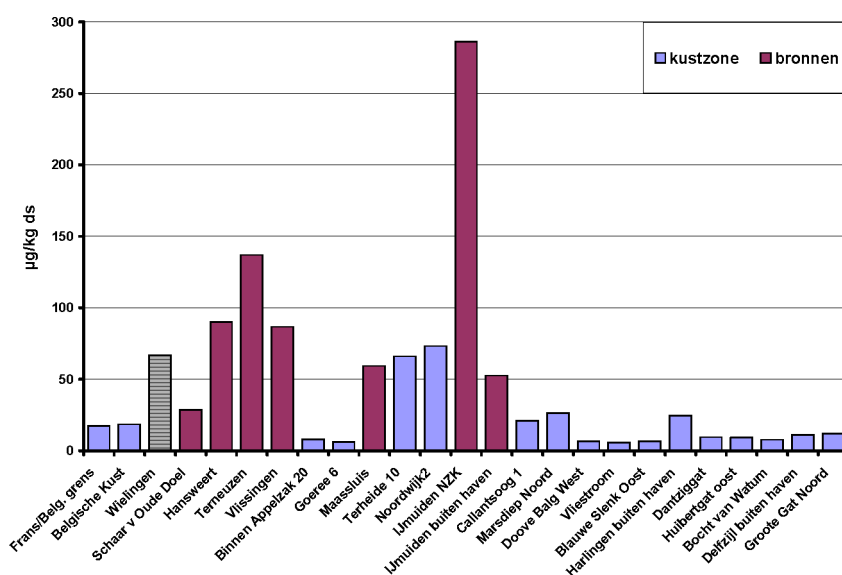
Overigens moet worden opgemerkt, dat niet zondermeer gesteld kan worden dat in de kustzone lagere TBT gehalten voorkomen. Het betreft hier een eenmalige

bemonstering, waaruit de variatie gedurende het jaar niet blijkt. Uit de range met minimum-gehalten in Tabel 11 valt af te leiden dat dergelijke lage TBT gehalten ook in de Westerschelde en bij Maassluis gevonden kunnen worden.

Tabel 11 TBT gehalten in zwevend stof ($\mu\text{g Sn/kg}$) voor meetlocaties in de kustzone, Westerschelde, Rijnmond (Maassluis) en IJmuiden/Noordzeekanaal. Min range geeft het laagste en hoogste minimum gehalte dat in de weergegeven periode is gevonden. Volgorde van zuidwest naar noordoost.

Locatie	1999	2000	2001	2002	2003	Min range
Grens Fr-B					17,5	
Grens B-NL					18,5	
Binnen Appelzak 20					8,1	
Westerschelde						
Sch Oude Doel			28,6	28,6		16,4-20,5
Hansweert				90,0		57,3
Terneuzen	159,5	126,8	114,5	147,2		16,4-36,8
Vlissingen/Breskens	80,2	75,3	80,6	110,4		26,6-30,7
Wielingen (monding)	53,2	56,0	54,4	90,0		10,6-26,6
Goeree 6					6,2	
Maassluis	85,9	81,8	28,6	40,9		2,0-8,6
Ter Heide 10					66,1	
Noordwijk 2					73,2	13,5
IJmuiden						
Buitenhaven					52,5	
Noordzeekanaal			327,2	245,4		122,7
Callantsoog 1					21,0	
Marsdiep Noord					26,2	
Doove Balg west					6,6	
Vliestroom					5,8	
Blauwe Slenk oost					6,5	
Harlingen buiten haven					24,6	
Dantziggat					9,5	
Huibertgat oost					9,2	
Bocht v Watum					7,7	
Delfzijl buiten haven					11,1	
Groote Gat Noord					12,0	

In Figuur 6 zijn de TBT gehalten grafisch weergegeven, waarbij de kustlocaties een andere kleur hebben dan mogelijke brongebieden als Westerschelde en de havenlocaties. Locatie Wielingen ligt iets ten zuiden van de monding van de Westerschelde en kan tot beide groepen gerekend worden en heeft daarom een gemengde arcering.

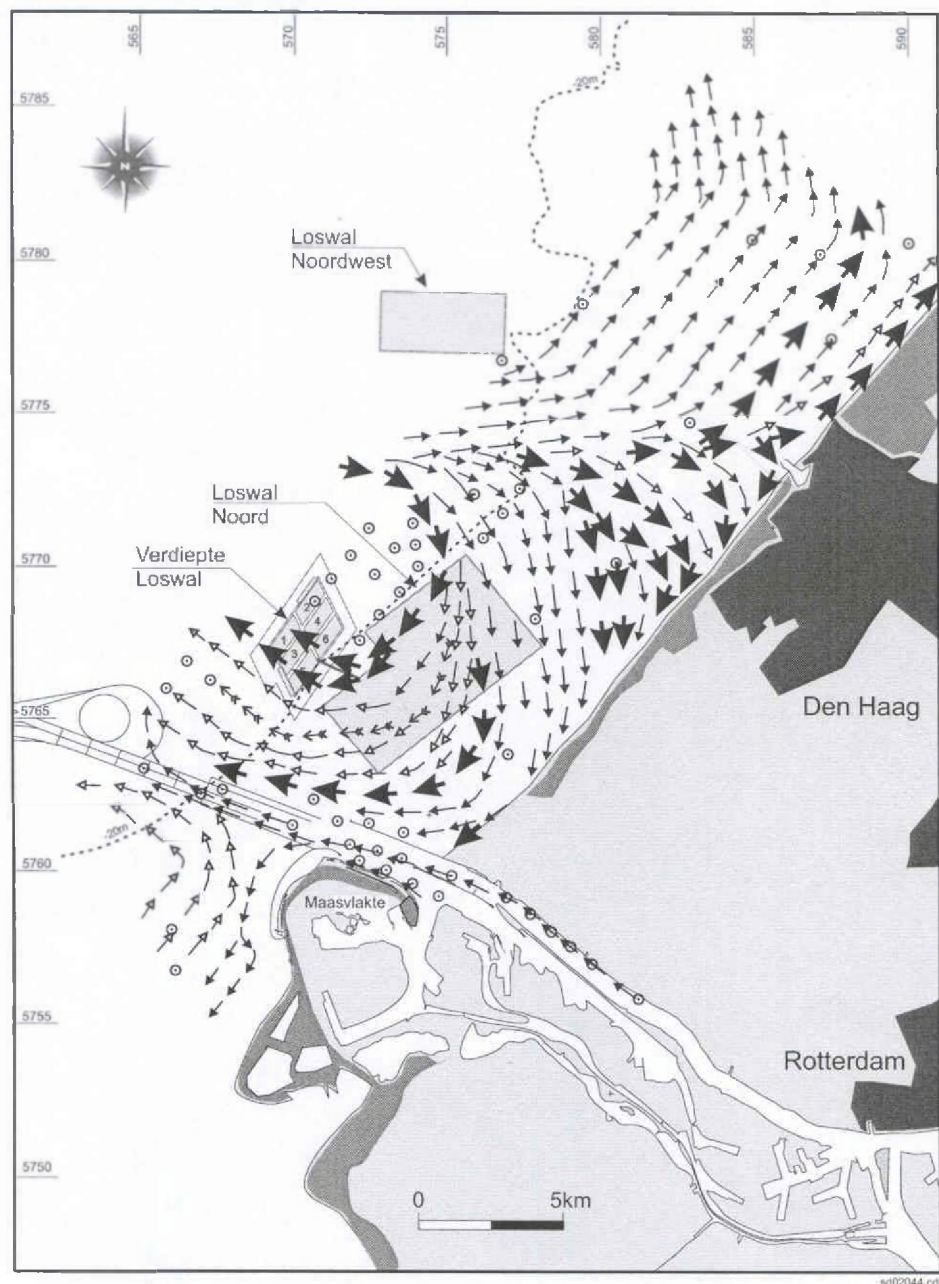


Figuur 6 TBT gehalte in zwevend stof ($\mu\text{g Sn/kg ds}$). De meetpunten in de kustzone zijn blauw weergegeven, mogelijke brongebieden in rood. Meetpunt Wielingen voor de monding van de Westerschelde kan in beide categorieën ingedeeld worden.

