

# Review of Study on Tributyltin-Induced Imposex in Gastropods

Lanxue Qin<sup>1,2</sup>, Xialin Hu<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>College of Environmental Science and Engineering, Tongji University, Shanghai

<sup>2</sup>Key Laboratory of Yangtze River Water Environment, Shanghai

Email: 1730498@tongji.edu.cn

Received: Mar. 28<sup>th</sup>, 2020; accepted: Apr. 22<sup>nd</sup>, 2020; published: Apr. 29<sup>th</sup>, 2020

---

## Abstract

Organotin compounds are one of the most toxic chemicals introduced by human activities into the water environment, especially tributyltin (TBT) can lead to the distortion of masculinization in female gastropods, which is characterized as imposex. In present paper, studies on field monitoring, especially long-term monitoring and anatomy of imposex in China and worldwide were reviewed. In the end, selection of bioindicators, mechanism study of imposex, and relationship between TBT pollution and human health were prospected.

## Keywords

Tributyltin (TBT), Imposex, Field monitoring, Anatomy

---

# 三丁基锡致腹足纲螺类性畸变的研究概况

覃兰雪<sup>1,2</sup>, 胡霞林<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>同济大学环境科学与工程学院, 上海

<sup>2</sup>长江水环境教育部重点实验室, 上海

Email: 1730498@tongji.edu.cn

收稿日期: 2020年3月28日; 录用日期: 2020年4月22日; 发布日期: 2020年4月29日

---

## 摘要

有机锡化合物是迄今为止通过人为活动引入水环境中毒性最强的化学物质之一, 特别是用作船舶防污剂的三丁基锡能引起腹足纲螺类雌性个体发生雄性化的畸变现象。本文介绍了国内外对于腹足类的野外监测、尤其是长期监测, 性畸变形态解剖学和组织学上的研究概况, 并展望了腹足类性畸变研究中指示种

的选择、性畸变机理、与人类健康的关系等方面的未来研究。

## 关键词

三丁基锡, 性畸变, 野外监测, 解剖学

Copyright © 2020 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

有机锡化合物是迄今为止通过人为活动引入水环境中毒性最强的化学物质之一[1],也是目前已知内分泌干扰物质中唯一的金属化合物。国外有机锡生产始于1945年,当时年产量约为500吨,主要用作PVC稳定剂。1955年有机锡化合物产量尚不足5000吨,而自60年代有机锡化合物,特别是三丁基锡(TBT)的防污特性被发现以来,有机锡防污涂料开始取代氧化铜涂料投放市场,在之后的10年里倍受青睐[2]。至1988年,有机锡化合物年产量猛增至35000吨[3]。

有机锡共有4种烷基取代物,其生理活性 $R_3SnX > R_4Sn > R_2SnX_2 > RSnX_3$ (R可为烷基、芳基、烃基等;X可为无机或有机酸根、氧或卤族元素)。研究表明,20 ng/L的TBT就足以有效防止船体码头的污损生物[4],但在防污的同时,TBT也会对许多非靶生物造成毒害。第一位注意到有机锡污染的是Thomas,他于1967年发现加拿大海水养殖架上使用有机锡会导致牡蛎壳的明显加厚,但并未引起人们的关注[5]。直到上世纪70年代末,法国阿拉琼湾中的一种商业牡蛎*Crassostrea gigas*出现生长畸形及繁殖能力衰退等现象后,人们才开始认识到有机锡污染及毒性[6]。80年代世界各地形成了有机锡污染的研究热潮,人们发现TBT对鱼类、鸟类、无脊椎动物、哺乳动物、真菌、藻类等均有毒性作用,其中最为显著的是腹足纲性畸变,即雌雄异体的腹足纲生物中,发现雌性个体右触角后长有阴茎、或体内生长输精管(雄性生殖特征器官),严重时可导致雌体不育及种群消亡的现象。

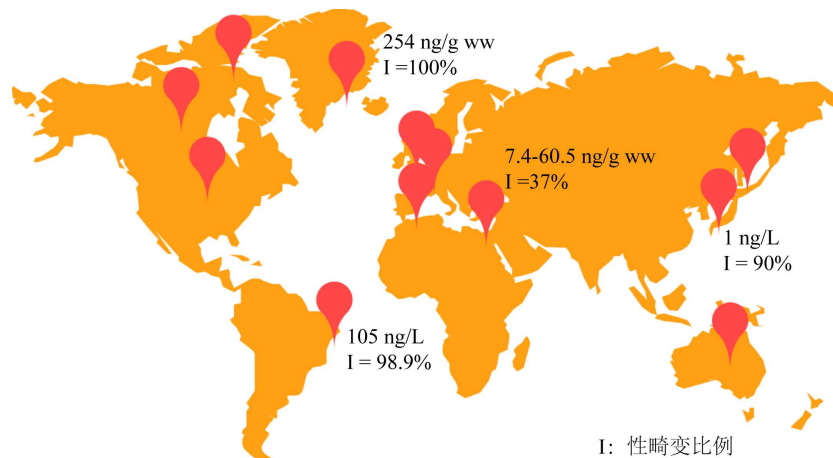
本文从野外监测和解剖学两个方面综述TBT对腹足纲螺类的性畸变效应,最后将展望在腹足类性畸变方面仍需致力研究的方向。

## 2. 野外监测

由于直接测量水体、沉积物中痕量有机锡的程序繁琐、费用昂贵,且受检测限的限制和环境变化等多种因子的影响[7],生物监测成为理想的方法。而腹足纲螺类性畸变效应的易认性、不可逆性和对有机锡反应的特殊性,使之成为海洋有机锡污染的理想生物监测指标[8]。正常的雄性螺体含精巢、前列腺、输精管、阴茎、阴茎导管等器官,雌体包含卵巢、纳精囊、卵巢腺、生殖孔口等。Blaber于1970年首次在狗岩螺*Nucella lapillus*中发现雌性个体中发育出不正常的雄性特征[9],包括阴茎和输精管的形成,严重时会导致输卵管的堵塞,阻碍受精的完成和卵囊的释放,使雌性成体不育,种群退化,甚至区域性绝种[10]。1971年Smith引入性畸变(imposex)一词[11],用以描述上述非正常现象,Jenner亦将这种现象称为假雌雄同体(pseudohermaphroditism)[12]。

上世纪80年代后,世界范围内腹足类性畸变研究日益繁盛,英国、法国、西班牙、葡萄牙、荷兰、日本、韩国、加拿大、美国、墨西哥、巴西等国家均有报道,甚至有研究者在格陵兰岛的蛾螺属中发现了100%的性畸变率[13]-[18](图1)。至2005年,研究者共发现世界范围内有195种螺对TBT污染有性

畸变效应(表 1), 典型的种类有 *Nucella lapillus*, *Morula granulata*, *Ocenebra erinacea*, *Thais clavigera*, *Thais bronni* 和 *Thais orbita* 等, 亚洲国家如新加坡、马来西亚、泰国、印度尼西亚监测的多为 *Thais spp.* 和 *Morula spp.*。自从 1986 年 Bryan 在  $10^{-11}$  个单位 TBT 浓度下诱导出了 *Nucella lapillus* 性畸变, 并证明 TBT 是野外唯一能引起 *Nucella lapillus* 性畸变的有机锡化合物[19], 已有数位学者证实水中 TBT 含量只要达到 1 ng/L 就能引起腹足类发生性畸变[20] [21] [22]。



