



UNIVERSIDADE DA CORUÑA

# Grado en Biología

## Memoria del Trabajo de Fin de Grado

Revisión bibliográfica: Sobre el imposex de *Nucella lapillus* en Europa

Revisión bibliográfica: Sobre o imposex de *Nucella lapillus* en Europa

Literature review: On the imposex of *Nucella lapillus* in Europe

**Carlos Yusta Bermúdez de Castro**

Septiembre, 2019

*Director Académico: José Miguel Ruiz De La Rosa*

## Índice:

### 0. Resumen/Resumo/Summary

Palabras clave/Palabras chave/Keywords

1. Introducción.....	1
2. Objetivos.....	3
3. Material y métodos.....	3
4. Resultados y discusión.....	6
4.1. España (Galicia).....	6
4.2. Portugal.....	7
4.3. Francia (Brest).....	8
4.4. Reino Unido (Inglaterra y Gales) .....	10
4.5. Noruega.....	11
4.6. Europa.....	12
5. Conclusiones/Conclusións/Conclusions.....	14
6. Bibliografía. ....	17

## Resumen

El tributilo de estaño (TBT) es un compuesto organometálico que se ha empleado como biocida comercial en pinturas antiincrustantes para todo tipo de estructuras sumergidas. A pesar de las ventajas que suponen estas pinturas, el TBT causa distintos efectos deletéreos. Uno de los más conocidos es el imposex, que consiste en la masculinización de las hembras de ciertos gasterópodos, lo que interfiere negativamente en la reproducción. Por ello, la Unión Europea prohibió totalmente la comercialización y uso del TBT como biocida en 2003, y en el año 2008 fue prohibido a nivel global por la Organización Marítima Internacional.

En esta revisión se ha analizado y comparado la evolución del grado de imposex en las costas de diferentes países europeos fijándonos en los períodos críticos. Se seleccionaron estudios sobre el gasterópodo marino *Nucella lapillus* con datos del índice de la Secuencia del Vaso Deferente (VDSI), que mide el grado de contaminación por TBT. Con los datos recopilados elaboramos diagramas de cajas y bigotes con los que analizar la evolución del imposex en cada país, así como un gráfico de barras para analizar la evolución a nivel europeo.

Tras el análisis concluimos que las prohibiciones sobre el TBT fueron efectivas, ya que los niveles de imposex descendieron en todas las costas europeas. Sin embargo, al final de los registros la media de VDSI de todas las naciones (excepto Noruega) entra en un estancamiento, por lo que todavía no se han recuperado completamente.

**Palabras clave:** Imposex, TBT, *Nucella lapillus*, VDSI, Europa, disruptor endocrino, bioindicador.

## Resumo

O tributilo de estaño (TBT) é un composto organometálico que se utilizou como biocida comercial en pinturas antifouling para todo tipo de estruturas somerxidas. A pesar das vantaxes destas pinturas, o TBT provoca distintos efectos deletéreos. Un dos máis coñecidos é o imposex, que consiste na masculinización das femias de certos gasterópodos, o que interfere negativamente na reprodución. Por iso, a Unión Europea prohibiu a comercialización e o uso do TBT como biocida en 2003 e en 2008 foi prohibido a nivel mundial pola Organización Marítima Internacional.

Nesta revisión analizouse e comparouse a evolución do grao de imposex nas costas de diferentes países europeos, fixándonos nos períodos críticos. Seleccionáronse estudos sobre o gasterópodo mariño *Nucella lapillus* con datos do índice da Secuencia do Vaso Deferente (VDSI), que mide o grao de contaminación por TBT. Cos datos recollidos, elaboramos diagramas de caixas e bigotes para analizar a evolución do imposex en cada país, así como un gráfico de barras para analizar a evolución a nivel europeo.

Despois da análise, concluímos que as prohibicións sobre o TBT foron efectivas, xa que os niveis de imposex baixaron en tódalas costas europeas. Sen embargo, ao final dos rexistros, a media de VDSI de tódalas nacións (agás Noruega) entra nun estancamento, polo que aínda non se recuperaron completamente.

**Palabras chave:** imposex, TBT, *Nucella lapillus*, VDSI, Europa, disruptor endocrino, bioindicador.

## Summary

Tributyltin (TBT) is an organometallic compound that has been used as a commercial biocide in antifouling paints for all types of submerged structures. Despite the advantages of these paints, TBT causes different deleterious effects. One of the best known is the imposex, which consists of the masculinization of the females of certain gastropods, which negatively interferes with reproduction. Therefore, the European Union banned the commercialization and use of TBT as a biocide in 2003 and in 2008 it was banned globally by the International Maritime Organization.

In this review we have analyzed and compared the evolution of the degree of imposex of *Nucella lapillus* on the coasts of different European countries focusing on the critical periods. Studies of *Nucella lapillus*, a marine gastropod, were selected. These studies contained data on the Vas Deferens Sequence Index (VDSI), which measures the degree of TBT contamination. With all the data we elaborate box and whiskers diagrams, as well as a bar chart about the European VDSI. With these figures we analyze the evolution of imposex in each country and in Europe.

After the analysis, we conclude that the prohibitions on TBT were effective, since the levels of imposex dropped on all European coasts. However, at the end of the records the average of VDSI of all nations (except Norway) enters a stagnation, so they have not yet fully recovered.

**Keywords:** imposex, TBT, *Nucella lapillus*, VDSI, Europe, endocrine disruptor, bioindicator.

## 1. Introducción

El tributilo de estaño (TBT del inglés TriButylTin) es un compuesto organometálico formado por tres grupos butilo unidos a un átomo de estaño IV (Figura 1). El TBT se ha empleado principalmente como biocida comercial en pinturas antiincrustantes para todo tipo de estructuras sumergidas, principalmente embarcaciones. Al limitar la acumulación indeseable de organismos (i. e. “fouling”), dichas pinturas resultan en importantes beneficios tales como ahorro de combustible e incremento de la velocidad. Sin embargo, debido a que también causa distintos efectos deletéreos en multitud de organismos, la contaminación por TBT fue durante el último cuarto del siglo XX uno de los mayores casos de impacto ecotoxicológico a nivel global (Sayer et al., 2006; Ruiz et al., 2018)

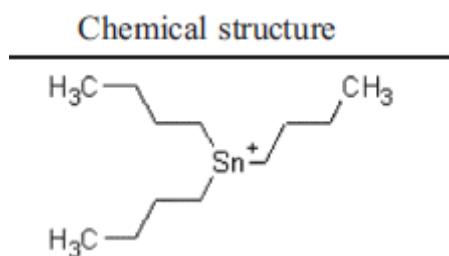


Figura 1. Estructura química del TBT (Antizar-Ladislao, 2008)

El TBT puede actuar como un disruptor endocrino con efecto androgénico cuando se bioacumula en el organismo, y causar la masculinización de las hembras de ciertos gasterópodos al aumentar sus niveles de testosterona. Este fenómeno, conocido como imposex, resulta en que las hembras desarrollan, en mayor o menor medida, estructuras reproductoras masculinas que interfieren negativamente en la reproducción y pueden llegar a causar esterilidad (Antizar-Ladislao, 2008).

El imposex en *Nucella lapillus* (L.) fue detectado por Blaber (1970) en el Reino Unido. Blaber comprobó que era más frecuente en los entornos portuarios que en zonas más alejadas del tráfico marítimo, y cuando se demostró la correlación entre el TBT y el desarrollo de imposex (Gibbs, 1999), este último se convirtió en un indicador fiable de contaminación por TBT. Mientras que la primera lista de gasterópodos afectados por imposex constaba de 33 especies, en 2009 la cifra ascendía a 268 especies (Tittley-O'Neal et al., 2011)

La primera limitación sobre el TBT fue promulgada por el gobierno francés en 1982 para barcos de menos de 25 metros de eslora, debido a los desastrosos efectos que tuvo en la industria de cultivo de ostras (*Crassostrea gigas* Thunberg) de la bahía de Arcachón. Más tarde en 1987 el Reino Unido adoptaría también la misma restricción. Del mismo modo, la Unión Europea limitó su uso con la Directiva 89/677/CEE, y prohibió totalmente el TBT y su comercialización como biocida en 2003, con el Reglamento 782/2003/CE. Finalmente, en el 2008 fue prohibido a nivel global por la Organización Marítima Internacional (ver [imo.org](http://imo.org)). Hay que resaltar que la comisión OSPAR (“el mecanismo mediante el que quince gobiernos y la Unión Europea cooperan para proteger el medio marino del Noreste Atlántico”, ver [ospar.org](http://ospar.org)) ha contribuido determinantemente al establecimiento de estas medidas al proporcionar criterios y guías de evaluación de los efectos de este y otros contaminantes.