Duidelijk zijn in Figuur 6 de hoge TBT gehalten in Westerschelde, IJmuiden en Maassluis te zien, evenals de verhoogde TBT gehalten in de kustzone daar vlakbij. Ook in het Marsdiep, tussen Den Helder en Texel, en voor de haven van Harlingen lijken de TBT gehalten iets hoger dan elders in de Waddenzee.

De hoge concentraties voor de kust van Zuid-Holland verdienen speciale aandacht. Zoals al is opgemerkt in paragraaf 3.1, konden langs de kust tussen Hoek van Holland en Scheveningen geen alikruiken gevonden worden. Direct in de strandzone, waar de alikruiken voor zouden moeten komen op de harde substraten, zijn geen TBT analyses verricht. Uit het patroon van netto-zandtransport voor de Zuid-Hollandse kust (Figuur 7) blijkt echter dat de baggerspecie die gestort werd (tot 1996) op Loswal Noord, voor een (groot) deel wegspoelt naar de kust. Gedeeltelijk in noordelijke richting (meetpunt Noordwijk 2), maar ook in zuidelijke richting, waarna het uiteindelijk weer terugkomt in de Europoort waar het verwijderd werd. Het meetpunt Ter Heijde 10 ligt bij Loswal Noord en geeft daarmee een indicatie voor een potentiële hoge TBT belasting van de kustzone tussen Hoek van Holland en Scheveningen.

Overigens dient te worden opgemerkt, dat de blootstelling van organismen aan TBT niet alleen afhangt van het TBT-gehalte in het zwevend stof, maar ook van de concentratie zwevend stof in het water.



Figuur 7 *Patroon van netto-zandtransport langs de Zuid-Hollandse kust (uit Stutterheim, 2002).*

Interne TBT gehalten in biota

Tijdens de intersex monitoring zijn op elf locaties extra alikruiken verzameld om het TBT gehalte in het vlees te bepalen (Zande, 2004). Het merendeel van de monsters is echter afkomstig van locaties met een lage ISI. Slechts twee monsters werden verzameld op locaties met een verhoogde ISI (Tabel 7 en Tabel 8). Een dosis-effect relatie valt daarom niet uit deze gegevens af te leiden. Wel kunnen de interne gehalten in de alikruiken van de twee locaties met verhoogde ISI

vergeleken worden met de dosis-effect relatie van Oehlmann (2002).

Bij de Blokkensteiger in IJmuiden (K1a in Tabel 8) werd een ISI van 1,18 gevonden, waarbij een intern gehalte van 394 µg Sn/kg zou passen. Gevonden werd een intern gehalte van 362 µg Sn/kg, passend bij een ISI van 1,05. Een gering verschil.

Bij de Scheldepoortwerf in de Sloehaven bij Vlissingen (O1 in Tabel 8) werd een ISI van 1,93 gevonden, passend bij een intern gehalte van 580 µg Sn/kg).

Gevonden werd een intern gehalte van 1596 µg Sn/kg, passend bij een ISI van 2,7. Hier komen ISI en intern gehalte dus niet goed overeen, zelfs niet als rekening wordt gehouden met de spreiding in data bij Oehlmann (Figuur 2c).

Daarnaast zijn uit het MWTL TBT gehalten in mosselvlees bekend, na 6 weken blootstelling in het veld (ABM) (Tabel 12). De locaties waar de mosselen zijn blootgesteld zijn niet direct te vergelijken met de locaties waar alikruiken voorkomen, aangezien de mosselen aan boeien in open water worden gehangen, terwijl alikruiken in het litoraal voorkomen. Als indicatie voor mogelijke effecten bij alikruiken zijn de interne gehalten in mosselen omgerekend naar een ISI bij alikruiken, met behulp van de dosis-effect relatie van Oehlmann (2002).

Tabel 12 TBT gehalten in uitgehangen mosselen en ISI voor alikruiken berekend met dosis-effect relatie voor interne gehalten bij alikruiken (Oehlmann, 2002).

Regio	Gebied	TBT Sn µg/Kg ds	berekende ISI
Waddenzee	Dantziggat (Ameland)	15-131	0,12-0,31
	Malzwin	57-176	0,17-0,41
Oosterschelde	Yerseke	28-131	0,13-0,31
	Wissenkerke	34-147	0,14-0,34
	Jacobahaven	18-90	0,12-0,23
Westerschelde	Hansweert	262-389	0,67-1,16
	Vlissingen	168-368	0,39-1,07

Hoge TBT gehalten in mosselvlees worden vooral waargenomen in de Westerschelde. De laagst gemeten gehalten op de meetpunten Hansweert en Vlissingen zijn zelfs hoger dan de hoogst gemeten gehalten op de andere locaties. Dit duidt op een hoge beschikbaarheid van TBT in de waterfase. Bij alikruiken zou dit moeten resulteren in een hoge ISI. Dit is in de Westerschelde zelf echter niet gevonden. Alleen De Wolf *et al.* (2001; 2004) vonden verhoogde ISI waarden in de Westerschelde, tot maximaal 1,3, vergelijkbaar met de hoogst geïndiceerde waarde bij Vlissingen. Dergelijke hoge waarden werden echter wel aangetroffen in de meer besloten havengebieden (vgl. Sloehaven O2). Hetzelfde geldt voor de andere monsterpunten. De potentiële ISI is hoger dan in het gebied wordt aangetroffen, maar in de havengebieden worden hogere ISI waarden geconstateerd.

Het lijkt er dus op dat het risico voor alikruiken in open water enigszins overschat wordt door de in mosselen geaccumuleerde TBT-gehalten. Dit wordt mogelijk veroorzaakt doordat mosselen actieve filter-feeders zijn, die grote volumes water inclusief zwevend stof filtreren. Bij onderzoek onder sympatrisch levende strandgapers (*Mya arenaria*), filter-feeders, en alikruiken, grazers, bleek dat strandgapers TBT veel sterker accumuleerden dan alikruiken (Kure & Depledge, 1994).