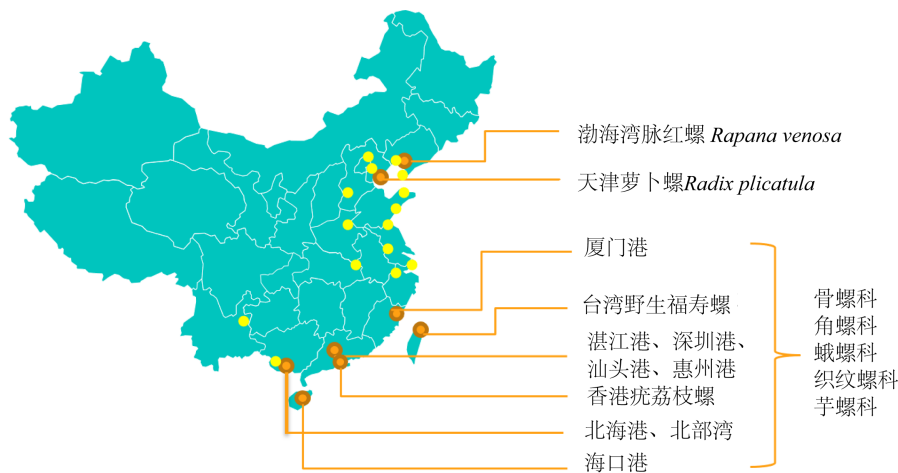
**Figure 1.** Distribution of gastropod imposex survey worldwide  
**图 1.** 世界范围内腹足纲性畸变调查分布

**Table 1.** Quantity statistics of imposex in gastropods  
**表 1.** 腹足类性畸变数目统计

截止年份	性畸变种数	报道者	参考文献
1991	118	Oehlmann <i>et al.</i>	[10]
1996	>120	Oehlmann <i>et al.</i>	[23]
1999	153	Defur <i>et al.</i>	[24]
2003	>170	施华宏	[25]
2005	195	Shi <i>et al.</i>	[26]

我国对于腹足纲性畸变的研究起步较晚, 1996 年 Blackmore 在香港海岸采集 *Thais clavigera* 并发现了性畸变现象[27], Liu 等 1996 年在台湾西海岸调查了 *Thais clavigera* 等 5 种腹足纲螺类, 均发现性畸变现象[28]。此后, 中国大陆的腹足纲性畸变调查逐渐展开, 施华宏等 2001 年对海口港、北海港、湛江港、汕头港、厦门港等我国东南沿海重要港口进行调查, 结果发现 11 种海产腹足类存在性畸变[29], 包括疣荔枝螺 *Thais clavigera*, 黄口荔枝螺 *T. luteostoma*, 蛎敌荔枝螺 *T. Gradata*, 甲虫螺 *Cantharus cecelle*, 西格织纹螺 *Nassarius siquijorensis* 等。2003 年 3 月施华宏等人对中国沿海腹足类性畸变进行首次大范围调查, 共发现了 13 种螺类发生性畸变[30]。而今, 随着中国学者的研究不断深入, 更多性畸变螺类被发现[31] [32] [33], 性畸变调查也多分布于东南沿海(图 2), 长江流域的有机锡污染也不容忽视, 1999 年前后江桂斌等人在中国 38 个水库、沿海码头等地点采集海水、淡水、沉积物样品进行 TBT 及其降解产物污染情况研究, 上海复兴东路渡轮码头淡水中 TBT 浓度为 38 个采样点之首, 达 425.3 ng/L [34]。尽管近期一项研究表明, 长江口地区沉积物中有机锡化合物仅在非常有限的样点能检出 TBT, 如港口码头或船厂附近[35], 但长江三角洲流域更长期、更广泛的基础研究亟待开展。尽管我国研究起步滞后, 但国内调查

布点更细致, 更观察到除与国外学者研究的相同螺种外, 中国的特有螺种的性畸变现象, 丰富了人们对螺类性畸变的认知。



**Figure 2.** Survey areas of imposex in gastropods in China  
**图 2.** 中国腹足纲性畸变调查区域

认识到 TBT 的毒性后, 各国政府采取了积极的控制措施。1974 年联合国海洋污染防治公约就已将有机锡列入必须控制的灰名单, 1976 年莱茵河公约又把 5 种毒性特别大的有机锡化合物列入严格要求限制的黑名单。1982 年法国率先在短于 25 m 的船舶上禁止使用有机锡防污涂料, 1987 年后, 英国(1987)、美国(1988)、澳大利亚(1989)、欧盟(1991)纷纷立法限制有机锡的使用。亚洲地区, 日本于 1990 年禁止在船舶上使用含 TBT 的防污漆, 至 1997 年全面禁止; 香港在 1992 年底禁止短于 25 m 的小船上使用有机锡涂料。国际海洋组织(IMO)自 1992 年起提出限制 TBT 使用, 2005 年通过了《控制有害船底防污系统的公约》, 要求到 2008 年 1 月 1 日, 所有船舶上完全禁止该防污系统的使用[36]。禁止使用有机锡防污漆也已被列入 2020 欧洲海洋战略框架[37]。

在限定法规实施 3~10 年后, 世界上许多国家对腹足类性畸变情况进行了长期监测(表 2)。部分地区种群性畸变程度有不同程度的下降, 一些种群曾灭绝的区域也重新得到了恢复, 如英国海区; 有些海区法规的效果则不明显, 如葡萄牙、澳大利亚沿海; 在一些没有制定法规的区域, 腹足类性畸变程度甚至日趋严重, 如泰国普吉岛海岸。

### 3. 解剖学

仅凭雌性螺体发育出不正常的雄性特征还无法得知性畸变的程度, 且研究者往往会根据当地情况采取不同的螺类作为指示种, 而不同种类的性畸变表现有所差别, 因此建立一个普适的评价体系十分必要。1986 年 Gibbs 将性畸变的发展分为前期、中期和后期[19]: 前期为形成阴茎和输卵管; 中期形成类似雄性大小的阴茎和完整的输精管; 后期则生殖孔被阻塞。1987 年, Gibbs 研究狗岩螺 *Nucella lapillus*, 提出将性畸变个体的阴茎和输精管发育划分为 6 个不同的阶段(S0~S6)和 2 个评判指标[48]:

- S0: 正常, 无雄性特, 生殖孔开放或位于生殖乳突中央, 生殖乳突嵌入外套膜中。
- S1: 外套膜腹面上皮朝生殖乳突内折, 开始形成输精管前端。
- S2: 在右触角稍后开始形成阴茎的边缘, 输精管前端继续延伸。
- S3: 小阴茎形成, 同时从其基部开始形成输精管的另一端。
- S4: 输精管的两端开始交汇, 阴茎增大至与雄性的相似。