El TBT es una de las sustancias más persistente y tóxicas para la vida marina (Laranjeiro et al., 2018b). Concentraciones de TBT en el agua del orden de 1 ng/L ya provocan en *N. lapillus* la aparición del imposex, siendo ésta de las especies más sensibles (Santillo et al., 2001). Cuando el TBT se libera a la columna de agua, su naturaleza hidrofóbica provoca que se adhiera al material particulado en suspensión, sobre todo si éste es orgánico, pasando después a los organismos filtradores y biocumulándose a medida que asciende en la red trófica (Antizar-Ladislao, 2008). Posee una vida media variable en agua, que abarca desde una semana hasta 2-4 meses, dependiendo de los factores que intervienen en la degradación (Barreiro et al., 2004). La deposición del material particulado en suspensión transfiere TBT y derivados a los sedimentos, donde son acumulados y pueden seguir ejerciendo sus efectos nocivos incluso en ausencia de nuevos aportes. El TBT se degrada a formas progresivamente menos tóxicas mediante desalquilación, esto es, suprimiendo el radical alquilo. Se genera así dibutil-estaño (DBT), monobutil-estaño (MBT) y estaño inorgánico. En dicha degradación influye la temperatura, la actividad biológica y la radiación UV, pero existen muchos factores cuyos efectos son todavía desconocidos (Antizar-Ladislao, 2008)

## 2. Objetivos

El objetivo de este trabajo de revisión es el de analizar, resumir y comparar la evolución temporal del grado de imposex de *Nucella lapillus* en las costas de diferentes países europeos.

Se trata de analizar su evolución fijándonos en los períodos críticos, dando especial importancia al año 2003, es decir, cuando se hizo efectiva la 1ª prohibición común a todos los países OSPAR. De esta forma se pretende comprobar cómo de efectiva fue dicha medida, cuando empezaron a notarse sus efectos y en qué estado se encuentran las diferentes costas europeas donde la monitorización de este contaminante ha sido rigurosa.

## 3. Material y métodos

Para la elaboración de este trabajo se seleccionaron diversos estudios sobre el gasterópodo carnívoro *Nucella lapillus*, especie muy común en las aguas europeas y uno de los bioindicadores más útiles y fiables para detectar contaminación por TBT. Esta especie habita en el intermareal rocoso y su contaminación por TBT proviene tanto de su dieta (e.g. balanos, mejillones) como de, fundamentalmente, del agua (Schøyen et al., 2018). Al contrario de lo que ocurre con especies infaunales (como por ejemplo *Tritia (Nassarius) reticulata* (L.)), los sedimentos no constituyen un vector contaminante importante.

Para medir el imposex y otras alteraciones relacionadas existen al menos 21 índices (Titley-O'Neal et al., 2011), algunos de los cuales tienen en cuenta el desarrollo de las estructuras más aparentes tales como el pene. Sin embargo, la formación del vaso deferente (i.e. el conducto que conecta la próstata con el pene) es más relevante ya que puede llegar a causar la esterilización de la hembra por bloqueo del oviducto (Gibbs, 1999) y reducir el reclutamiento de la población.

En *Nucella lapillus* el desarrollo del vaso deferente y del pene sigue un esquema gradual denominado Secuencia del Vaso Deferente (VDS del inglés Vas Deferens Sequence) que asigna cada hembra individual a una de las seis categorías recogidas en la Figura 2.



Posteriormente se puede calcular el grado de contaminación de una población con el Índice de la Secuencia del Vaso Deferente (VDSI), calculado como el VDS medio de las hembras examinadas (Gibbs, 1999).

Así, el VDSI es el principalmente utilizado por la OSPAR (OSPAR, 2003), y en su guía de monitorización (OSPAR, 2004) establece las siguientes categorías de imposex para *Nucella lapillus* según el valor VDSI. Además, emplea un código de colores para una rápida y fácil interpretación de dichas categorías, mejorando la comunicación de los datos al público general:

- **Categoría A:** VDSI= (<0.3) Nivel de imposex próximo a cero. Exposición a concentraciones de TBT de casi cero. Nivel óptimo. (0%-30% hembras con imposex)
- **Categoría B:** VDSI= (0.3 - <2.0) Es muy poco probable que surjan efectos adversos causados por exposición a largo plazo al TBT. (30%-100% hembras con imposex)
- **Categoría C:** VDSI= (2.0 - <4.0) Existe riesgo de efectos adversos causados por exposición a largo plazo al TBT.
- **Categoría D:** VDSI= (4.0 - <5.0) La capacidad reproductora de la población ha sido afectada por hembras estériles, pero aún quedan hembras viables.
- **Categoría E:** VDSI= (>5.0) Población incapaz de reproducirse. La gran mayoría de las hembras son estériles.
- **Categoría F:** VDSI= (<-) La población de *Nucella lapillus* ha desaparecido.

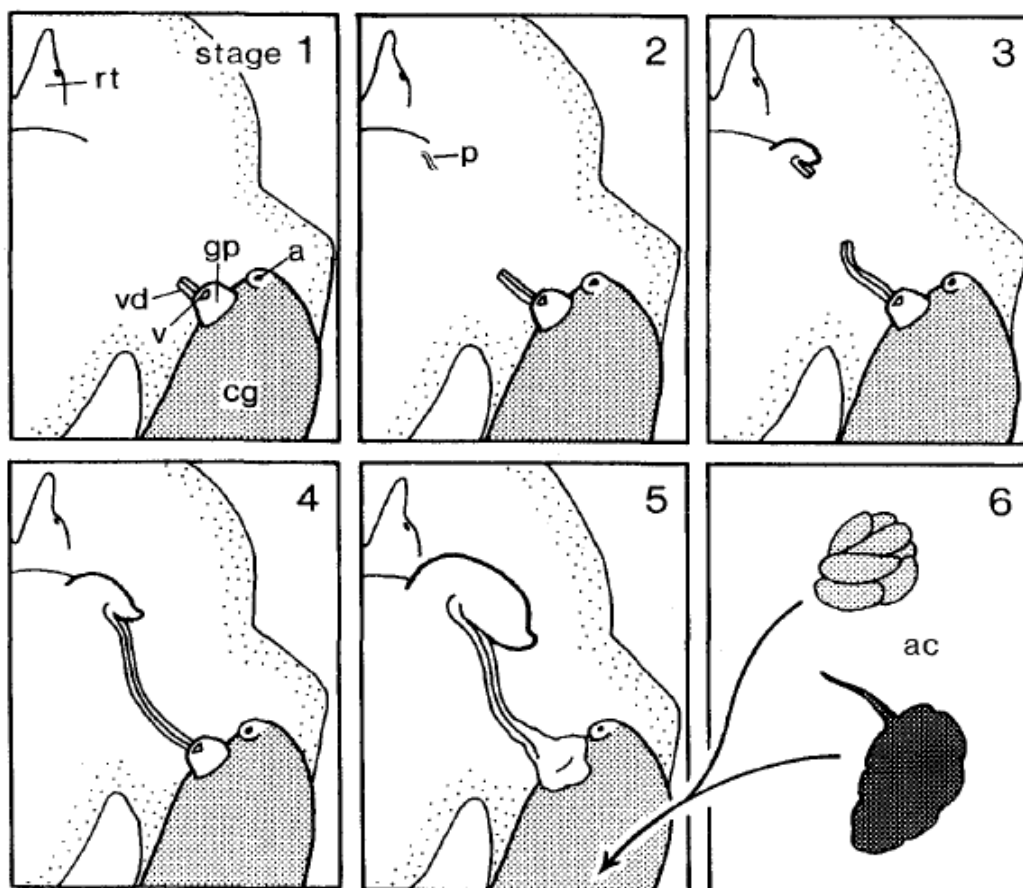


Figura 2. Fases del desarrollo del imposex (Gibbs, 1999) a =ano; ac =acumulación de cápsulas abortadas; cg =glándula capsular; gp =papila genital; p =pene; rt = tentáculo derecho; v = vulva; vd =vaso deferente.