4. Doorvertaling naar ecosystemen

Over de effecten van TBT op het niveau van levensgemeenschappen en ecosystemen is zeer weinig bekend. Wel is bekend dat TBT wereldwijd heeft geleid tot het lokaal verdwijnen van gevoelige soorten (Oehlmann & Schulte-Oehlmann, 2002).

Met behulp van de indeling in Assessment Classes, die is gebaseerd op de effecten bij de purperslak (OSPAR, 2003a, zie Tabel 5) kan een globale indicatie van de effecten op ecosysteemniveau verkregen worden. Dit is weergegeven in Tabel 14. Het onderscheiden vermogen van deze methode is gering.

Een indirecte manier om effecten op ecosystemen te benaderen is het gebruik van PEC/PNEC risico analyse (zie paragraaf 1.2.3). De PEC:PNEC ratio (of risico karakterisatie factor, RCR) is een indicatie voor de waarschijnlijkheid van het optreden van (eco)systeem effecten. In plaats van een voorspelde (predicted) concentratie, kan ook gebruik gemaakt worden van een gemeten concentratie (uit monitoring), of een afgeleide concentratie. De ISI waarden kunnen met behulp van de dosis-effect relatie van Oehlmann (zie voorgaande hoofdstukken) worden omgerekend naar een 'historische' blootstellingsconcentratie.

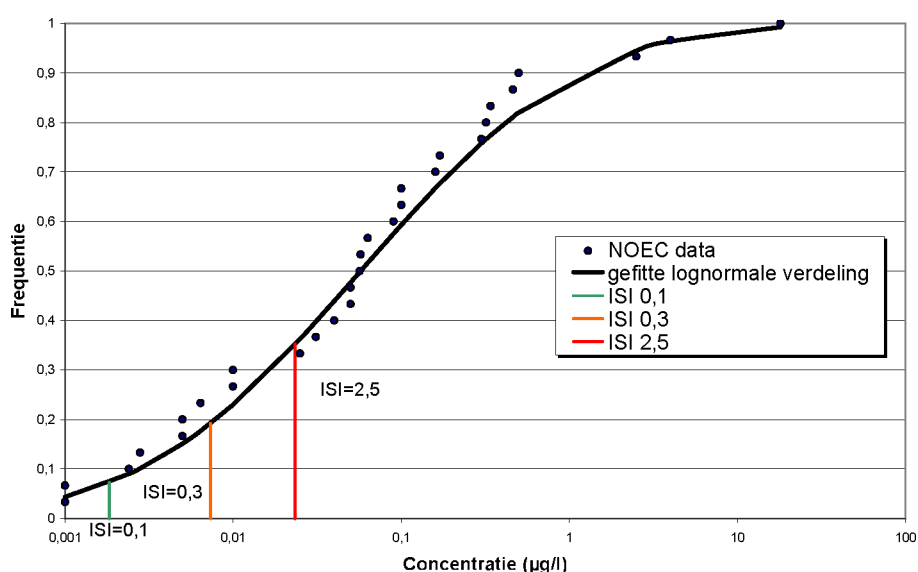
De PNEC kan worden afgeleid volgens de methodiek die is beschreven in het 'Technical Guidance Document on Risk Assessment, Part II, Environmental risk assessment (ECB, 2003). De PNEC is gebaseerd op de laagste NOEC die beschikbaar is. Voor TBT is dat 1 ng Sn/L (Gibbs *et al.*, 1987). Afhankelijk van de hoeveelheid en de aard van de data wordt deze NOEC gedeeld door een assessment factor. Voor TBT zijn PNEC's berekend voor water, sediment en zwevend stof door Lepper (2002). Aangezien voldoende toxiciteitsgegevens beschikbaar waren is de NOEC gedeeld door de laagste assessment factor (10) hetgeen resulteert in een PNEC van 0,1 ng/L. In Tabel 13 zijn als voorbeeld de risicoquotiënten uitgezet bij verschillende ISI waarden.

Tabel 13 Risico karakterisatie factoren (RCR) voor het effect van TBT op ecosysteemniveau bij verschillende ISI waarden, berekend met de PNEC voor TBT in water

ISI	TBT-water (ng Sn/L)	RCR
0,1	1,8	18
0,3	7,3	73
0,7	12,0	120
1,2	15,5	155
2,5	23,4	234

Deze RCR-waarden zijn echter vrij abstract en vooral handig om scenario's te vergelijken. Bovendien zijn de PNEC waarden zo laag, dat ze vaak beneden de detectiegrens van de analyse methoden zullen vallen.

Een PNEC kan echter ook berekend worden door middel van SSD's (Species Sensitivity Distribution), curves die de relatieve gevoeligheid van verschillende soorten weergeven. Lepper (2002) heeft voor TBT ook een PNEC berekend met behulp van een SSD. De waarde van deze PNEC (0,18 ng Sn/L) wijkt op zich nauwelijks af, van de PNEC gebaseerd op de laagste NOEC, maar belangrijker is dat met de SSD berekend kan worden welk percentage van de soorten beïnvloed wordt bij een bepaalde concentratie TBT. Hiervoor hebben we de door Lepper gebruikte data uitgezet in een grafiek om de SSD te bepalen. Dit is weergegeven in Figuur 8.



Figuur 8 SSD curve voor TBT op basis van toxiciteitsdata in Lepper (2002), met aangegeven de ligging van drie ISI grenswaarden.

Uit Figuur 8 kan worden afgeleid dat bij een ISI van 2,5, als bij de alikruik de populatie volledig steriel is, bij 35% van de soorten effecten te verwachten vallen. Bij een ISI van 0,3, geen serieuze effecten bij de alikruik, wordt bijna 20% van de soorten beïnvloed en zelfs bij een ISI van 0,1 is nog altijd 7% van de soorten niet beschermd. Hierbij moet dan wel bedacht worden dat deze 7% gedomineerd wordt door soorten uit een beperkte groep, de slakken.

Op deze wijze kan dus een biologisch relevant effect dat is waargenomen bij een soort, via een gevalideerde dosis-effect relatie, worden omgezet in een risico (% bedreigde soorten) voor een ecosysteem. Op een vergelijkbare manier kunnen TBT-gehalten in de verschillende milieucompartimenten worden gerelateerd aan een risico voor het ecosysteem. De TBT concentraties in water kunnen in principe direct aan de SSD gerelateerd worden, zoals ook is gedaan voor de ISI in paragraaf 3.3. In deze paragraaf bleek echter al dat in dit onderzoek de relatie tussen TBT concentratie in water en de ISI niet zo eenduidig is.

Aangezien er geen SSD's zijn voor sediment en zwevend stof kunnen de TBT-gehalten in deze compartimenten niet direct aan een SSD gerelateerd worden. TBT-gehalten in zwevend stof en sediment kunnen met behulp van verdelingscoëfficiënten worden omgerekend in TBT concentraties in water. Verdelingscoëfficiënten zijn echter niet constant, maar hangen af van milieuomstandigheden. Dit geldt in zekere mate ook voor de BCF, waarmee gehalten in organismen kunnen worden teruggerekend naar blootstellingconcentraties in water. Ook een tussenstap via de ISI ligt niet voor de hand, aangezien de dosis-effect relaties voor sediment en gehalte in alikruik zwak zijn.

