

❖ ❖

❖ **Study on Species of Organotin in Oysters and Rock Shells** ❖

❖ **along the Taiwan Oyster Mariculture Areas** ❖

[illegible]

執行期間：88年8月1日至89年7月31日

共同主持人：

☐ 國際合作研究計畫國外研究報告書一份

中 華 民 國 89 年 9 月 15 日

行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

臺灣養殖地區牡蠣及蚵岩螺中有機錫物種之研究

Study on species of organotin in oysters and rock shells along the Taiwan oyster mariculture areas

計畫編號：NSC 89-2621-B-002-003

執行期限：88 年 8 月 1 日至 89 年 7 月 31 日

主持人：洪楚璋 執行機構及單位名稱：國立台灣大學海洋研究所

計畫參與人員：許元東¹，孟培傑² 執行機構及單位名稱：1, 台大海研所; 2, 中研院化學所

一、中文摘要

民國 88 年 8 月(夏季), 11 月(秋季)及 89 年元月(冬季)採集香山, 鹿港, 台西, 東石, 布袋, 將軍, 七股, 安平, 高屏, 東港等牡蠣養殖地區之蚵螺(*Thais clavigera*)與牡蠣(*Crassostrea gigas*), 鑑定性別後, 分析丁基錫系[(BTs): 三丁基錫(TBT), 二丁基錫(DBT), 單丁基錫(MBT)]與酚基錫系[(PhTs): 三酚基錫(TPhT), 二酚基錫(DPhT)及單酚基錫(MPhT)]。分析結果發現蚵螺與牡蠣之性別(包括雌性, 雄性, 性變異與雌雄同體)隨季節, 地區及其有機錫物種濃度變化甚大; 例如香山, 鹿港及七股雌性蚵螺分別由夏季之 47.7%, 32.7%及 66.4%, 減少至冬季之 1.4%, 3.2%及 43.7%。相對於性變異數目與雄性化程度則分別由夏季之 36.9%及 43.7%、40.0%及 55.0%與 16.4%及 19.6%增加至冬季之 98.6%及 98.6%, 96.8%及 96.8%與 51.1%及 54.3%。性變異蚵螺含有機錫(特別是 TBT)比雌性與雄性高出甚多; 香山地區冬季含 TBT 較高, 夏季含 TPhT 較高。

台灣牡蠣養殖地區, 夏季未發現雌雄同體牡蠣。但在秋季與冬季共 895 個試樣中, 以鹿港雌雄同體牡蠣(80%)佔最多。有機錫(特別是 TBT)則以雌雄同體含量最高, 雌性次之, 雄性最低。性變異蚵螺與雌性或雄性蚵螺含 TBT 及 BTs 以及蚵螺與牡蠣含 TBT 及 BTs 均具有良好之線性關係。

關鍵詞：有機錫物種, 台灣西部養殖牡蠣地區, 蚵螺與牡蠣, 性別與性變異/雌雄同體

Abstract

Sexual phenomena (male, female, imposex or

hermaphroditic) of rock shells (*Thais clavigera*) and oysters (*Crassostrea gigas*), collected along the Taiwan western oyster mariculture areas during the summer (August 1999), autumn (November 1999) and winter (January 2000), were identified and then analyzed for the species of butyltins [BTs: tributyl- (TBT), dibutyl- (DBT), monobutyl- (MBT)] and phenyl-tins [PhTs: triphenyl- (TPhT), diphenyl- (DPhT), monophenyl- (MPhT)]. The results indicated that the species of organotins varied with season, location and the sexual of animals. For instance, among 1206 individuals of rock shell collected from the Shiangsan, Lukang and Chiku sites, the percentages of female were decreased from 47.7%, 32.7% and 66.4% in summer to 1.4%, 3.2% and 43.7% in winter while the degree of imposex of female were increased from 36.9%, 40.0% and 16.4% in summer to 98.6%, 96.8% and 52.1% in winter, respectively. Organotins (mainly TBT) in imposex of female were generally higher than those in normal female and male. High contents of TBT with low values of TPhT were observed in winter at Shiangsan site.