Para esta revisión se trabajará con los valores del VDSI medidos en las estaciones de cada zona de estudio. Los datos recopilados abarcan los años 1996-2015 e incluyen España (Galicia), Portugal, Reino Unido (Inglaterra y Gales), Francia (Brest) y Noruega. En este rango temporal no todos los años están documentados para todos los países. En Francia, por ejemplo, los más antiguos pertenecen a la década de los 80 y son experimentales, no de monitorización. Para Noruega, aunque hubo una monitorización regular, no se hizo en un número considerable de estaciones hasta el año 2001. Según el esfuerzo de monitorización desempeñado, existen costas en las que el volumen de datos presenta más información que otras. Se han seleccionado trabajos de los autores más relevantes y/o con más continuidad en la monitorización y el estudio del imposex en sus territorios. Con los datos recopilados (recogidos en el Anexo 1) se han calculado las medias de VDSI por año en cada región y su desviación típica. Elaboraremos diagramas de cajas y bigotes con los que analizar la evolución temporal del grado de imposex en cada país y posteriormente comentaremos los resultados en conjunto a nivel europeo.

## 4. Resultados y discusión

### 4.1 España (Galicia)

La costa gallega posee un buen volumen de datos ( $n= 159$ ) y de estaciones de muestreo ( $n=37$ ) que han sido extraídos de los trabajos de autores locales, (Ruiz et al., 2015; 2017; 2018). Las zonas de muestreo abarcan prácticamente todo el litoral, como puede verse en la Figura 3, por lo que la información recogida se estima de gran fiabilidad.

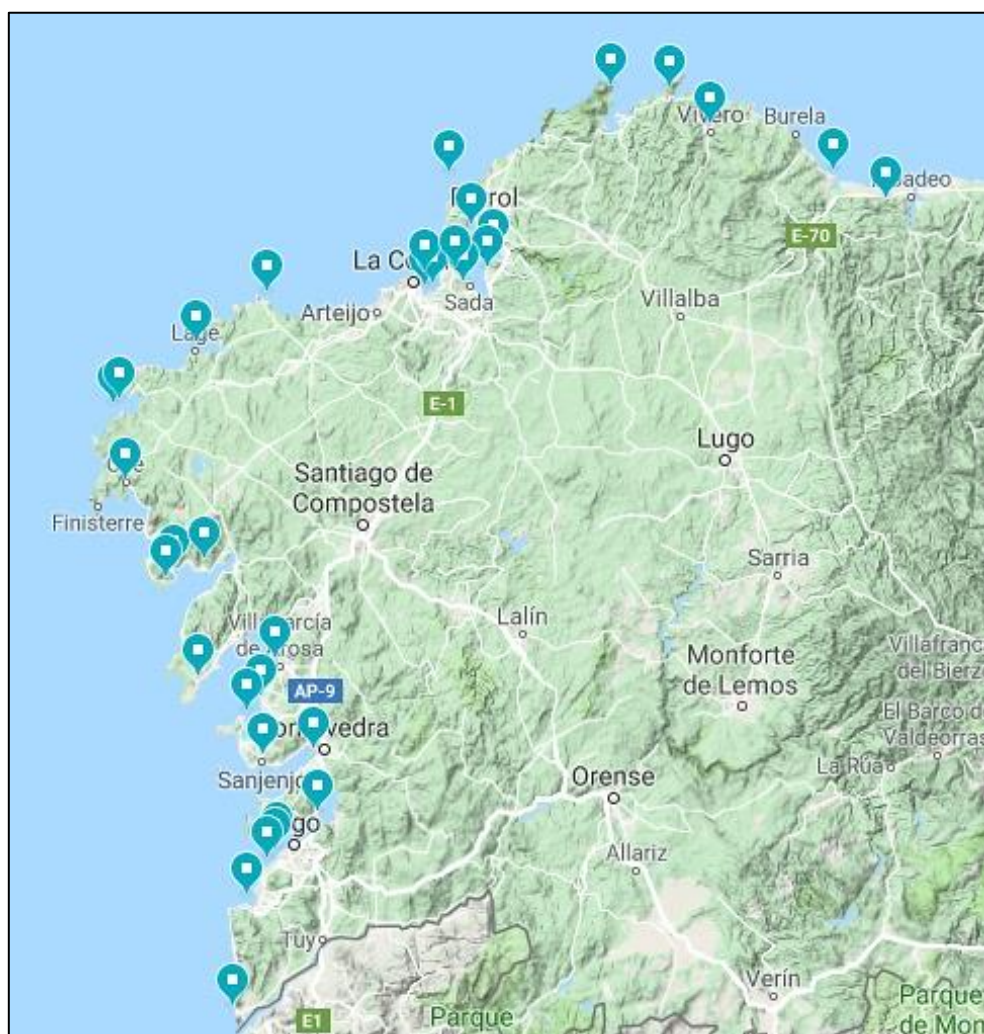


Figura 3. Mapa ilustrativo de los puntos los puntos de muestreo en Galicia.

La media de VDSI en Galicia en el año 1996 era de  $VDSI= 3,84$  **categoría C**, y en el año 2003 (año en el que se hizo efectiva la prohibición del TBT en la Unión Europea y el de referencia a la hora de analizar la evolución del imposex) se mantenía en un valor  $VDSI = 3,80$ . Las poblaciones se hallaban cerca de la **categoría D**, en la que las hembras estériles afectan a la capacidad reproductora.

En el año 2006, 3 años después de la prohibición, la media había descendido por primera vez significativamente en -1,47 (VDSI = 2,33  **categoría C** ), por lo que la recuperación fue bastante notable. En 2009 podemos ver otro descenso significativo en la media de -0,98 (VDSI = 1,35  **categoría B** ). Finalmente, los años 2012 y 2015 muestran un descenso más leve pero progresivo con medias VDSI= 1,24 y VDSI= 1,18 respectivamente, lo que indica cierto estancamiento del VDSI en la  **categoría B**  (ver Figura 4).