Om deze redenen beperken wij ons in dit rapport tot een voorlopige analyse van risico's voor het mariene ecosysteem, die is gebaseerd op gemeten ISI bij alikruiken. In Tabel 14 is voor de gemeten ISI-waarden in de Nederlandse wateren een risico indeling gegeven op basis van de drie hierboven besproken methoden. Voor de locaties waar geen alikruiken konden worden gevonden is geen risico aangegeven, omdat de afwezigheid van alikruiken niet onomstotelijk aan TBT-blootstelling kan worden geweten.

Tabel 14 Overzicht van risico 's op basis van de gemeten ISI voor het ecosysteem, berekend met verschillende methoden. Locatiecodes als in Tabel 7 en Tabel 8.

Locatiecode	ISI	Assessment Class (OSPAR, 2003a)	RCR (PEC/PNEC)	% niet beschermde soorten (SSD)
A, B, C, D, E	0,00-0,05	A-C	<0	<0
G1	0,10	A-C	18,3	7,3
F3	0,14	A-C	34,8	11,8
E10	0,15	A-C	38,2	12,6
L1	0,48	D	98,4	22,8
O4	0,52	E	103	23,4
M1	0,70	E	120	25,4
N2	0,80	E	128	26,3
N1	0,86	E	133	26,8
O3	0,90	E	136	27,1
N3	1,15	E	152	28,8
K1a	1,18	E	154	28,9
K1b	1,38	F	166	30,0
O5	1,52	F	174	30,7
O1	1,93	F	198	32,6
H1	2,58	F	240	35,6
O2	2,60	F	242	35,7
J3	2,86	F	266	37,3
J4	3,00	F	285	38,4

5. Discussie

5.1 Effecten van TBT in Nederlandse zoute wateren

De schadelijke effecten van TBT in het mariene milieu werden gedurende de jaren '70 van de vorige eeuw herkend en kwamen in de jaren '80 volop in de belangstelling. Ook in Nederland werden de effecten van TBT zichtbaar. De populatie purperslakken in het Deltagebied ging sterk achteruit. Bij onderzoek in 1988 bleek dat hier sprake was van een hoge graad van imposex. Zelfs op referentielocaties in de Oosterschelde, ver van havenactiviteiten was de VDSI minimaal 4 en bij de helft van de vrouwtjes zelfs 5 of 6 (volledige steriliteit) (Mertens & van Zwol, 1988, Ritsema *et al.*, 1991).

Ook andere mariene gastropoden zijn gevoelig voor TBT en vertonen vergelijkbare imposex reacties als de purperslak. Inmiddels zijn meer dan 150 soorten bekend waarbij de imposex respons bekend is, maar de purperslak is nog altijd één van de gevoeligste soorten (Oehlmann & Schulte-Oehlmann, 2002).

In de jaren '90 is door het NIOZ, in opdracht van het RIKZ, onderzoek gedaan naar het voorkomen van imposex bij de wulk (*Buccinum undatum*) in Nederlandse wateren. In 1991-19992 werden hoge imposex indices op de Noordzee, vooral in gebieden met een hoge scheepvaart intensiteit. Op sommige locaties werden zelfs alleen maar lege schelpen aangetroffen, geen levende wulken meer (Ten Hallers-Tjabbes *et al.*, 1994). Ook in de Oosterschelde werden tussen 1992 en 1995 hoge percentages (91 tot 100% van de vrouwtjes) imposex aangetroffen bij wulken (Mensink *et al.* 1996; 1997).

Na het verbod op het gebruik van TBT-houdende verf op kleine schepen (tot 25 meter) in 1990 en het verbod voor het gebruik op grotere schepen in 2003 in de EU¹, valt te verwachten dat de TBT-belasting in het mariene milieu geleidelijk zal afnemen en daardoor ook de effecten bij mariene organismen. Inderdaad lijkt het erop dat de purperslak zich weer langzaam herstelt in het Deltagebied (Van Moorsel, 1996). En ook op de open Noordzee is de mate van imposex laag (Birchenough *et al.*, 2002). Herstel bij de wulk is minder duidelijk, aangezien deze soort ook sterk beïnvloed wordt door bodemvisserij (Cadée *et al.*, 1995; Mensink *et al.*, 2000).

Beide soorten zijn niet algemeen in de Nederlandse kustwateren. De wulk komt vooral in dieper water voor, terwijl het verspreidingsgebied van de purperslak van nature beperkt is tot rotskusten met veel spleten. Onze kunstmatige rotskusten

¹ zie EU verordening EG782/2003, waarin wordt geanticipeerd op de ratificatie van het IMO TBT-verdrag. Wereldwijd is het IMO TBT-verdrag echter nog niet geratificeerd

(dijken) zijn slechts in beperkte mate geschikt. Om de huidige stand met betrekking tot de effecten van TBT op het mariene milieu langs de Nederlandse kust te kunnen vaststellen en eventueel herstel als gevolg van het verbod op het gebruik van TBT-houdende scheepsverven, was er behoefte aan een soort die langs de hele Nederlandse kust te vinden is. Bij voorkeur ook in havengebieden, waar de duidelijkste effecten van blootstelling aan TBT te verwachten zijn. Hiervoor komt eigenlijk alleen de alikruik in aanmerking. Deze soort komt van nature overal langs de Nederlandse kust voor waar voldoende harde ondergrond is, zelfs op golfbrekers langs de Hollandse zandstranden. De larven hebben planktonisch stadium, waarin ze over grote afstanden verplaatst kunnen worden. Verondersteld wordt dat daardoor zelfs volledig steriele populaties aangevuld kunnen worden vanuit minder, of onbelaste populaties, zodat verwacht wordt dat zelfs bij een hoge TBT-belasting voldoende individuen aanwezig zijn om effecten te beschrijven (Oehlmann *et al.*, 1998). Het ontbreken van alikruiken op een aantal haven locaties en langs een deel van de Zuid-Hollandse kust suggereert dat deze natuurlijke aanvulling beperkt kan zijn als er onvoldoende uitwisseling met andere gebieden is (havens), of als een te groot gebied beïnvloed wordt (Zuid-Hollandse kust).