S5: 输精管增长超过生殖乳突, 导致生殖孔异位、萎缩或消失, 生殖外口受阻; 泡状输精管支管在乳突周围出现, 且常形成增生状。

S6: 生殖腔中包含有无法排出体外的败育卵囊, 它们聚积在一起形成半透明、淡色的, 甚至灰褐色的团状物。

阴茎相对大小指数(RPSI): 雌性个体阴茎平均长度的立方与雄性个体阴茎平均长度的立方比的百分数。

输精管发育程度指数(VDSI): 性畸变次的生殖乳突上长出的输精管发展阶段。

**Table 2.** Long-term monitoring of imposex in certain gastropods

**表 2.** 部分腹足纲性畸变程度的长期监测结果

物种	地域	年份	性畸变趋势	参考文献
<i>Lepsiella scobina</i>	新西兰惠灵顿海湾	1988~1995	↘	[38]
<i>Thais orbita</i>	澳大利亚东南沿海	1990~1999	--/↘	[39]
<i>Thais</i> spp.	泰国 Phangna 海湾普吉岛东岸	1996~2000	↗	[40]
<i>Nucella lapillus</i>	英格兰西南、东北沿海	1985~2001	↘	[41]
<i>T. clavigera</i> & <i>T. luteostoma</i>	香港	1996~2004	--/↗	[42]
<i>Nucella lapillus</i>	葡萄牙西海岸沿线	1995~2000	↗	[43]
<i>Nucella lapillus</i>	葡萄牙西海岸沿线	2000~2006	↘	[44]
<i>Thais carinifera</i>	巴基斯坦 Manora 海峡	1993~2012	--	[45]
<i>Nucella lapillus</i>	英吉利海峡西南	1987~2013	↘	[46]
<i>Nucella lapillus</i>	英格兰和威尔士海岸沿线	1992~2014	↘	[47]

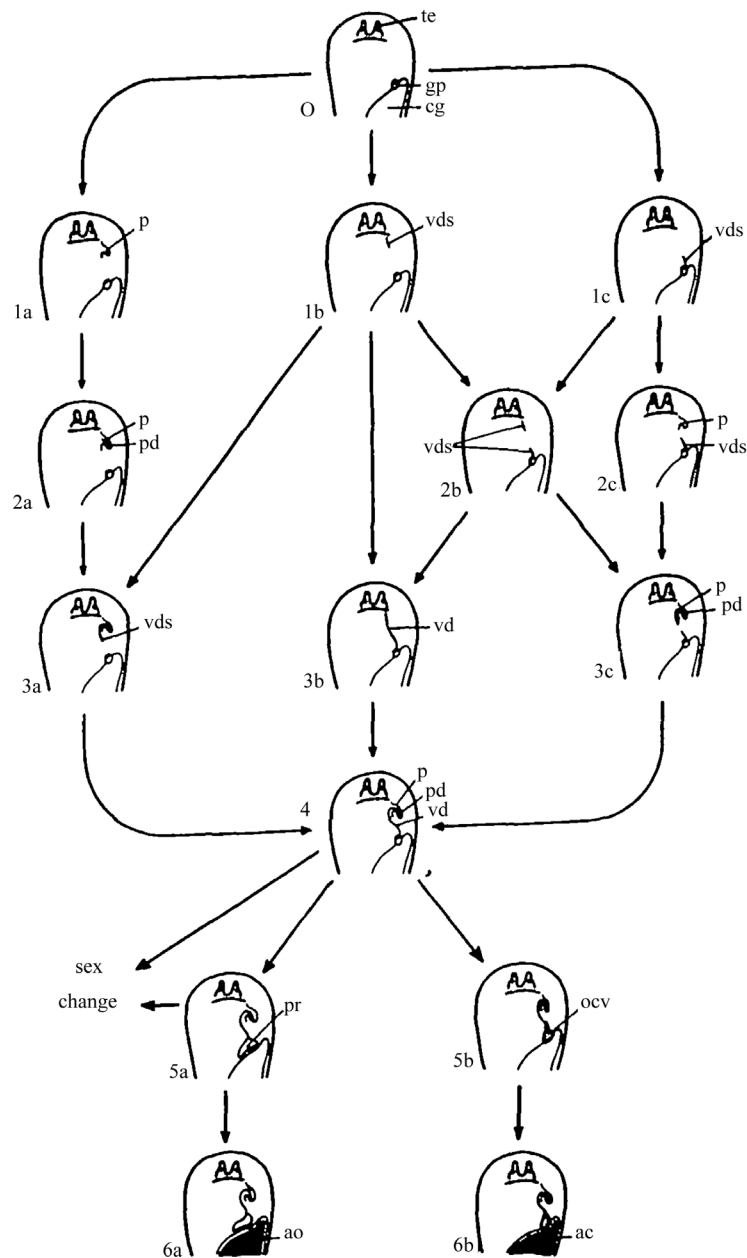
↗表示性畸变加重, ↘表示趋势减缓, --表示持平, /表示两种情况之一。

不过, Gibbs 的划分方式仅适用于狗岩螺。Fioroni 等在 1991 年根据当时的调查和资料, 归纳了 69 个性畸变腹足类的形态特征, 按照每个阶段输精管发育的次序不同而分为 a, b 和 c 等多种不同类型[49], Oehlmann 等据此绘制了经典的性畸变划分图(图 3) [50]。

国内学者对此提出了更为完善的研究结果。Shi 等人发现甲虫螺 *Cantharus cecillei* 的性畸变特征并不符合上述划分图, 并根据当时已发现的 195 个性畸变种的特征, 增加一种 \* 类型, 提出了普适的性畸变划分图(图 4) [51]。这一体系的提出更准确地反应了性畸变的形态变化, 也有利于揭示某些种类雌性个体不育的原因。

两个评价指标中, VDSI 更为精确、应用更广。VDSI 值越大代表性畸变的程度越高, 如果种群 VDSI > 4, 说明已含不育雌体, 种群生存能力开始受到影响。近年来, 在这两项指标的基础上也发展出了其他相应的评价指标, Horiguchi 在疣荔枝螺 *Thais clavigera* 和瘤荔枝螺 *T. bronni* 上运用阴茎长度同壳高的比[13], Tan (1999)用阴茎的长、面积和重量来衡量蛎敌荔枝螺 *T. gradata* 的性畸变程度[52], Bech (2002)则用 RPL, 即雌雄阴茎平均长度之比来评价[53], 施华宏等(2003)采用 RPSI、VDSI、性畸变率(IOI)和性别比(SRI)四个指标来综合评价波部东风螺 *Babylonia formosae habei* 的性畸变程度[30]。

尽管雄性个体和性畸变个体的雄性生殖器官在形态和组织结构上无明显差异, 但性畸变个体却不可能具有正常雄性个体所具有的功能。其一, 雄性生殖系统不完整, 即缺少精巢和前列腺, 性畸变个体的输精管中没有发现精子。其二, 有些性畸变个体只具有部分完整的输精管。其三, 虽然性畸变是由 TBT 导致雌体内生睾酮升高引起的, 但没有证据表明畸变个体的雄性激素可达到正常水平[54]。Gibbs 也认为, 发生性畸变的雌体最终主要或只能发展到某一雄性化的水平, 据此把海产腹足类分为四类[55] (表 3)。