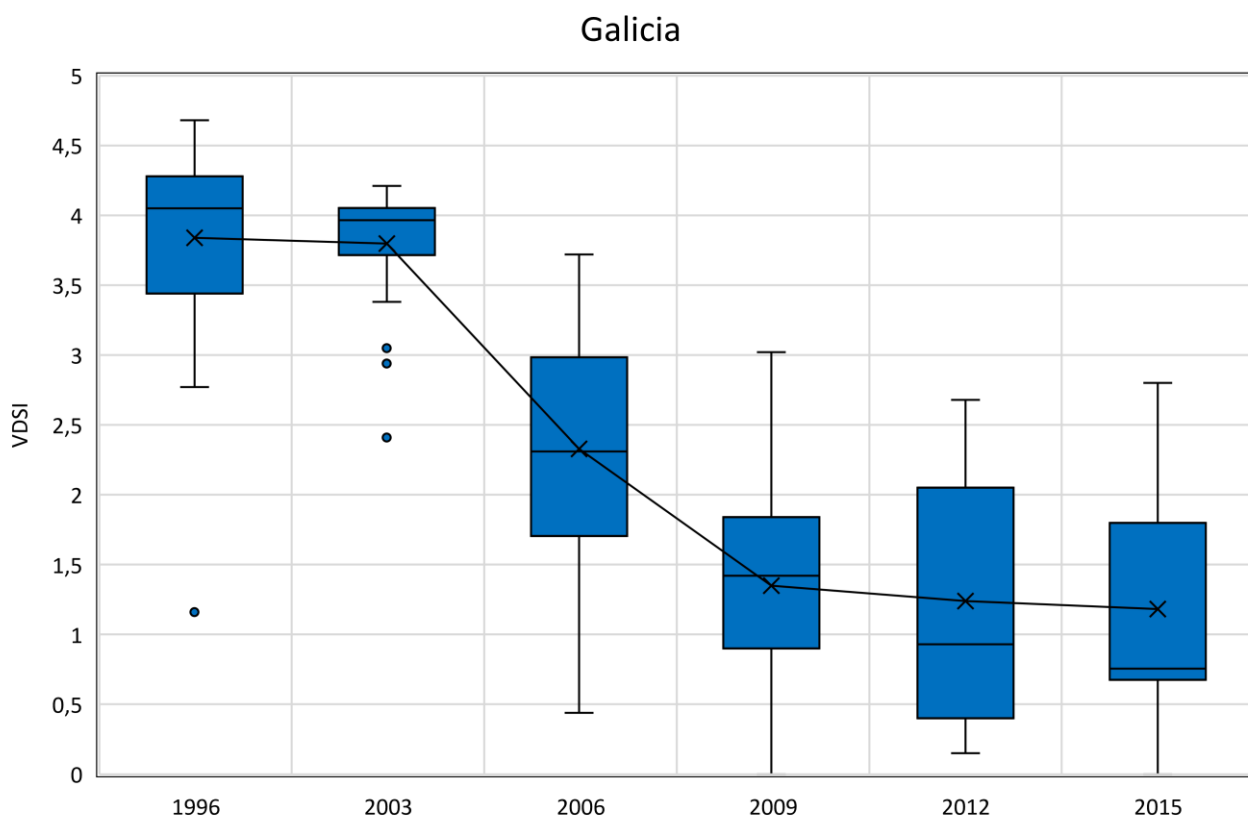


Figura 4. Evolución del VDSI en Galicia.

## 4.2 Portugal

Para Portugal, se han seleccionado los estudios de (Galante-Oliveira et al., 2006; 2009; 2011) y (Laranjeiro et al., 2018a; 2018b) que cubren casi toda la línea del litoral luso (estaciones: n= 29). El volumen total de datos recopilado es de n= 102, siendo el año 2006 el que más registros aporta.

La media de VDSI en el año 2000 era de VDSI= 3,50  **categoría C** , y en el año de la prohibición (2003, año de referencia empleado para analizar la evolución de la media de VDSI) era de 2,89; dicho nivel equivale a la  **categoría C**  en la guía de monitorización. En dicha categoría las poblaciones sufren riesgo de efectos adversos por contaminación por

TBT. En el año 2006 la media había descendido significativamente a VDSI = 2,03 **categoría C**, acercándose al límite aceptable de la **categoría B**. La recuperación seguía una línea descendente adecuada. En el año 2008 (año de la prohibición global del TBT) vemos un ligero descenso significativo de la media de -0,55 (VDSI = 1,48 **categoría B**), reflejando el año 2007 valores similares. En el 2011 la media sigue su descenso, bajando hasta el valor VDSI = 0,99 **categoría B**. Por último, en el 2014 la media parece entrar en un estancamiento, con un valor medio VDSI de 0,95 similar al del 2011, correspondiente a la **categoría B** (ver Figura 5).

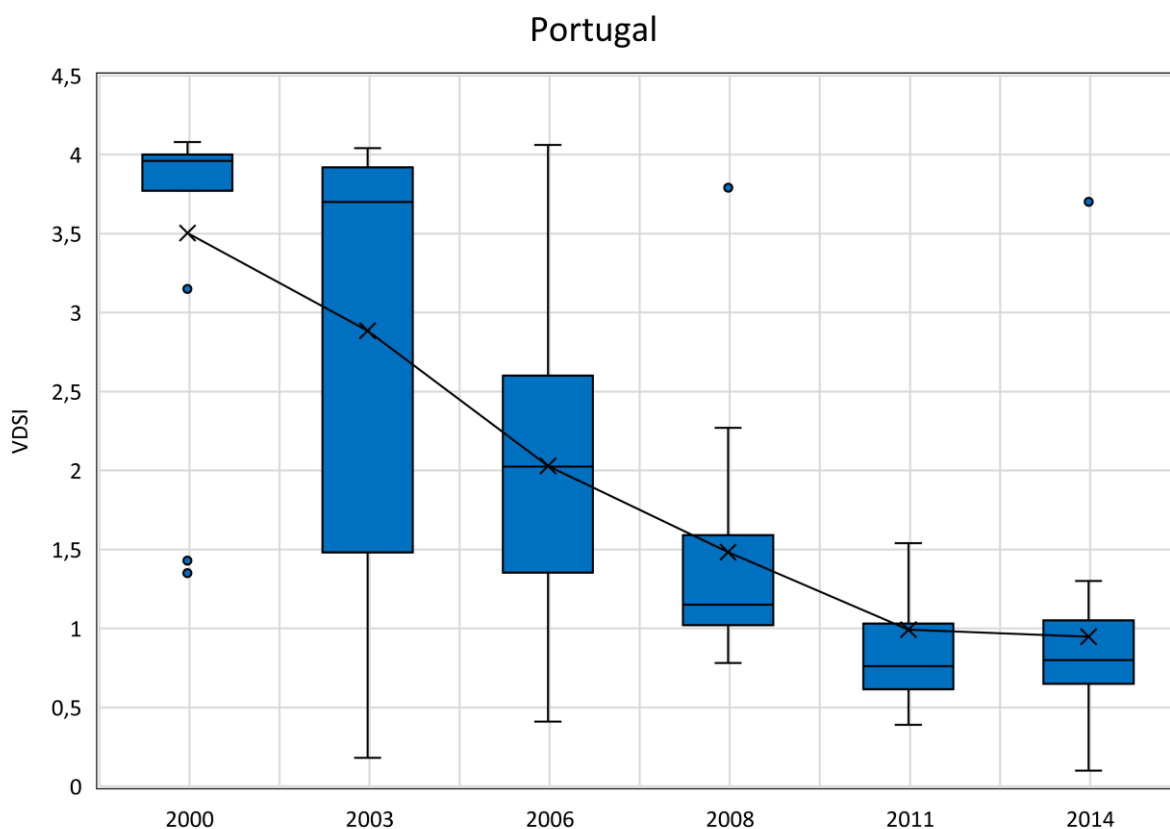


Figura 5. Evolución del VDSI en Portugal.

### 4.3 Francia (Brest)

En Francia hubo campañas de monitorización que fueron intensas, y muestrearon zonas muy amplias de sus costas atlánticas (e.g. Bologne sur mer, Havre, Cherbourg). El volumen de datos era incluso más abundante que el de Galicia y Portugal, pero de cada región solamente había unas pocas estaciones. Dada esta cantidad de datos y la extensión geográfica, se ha seleccionado únicamente la región de Brest. Se trata de una de las zonas más representativas de la breña francesa, en la que habita *Nucella lapillus*.

En Brest se monitorizaron n= 15 estaciones y se obtuvieron 59 mediciones de VDSI extraídos de (Huet et al., 2003; 2006; 2010) y (TOXEM, 2012; 2015)

En la región de Brest la media de VDSI para el año 2003 era de VDSI= 4,04, dicho nivel equivale a la **categoría D** en la guía de monitorización de imposex. En el año 2006, la media había descendido solamente en -0,21 (VDSI = 3,83 **categoría C**), por lo que la recuperación fue muy leve y los efectos de la prohibición poco destacables. En el 2009 hubo otro ligero descenso en la media de -0,59 (VDSI = 3,24 **categoría C**). Finalmente, 2012 y 2014 muestran claramente un descenso de la media VDSI= 1,94 y 1,94 respectivamente; así como la estabilización del valor del VDSI en la **categoría B** (ver Figura 6). Entre 2012 y 2014 no hubo una evolución estadísticamente significativa, al contrario del período 2003-2012. De nuevo tenemos un estancamiento de las medias, cuyo valor es mayor que en otros casos analizados en este trabajo.