For the oysters collected along the western mariculture sites from August 1999 (summer) to November 2000 (winter), no hermaphroditic oyster was observed in summer. Among 895 oyster samples in autumn and winter, similar with rock shells, higher organotins (especially TBT) were found in hermaphroditic oysters than those in female and male. Linear relations between TBT and DBT in different sexual (including imposex on rock shells and hermaphroditic oysters) of animals were significantly.

Key words: Organotin species, Mariculture sites, Sex, Imposex/rock shell, Hermaphroditic/oyster.

二、緣由與目的

近年來，不少文獻顯示有機錫會導致貝類等生物體性錯亂(Imposex)；該性錯亂被認為是造成生物體無法生育或族群減少的主要原因(Horiguchi, et al. 1997; 1994; Wilson, et al. 1993)，然而國內鮮有論文涉及環境中有機錫之分析，特別是有關有機錫導致貝類等生物體性錯亂之研究。

筆者等(洪等1998; 洪 1997) 參加聯合國大學主導之國際貝類偵測計劃，於民國86年元月在香山養殖地區採集之牡蠣含總丁基錫(BTs, 1660 ng/g, 乾重)最高，其中91%含量為TBT (Hung et al. 1998)，於87年2月在同樣養殖區發現與牡蠣共同生長之蚵螺具有明顯之性變異現象，88年元月分析香山200個性變異蚵螺之雄化程度(陰莖與個體長度比值)，發現該雄化程度與TBT(0.7655, $p < 0.01$)，DBT (0.4253, $p < 0.01$)，MBT(0.5955, $p < 0.01$)均有正相關性(r 值)；但與TPhT(-0.6160, $p < 0.01$)具有負相關性(Hung et al. 2000)。本研究目的在進一步瞭解台灣養殖牡蠣海域，發生蚵螺性變異地區是否牡蠣亦有相同之性錯亂現象[早期在澎湖發現之雌雄同體牡蠣(Lin et al. 1982)是否即為性錯亂現象?]，或台灣西部牡蠣養殖地區是否有雌雄同體之牡蠣發現?以及其體內含有機錫物種如丁基錫 [BTs; 包括三丁基錫(TBT)，二丁基錫(DBT)及單丁基錫(MBT)] 與酚基錫 [PhTs; 包括三酚基錫(TPhT)，二酚基錫(DPhT)及單酚基錫(MPhT)]之關係。

三、結果與討論

由於過去國際貝類偵測(洪等 1998; 洪 1997)及蚵螺含有機錫物種與其性變異(Hung, et al. 1998; 2000)之研究經驗，於民國 88 年 8 月 9 日至 13 日(夏季)，11 月 15 日至 18 日(秋季)及 89 年元月 17 日至 21 日(冬季)分別採集香山、鹿港、台西、東石、布袋、將軍、七股、安平、高屏、東港等牡蠣養殖地區之蚵螺與牡蠣，去殼後鑑定雌性，雄性及性變異之性器官(陰莖)之丈量工作以及其性變異雄化程度(Hung, et al. 1998)後；立即進行個體中含有機錫物種之分析。有機錫物種分析品質保證與品質管制結果詳如表 1。

