

An ecotoxicological study of tributyltin in the coastal areas of Indonesia and Japan

Undap, Suzanne Lidia

<https://hdl.handle.net/2324/1398551>

出版情報：九州大学, 2013, 博士（農学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：やむを得ない事由により本文ファイル非公開（3）



氏名・(本籍・国籍)	スザンヌ リディア ウンダップ Suzanne Lydia Undap (インドネシア)
学位の種類	博士(農学)
学位記番号	生資環博甲第736号
学位授与の日付	平成25年12月31日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 生物資源環境科学府 資源生物科学専攻
学位論文題目	An ecotoxicological study of tributyltin in the coastal areas of Indonesia and Japan (インドネシアおよび日本沿岸域におけるトリブチルスズ汚染に関する生態毒性学的研究)
論文調査委員	(主査) 教授 大嶋雄治 (副査) 准教授 望岡典隆 熊本大学 准教授 北野 健

論文内容の要旨

Tributyltin (TBT) has been widely used as an antifouling agent in marine environments since the early 1960s. TBT is highly toxic to non-target aquatic organisms; therefore, its use has been banned in many countries by the International Marine Organization, including Japan in 2003. However, TBT is still being used in some tropical countries, which has resulted in TBT contamination. Accordingly, the present study was conducted to investigate TBT contamination in Indonesia and Japan, and to identify suitable biomonitoring species.

Sediment samples (<5 cm from the surface) were collected from 20 stations in the seaport areas of three cities (Jakarta, Bali and Manado) in Indonesia in January 2011 and from three stations in Hakata Port, Fukuoka, Japan in 2010. TBT and its metabolite, dibutyltin (DBT), were detected in all collected sediment samples. Additionally, high concentrations of TBT were found in sediment samples collected in front of the shipyard area at Bitung Seaport (4.25 µg/g wet.wt) in Manado, Indonesia and in Hakata Port (0.63 µg/g ww) in Fukuoka, Japan, suggesting that shipyard activity might be a significant source of TBT pollution in Indonesia and Japan.

To monitor pollution of TBT in fish, five species of fish (*Sphoeroides pachygaster*, *Dentex tumifrons*, *Chelidonichthys kumu*, *Niphon spinosus* and *Monocentris japonica*) and two crustacean species (*Macrocheira kaempferi* and *Ibacus ciliatus*) were collected from the East China Sea on April 6, 2010. In addition, common Japanese conger (*Conger myriaster*) were collected from the East China Sea and Hakata Bay from June 2009 to September 2011. Aquaculture fish (*Paralichthys olivaceus*, *Pargus major*, and *Trachurus japonicus*) were also collected from a fish market in Fukuoka, Japan on March 10, 2010. No TBT or DBT (< 0.05 ng/g) were detected in the blood, liver and muscle of the five species of fish, the midgut gland of the two crustaceans or the livers of common Japanese conger collected from the East China Sea. However, TBT (2.13 – 38.6 ng/g) and DBT (8.36 – 59.9 ng/g) were detected in the livers of common Japanese conger collected from Hakata Bay. Moreover, TBT was detected in the blood, liver and muscle of three species of cultured fish obtained from the fish market in Fukuoka at levels ranging from no detected (<0.05 ng/g) – 210 ng/g tissues. These results suggest that no TBT contamination occurred in the East China Sea, while common Japanese conger from Hakata Bay and cultured fish were still contaminated by TBT.

To identify a species for monitoring of TBT in aquatic systems, we examined the accumulation of TBT in the wharf roach (*Ligia exotica* Roux). In an exposure test, wharf roaches were exposed to TBT via diet for 2 d. TBT accumulated in wharf roach, and its metabolite dibutyltin was detected. The concentrations of these compounds gradually decreased during the depuration period, but they were still detected 12 d after exposure

ceased (TBT 290 ± 140 ng/g; dibutyltin 1280 ± 430 ng/g). Based on these findings, the biological half-life of TBT in wharf roach was estimated to be about 4 d. In a field study conducted in 2011–2012, wharf roaches were collected from 15 coastal sites in Japan and three sites in Manado, Indonesia and TBT was detected in both Japanese and Indonesian samples. During that field study, the highest concentration of TBT was found in wharf roaches collected at Bitung Ferry Port, Manado (57.9 ± 16.5 ng/g), which is close to a shipyard, while the highest concentration observed at a Japanese site was 12.3 ± 6.2 ng/g. Thus, we were able to detect organotins in coastal environments by testing wharf roach, suggesting that *L. exotica* might serve as a good bioindicator for monitoring organotins in such areas.