De resultaten van de intersex monitoring, zoals zijn beschreven in dit rapport (zie paragraaf 3.1) laten zien dat verhoogde ISI-waarden eigenlijk alleen voorkomen in havengebieden en niet langs open water, waar de ISI-waarden maximaal 0,05 bedragen (Tabel 7). Hierbij zijn twee uitzonderingen. De eerste uitzondering is de ISI die werd vastgesteld bij de inlaat van de kerncentrale van Borssele. Door De Wolf *et al.* werd een ISI van 1,26 vastgesteld in 1998 (Wolf *et al.* 2001) en een ISI van 1,3 in 2000 (De Wolf *et al.*, 2004). Bij de intersex monitoring in 2002 werd in eerste instantie een ISI van 0,0 geconstateerd. Een nader onderzoek later dat jaar leverde een ISI van 0,15 op. Dat is veel lager dan de resultaten van De Wolf *et al.*, die in datzelfde jaar een ISI van 0,53 vaststelden. Het verschil kan mogelijk verklaard worden door een verschil in bemonstering. Voor de intersex monitoring zijn alleen eerstejaars adulten met een schelphoogte tussen 15 en 25 mm gebruikt en geen dieren die al langer volwassen zijn (Jol, 2002). De Wolf *et al.* (2001 & 2004) vermelden alleen dat volwassen dieren zijn onderzocht, maar zeggen niet over schelphoogte. Waarschijnlijk zijn door hen ook oudere dieren onderzocht, waardoor de ISI een reflectie is van de blootstelling over de afgelopen paar jaar. De resultaten laten wel zien dat de ISI in de Westerschelde na tussen 2000 en 2002 sterk is afgenomen (De Wolf *et al.*, 2004), hetgeen bevestigd wordt door de resultaten van de intersex monitoring in 2000, die de meest actuele stand van zaken weergeeft. Dit duidt op een afnemende blootstelling aan TBT, hoewel dit niet blijkt uit de resultaten van de metingen van TBT in zwevend stof (Tabel 11), noch uit veranderingen in geaccumuleerd TBT-gehalte in mosselen uitgehangen bij Vlissingen/Breskens. Het minimum TBT-gehalte in mosselen was van 1999 tot en met 2002 vrij stabiel $177 \pm 11 \mu\text{g Sn/kg}$, terwijl het maximum TBT-gehalte varieerde tussen 300 en 400 $\mu\text{g Sn/kg}$ zonder duidelijke trend.

Een tweede uitzondering is mogelijk de Zuid-Hollandse kust tussen Hoek van Holland en Scheveningen. Hier werden, ondanks gericht zoeken, geen alikruiken aangetroffen, terwijl ze daar wel voor zouden moeten komen. Tot ver in de jaren '70 werden in dit kust gebied nog grote aantallen alikruiken waargenomen. Sindsdien zijn slechts enkele waarnemingen van een enkel exemplaar bekend (Stichting Anemoon & CS-archief Strandwerkgemeenschap KNNV/NJN/JNM). Door het ontbreken van alikruiken kon geen ISI-waarde bepaald worden, waardoor een directe relatie met TBT-blootstelling niet valt te leggen. Opvallend is wel dat het gebied onder invloed staat van de reststroom vanaf Loswal Noord (Figuur 7), een gebied waar tot 1996 bagger uit het Rijnmondgebied werd gestort (Stutterheim, 2002) en waar het TBT-gehalte in het zwevend stof sterk verhoogd kan zijn (Tabel 11 en Figuur 6). Ook vanuit de tegenwoordig gebruikte stortlocaties Loswal Noordwest en de Verdiepte Loswal gaat nog steeds een duidelijke, maar kleinere reststroom langs de kust (Stutterheim, 2002). Aangezien ook een flink deel van de reststroom in noordelijke richting langs de kust loopt en voor de kust bij Noordwijk ook sterk verhoogde gehalten TBT in het zwevend stof zijn gemeten (Tabel 11 en Figuur 6), valt het aan te bevelen ook de strandhoofden ten noorden van Scheveningen te onderzoeken op aanwezigheid van alikruiken en de mate van intersex in de aanwezige populaties. Alikruiken waren wel in flinke aantallen aanwezig aan de binnenzijde van de havenhoofden bij Scheveningen. Hier werd een ISI van 0,48 vastgesteld.

5.2 Dosis-effect relaties

Op veel onderzoekslocaties in havengebieden werden geen alikruiken aangetroffen. Dit kan gerelateerd zijn aan een hoge TBT-belasting in het gebied, maar dat kan niet met zekerheid worden vastgesteld. Het is ook mogelijk dat de milieufactoren ter plekke niet voldoen aan de minimale randvoorwaarden voor het voorkomen van alikruiken. Opvallend is dat alikruiken vooral ontbreken, of schaars zijn, in havengebieden waar zoet oppervlaktewater gespuid wordt.

Waar wel alikruiken aanwezig waren, was de ISI over het algemeen flink verhoogd. Er kon echter geen duidelijke relatie gelegd worden tussen het TBT-gehalte in verschillende milieucompartimenten en de waarde van de ISI. Bij de intersex monitoring zijn wel TBT-analyses verricht in water, sediment en alikruiken, maar te weinig om in dosis-effect relaties te passen, vooral omdat de meeste analyses afkomstig zijn van locaties met een lage ISI. De meeste gegevens betreffen TBT-gehalten in alikruiken, waarbij opvallend hoge gehalten werden vastgesteld bij de Hondsbossche zeekering en de monding van de Sloehaven (Tabel 7), vergelijkbaar met gehalten in mosselen in de Westerschelde (Tabel 12). Slechts van twee locaties met een verhoogde ISI-waarde zijn TBT-gehalten in alikruiken geanalyseerd (Tabel 8), waarbij het TBT-gehalte in alikruiken van de Scheldepoortwerf veel hoger bleek dan op basis van de ISI verwacht zou worden (paragraaf 3.3). Een goede verklaring voor het verschil tussen ISI en TBT-gehalte

en alikruiken is er niet. Wellicht omvat het monster voor TBT analyse toch een ander subsample uit de populatie dan het monster voor de intersex bepaling, bijvoorbeeld omdat niet strikt dezelfde leeftijdsklasse is bemonsterd. Dit zou bijdragen aan de toch al grote variatie in de relatie ISI-intern gehalte die ontstaat doordat de alikruiken alleen in het juveniele stadium gevoelig zijn (Oehlmann *et al.*, 1998). De relatief hoge TBT-gehalten ten opzichte van de geconstateerde intersex ratio impliceren dan echter dat er ofwel sprake is van hoge concentraties bij oudere dieren en dus heel slechte eliminatie, of dat er sprake is van een zeer recente hoge belasting, die dan pas het jaar daarna tot uiting komt in een verhoogde ISI.

Voor sediment zijn relatief veel gegevens beschikbaar over TBT-gehalten. Dit betreft vooral TBT-gehalten in baggerspecie. TBT is sinds 2004 een belangrijke parameter in de beoordeling van baggerspecie (CTT-beoordeling) en is daarom de afgelopen jaren al opgenomen in de analyse verplichting om een referentiebestand op te bouwen. Deze TBT-gehalten zijn niet altijd rechtstreeks te koppelen aan de ISI metingen, maar hebben daar toch wel een zekere relatie mee, aangezien veel bemonsteringslocaties uit de intersex monitoring geselecteerd werden op basis van de TBT-gehalten in de nabijgelegen baggervakken. Er is echter geen duidelijke relatie tussen het TBT-gehalte in het sediment en de ISI-waarde op een locatie. Deze blijkt echter ook niet uit de gegevens van Oehlmann, hoewel deze er toch een dosis-effect curve doorheen fit (Oehlmann, 2002). Wel lijkt er sprake te zijn van een grenswaarde, waaronder nauwelijks verhoogde ISI-waarden optreden, maar waarboven alle intersex stadia gevonden kunnen worden. Uit de data van Oehlmann (Figuur 2b), valt daarvoor een grenswaarden van ongeveer 300 µg Sn/kg droog sediment af te leiden (Tabel 4). Deze waarde komt goed overeen met het maximale TBT gehalte van 250 µg Sn/kg voor baggerspecie in de CTT-beoordeling (Min V&W, 2004). Bij een zo direct mogelijke vergelijking tussen ISI-waarden en TBT-gehalten in sediment op een locatie zo dicht mogelijk in de buurt van het monsterpunt, viel deze grenswaarde echter veel lager uit (Figuur 3). Alleen door een groter gebied te beschouwen dan de directe omgeving van het monsterpunt kon de grenswaarde van 300 µg Sn/kg min of meer in stand gehouden worden.