結果發現台灣西部養殖牡蠣地區之蚵螺與牡蠣之性別(包括性變異與雌雄同體)隨季節、地區及其有機錫物種濃度變化甚大；例如分析 1206 個由香山、鹿港及七股採集之蚵螺個體，發現雌性蚵螺分別由夏季 47.7%、32.7% 及 66.4%，減少至秋季之 11.1%、8.1%、53.1%；冬季則雌性數(分別為 1.4%、3.2%及 43.7%)最低(如表 2)。相對於性變異數目與雄性化程度則分別由夏季之 36.9%及 43.7%、40.0%及 55.0%，與 16.4%及 19.6%增加至冬季之 98.6%及 98.6%、96.8%及 96.8%，與 52.1%及 54.3% (表 2)。性變異蚵螺含有機錫則比雌性與雄性高出甚多；香山地區比鹿港與七股高出甚多；例如香山冬季性變異蚵螺含 TBT (611.1ng/g 乾重) 與 BTs (821.4±68.5ng/g)最高；其次為鹿港(TBT, 262.5ng/g; BTs, 96.6±58.4ng/g)；七股(TBT, 18.9ng/g; BTs, 56.2±6.2ng/g)則最低(表 3)。TBT 含量與性變異之陰莖長度($r=0.8697$, $p < 0.01$)及其雄化程度($r=0.8511$, $p < 0.01$)以及 BTs 與性變異之陰莖長度 ($r=0.8334$, $p < 0.05$) 及其雄化程度 ($r=0.8092$, $p < 0.05$)均呈正相關性(Fig. 1)；性變異蚵螺含 BTs 與雌性蚵螺中 BTs ($r = -0.4261$, $p < 0.005$) 及雄性蚵螺($r = -0.7142$, $p < 0.001$)呈負相關性；但含 TBT(前者為 $r=0.9129$, $p < 0.001$ ；後者為 $r=0.8484$, $p < 0.001$)則呈正相關性(Fig. 2)。負相關性相信是由於受溫度、紫外線或其他生物等因子破壞將 TBT 轉變為 DBT 及 MBT (Stewart 與 Mora 1990)所致。

台灣牡蠣養殖地區，夏季未發現雌雄同體牡蠣。但在秋季與冬季共 895 個試樣中，以鹿港雌雄同體牡蠣(80%)佔最多。雌雄同體之牡蠣含有機錫(主要為 TBT)量比雌性及雄性高；例如 TBs 最高值出現在冬季高屏地區(450±19ng/g, TBT 佔 91%)，次高值在香山養殖區(441±30ng/g, TBT 佔 74%)。PhTs 最高值(549±18ng/g, 96%為 TPhT)出現在冬季將軍地區之雌雄同體，次高值(444±159ng/g, 98%為 TPhT 及 419±109 ng/g, 75% 為 TPhT)分別出現在夏季之香山雄性與雌性牡蠣(Fig. 3)。值得報導是夏、秋與冬季香山與鹿港蚵螺與牡蠣含 TBT 與 DBT (r 值介 0.7216 至 0.9293, p 均小於 0.001) 以及全省西部養殖區(由香山

至東港) 蚵螺與牡蠣含 BTs ($r=0.9103$, $p<0.001$) 與 PhTs ($r=0.2796$, $p<0.05$) 均呈正相關性(Fig. 4)。

四、計劃成果自評

本年度按計劃完成夏、秋與冬季之台灣西部養殖地區(包括香山、鹿港、台西、東石、布袋、將軍、七股、安平、高屏、東港)蚵螺與牡蠣之性別(雄性與雌性及性變異或雌雄同體)、季節性、區域性以及其有機錫物種含量之關係研究。並證實蚵螺性變異與牡蠣雌雄同體確與 BTs(特別是 TBT)有密切關係;最高值大都出現在冬季香山地區。至於為何冬季香山地區 TBT 量偏高、以及高至何種濃度會導致蚵螺性變異與牡蠣雌雄同體則有待進一步研究;此外砷、銅與 TPhT 對蚵螺性變異之負相關性之生理意義(Hung et al. 2000), 則也有待進一步研究瞭解。

五、參考文獻

- 洪楚璋、凌永健、鄭偉力、韓伯權與黃哲崇(1998) 國際貝類偵測計畫: 亞洲/太平洋區—台灣地區之調查研究。國科會科學發展月刊26(4): 390-400。
- 洪楚璋 (1997) 出席聯合國大學主辦“環境管理與分析技術: 東亞水污染監測研討會籌備及訓練工作會議(民國八十六年二月二十四日至三月一日在新加坡舉行)”報告。
- Horiguchi, T., Shiraishi, H., Shimizu, M. and Motita, M. (1997) Effects of triphenyltin chloride and five other organotin compounds on the development of imposex in the rock shell, *Thais clavigera*. *Environ. Pollut.* 95: 85-91.
- Horiguchi, T., Shiraishi, H., Shimizu, M. and Morita, M. (1994) Imposex and organotin compounds in *Thais clavigera* in Japan. *J. Mar. Biol. Ass. UK*, 74: 651-669.
- Hung, T.C., Hsu, W.K., Meng, P.J. and Chuang, A. (2000) Organotins and imposex in the rock shell, *Thais clavigera*, from oyster mariculture areas in Taiwan. *Environ. Pollut.* 112: (In press).
- Hung, T.C., Lee, T.Y. and Liao, T.F. (1998) Determination of butyltins and phenyltins in oysters and fishes from Taiwan coastal waters.