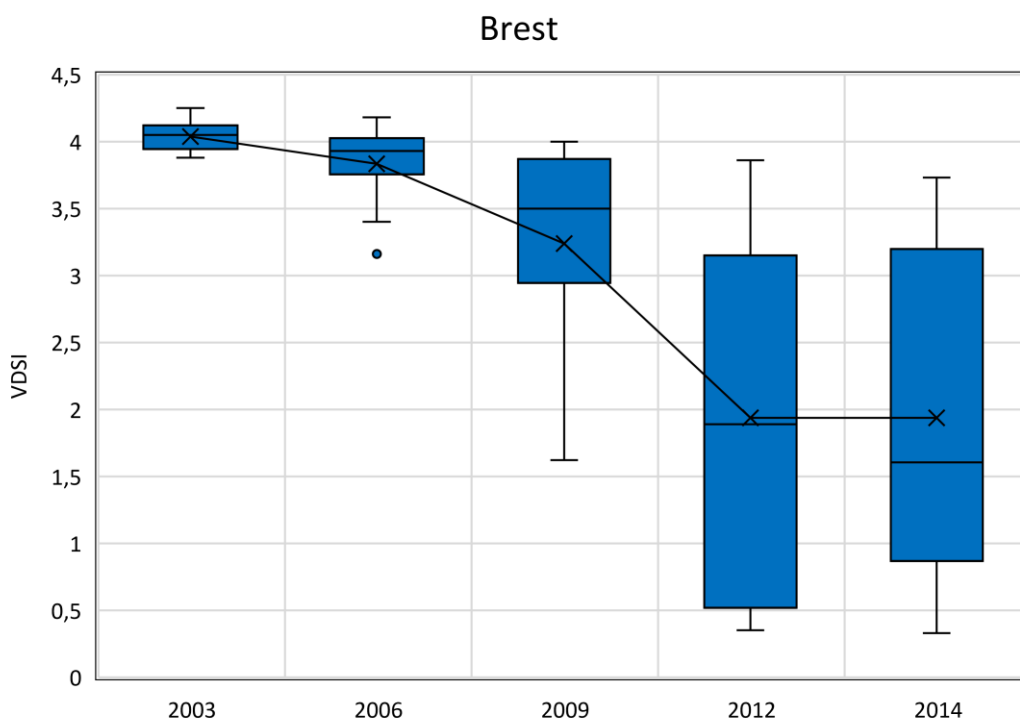


Figura 6. Evolución del VDSI en Brest.

El alto nivel de imposex que sufrían las poblaciones de *Nucella lapillus* de Brest puede relacionarse con el hecho de que se trata de un puerto marítimo históricamente importante. En él están también ubicadas bases de submarinos y otras instalaciones navales militares. Además, el abundante tráfico marítimo junto con la acumulación del TBT en los sedimentos (que actúan como reservorio) pueden ser motivos del lento descenso del nivel de imposex en las aguas de la región de Brest.

#### 4.4 Reino Unido (Inglaterra y Gales)

Para las costas del Reino Unido fue necesaria una aproximación cuantitativa, debido a que los trabajos empleados reflejaban la información del imposex con la valoración cualitativa (letra), en lugar de emplear el VDSI. Contamos así con n=18 estaciones distribuidas por Inglaterra y Gales, que aportan una serie de datos de n= 61 (Nicolaus & Barry, 2015)

La media de VDSI en Inglaterra y Gales en el año 1997 era de VDSI= 3,19 **categoría C**. Dado que no hubo campaña de monitorización en 2003, usaremos como referencia el año 2004 para analizar la evolución. En Inglaterra y Gales la media de VDSI en el año 2004 era de VDSI= 2,47, dicho nivel equivale a la **categoría C** en la guía de monitorización de imposex. En el 2007 la media había descendido en -0,40 (VDSI = 2,07 **categoría C**), por lo que la recuperación estaba ya en proceso. Sin embargo, en el año 2010 hubo un aumento en la media reflejando un VDSI = 2,43 **categoría C**. Esto es posible que se deba a un error debido a la aproximación cualitativa. Por último, en el 2014 el VDSI había descendido en -1,36 (VDSI = 1,07, **categoría B**) (ver Figura 7). Según Nicolaus & Barry (2015) entre los estudios de 1997 y 2010 hubo una reducción significativa del VDSI, y también entre 1997 y 2014.

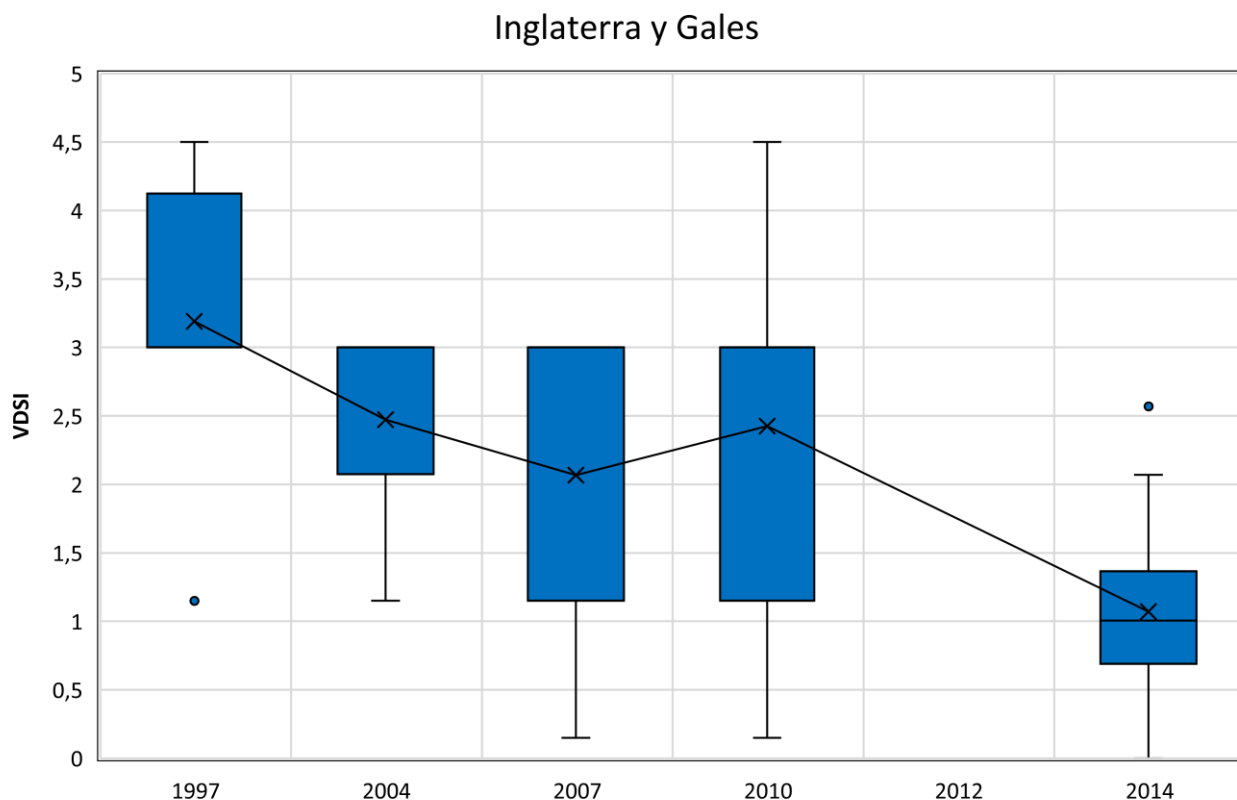


Figura 7. Evolución del VDSI en Inglaterra y Gales.