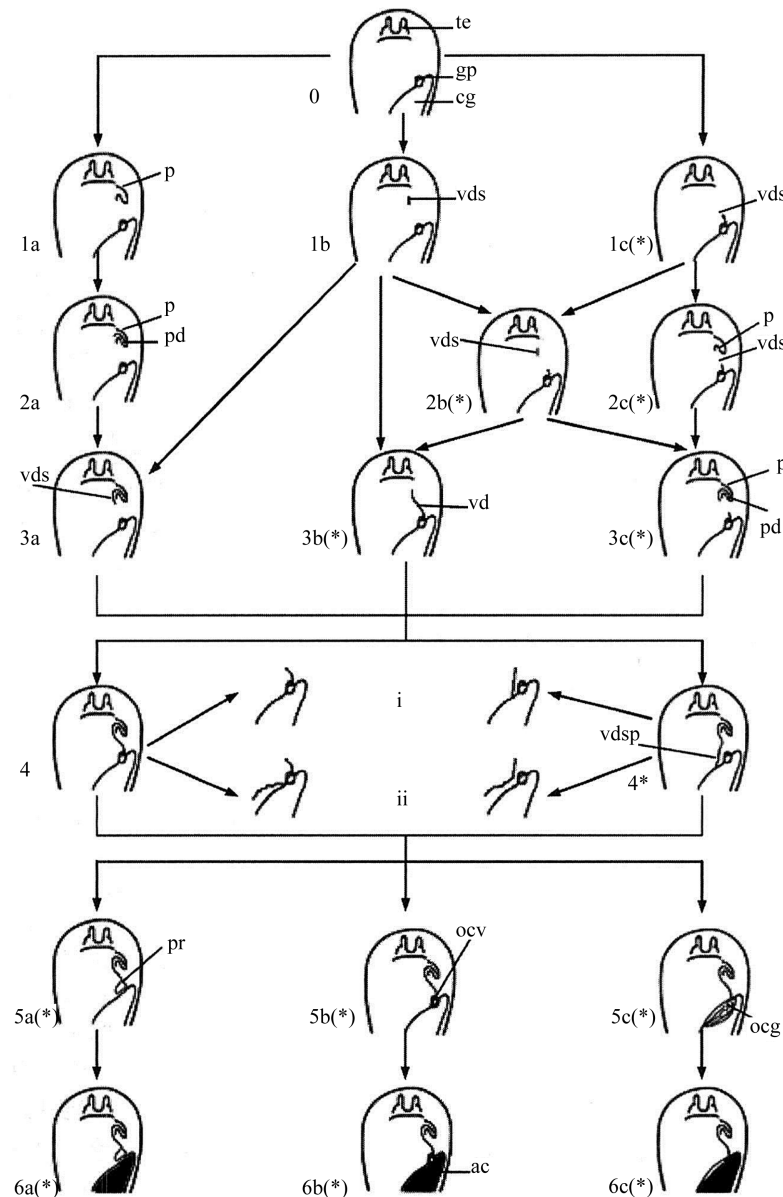


ac 不育卵囊团; cg 卵囊腺; gp 生殖乳突; o 卵细胞; obc 开裂的贮精囊; ocv 开裂的卵囊腺; ocv 生殖孔阻塞; p 阴茎; pd 阴茎导管; pr 前列腺; te 触角; vd 输精管; vdp 输精管绕过生殖孔; vds 一段输精管

Figure 3. Classification of system of imposex evolution in prosobranchs (from Oehlmann *et al*, 1991)

图 3. 腹足类性畸变 Fioroni 六阶段划分体系(Oehlmann *et al*, 1991)

在此基础上, 施华宏等总结了国内外已有的螺类不育方式共有 5 种[56]: (1) 生殖孔被前列腺取代; (2) 生殖孔被输精管阻塞; (3) 贮精囊或卵囊腺开裂; (4) 卵囊腺内部被阻塞; (5) 卵巢转化为精巢。目前世界上发现的雌性不育的种类主要集中在骨螺科, 生殖孔被输精管阻塞是导致腹足类雌性不育最为常见的类型, 同一物种或个体也可能由多种方式引起不育, 如甲虫螺 *Cantharus cecillei* 不育的类型就包含了上述 5 种方式(表 4)。



ac 不育卵囊团; cg 卵囊腺; gp 生殖乳突; ocv 开放的卵囊腺; ocv 生殖孔阻塞; p 阴茎; pd 阴茎导管; pr 前列腺; te 触角; vd 一段输精管; vds 输精管; vdsp 输精管绕过生殖孔口; 0-6 表示畸变阶段; a, b, c 和 \* 表示畸变类型

**Figure 4.** Generalized classification system of imposex evolution in gastropods (from Shi *et al.*, 2005)

**图 4.** 普适的腹足类性畸变发展过程划分 (Shi *et al.*, 2005)

**Table 3.** The masculinisation level of some typical species (Gibbs, 1997)

**表 3.** 一些典型种的雄性化水平 (Gibbs, 1997)

L0	L1	L2	L3
无雄性化特征	形成阴茎和输精管	输卵管受干扰不育	雌生殖器被雄生殖期替代
<i>Amphissa columbiana</i>	<i>Buccinum undatum</i>	<i>Neptunea phoenicia</i>	<i>Ocenebrina aciulata</i>
<i>Columbella rustica</i>	<i>Nassarius reticulatus</i>	<i>Haustorium haustorium</i>	<i>Ocenebra erinacea</i>

## Continued

<i>Cominella glandiformis</i>	<i>Ilyanassa obsoleta</i>	<i>Hexaplex trunculus</i>	<i>Lepsiella scobina</i>
	<i>Searlesia dira</i>	<i>Nucella lima</i>	<i>Nucella lapillus</i>
	<i>Ocenebra lurida</i>	<i>Nucella lamellosa</i>	
		<i>Thais clavigera</i>	
		<i>Urosalpinx cinerea</i>	
		<i>Thais orbita</i>	

**Table 4.** Gastropods of female sterilization by imposex (Shi *et al.*, 2004)**表 4.** 性畸变引起的腹足类雌性不育方式(施华宏等, 2004)

雌性不育种类	不育方式	雌性不育种类	不育方式
宝贝科 Cypreidae		<i>Thais bituberoularis</i>	(2)
<i>Mauritia arabica</i>	(2)	<i>T. clavigera</i>	(2)
骨螺科 Muricidae		<i>T. distinguenda</i>	(2)
<i>Bolinus brandaris</i>	(2)	<i>T. haemastoma</i>	(2)
<i>Ceratostoma fourmieri</i>	(2)	<i>T. luteostoma</i>	(2)
<i>Chicoreus asianus</i>	(1)~(3)	<i>T. mustabilis</i>	(2)
<i>C. brunneus</i>	(2)	<i>T. jubilaea</i>	(2)
<i>Haustrum haustorium</i>	(2)	<i>Urosalpinx cinerea</i>	(3)
<i>Lepsiella vinosa</i>	(2)	蛾螺科 Buccinidae	
<i>Morula margaritcola</i>	(2) (3)	<i>Babylonia areolata</i>	(1)
<i>Murex trapa</i>	(2)	<i>B. formosae habei</i>	(1)(3)
<i>M. trunculus</i>	(3)	<i>B. japonica</i>	(5)
<i>Nucella lamellosa</i>	(2)	<i>Cantharus cecillei</i>	(1)-(5)
<i>N. lima</i>	(2)	织纹螺科 Nassidae	
<i>N. lapillus</i>	(1) (2)	<i>Nassarius reticulatus</i>	(4)
<i>Ocenebra erinacea</i>	(3)	芋螺科 Conidae	
<i>O. aciculate</i>	(1)~(3)	<i>Conus vexillum</i>	(1)