Environ. Pollut. 102: 197-203.

Stewart, C. and Mora, S.J. (1990) A review of the degradation of tributyltin in the marine environment. *Environ. Techn.* 11: 565-570.

Wilson, S.P., Ahsanullah, M. and Thompson, G. B. (1993) Imposex in neogastropod: An indicator of tributyltin contamination in eastern Australia. *Mar. Pollut. Bull.* 26: 44-48.

Table 1 Method detection limits (MDL) and recoveries of standard reference material (SRM) spiked in *Thais clavigera* (ng/g, dry weight) that extracted with 0.1g/L tropolone-benzene solution.

Organotin	Back-ground	Spiked SRM	Measured	Recovery (%)	MDL (ng)
MBT	21.4	189.1	184.3	87.6±5.1	9.3
DBT	25.4	207.6	219.4	94.2±5.1	11.5
TBT	153.5	213.8	314.8	85.7±6.9	8.2
MPhT	nd	179.5	141.6	78.9±6.1	14.8
DPhT	nd	175.2	153.2	87.4±9.7	9.1
TPhT	75.4	180.6	178.4	69.7±6.9	18.6

SRM: NIES No. 11[Fish (*Leteolabrax japonicus* Curier) tissues], donated from the United Nations University

Table 2 Seasonal variation of sexuality (%) and degree of imposex (%) of rock shells, *Thais clavigera*, collected from the Shiangsans (SS), Lukang (LK) and Chiku (CK) oyster mariculture areas in Taiwan in August 1999, November 1999 and January 2000.

	DATE	n	♂	♀	♂♀	D.Imposex
SS	Aug.	149	15.4	47.7	36.9	43.7
	Nov.	90	18.9	11.1	70.0	86.3
	Jan.	71	0	1.4	98.6	98.6
LK	Aug.	55	27.3	32.7	40.0	55.0
	Nov.	124	34.7	8.1	57.3	87.6
	Jan.	60	0	3.2	96.8	96.8
CK	Aug.	560	17.1	66.4	16.4	19.6
	Nov.	49	18.4	53.1	28.6	35.0
	Jan.	48	4.2	43.7	52.1	54.3

Table 3 Average concentrations of organotins (ng/g, dry weight) in rock shells, *Thais clavigera*, collected from the Shiangsans (SS), Lukang (LK), Taihsi (TH) and Chiku (CK) mariculture areas in August 1999, November 1999 and January 2000.

	MBT	DBT	TBT	MPhT	DPhT	TPhT
SS8 ♂	nd	22.4	17.4	16.3	58.2	69.0
♀	22.0	41.3	14.7	nd	54.8	nd
SS11 ♂	nd	35.2	14.5	31.3	nd	nd
♀	nd	22.8	nd	16.4	nd	nd
♂♀	28.8	139.3	96.2	47.2	nd	nd
SS1 ♂♀	27.5	182.8	611.1	nd	nd	nd
LK8 ♂	24.5	58.3	21.6	28.2	12.7	41.1
♀	26.8	41.2	8.9	nd	28.1	49.2
♂♀	nd	9.4	26.8	nd	nd	nd
LK11 ♂	nd	22.6	18.7	39.6	nd	nd
♀	13.8	55.8	30.1	36.8	ND	ND
♂♀	28.5	165.3	138.1	32.1	15.9	50.9
LK1 ♂♀	36.4	197.7	262.5	ND	nd	nd

Table 3 Continued.