To identify a model species for tropical marine fish, we conducted an exposure test of Banggai cardinal fish (*Pterapogon kauderni*) to evaluate the toxicity and bioconcentration of TBT. The results indicated that *P. kauderni* is a good species for monitoring organotins because it showed high sensitivity to TBT; accordingly, *P. kauderni* might be a good model species for predicting the risk of chemical impacts on tropical areas.

Overall, these results indicate that TBT pollution still continues in Indonesia and Japan, and that *L. exotica* and *P. kauderni* might be useful for monitoring of TBT contamination.

論文審査の結果の要旨

本論文は、強い内分泌かく乱化学物質でかつ水圏を広く汚染している tributyltin (TBT) について、インドネシアおよび日本沿岸域における汚染とその毒性・蓄積性を究明したものである。

まず、2010—2011 年にかけてインドネシアおよび日本沿岸 20 地点から底質表土を採取し分析した。結果、全ての検体から TBT およびその分解物である dibutyltin (DBT) が検出され、特に Bitung 港 (インドネシア) および博多港 (日本) 造船所近傍の底質からそれぞれ 4.25 および 0.63 $\mu\text{g/g}$ と高濃度の TBT が検出され、造船所等港湾が潜在的汚染源であると推察した。

次に、沖合域の TBT 汚染を明らかにするために、2010 年 4 月東シナ海より 5 種の底生魚類 (ヨリトフグ、キダイ、ホウボウ、アラ、マツカサウオ) および 2 種類の甲殻類 (アカイシガニ、ウチワエビ) を底引き網で採取し、その血液、筋肉および肝臓について TBT を分析した。また、2009—2011 年にかけて東シナ海および博多湾で採取したアナゴの肝臓を分析した。その結果、博多湾で採取したアナゴの肝臓でのみ TBT ($0.002 - 0.039$ $\mu\text{g/g}$) と DBT ($0.008 - 0.060$ $\mu\text{g/g}$) が検出された。さらに、市場で入手した 3 種養殖魚 (ヒラメ、マダイ、マアジ) の血液から最高 0.21 $\mu\text{g/mL}$ の TBT が検出された。よって、東シナ海沖合底生魚は TBT で汚染されている可能性は低いが、博多湾や養殖魚で TBT 汚染は続いていると考察した。

さらに、陸と海が接する渚域の TBT 汚染を調べるために、渚域に広く生息するフナムシを用いてその指標生物としての有用性を検討した。まず、フナムシに餌から TBT (0.1 mg/g) を 2 日間曝露し、その蓄積性を調べた。排泄 1 日目におけるフナムシ体内の TBT 濃度は 2.76 $\mu\text{g/g}$ と高く、排泄 12 日目でも 0.288 $\mu\text{g/g}$ と高濃度で残留しており、生物学的半減期は 4 日であることが明らかになった。また、インドネシアおよび日本 18 地点で採取したフナムシの TBT 濃度を測定した結果、底質の TBT 濃度が高かった Bitung 港で採取されたフナムシが 0.058 $\mu\text{g/g}$ と最も高く、フナムシは渚域の TBT 汚染調査に有用であると結論している。

最後に、熱帯魚類に対する TBT の影響を明らかにするために、飼育・繁殖が容易な *Pterapogon kauderni* を用いて、TBT の毒性および蓄積性を調べた。その結果、TBT の 96 時間半数致死濃度は 2.48 $\mu\text{g/L}$ と感受性が高く、さらに TBT の生物濃縮係数は 3040 であり、TBT を体内に高濃度に蓄積すると推定された。よって、*P. kauderni* は熱帯に生息する魚類の代表種として TBT およびその他の化学物質の生態リスクを推定するに有用なモデル魚であるとしている。

以上要するに、本論文は、インドネシアおよび日本沿岸域で TBT 汚染が継続していることを示し、さらに渚域における TBT 汚染調査のための指標生物としてフナムシを、また熱帯域における TBT の生態リスクを評価するモデル魚として *P. kauderni* を提案したものであり、水産生物環境学の発展に寄与する価値ある業績と認める。よって、本研究者は博士（農学）の学位を得る資格を有するものと認める。