## 4. 结论

本文综述了 TBT 致腹足纲螺类性畸变的国内外研究, 野外监测结果表明, TBT 作为防污剂在全球范围内被广泛应用, 全球水域中检出浓度均达到或超出致腹足纲螺类产生性畸变的水平, 值得重视。中国虽研究起步稍晚, 但东南沿海地区对于 TBT 的研究进展迅速, 除常见的性畸变螺种外, 还发现了地区特有螺种的性畸变现象, 丰富了人们的认知。形态解剖学研究表明, 普适的腹足类性畸变发展过程可划分 S0~S6 阶段, 雌性螺类雄性化可归因为生殖孔被前列腺取代、生殖孔被输精管阻塞、贮精囊或卵囊腺开裂、卵囊腺内部被阻塞、卵巢转化为精巢等 5 种, 为揭示腹足类性畸变机理提供了形态学依据。



## 5. 展望

### 5.1. 腹足类性畸变研究方向

#### 5.1.1. 性畸变机理研究

腹足类性畸变是由 TBT 导致雌体内生睾酮升高引起的, 先前已有研究者提出了 4 种睾酮水平升高的可能途径: (1) 通过抑制芳香化酶(或细胞色素) P450 来增加雄性激素含量[57]; (2) 抑制睾酮分泌[58]; (3) 干扰神经内分泌系统[59]; (4) 异常神经肽 APGW 酰胺的释放[60]。而 Nishikawa 等 2004 年提出了一个新的有机锡诱导性畸变的机制假说, 认为有机锡化合物可直接与 X 受体(RXR)结合, 作为受体激活剂诱导性畸变[61]。Horiguchi [62]和施华宏[51]等分别在 2009 年归纳了有机锡化合物导致腹足类性畸变的可能机理, 但腹足纲螺类性畸变的致病机理仍需进一步确定。

#### 5.1.2. 螺体各组织中的 TBT 浓度水平

目前, 大多数研究仍侧重于性畸变种的野外现场调查和形态解剖学上性畸变程度的界定, 对性畸变组织学水平的研究尚少。于秀娟等首次报道了阿文绶贝 *Mauritia arabica*、褐棘螺 *Chicoreus brunneus* 和桶形芋螺 *Conus betulinus* 三种前鳃亚纲海产腹足类在组织学水平上的性畸变详情, 发现不同种间雄性个体的输精管和阴茎的结构存在开放和封闭两种类型, 中腹足目的阿文绶贝为开放型, 新腹足目的褐棘螺和桶形芋螺为封闭型, 并认为封闭性是由开放型进化而来, 中腹足目的进化应早于新腹足目[54]。这个结论与 Fretter 在中腹足目的滨螺 *Littorina littorina* 观察到开放型的输精管和阴茎导管, 并得出开放型较为原始的结论相同[63]。此后, 于秀娟等又通过研究方斑东风螺发现, 开放型输精管仅存在于不具阴茎的雄性未成熟个体中, 封闭性输精管则存在于具有阴茎的雄性未成熟和成熟个体中[64]。

TBT 在螺的各组织器官中存留的浓度不同, 由性畸变这一显著的毒性效应可以得知, 螺体性腺中的 TBT 水平较高, 而对于其他组织中的 TBT 浓度现有的研究较少。Francesca 在连接威尼斯泻湖和亚得里亚海的通道附近采集的 *Hexaplex trunculus* 消化腺和性腺中, TBT 浓度范围是(102 ± 17)~(432 ± 27) ng/g dw, 在其他软组织中是(96 ± 24)~(297 ± 107) ng/g dw [65]。而安立会等人研究渤海湾性畸变野生脉红螺 *Rapana venosa*, 发现肌肉和消化腺组织中具有较高水平的 TBT [32]。对于其他的螺类, 也可以观测各个组织中有机锡浓度水平, 总结规律并发现潜在的风险。

### 5.2. 指示种的选择

作为有机锡污染指示生物的螺需要个体大、分布广、经济价值高, 对有机锡反应敏感、性畸变特征的变化幅度大, 能正确反应有机锡污染对海洋生态系统的影响[30]。此外, 还需考虑(1) 栖息地。有些螺类为潮间带种, 即只能沿岸采集, 且间歇暴露于海水中, 无法反映较深水体的有机锡污染状况, 因而可选择一种具有性畸变现象的潮下带螺作为指示生物。(2) 生长期。于秀娟等指出, 性畸变现象仅存在于成熟个体中, 但这并不表明未成熟个体不会发生性畸变现象。一方面, 未成熟个体的生长时间尚短, TBT 在体内的累积应该相对较少, 畸变效应可能还没表现出来; 另一方面, 未成熟个体的生殖器官尚未发育成熟, 可能还未在形态表征上体现出有机锡引起的畸变效应[64]。Bryan 的野外实验表明, 处于成长期的 *Nucella lapillus* 个体只要 1~2 ng Sn/L 就会发生性畸变, 3~5 ng Sn/L 时就会导致不育[1]。Paula 等也发现, 处于不同时期的螺类, TBT 引起它们阴茎长度的变化也就不同[44]。Quinta 等发现, 季节变化会导致 TBT 在沉积物和生物中的浓度变化, 这有可能与生物的生殖周期有关[66]。(3) 迁移性。疣荔枝螺 *Thais clavigera* 从卵囊孵化出来以后至附着以前, 有长达 2 个月的浮游生活期, 使得其能在轻重污染区之间转移[13], 而狗岩螺 *Nucella lapillus* 幼体活动能力差, 对有机锡的高敏感性使其更适用于污染相对较轻的海域, 滨螺 *Littorina littorina* 由于对有机锡污染的高耐性, 甚至能在狗岩螺绝迹的区域存在, 其在有机锡重

污区是一种很好的监测生物[67]。

### 5.3. 关注人体健康

食物和接触 PVC 管道是人体暴露于 TBT 污染的最主要途径, 上世纪 90 年代末, Kannan 第一次在人体血液中检测出丁基锡[68], 此后日本、波兰也有研究者进行了人体肝脏中的丁基锡水平研究。IMO 规定人体可容忍的以三丁基氧化锡(TBTO)计算的 TDI 为 1.6  $\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{d})$ , 世界卫生组织(WHO)规定人体每天的 TBT 摄入量不得超过 1.3  $\mu\text{g}/(\text{kg}\cdot\text{d})$ 。Penninks 通过 TBT 对老鼠免疫功能发生影响的值, 以安全系数 100 外推得人体对 TBT 以 TBTO 计的 TDI 为 0.25  $\mu\text{g TBTO}/(\text{kg}\cdot\text{d})$  [69], 该值现在已被普遍接受而被许多学者引用。研究者发现, 日本在例行 TBT 禁令的 10 年后, 即便海产品中 TBT 水平下降显著, 已达到每日容许摄入标准, 但某些人工饲养的海产品中的 TBT 污染仍令人担忧[70]。类似的海产品中 TBT 水平研究与担忧在中国、芬兰、法国均有报道[71]。而我国迄今未制定有关禁止在海洋交通运输船舶上使用有机锡的法律法规, 仅有交通部门在 2003 年建议在船舶防污处理上减少使用有机锡的公告[72], 对于海产品及养殖业等的风险控制管理依然任重道远。