## 4.5 Noruega

Noruega es un caso muy interesante ya que ha demostrado un rápido descenso del índice de imposex en sus aguas, hasta alcanzar el valor VDSI = 0 en el año 2017 en todas las estaciones. Su antítesis en este trabajo sería Brest, zona que sufre de una mayor contaminación por TBT a pesar de que también haya experimentado una recuperación. El esfuerzo de monitorización fue constante, 8 estaciones aportan un volumen de datos de  $n=137$  en 17 años de monitorización resumidos en un único trabajo (Schøyen et al., 2018).

La media de VDSI en Noruega en el año 2001 era de  $VDSI=3,82$  **categoria C**. En el año 2003 era de  $VDSI=3,24$ , dicho nivel equivale a la **categoria C** en la guía de monitorización de imposex de la OSPAR. Este es el dato de referencia para analizar la evolución del VDSI. En el año 2006, la media había descendido en  $-1,78$  ( $VDSI=1,46$  **categoria B**), la recuperación fue significativa y el efecto de la prohibición claramente visible. En el año 2009 hubo un ligero descenso en la media de  $-0,57$  ( $VDSI=0,89$  **categoria B**). En el 2012 la media ya se situaba en la óptima **categoria A** (alcanzada por vez primera dos años antes) con un valor  $VDSI=0,20$ . Dicha categoría se mantendrá en los próximos años, aunque el 2015 presentaba una media de  $VDSI=0,26$  que aumentaba en comparación con otros años precedentes (ver Figura 8).

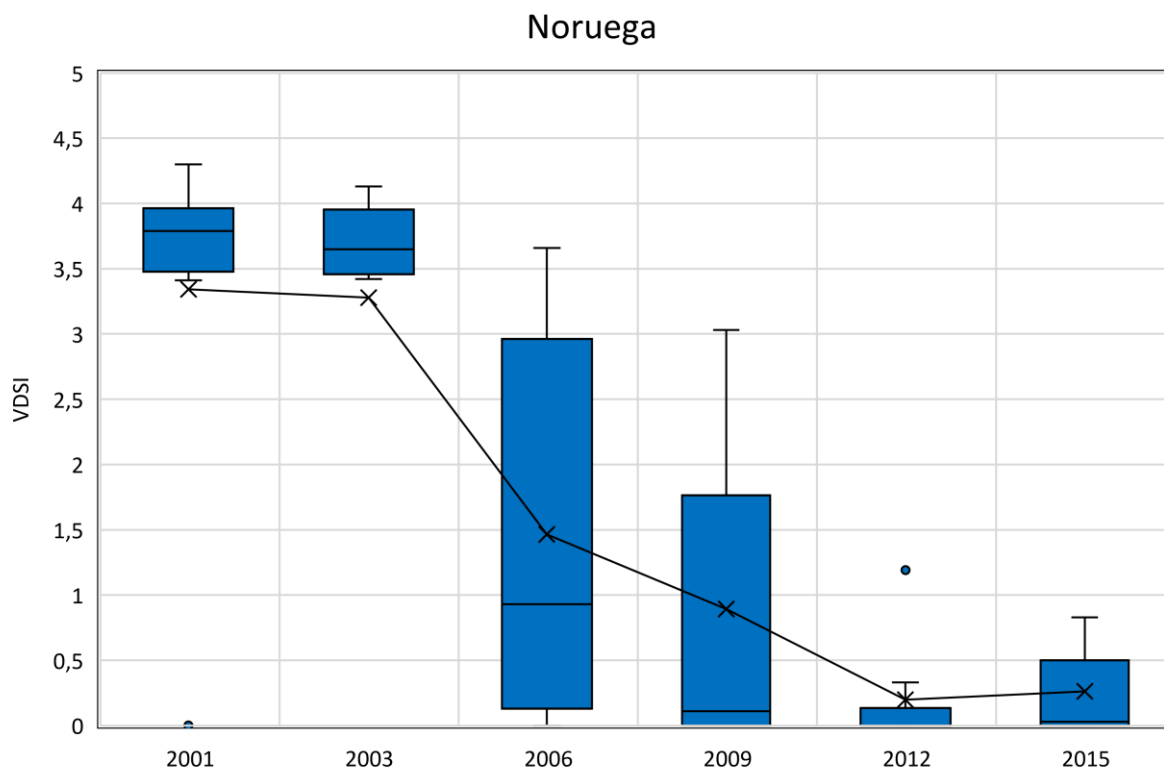


Figura 8. Evolución del VDSI en Noruega



## 4.6 Europa

Las diferentes regiones de la geografía europea analizadas en esta revisión se muestran señaladas en la Figura 9. Dichas zonas nos han permitido comparar y resumir la evolución del imposex a lo largo del extenso litoral europeo.

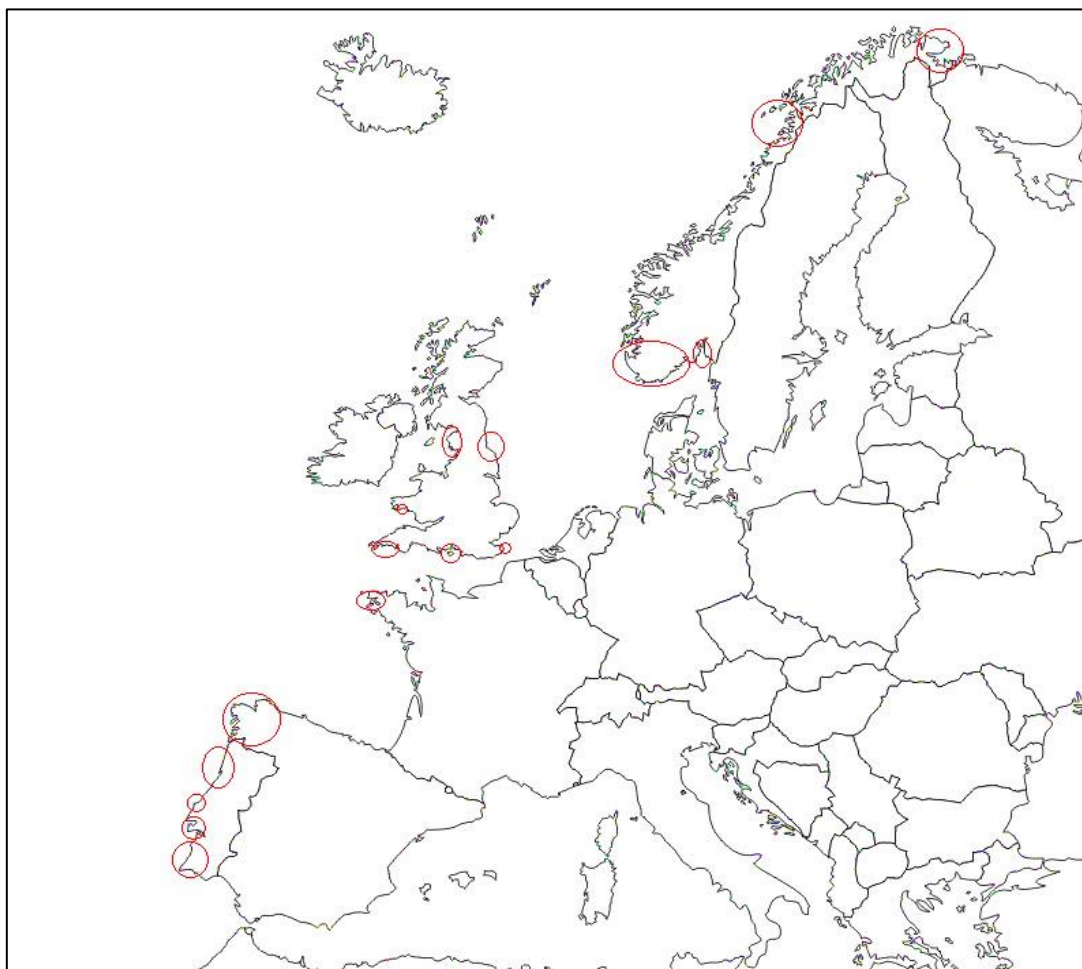


Figura 9. Mapa de Europa con las regiones analizadas en esta revisión (óvalos rojos).