	MBT	DBT	TBT	MPhT	DPhT	TPhT
TH11 ♂	nd	15.4	23.4	22.8	nd	nd
♀	nd	16.9	nd	31.6	nd	nd
♂ ♀	nd	16.4	nd	89.5	nd	nd
CK8 ♂	nd	14.1	9.5	16.9	13.9	77.1
♀	nd	23.8	8.9	15.4	16.6	nd
♂ ♀	nd	nd	8.7	37.3	22.5	nd
CK11 ♂ ♀	nd	nd	nd	22.4	nd	nd
♀	nd	18.7	nd	15.4	nd	nd
♂ ♀	9.4	30.0	9.1	nd	21.3	nd
CK1 ♂	nd	27.2	13.4	nd	nd	nd
♂ ♀	nd	37.1	18.9	nd	nd	nd

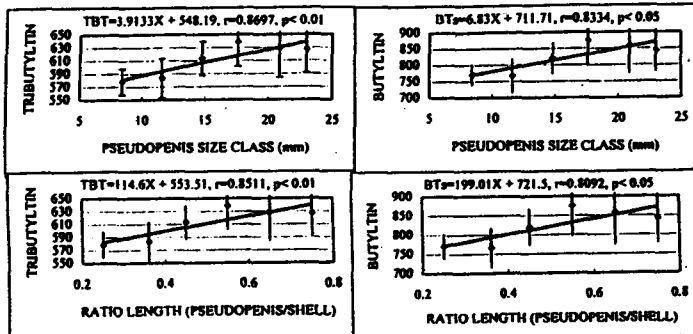


Fig. 1 Relations between organotins (ng/g, dry weight) versus pseudopenis size class and ratio length (pseudopenis/shell) of female, *Thais clavigera*, collected at Shiangsan in January 2000.

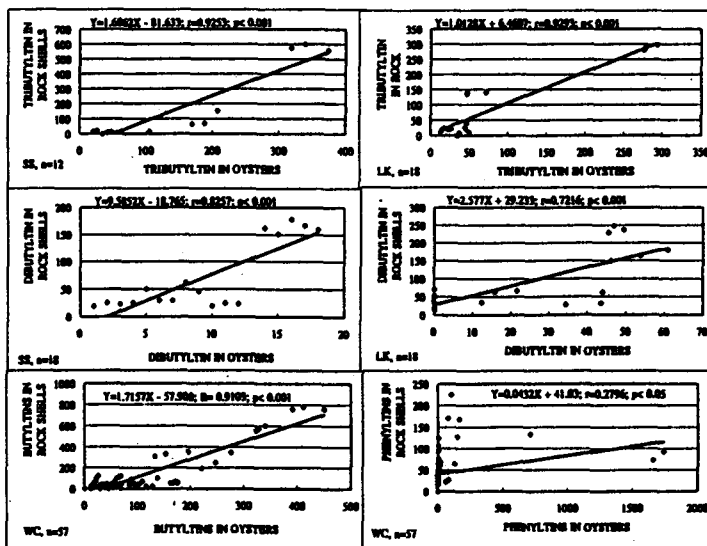


Fig. 4 Relations of organotins (ng/g, dry weight) in oysters (*Crassostrea gigas*) and rock shells (*Thais clavigera*) collected from the western mariculture areas in August 1999, November 1999 and January 2000.

[Western mariculture areas (WC): Shiangsan (SS), Lukang (LK), Taihsi (TH), Tungshi (TS), Putai (PT), Chiangchun (CC), Chiku (CK), Anpin (AP), Kaoping (KP) and Tungkan (TK)]