### 参考文献

- [1] Gibbs, P.E., Pascoe, P.L. and Burt, G.R. (1988) Sex Change in the Female Dog-whelk, *Nucella lapillus*, Induced by TBT from Antifouling Paints. *Journal of the Marine Biological Association of the United Kingdom*, **68**, 715-731. <https://doi.org/10.1017/S0025315400028824>
- [2] Thompson, J.A.J., Sheffer, M.G., et al. (1985) Organotin Compounds in the Aquatic Environment. Canada Environmental Secretariat, Ottawa.
- [3] Laughlin, R.B., et al. (1985) Fate and Effects of Organotin Compounds. *AMBIO*, **14**, 998.
- [4] Lau, M.M. (1991) Tributyltin Antifoulings: A Threat to the Hong Kong Marine Environment. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, **20**, 299-304. <https://doi.org/10.1007/BF01064394>
- [5] 周名江, 李正炎, 颜天, 等. 海洋环境中的有机锡及其对海洋生物的影响[J]. 环境科学进展, 1994, 2(4): 67-76.
- [6] Alzieu, C. (1991) Environmental-Problems Caused by TBT in France-Assessment, Regulations, Prospects. *Marine Environmental Research*, **32**, 717. [https://doi.org/10.1016/0141-1136\(91\)90029-8](https://doi.org/10.1016/0141-1136(91)90029-8)
- [7] 江桂斌, 等. 有机锡化合物测定方法研究进展[J]. 海洋环境科学, 1999, 18(3): 21-26.
- [8] 施华宏, 黄长江, 谢文勇. 用疣荔枝螺性畸变监测海洋有机锡污染的方法初探[J]. 海洋环境科学, 2002, 21(4): 37-41.
- [9] Blaber, S.J.M. (1970) The Occurrence of a Penis-Like Outgrowth behind the Right Tentacle in Spent Females of *Nucella lapillus*. *Proceedings of the Malacological Society of London*, **39**, 231-233. <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.mollus.a065097>
- [10] Oehlmann, J. and Bettin, C. (1996) TBT-Induced Imposex and the Role of Steroids in Marine Snails. *Malacological Review Supplement*, **6**, 157-161.
- [11] Smith, B.S. (1971) Sexuality in the American Mud-Snail, *Nassarius obsoletus* Say. *Journal of Molluscan Studies*, **39**, 377-378. <https://doi.org/10.1093/oxfordjournals.mollus.a065117>
- [12] Jenner, M.G. (1979) Pseudohermaphroditism in *Ilyanassa obsoleta* (Mollusca: Neogastropoda). *Science*, **205**, 1407-1409. <https://doi.org/10.1126/science.472758>
- [13] Horiguchi, T., Shiraishi, H., Shimizu, M., et al. (1994) Imposex and Organotin Compounds in *Thais clavigera* and *T. bronni*. *Journal of the Marine Biology Association, UK*, **74**, 651-669. <https://doi.org/10.1017/S002531540004772X>
- [14] Jung, J.P., Yun, K.S., Silas, S.O.H., et al. (2015) Reproductive Impairment and Intersexuality in *Gomphina veneriformis* (Bivalvia: Veneridae) by the Tributyltin Compound. *Animal Cells and Systems*, **19**, 61-68. <https://doi.org/10.1080/19768354.2014.995225>
- [15] Axiak, V., Vella, A.J., Micallef, D., et al. (1995) Imposex in *Hexaplex trunculus* (Gastropoda: Muricidae): First Results from Biomonitoring of Tributyltin Contamination in the Mediterranean. *Marine Biology*, **121**, 685-691. <https://doi.org/10.1007/BF00349304>
- [16] Sole, M., Morcillo, Y. and Porte, C. (1998) Imposex in the Commercial Snail *Bolinus brandaris* in the Northwestern Mediterranean. *Environmental Pollution*, **99**, 241-246. [https://doi.org/10.1016/S0269-7491\(97\)00186-3](https://doi.org/10.1016/S0269-7491(97)00186-3)