Siguiendo el orden empleado anteriormente, comentaremos los resultados finales sobre la evolución de la media de VDSI en Europa resumidos en la Figura 10.

España (Galicia) experimentó un rápido y significativo descenso del VDSI gracias a la prohibición del año 2003, como puede verse en los valores del 2006-2007. Continuó con esa tendencia de recuperación ayudada de la prohibición del 2008 y finalmente entró en una fase de estancamiento de **categoría B**.

Portugal mostró también una gran mejoría tras la prohibición de 2003, con descensos significativos entre 2003-2006 y 2003-2008. Los valores obtenidos en 2014 son muy similares a los del 2011, lo cual nos indica de nuevo un estancamiento en la **categoría B**, con valores del mismo orden que Galicia.

Francia (Brest) parte del valor más alto de VDSI. La prohibición tuvo efectos significativos entre el año 2009 y los valores medidos en estudios anteriores a 2007. La prohibición del 2008 provocó una mejor recuperación, pero los últimos 4 años de monitorización no registraron diferencias significativas entre ellos. Así, la región de Brest sufre también un estancamiento con valores de VDSI justo por debajo de 2, en la **categoría B**, pero próximos a la **categoría C**.

Reino Unido (Inglaterra y Gales) sigue la misma tendencia de mejora tras la prohibición europea con un estancamiento de los últimos años registrados en la **categoría B**. La aproximación de los datos ha podido influir en los resultados finales, pero los autores indican un descenso significativo del VDSI entre los años 1997 y 2010 y entre 1997 y 2014.

Noruega presenta dos épocas de mejora muy importantes: tras la prohibición europea en 2006-2007 y tras la prohibición global en 2008-2010. En 2012 alcanzó la óptima **categoría A**, la cual mantuvo en los años siguientes hasta registrar en 2017 un valor de VDSI = 0 en todas las estaciones. Se trata de la nación que mejores resultados ha registrado en el proceso de recuperación.

## EVOLUCIÓN VDSI EN EUROPA

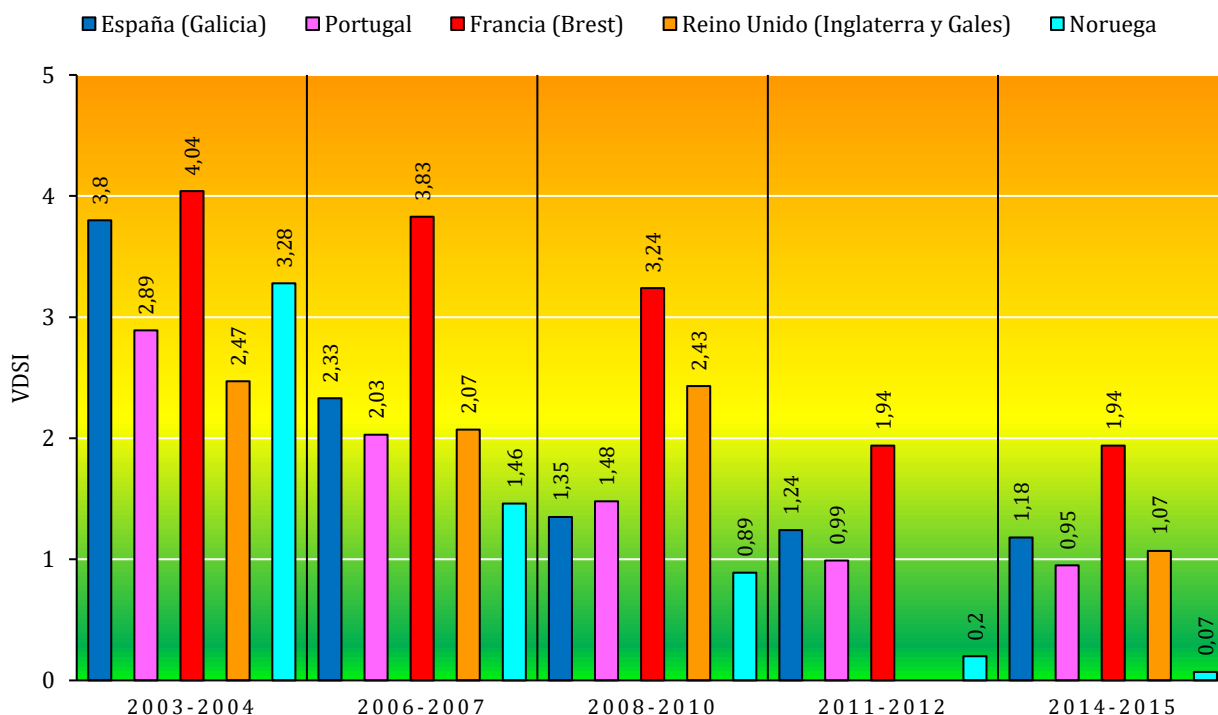


Figura 10. Evolución de las medias de VDSI en Europa tras la prohibición del TBT en 2003.

## 5. Conclusiones

- Las prohibiciones sobre el uso y comercialización de TBT del año 2003 (Europa) y 2008 (global) fueron efectivas, ya que los niveles de imposex descendieron en las poblaciones de *Nucella lapillus* de todas las costas europeas con mayor o menor rapidez.
- La continua recuperación se ve reflejada en las caídas significativas del índice de VDSI, pero al final de los registros la media de VDSI de todas las naciones (excepto Noruega) entra en un estancamiento que corresponde a la **categoría B**, por lo que todavía no se han recuperado completamente.
- De los países analizados, Francia (Brest) es el que ha tenido una peor recuperación, con una media de VDSI en 2014-2015 equiparable a la del resto de países en 2006-2007. Los motivos podrían ser específicos de esta zona concreta, caracterizada por una combinación de elevado tráfico marítimo y la acumulación del TBT en los sedimentos.
- Es necesario remarcar la importancia de las campañas de monitorización periódicas, sobre todo en grandes puertos marítimos, con el fin de mantener un registro con datos fiables sobre la calidad del agua. A medida que pasan los años tras la crisis del TBT se produce un descenso en el número y la intensidad de los estudios y campañas de monitorización del imposex.

## 5. Conclusións

- As prohibicións sobre o uso e a comercialización de TBT en 2003 (Europa) e 2008 (global) foron efectivas, xa que os niveis de imposex baixaron nas poboacións de *Nucella lapillus* en tódalas costas europeas con máis ou menos rapidez.
- A continua recuperación reflíctese nas caídas significativas do índice VDSI, pero ao final dos rexistros a media de VDSI de tódalas nacións (agás Noruega) entra nun estancamento que corresponde á **categoría B**, polo que aínda non recuperáronse completamente.
- Dos países analizados, Francia (Brest) ten a peor recuperación, cunha media de VDSI no 2014-2015 comparable á doutros países no 2006-2007. As razóns poderían ser específicas para esta área concreta, caracterizada por unha combinación de alto tráfico marítimo e a acumulación de TBT nos sedimentos.
- É preciso destacar a importancia das campañas de seguimento periódico, especialmente nos grandes portos marítimos, para manter un rexistro con datos fiables sobre a calidade da auga. A medida que pasan os anos despois da crise do TBT, hai unha diminución do número e intensidade dos estudos e campañas de seguimento do imposex.

## 5. Conclusions

- The prohibitions on the use and commercialization of TBT in 2003 (Europe) and 2008 (global) were effective. The levels of imposex decreased in the *Nucella lapillus* populations of all European coasts at different rates.
- The continuous recovery is reflected in the significant falls of the VDSI but at the end of the records the average VDSI of all nations (except Norway) enters a stagnation that corresponds to **category B**. Therefore, the recovery has not been completed yet.
- Of the countries analyzed, France (Brest) has the worst recovery. Its average of VDSI in the year 2014-2015 was similar to that of the rest of the countries in the year 2006-2007. The reasons could be specific to this particular area, characterized by a combination of high maritime traffic and the accumulation of TBT in the sediments.
- It is necessary to emphasize the importance of periodic monitoring campaigns, especially in large harbours, in order to keep a record with reliable water quality data. As the years pass by after the TBT crisis there is a decrease in the number and intensity of the imposex studies and monitoring campaigns.