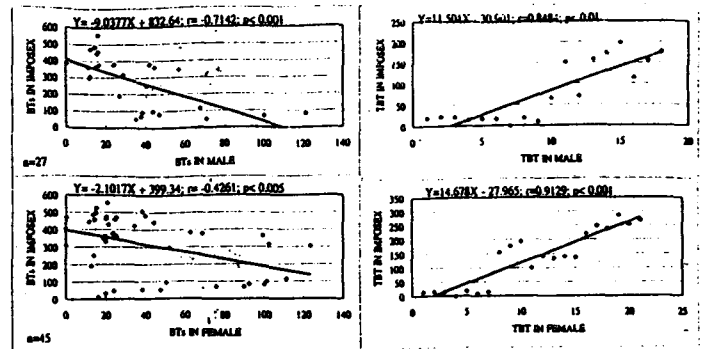


Fig. 2 Relations between organotins (ng/g, dry weight) in imposex versus male and female of *Thais clavigera* from the western mariculture areas in Aug. 1999 to Jan. 2000.

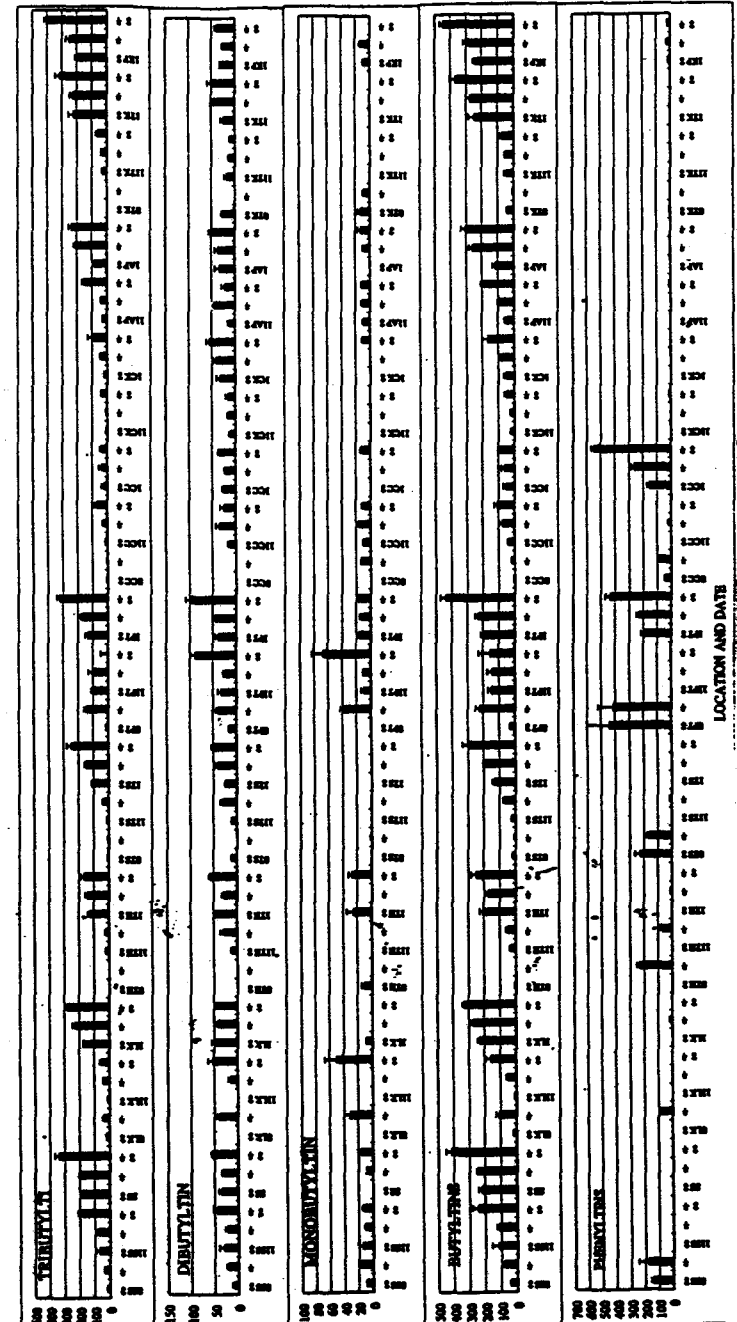


Fig. 3 The contents of organotins (ng/g, dry weight) in oysters (*C. gigas*) from the western mariculture areas in August 1999, November 1999 and January 2000.