- [17] Petracco, M., Camargo, R.M., Berenguel, T.A., *et al.* (2015) Evaluation of the Use of *Olivella minuta* (Gastropoda, Olividae) and *Hastula cinerea* (Gastropoda, Terebridae) as TBT Sentinels for Sandy Coastal Habitats. *Environmental Monitoring and Assessment*, **187**, 440. <https://doi.org/10.1007/s10661-015-4650-z>
- [18] Strand, J. and Asmund, G. (2003) Tributyltin Accumulation and Effects in Marine Molluscs from West Greenland. *Environmental Pollution*, **123**, 31-37. [https://doi.org/10.1016/S0269-7491\(02\)00361-5](https://doi.org/10.1016/S0269-7491(02)00361-5)
- [19] Gibbs, P.E. and Bryan, G.W. (1986) Reproductive Failure in Populations of the Dog-Whelk, *Nucella lapillus*, Caused by Imposex Induced by Tributyltin from Antifouling Paints. *Journal of the Marine Biological Association of the United Kingdom*, **66**, 767-777. <https://doi.org/10.1017/S0025315400048414>
- [20] Mollere, M.D., Renbery, L. and Rippen, G. (1989) Tributyltin in the Environment Sources, Fate and Determination: An Assessment of Present Status and Research Needs. *Chemosphere*, **18**, 2015-2042. [https://doi.org/10.1016/0045-6535\(89\)90484-0](https://doi.org/10.1016/0045-6535(89)90484-0)
- [21] Bryan, G.W. and Gibbs, P.E. (1991) Impact of Low Concentrations of Tributyltin (TBT) on Marine Organisms: A Review. In: McIntosh, A.W. and Newman, M.C., Eds., *Metal Ecotoxicology: Concepts and Applications*, Lewis Publishers, Michigan, 323-362.
- [22] Evans, S.M., Leksono, T. and McKinnell, P.D. (1995) Tributyltin Pollutions: A Diminishing Problem Following Legislation Limiting the Use of TBT-Based Anti-Fouling Paints. *Marine Pollution Bulletin*, **30**, 14-21. [https://doi.org/10.1016/0025-326X\(94\)00181-8](https://doi.org/10.1016/0025-326X(94)00181-8)
- [23] Oehlmann, J., Stroben, E., Schulte-Oehlmann, U., *et al.* (1996) Tributyltin Biomonitoring Using Prosobranchs as Sentinel Organisms. *Fresenius Journal of Analytical Chemistry*, **354**, 540-545. <https://doi.org/10.1007/s0021663540540>
- [24] Defur, P.L., Cranem, N. and Gersoll, C.G. (1999) Endocrine Disruption in Invertebrates: Endocrinology, Testing, and Assessment. SETAC Press, Dordrecht, 209.
- [25] 施华宏. 中国沿海海产腹足类性畸变及有机锡污染的生物监测[D]: [博士学位论文]. 广州: 暨南大学, 2003: 131.
- [26] Shi, H.H., Huang, C.J., Yu, X.J., *et al.* (2005) Generalized System of Imposex and Reproductive Failure of Females in Gastropods along the Coastal Waters of Mainland China. *Marine Ecology Progress Series*, **304**, 179-189. <https://doi.org/10.3354/meps304179>
- [27] Blackmore, G. (2000) Imposex in *Thais clavigera* (Neogastropoda) as an Indicator of TBT (Tributyltin) Bioavailability in Coastal Waters of Hong Kong. *Journal of Molluscan Studies*, **66**, 1-8. <https://doi.org/10.1093/mollus/66.1.1>
- [28] Liu, L.L. and Suen, I.J. (1996) Prosobranch Gastropod Imposex in the West Coast of Taiwan. *Venus: Japanese Journal of Malacology*, **55**, 207-214.
- [29] 施华宏, 黄长江. 海产腹足类性畸变现象的形态特征[J]. 台湾海峡, 2001, 20(4): 552-556.
- [30] 施华宏, 黄长江, 雷瓚. 利用波部东风螺性畸变现象监测海洋有机锡污染[J]. 海洋技术, 2003, 22(1): 82-86.
- [31] 朱四喜, 董巧香, 沈金辉, 等. 桶形芋螺和菖蒲芋螺的性畸变[J]. 生态学报, 2005, 25(2): 289-296.
- [32] 安立会, 张燕强, 宋双双, 等. 渤海湾有机锡污染对野生脉红螺的生态风险[J]. 环境科学, 2013, 34(4): 1369-1373.
- [33] 区小玲, 苏翔驹, 何俊峰, 等. 广西北部湾管角螺性腺发育与繁殖规律研究[J]. 中国海洋大学学报, 2015, 45(11): 20-28.
- [34] Jiang, G., Zhou, Q., Liu, J., *et al.* (2001) Occurrence of Butyltin Compounds in the Waters of Selected Lakes, Rivers, and Coastal Environments from China. *Environmental Pollution*, **115**, 81-87. [https://doi.org/10.1016/S0269-7491\(01\)00088-4](https://doi.org/10.1016/S0269-7491(01)00088-4)
- [35] 向元婧, 张菲菲, 陈卫东, 等. 长江口崇明渔港表层沉积物中丁基锡赋存特征及生态风险[J]. 生态毒理学报, 2015, 10(2): 362-368.
- [36] IMO (2005) International Convention on the Control of Harmful Antifouling Systems on Ships. <http://www.imo.org/en/OurWork/Environment/Anti-foulingSystems/Pages/Default.aspx>
- [37] OSPAR (2013) Background Document and Technical Annexes for Biological Effects Monitoring, Update 2013. Publication Number: 589/2013.
- [38] Smith, P.J. (1995) Selective Decline in Imposex Levels in the Dogwhelk *Lepsiella scobina* Following a Ban on the Use of TBT Antifoulants in New Zealand. *Marine Pollution Bulletin*, **32**, 362-365. [https://doi.org/10.1016/0025-326X\(96\)84830-2](https://doi.org/10.1016/0025-326X(96)84830-2)
- [39] Gibson, C.P. and Wilson, S.P. (2003) Imposex Still Evident in Eastern Australia 10 Years after Tributyltin Restrictions. *Marine Pollution Bulletin*, **55**, 101-112. [https://doi.org/10.1016/S0141-1136\(02\)00097-1](https://doi.org/10.1016/S0141-1136(02)00097-1)
- [40] Bech, M. (2002) A Survey of Imposex in Muricids from 1996 to 2000 and Identification of Optimal Indicators of Tributyltin Contamination along the East Coast of Phuket Island, Thailand. *Marine Pollution Bulletin*, **44**, 887-896. [https://doi.org/10.1016/S0025-326X\(02\)00115-7](https://doi.org/10.1016/S0025-326X(02)00115-7)