Dit doet de vraag rijzen hoe relevant de relatie tussen sediment en alikruiken is. Alikruiken leven niet op het sediment, maar op een hard substraat, waar ze algen als darmwier en zeesla begrazen. De blootstelling zal dus vooral via het water geschieden, eventueel met de algen als tussenstap. Dit wordt ook gesuggereerd als (belangrijke) oorzaak voor het verschil in accumulatie van TBT (en daarmee indirect voor het verschil in gevoeligheid) tussen alikruiken en purperslakken (Oehlmann *et al.*, 1998; Birchenough *et al.*, 2002). Ook de purperslak wordt niet via het sediment blootgesteld, maar via water en, voor een groot deel, via zijn voedsel (Bryan *et al.*, 1989). Het voedsel van de purperslak bestaat vooral uit bivalven (vooral mosselen), eventueel ook uit zeepokken (Van Moorsel, 1996). Dit zijn actieve filter-feeders, die worden blootgesteld aan de hogere TBT-gehalten in

zwevend stof en daardoor ook meer TBT accumuleren (Ritsema *et al.*, 1991; Kure & Depledge, 1994). De dosis-effect relatie tussen TBT-concentratie in water en ISI (Figuur 2a) is dan ook heel duidelijk, ondanks de variabiliteit van de TBT-concentratie in water die in veldmetingen wordt gerapporteerd (Ritsema *et al.*, 1991).

5.3 Risico-analyse en doorvertaling naar ecosysteemniveau

Aangezien de ISI bij alikruiken vooral duidelijk gerelateerd is aan de TBT-concentratie in water, ligt het voor de hand om bij de doorvertaling van effecten bij alikruiken naar effecten op ecosysteemniveau vooral van deze relatie gebruik te maken. Dit is in hoofdstuk 4 gedaan door ISI-waarden (via de dosis-effect relatie) uit te zetten tegen de gevoeligheid van soorten in een SSD-curve. Hiermee valt te berekenen welk deel van de soorten bij een bepaalde ISI niet beschermd wordt. Bij de berekening van een PNEC met behulp van een SSD wordt er vanuit gegaan dat 95% van de soorten beschermd moet worden (ECB, 2003). Dit komt overeen met een ISI van 0,08. Deze ISI-waarde valt binnen de ‘natuurlijke’ achtergrondvariatie voor ISI bij alikruiken, die ligt tussen 0,0 en 0,3 (Oehlmann *et al.*, 1998). Hiermee wordt bedoeld dat er bij ISI-waarden <0,3 geen duidelijke relatie is tussen blootstelling en effect. Voor dit traject is de alikruik dus geen geschikt organisme om effecten van blootstelling aan TBT te monitoren.

Via verdelingscoëfficiënten, die de verdeling tussen water en andere compartimenten beschrijven, kunnen ook TBT-gehalten in sediment, zwevend stof en biota worden omgerekend naar een TBT-concentratie in water, waaraan via de SSD een risico voor het ecosysteem gekoppeld kan worden (percentage bedreigde soorten). Bedacht moet worden dat hiermee niet de actuele risico's worden berekend, omdat de beschikbaarheid in het milieu sterk kan variëren en ook door organismen zelf beïnvloed kan worden (bijv. vertering). Een analyse van de validiteit van verdelingscoëfficiënten valt buiten het kader van dit rapport. Daarom zijn geen risico berekeningen uitgevoerd voor de waargenomen TBT concentraties in de verschillende milieucompartimenten.

Ter indicatie kunnen de in OSPAR/EU verband voorgestelde kwaliteitscriteria (Specific Quality Standards, SQC) en MTR-waarden voor TBT in de verschillende milieucompartimenten worden gehanteerd om de gemeten TBT-gehalten in de Nederlandse kustwateren mee te vergelijken (Van de Guchte *et al.*, 2000). Deze zijn gebaseerd op de PNEC voor water en via gemiddelde verdelingscoëfficiënten omgerekend naar zwevend stof en sediment. Zoals al eerder genoemd bedraagt de PNEC/SQC voor water 0,1 ng Sn/L, de MTR bedraagt 1 ng TBT/L, ofwel 0,4 ng Sn/L. De detectielimiet voor TBT in water in het MWTL bedraagt 1,2 ng Sn/L en is dus al 3 maal zo hoog als de MTR en een fractie (0,2 ng/L) hoger dan de laagst bekende NOEC. Het komt regelmatig voor, ook in relatief vervuilde havenkommen, dat het TBT-gehalte onder de detectielimiet blijft. Effecten zijn dan

echter niet uit te sluiten. Aan de andere kant worden ook veel hogere waarden gevonden (zie Tabel 10).

Voor TBT in zwevend stof is een SQC van 11 ng Sn/kg (droge stof) afgeleid. De TBT-gehalten in zwevend stof in de Nederlandse kustwateren zijn alle veel hoger (MWTL; Åkerman *et al.*, 2004). De detectielimiet bedraagt al 1200 ng/L en vaak worden hogere gehalten gemeten (zie Tabel 11).

Voor sediment is een SQC van 10 ng Sn/kg (droge stof) voorgesteld en geldt een MTR van 0,7 µg TBT/kg standaardsediment (0,3 µg Sn/kg). De laagst gemeten waarde op de Noordzee bedroeg 245 ng Sn/kg (0,6 µg TBT/kg), gemeten in de fractie <63 µm. In de Waddenzee, waar geen verhoogde ISI wordt waargenomen, worden gewoonlijk gehalten tussen 10 en 30 µg Sn/kg gemeten in de fractie <63 µm (MWTL). In de zandige sedimenten van Noordzee en Waddenzee bedraagt de fractie 63 µm maximaal 5%, waarmee de gehalten op basis van totaal sediment een factor 20 of meer lager kunnen zijn. Daarmee zijn ze echter nog steeds aanzienlijk hoger dan de SQC en MTR, zoals ook wordt aangegeven door Laane & Groeneveld (2000).

TBT normen voor baggerspecie hebben vooral betrekking op het wel of niet mogen storten van deze specie op zee. In Nederland voor baggerspecie een toetsingsrange van 100 tot 250 µg Sn/kg (droge stof) (Min. V&W, 2004). Dit is aanzienlijk hoger dan de SQC voor sediment, maar verhoudt zich redelijk tot de kritische effectgrens die voor de relatie tussen ISI en TBT in sediment valt af te leiden (zie paragraaf 2.2).