## 6. Bibliografía

- Antizar-Ladislao, B. (2008). Environmental levels, toxicity and human exposure to tributyltin (TBT)-contaminated marine environment. A review. *Environment International*, 34(2), 292–308. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2007.09.005>
- Barreiro, R., Quintela, M., Ruiz, J. M. (2004). TBT e imposex en Galicia: los efectos de un disruptor endocrino en poblaciones de gasterópodos marinos. *Ecosistemas: Revista Científica y Técnica de Ecología y Medio Ambiente*, 13(3), 13–29. <https://doi.org/10.7818/re.2014.13-3.00>
- Blaber, S. J. M. (1970). The occurrence of penis-like outgrowth behind the right tentacle in spent females of *Nucella lapillus* (L.), *Proceedings of the Malacological Society of London*, 39, 231–233.
- European Parliament and the Council of the European Union. (1989). Council Directive of 21 December 1989 amending for the eighth time Directive 76 / 769 / EEC on the approximation of the laws, regulations and administrative provisions of the Member States relating to restrictions on the marketing and use of certain danger. *Official Journal of the European Union*, L 398(L), 19–23. <https://doi.org/10.1039/ap9842100196>
- European Parliament and the Council of the European Union. (2003). Regulation (EC) no 782/2003 of the European Parliament and of the Council of 14 April 2003 on the prohibition of organotin compounds on ships. *Official Journal of the European Union*, L 115(January), 1–11.
- Galante-Oliveira, S., Langsten, W. J., Burt, G. R., Pereira, M. E., & Barroso, C. M. (2006). Imposex and organotin body burden in the dog-whelk (*Nucella lapillus* L.) along the Portuguese coast. *Applied Organometallic Chemistry*, 20(1), 1–4. <https://doi.org/10.1002/aoc.1011>
- Galante-Oliveira, S., Oliveira, I., Jonkers, N., Langston, W. J., Pacheco, M., & Barroso, C. M. (2009). Imposex levels and tributyltin pollution in Ria de Aveiro (NW Portugal) between 1997 and 2007: Evaluation of legislation effectiveness. *Journal of Environmental Monitoring*, 11(7), 1405–1411. <https://doi.org/10.1039/b900723g>
- Galante-Oliveira, S., Oliveira, I., Ferreira, N., Santos, J. A., Pacheco, M., & Barroso, C. (2011). *Nucella lapillus* L. imposex levels after legislation prohibiting TBT antifoulants: Temporal trends from 2003 to 2008 along the Portuguese coast. *Journal of Environmental Monitoring*, 13(2), 304–312. <https://doi.org/10.1039/c0em00140f>
- Gibbs, P. E. (1999). Biological effects of contaminants: Use of imposex in the dogwhelk (*Nucella lapillus*) as a bioindicator of tributyltin pollution. *ICES Techniques in Marine Environmental Sciences*, 24(24), 1–29.

Huet, M., Michel, P., Averty, B., & Paulet, Y. (2003). La pollution par les organo-stanniques le long des côtes françaises, de La Manche et de L'Atlantique. *Ifremer Environnement*, novembre, 1–132.

Huet, M., & Paulet, Y. (2006). Estimation de la pollution par le tributyletain en 2006 a l'aide de l'imposex. *Ifremer Environnement*, novembre, 1–40.

Huet, M., & Koken, M. (2010). Intensité de l'imposex chez *Nucella lapillus* le long des côtes de la Manche et de l'Atlantique en 2009. *Ifremer Environnement*, avril, 1–90.

imo.org. <http://www.imo.org/es/About/Conventions/ListOfConventions/Paginas/InternationalConvention-on-the-Control-of-Harmful-Anti-fouling-Systems-on-Ships-%28AFS%29.aspx> [Último acceso 3 Septiembre 2019]

Laranjeiro, F., Sánchez-Marín, P., Oliveira, I. B., Galante-Oliveira, S., & Barroso, C. (2018a). Environmental quality status of the Portuguese coast regarding TBT pollution – Recommendations for considering imposex monitoring within the scope of the Marine Strategy Framework Directive. *Ecological Indicators*, 93(February), 966–974. <https://doi.org/10.1016/j.ecolind.2018.05.054>

Laranjeiro, F., Sánchez-Marín, P., Oliveira, I. B., Galante-Oliveira, S., & Barroso, C. (2018b). Fifteen years of imposex and tributyltin pollution monitoring along the Portuguese coast. *Environmental Pollution*, 232, 411–421. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2017.09.056>

Nicolaus, E. E. M., & Barry, J. (2015). Imposex in the dogwhelk (*Nucella lapillus*): 22-year monitoring around England and Wales. *Environmental Monitoring and Assessment*, 187(12), 1–14. <https://doi.org/10.1007/s10661-015-4961-0>

ospar.org. <https://www.ospar.org/about> [Último acceso 3 Septiembre 2019]

OSPAR. (2003). JAMP Guidelines for Contaminant-Specific Biological Effects. *OSPAR Commission Monitoring guidelines*, (10), 1–38.

OSPAR. (2004). OSPAR convention for the protection of the marine environment of the north-east Atlantic: Provisional Assessment Criteria for TBT – Specific Biological Effects. *OSPAR Commission Summary Record* - (Vol. 17), 4–6.

Ruiz, J. M., Albaina, N., Carro, B., & Barreiro, R. (2015). A combined whelk watch suggests repeated TBT desorption pulses. *Science of the Total Environment*, 502, 167–171. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2014.09.019>

Ruiz, J. M., Carro, B., Albaina, N., Couceiro, L., Míguez, A., Quintela, M., & Barreiro, R. (2017). Bi-species imposex monitoring in Galicia (NW Spain) shows contrasting achievement of the OSPAR Ecological Quality Objective for TBT. *Marine Pollution Bulletin*, 114, 715–723.

Ruiz, J. M., Carro, B., Albaina, N., Barreiro, R., Rial, D., & Bellas, J. (2018). Extended imposex monitoring in N Atlantic Spain confirms punctual attainment of European environmental objectives for TBT. *Marine Pollution Bulletin*, 126, 462–466.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2017.11.048>

Santillo, D., Langston, W. J., & Johnston, P. (2001). Tributyltin (TBT) antifoulants: a tale of ships, snails and imposex. *Late Lessons from Early Warnings: The Precautionary Principle 1896-2000*, (No. 22), 135–148. Retrieved from  
[http://reports.eea.eu.int/environmental\\_issue\\_report\\_2001\\_22/en/tab\\_abstract\\_RLR](http://reports.eea.eu.int/environmental_issue_report_2001_22/en/tab_abstract_RLR)

Sayer, C. D., Hoare, D. J., Simpson, G. L., Henderson, A. C. G., Liptrot, E. R., Jackson, M. J., Waldock, M. J. (2006). TBT causes regime shift in shallow lakes. *Environmental Science and Technology*, 40(17), 5269–5275. <https://doi.org/10.1021/es060161o>

Schøyen, M., Green, N. W., Hjermann, D., Tveiten, L., Beylich, B., Øxnevad, S., & Beyer, J. (2018). Levels and trends of tributyltin (TBT) and imposex in dogwhelk (*Nucella lapillus*) along the Norwegian coastline from 1991 to 2017. *Marine Environmental Research*, (November), 144, 1–8. <https://doi.org/10.1016/j.marenvres.2018.11.011>

Titley-O'Neal, C. P., Munkittrick, K. R., & MacDonald, B. A. (2011). The effects of organotin on female gastropods. *Journal of Environmental Monitoring*, 13, 2360-2388  
<https://doi.org/10.1039/c1em10011d>

TOXEM. (2012). Suivi de l'imposex sur le littoral français de la Manche et de l'Atlantique en 2012 avec integration des donnees 2010 et 2011. *Ifremer Environnement*, july, 1–117.

TOXEM. (2015). Imposex: Le site de Brest, *Agence de l'eau Loire-Bretagne*, october, 1–6.