- [41] Birchenough, A.C., Evans, S.M., Moss, C., *et al.* (2002) Re-Colonisation and Recovery of Populations of Dogwhelks *Nucella lapillus* (L.) on Shores Formerly Subject to Severe TBT Contamination. *Marine Pollution Bulletin*, **44**, 652-659. [https://doi.org/10.1016/S0025-326X\(01\)00308-3](https://doi.org/10.1016/S0025-326X(01)00308-3)
- [42] Leunga, K.M., Kwonga, R.P., Nga, W.C., *et al.* (2006) Ecological Risk Assessments of Endocrine Disrupting Organotin Compounds Using Marine Neogastropods in Hong Kong. *Chemosphere*, **65**, 922-938. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2006.03.048>
- [43] Santos, M.M., Hallers-Tjabbes, C.C., Santos, A.M., *et al.* (2002) Imposex in *Nucella lapillus*, a Bioindicator for TBT Contamination: Re-Survey along the Portuguese Coast to Monitor the Effectiveness of EU Regulation. *Journal of Sea Research*, **48**, 217-223. [https://doi.org/10.1016/S1385-1101\(02\)00166-1](https://doi.org/10.1016/S1385-1101(02)00166-1)
- [44] Paula, S.M., Oliveira, I.B., Sousa, A.C., *et al.* (2016) Evaluation of Female Aphally in Imposex-Affected Populations of *Nucella lapillus* at the Southernmost Distributional Limit of the Species in Europe. *Journal of Molluscan Studies*, **82**, 144-153.
- [45] Afsar, N., Siddiqui, G. and Ayub, Z. (2015) Bioindicator *Thais carinifera* (Mollusca, Gastropoda): Imposex Response and Consequences along the Pakistan Coast during the Period from 1993 to 2012. *Brazilian Journal of Oceanography*, **63**, 115-124. <https://doi.org/10.1590/S1679-87592015082006302>
- [46] Langston, W.J., Pope, N.D., Davey, M., *et al.* (2015) Recovery from TBT Pollution in English Channel Environments: A Problem Solved. *Marine Pollution Bulletin*, **95**, 551-564. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2014.12.011>
- [47] Nicolaus, E.M. and Barry, J. (2015) Imposex in the Dogwhelk (*Nucella lapillus*): 22-Year Monitoring around England and Wales. *Environmental Monitoring and Assessment*, **187**, 736. <https://doi.org/10.1007/s10661-015-4961-0>
- [48] Gibbs, P.E., Bryan, G.W., Pascoe, P.L., *et al.* (1987) The Use of the Dog-Whelk, *Nucella lapillus*, as an Indicator of Tributyltin Contamination. *Journal of the Marine Biological Association of the United Kingdom*, **67**, 507-523. <https://doi.org/10.1017/S0025315400027260>
- [49] Fioroni, P., Oehlman, J. and Stroben, E. (1991) The Pseudohermaphroditism of Prosobranchs, Morphological Aspects. *Zoologischer Anzeiger*, **226**, 1-26.
- [50] Oehlmann, J., Stroben, E. and Fioroni, P. (1991) The Morphological Expression of Imposex in *Nucella lapillus*. *Journal of Molluscan Studies*, **57**, 375-390. <https://doi.org/10.1093/mollus/57.3.375>
- [51] 施华宏, 朱小兰, 王蕾, 等. 腹足类性畸变研究进展[J]. 海洋环境科学, 2009, 28(4): 463-468.
- [52] Tan, K.S. (1999) Imposex in *Thais gradata* and *Chicoreus capucinus* (Mollusca: Neogastropoda: Muricidae) from the Straits of Johor: A Case Study Using Penis Length, Area and Weight as Measures of Imposex Severity. *Marine Pollution Bulletin*, **39**, 295-303. [https://doi.org/10.1016/S0025-326X\(98\)00181-7](https://doi.org/10.1016/S0025-326X(98)00181-7)
- [53] Bech, M. (2002) Imposex and Tributyltin Contamination as a Consequence of Establishment of a Marina, and Increasing Yachting Activities at Phuket Island, Thailand. *Environmental Pollution*, **117**, 421-429. [https://doi.org/10.1016/S0269-7491\(01\)00191-9](https://doi.org/10.1016/S0269-7491(01)00191-9)
- [54] 于秀娟, 黄长江, 朱四喜, 等. 三种前鳃亚纲海产腹足类性畸变现象的组织学研究[J]. 生态科学, 2003, 22(4): 337-340.
- [55] Gibbs, P.E., Bebianno, M.J. and Coelho, M.R. (1997) Evidence of the Differential Sensitivity of Neogastropods to Tributyltin Pollution with Notes on a Species (*Columbilla rustica*) Lacking the Imposex Response. *Environmental Technology*, **18**, 1219-1224. <https://doi.org/10.1080/09593331808616643>
- [56] 施华宏, 于秀娟, 朱四喜, 黄长江. 性畸变对腹足类生殖和种群的影响[J]. 生态学杂志, 2004, 23(6): 89-93.
- [57] Bettin, C., Oehlmann, J. and Stroben, E. (1996) TBT-Induced Imposex in Marine Neogastropods Is Mediated by an Increasing Androgen Level. *Helgoland Marine Research*, **50**, 299-317. <https://doi.org/10.1007/BF02367105>
- [58] Ronis, M.J. and Mason, A.Z. (1996) The Metabolism of Testosterone by the Periwinkle (*Littorina littorea*) *in Vitro* and *in Vivo*: Effects of Tributyltin. *Marine Environmental Research*, **42**, 161-166. [https://doi.org/10.1016/0141-1136\(95\)00069-0](https://doi.org/10.1016/0141-1136(95)00069-0)
- [59] Feral, C. and LeGall, S. (1983) The Influence of a Pollutant Factor (Tributyltin) on the Neuroendocrine Mechanism Responsible for the Occurrence of a Penis in the Females of *Ocenebra erinacea*. In: Lever, J. and Boer, H., Eds., *Molluscan Neuroendocrinology*, North Holland Publishing Co., Amsterdam, 173-175.
- [60] Oberdorster, E. and McClellan-Green, P. (2000) Mechanisms of Imposex Induction in the Mud Snail, *Ilyanassa obsoleta*: TBT as a Neurotoxin and Aromatase Inhibitor. *Marine Environmental Research*, **54**, 715-718. [https://doi.org/10.1016/S0141-1136\(02\)00118-6](https://doi.org/10.1016/S0141-1136(02)00118-6)
- [61] Nishikawa, J., Mamiya, S., Kanayama, T., *et al.* (2004) Involvement of the Retinoid X Receptor in the Development of Imposex Caused by Organotins in Gastropods. *Environmental Science & Technology*, **38**, 6271-6276. <https://doi.org/10.1021/es049593u>
- [62] Horiguchi, T. (1999) Mechanism of Imposex Induced by Organotin in Gastropods. In: Arai, T., Harino, H., Ohji, M.

- and Langston, W.J., Eds., *Ecotoxicology of Antifouling Biocides*, Springer, Ibaraki, 111-124.  
[https://doi.org/10.1007/978-4-431-85709-9\\_7](https://doi.org/10.1007/978-4-431-85709-9_7)
- [63] Fretter, V. (1941) The Genital Ducts of Some British Strenoglossan Prosobranchs. *Journal of the Marine Biological Association of the United Kingdom*, **25**, 173-211. <https://doi.org/10.1017/S0025315400014375>
- [64] 于秀娟, 朱四喜, 沈金辉, 等. 方斑东风螺性畸变现象的解剖学和组织学研究[J]. 台湾海峡, 2004, 23(4): 444-449.
- [65] Francesca, P., Elena, C., Maria, G., *et al.* (2004) Concentrations of Organotin Compounds and Imposex in the Gastropod *Hexaplex traunculus* from the Lagoon of Venice. *Science of the Total Environment*, **332**, 89-101.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2004.03.036>
- [66] Quinta, P.Y., Oliva, A.L., Arias, A., *et al.* (2016) Seasonal Changes in Organotin Compounds in Sediments from the Bahía Blanca Estuary. *Environmental Earth Sciences*, **75**, 659. <https://doi.org/10.1007/s12665-016-5471-2>
- [67] Bauer, B., Fioroni, P., Ide, I., *et al.* (1995) TBT Effects on the Female Genital System of *Littorina littorea*: A Possible Indication of Tributyltin Pollution. *Hydrobiologia*, **309**, 15-27. [https://doi.org/10.1007/978-94-011-0435-7\\_2](https://doi.org/10.1007/978-94-011-0435-7_2)
- [68] Kannan, K., Senthilkumar, K. and Giesy, J.P. (1999) Occurrence of Butyltin Compounds in Human Blood. *Environmental Science & Technology*, **33**, 1776-1779. <https://doi.org/10.1021/es990011w>
- [69] Penninks, A.H. (1993) The Evaluation of Data-Derived Safety Factors for Bis(tri-n-butyltin)oxide. *Food Additives and Contaminants*, **10**, 351-361. <https://doi.org/10.1080/02652039309374157>
- [70] Shunji, U., Nobuyuki, S., Yoshinori, F., *et al.* (1999) Butyltin and Phenyltin Compounds in Some Marine Fishery Products on the Japanese Market. *Arch Environmental Health*, **54**, 20-25. <https://doi.org/10.1080/00039899909602232>
- [71] Yi, A.X., Leung, K.M., Lam, A.H., *et al.* (2012) Review of Measured Concentrations of Triphenyltin Compounds in Marine Ecosystems and Meta-Analysis of Their Risks to Humans and the Environment. *Chemosphere*, **89**, 1015-1025.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2012.05.080>
- [72] 中华人民共和国交通部. 《不宜在船舶有害防污底系统中使用充当杀虫剂的有机锡化合物》的公告[EB/OL]. [http://xxgk.mot.gov.cn/jigou/gjhzs/201809/t20180927\\_3093264.html](http://xxgk.mot.gov.cn/jigou/gjhzs/201809/t20180927_3093264.html), 2003-03-10.