5.4 Conclusies en aanbevelingen

Intersex wordt vooral aangetroffen in havens, dus in de directe nabijheid van de bronnen. Langs open water (Noordzee, Waddenzee, Oosterschelde en Eems-Dollard) is niet of nauwelijks sprake van intersex. De situatie in de Westerschelde is niet helemaal duidelijk. Tussen Borssele en Vlissingen is buitendijks nauwelijks sprake van intersex. In vergelijking met de resultaten van De Wolf *et al.* (2001) en in overeenstemming met de resultaten van De Wolf *et al.* (2004) lijkt er bij Borssele sprake van een afname van de ISI. De TBT-gehalten in zwevend stof en uitgehangen mosselen vertonen echter geen afname over dezelfde periode. De reden voor deze discrepantie is niet duidelijk.

Het ontbreken van alikruiken langs de kust tussen Hoek van Holland en Scheveningen verdient nadere studie. De relatief hoge TBT-gehalten in het zwevend stof suggereren dat TBT-belasting vanaf de loswallen hier een rol bij speelt, maar directe bewijzen ontbreken. In ieder geval zouden ook alikruiken bemonsterd moeten worden langs de kust ten noorden van Scheveningen (Noordwijk). Deze kuststrook staat waarschijnlijk ook onder invloed van de

loswallen en ook hier lijken de beschikbare gegevens (Strandwerkgemeenschap) er op te wijzen dat er tegenwoordig veel minder alikruiken voorkomen dan vroeger. Het valt tevens aan te bevelen om ook langs de kust ten noorden van IJmuiden alikruiken te bemonsteren. Baggerspecie uit deze haven wordt gestort op een locatie iets ten noordwesten van de havenmonding en zou daarom het kustgebied in noordelijke richting kunnen beïnvloeden.

Voor het beschrijven van TBT risico's in havengebieden lijken vooral de maximale TBT-gehalten in sediment van belang. Deze zijn grotendeels afkomstig van gesedimenteerd particulier materiaal (zwevend stof), dat vooral op de overgang van zoet naar zout water –en dus in havens- sedimenteert. Daarvoor kan het echter al door de verschillende compartimenten van de haven gecirculeerd hebben, waardoor de invloed verder strekt dan uit de verdeling van TBT-gehalten in baggervakken blijkt. Het ontbreken van alikruiken op bepaalde locaties in de onderzochte havens kan niet eenduidig aan hoge TBT-belasting geweten worden, maar het valt zeker niet uit te sluiten.

Intersex bij alikruiken blijkt een geschikte parameter om de effecten van TBT-belasting in havengebieden te monitoren. Te verwachten valt dat de mate van intersex (beschreven als ISI, de intersex-index van een populatie) in de toekomst zal afnemen doordat het gebruik van TBT-houdende verven inmiddels in veel landen is verboden. Een dergelijke trend-monitoring hoeft niet jaarlijks uitgevoerd te worden, aangezien de veranderingen waarschijnlijk langzaam zullen plaatsvinden. Waarschijnlijk is het voldoende om elk jaar andere locaties te bemonsteren en om de twee tot drie jaar dezelfde locaties opnieuw te bezoeken. Een vooruitblik richting toekomstige ISI-waarden in een populatie zou verkregen kunnen worden door niet alleen nieuw-volwassen dieren te analyseren, maar verschillende grootte-klassen, die de leeftijdsgroepen representeren (vgl. ook Oehlmann *et al.*, 1998).

De hoge ISI-waarden in havengebieden duiden op een hoge TBT-belasting en een grote potentiële invloed op het mariene ecosysteem. Onderzocht zou moeten worden in hoeverre deze effecten zich uitstrekken buiten de eigenlijke haven door gradiënten te bemonsteren vanaf de haven

Voor monitoring van minder sterk door TBT beïnvloedde gebieden (open water) lijkt de alikruik minder geschikt. Daarvoor is de gevoeligheid van deze soort te gering. Het nadeel is dat meer gevoelige soorten als purperslak en wulk ontbreken, of slecht te bemonsteren zijn. In getijdegebieden zou het wadslakje (*Hydrobia ulvae*) gebruikt kunnen worden (Schulte-Oehlmann, 1997), maar ook kan gedacht worden aan een meer experimentele benadering, of actieve biologische monitoring, zoals in de Oosterschelde al eens is toegepast met de purperslak (Mertens & van Zwol, 1988). Het voordeel van het gebruik van de purperslak is dat deze ook als adult nog reageert op blootstelling aan TBT, zij het wat minder sterk (Oehlmann *et al.*, 1998).

De TBT-belasting in de Nederlandse kustwateren is zeer hoog, zoals blijkt uit het grote verschil tussen TBT-gehalten in de verschillende milieucompartimenten en de beschikbare kwaliteitscriteria. De relatie tussen intersex en TBT-gehalten in de milieucompartimenten is echter niet eenduidig. De alikruik wordt waarschijnlijk vooral direct via de waterfase blootgesteld aan TBT. Sediment en zwevend stof dienen daarbij als bron van waaruit TBT in oplossing komt.

Om het risico van de huidige TBT-belasting voor het mariene milieu beter te kunnen inschatten, zouden de TBT-gehalten in de verschillende milieucompartimenten gerelateerd moeten worden aan SSD's voor die compartimenten. Omdat hier onvoldoende toxiciteitgegevens voor beschikbaar zijn, kunnen de gehalten ook omgerekend moeten worden naar een verwachte concentratie in water die gekoppeld kan worden aan de SSD voor TBT in water. Daarvoor zijn verdelingscoëfficiënten nodig die representatief zijn voor de Nederlandse omstandigheden. Daarnaast zou via experimenteel onderzoek uitgezocht kunnen worden in hoeverre de huidige (en toekomstige) TBT-belasting leidt tot effecten bij mariene organismen.

6. Literatuur

Åkerman J.E., H.J.C. Klammer, C.A. Schipper & A.M.C.M. Pijnenburg (2004): Toestandbeschrijving van contaminanten en ecotoxicologische effecten in de Noordzee en Nederlandse kustzone in 2003. RWS RIKZ conceptrapport.

Barroso C.M., M.H. Moreira & P.E. Gibbs (2000): Comparison of imposex and intersex development in four prosobranch species for TBT monitoring of a southern European estuarine system (Ria de Aveiro, NW Portugal). *Mar. Ecol. Progr. Ser.* 201:221-232.

Bauer B., P. Fioroni, I. Ide, S. Liebe, J. Oehlmann, E. Stroben & B. Watermann (1995): TBT effects on the female genital system of *Littorina littorea*: A possible indicator of tributyltin pollution. *Hydrobiologia* 309:15-27.

Bremner J, S.I. Rogers & C.L.J. Frid (2003): Assessing functional diversity in marine benthic ecosystems: a comparison of approaches. *Mar. Ecol. Progr. Ser.* 254:11-25.

Bryan G.W., P.E. Gibbs, L.G. Hummerstone & G.R. Burt (1989): Uptake and transformation of carbon-14-labelled tributyltin chloride by the Dog whelk *Nucella lapillus*: Importance of absorption from the diet. *Mar. Environ. Res.* 28:241-245.

Cadee G.C., J.P. Boon, C.V. Fischer, B.P. Mensink & C.C. ten Hallers-Tjabbes (1995): Why the whelk (*Buccinum undatum*) has become extinct in the Dutch Wadden Sea. *Neth. J. Sea Res.* 34:337-339.

De Wolf H., W. de Coen, T. Backeljau & R. Blust (2001): Intersex and sterility in the periwinkle *Littorina littorea* (Molluscs: Gastropoda) along the Western Scheldt estuary, the Netherlands. *Mar. Environ. Res.* 52(3):249-255.

De Wolf H., C. Handa, T. Backeljau & R. Blust (2004): A baseline survey of intersex in *Littorina littorea* along the Scheldt estuary, The Netherlands. *Mar. Pollut. Bull.* 48(5-6):592-596.

European Chemicals Bureau (2003): Technical Guidance Document on Risk Assessment, Part II. Environmental risk assessment. European Communities, JRC, EUR 20418 EN/2.

Gibbs P.E., G.W. Bryan, P.L. Pascoe & G.R. Burt (1987): The use of the dogwhelk, *Nucella lapillus*, as an indicator of tributyltin (TBT) contamination. *J. Mar. Biol. Ass. U.K.* 67:507-523.

Hallers-Tjabbes C.C. ten, J.F. Kemp & J.P. Boon (1994): Imposex in whelks (*Buccinum undatum*) from the open North sea: Relation to shipping traffic intensities. *Mar. Pollut. Bull.* 28:311-313.

Jol J. (2002): Vaststellen van intersex bij Alikruik (*Littorina littorea* L.). RIKZ standaardvoorschrift BCI-09 (concept).

Jol J. & C.A. Schipper (2002): Pilotstudie naar de effecten van TBT op alikruiken (*Littorina littorea* L.). RWS werkdocument RIKZ/OS/2002.412.

Kure L.K. & M.H. Depledge (1994): Accumulation of organotin in *Littorina littorea* and *Mya arenaria* from Danish coastal waters. *Environ. Pollut.* 84(2):149-157.

Laane R.W.P.M. & G. Groeneveld (2000): Butyltin-verbindingen in sediment van de Noordzee, Delta en Waddenzee (1996): verspreiding en normtoetsing. RWS rapport RIKZ/2000.019.

Lepper P. (2002): Towards the derivation of quality standards for priority substances in the context of the Water Framework Directive. Final report of the study contract No. B4-3040/2000/30637/MAR/E1: Identification of quality standards for priority substances in the field of water policy. Fraunhofer Institute.

Mensink B.P., C.C. ten Hallers-Tjabbes, J. Kralt, I.L. Freriks & J.P. Boon (1996): Assessment of imposex in the common whelk, *Buccinum undatum* (L.) from the Eastern Scheldt, the Netherlands. *Mar. Environ. Res.* 41:315-325.

Mensink B.P., J.P. Boon, C.C. Ten Hallers-Tjabbes, B. van Hattum & J.H. Koeman (1997): Bioaccumulation of organotin compounds and imposex occurrence in a marine food chain (Eastern Scheldt, The Netherlands). *Environ. Technol.* 18:1235-1244.

Mensink B.P., C.V. Fischer, G.C. Cadée, M. Fonds, C.C. ten Hallers-Tjabbes & J.P. Boon (2000): Shell damage and mortality in the common whelk *Buccinum undatum* caused by beam trawl fishery. *J. Sea Res.* 43(1):53-64.(+erratum JSR 43:177).

Mertens O. & C. van Zwol (1988): Purperslakken en organotin. Een onderzoek naar effecten in de Oosterschelde en de Grevelingen. RWS-DGW nota GWAO-88.039

Ministerie van Verkeer & Waterstaat (2004): Chemie-Toxiciteit-Toets verspreiding zoute baggerspecie. Staatscourant 18 juni 2004, nr. 114, pagina 13.

Moorsel G.W.N.M. van (1996): Ecoprofiel Purperslak (*Nucella lapillus*). Watersysteemverkenningen, Rapport 96.01 Bureau Waardenburg, Culemborg.

Oehlmann J. (2002): Baseline study on intersex in *Littorina littorea* with recommendations for biological TBT assessment criteria. Report Johann Wolfgang Goethe University Frankfurt am Main. SIME 02/6/1-E

Oehlmann J. & U. Schulte-Oehlmann (2002): Molluscs as bioindicators. In: B.A. Merkert, A.M. Breure & H.G. Zechmeister (eds.), *Bioindicators and biomonitoring*. Elsevier Science B.V.

Oehlmann J., B. Bauer, D. Minchin, U. Schulte-Oehlmann, P. Fioroni & B. Markert (1998): Imposex in *Nucella lapillus* and intersex in *Littorina littorea*: Interspecific comparison of two TBT-induced effects and their geographical uniformity. *Hydrobiologia* 378:199-213.

OSPAR (2000): OSPAR Background Document on Organic Tin Compounds. OSPAR Publication 2000/103.

OSPAR (2003a): Harmonisation of criteria for the assessment of TBT-specific biological effects. OSPAR MON 03/3/1-E.

OSPAR (2003b): 2003 Strategy for a Joint Assessment and Monitoring Programme (JAMP). OSPAR Reference 2003/22.

OSPAR (2004): OSPAR/ICES Workshop on the evaluation and update of background reference concentrations (B/RCs) and ecotoxicological assessment criteria (EACs) and how these assessment tools should be used in assessing contaminants in water, sediment and biota, 9-13 February 2004 The Hague. Final report. OSPAR Publication 2004/214.

Ritsema R. (1994): Dissolved butyltins in marine waters of the Netherlands three years after the ban. *Appl. Organomet. Chem.* 8:5-10.

Ritsema R., R.W.P.M. Laane & O.F.X. Donard (1991): Butyltins in marine waters of the Netherlands in 1988 and 1989; Concentrations and effects. *Mar. Environ. Res.* 32:243-260.

Schulte-Oehlmann U., J. Oehlmann, P. Fioroni & B. Bauer (1997): Imposex and reproductive failure in *Hydrobia ulvae* (Gastropoda: Prosobranchia). *Mar. Biol.* 128:257-266.

Schipper C.A. & P. Schout (2004): De weg naar implementatie. RWS rapport AKWA/RIKZ 04.005.

Stutterheim S. (2002): Van Noord tot Noordwest. Een studie naar de berging van baggerspecie op loswallen. RWS rapport RIKZ/2002.047.

Van de Guchte C., M. Beek, J. Tuinstra & M. van Rossenberg (2000): Normen voor het waterbeheer. Achtergronddocument bij NW4. Commissie Integraal Waterbeheer (CIW).

Van de Zande A.E. (2004): Analyse en monitoring van TBT. RWS werkdokument RIKZ/IT-2004.635w.

7. Verantwoording

Naam en adres van de opdrachtgever:

RWS-RIKZ
C.A. Schipper
Postbus 8039
4330 EA Middelburg

Namen en functies van de projectmedewerkers:

R.G. Jak	Projectleider
N.H.B.M. Kaag	Onderzoeker

Namen van instellingen waaraan een deel van het onderzoek is uitbesteed:

-

Datum waarop, of tijdsbestek waarin, het onderzoek heeft plaatsgehad:

oktober-november 2004

Ondertekening:



R.G. Jak
Projectleider
19 november 2004

Goedgekeurd door:



C.C. Karman
Afdelingshoofd
19 november 2004