

イボニシに関する有機スズ化合物の影響調査

浦 伸孝・田中 良徳・石崎 修造・八並 誠

Effects of Organotin Compounds in *Thais clavigera*

Nobutaka URA, Yoshinori TANAKA, Syuzo ISHIZAKI and Makoto YATUNAMI

Key Words : *Thais clavigera*, imposex, Organotin Compounds

キーワード: イボニシ, インポセックス, 有機スズ化合物

はじめに

1960年代から、環境ホルモン的一种である有機スズ化合物が、船底防汚塗料や、漁網防汚塗料として世界中で広く用いられてきた。そのため近年、この有機スズ化合物(トリブチルスズ(TBT)等)の影響により、イボニシ(*Thais clavigera*(海産巻き貝の一種))のメスがオス化する(インポセックス)現象が全国的に報告されている。

本県における形態調査(平成13~14年度実施)でも、95%(38地点中36地点)という高い割合で、イボニシのインポセックスが確認された。本研究では、このインポセックスを指標として、県内の有機スズ化合物による汚染の現況把握及び原因の推定を行うことを目的としている。

平成13~14年度に、形態調査と同時に水中の有機スズ濃度を調査したが、インポセックス出現率との関係は明瞭にならなかった。そこで、平成15年度に、平成13~14年度の形態調査でインポセックス出現率の高かった地点近傍のイボニシについて、インポセックス発生の要因と考えられる、イボニシ体内の有機スズ濃度調査を行ったので報告する。

調査内容

1. 調査対象

新腹足目アケガイ科

イボニシ(*Thais clavigera*)

2. 調査地点

壱岐市、対馬市、新上五島町、松浦市について、それぞれ3ヶ所ずつ計12ヶ所。

対照地点として野母崎町2ヶ所。

3. 調査項目

(1) 形態調査

殻長、殻径、重量(殻付き、むき身)、性別、ペニスの有無、ペニス長

(2) 体内有機スズ濃度調査

ジブチルスズ(DBT)、トリブチルスズ(TBT)、ジフェニルスズ(DPT)、トリフェニルスズ(TPT)

4. 体内有機スズ濃度分析方法

イボニシ 約5g

↓ 1MHCl・MeOH : 酢酸エチル=1:1 30ml、
で抽出(2回目は15ml)

ホモジナイズ

↑ (2回繰り返し)
遠心分離(2,500rpm、5分間)

抽出液(50mlメスフラスコ)

1MHCl・MeOH : 酢酸エチル=1:1で全量50ml

1ml分取(ホールピペット、25mlKD濃縮管)

↓ サロゲート100 μ l(TBT-d、DBT-d、
TPT-d、DPT-d 各0.1mg/l in acetone)

混合

窒素パーズ(40)

酢酸エチル臭がなくなるまで(約0.2~0.3ml)

↓ 酢酸 Buffer 3ml

塩化ナトリウム(残農薬) 0.5g

↓ 2%NaBEt₄ 0.5ml

振とう1分間、10分間静置(誘導体化)

1MKOH・EtOH 10ml

アルカリ分解（振とう 1 分、1 時間静置）
飽和 NaCl 6ml
ヘキサン 4ml（2 回繰り返し）
振とう抽出（1 分間）
↓（ヘキサン層をパスツールピペットで分取、
受器 10ml KD 濃縮管）
飽和 NaCl 水 5ml でヘキサン層洗浄

フロリジルカラムクロマトグラフィー
（未活性フロリジル 2g、Na₂SO₄ 重層）
ヘキサン層を負荷し、2%エーテル・ヘキサン
25ml で溶出（受器 100ml ナス型フラスコ）

濃縮（ロータリエバポレータ、40℃、240hPa）

WHEATON 濃縮管

窒素パージ（約 0.1ml）
↓ 内部標準 20 μl
↓（TeBT-d、TePT-d 各 1mg/l in hexane）
全量 0.2ml

GC/MS（HP5890-JEOL AX505）

調査結果及び考察

（1）形態調査

平成 13～14 年度に行った県下 38 地点の形態調査の結果から、インボセックスの出現率が高かった 4 地点の近傍それぞれ 3ヶ所ずつ計 12ヶ所（図 1～図 4）と、対照の 1 地点 2ヶ所（図 5）について調査を行った。なお、図 6 及び図 7 に示すとおりイボニシのサイズとペニス長の間には、相関が無かったので、サイズによる検体の振り分けは行っていない。

形態調査の結果を表 1 に示す。この結果、インボセックス出現率は 12ヶ所中 10ヶ所で 70%以上、内 7ヶ所では 90%以上と、ほとんどの地点で高い割合を示していた。このことから、平成 13～14 年度の概況調査時とほぼ同様の有機スズ汚染の状況が確認された。しかし、距離的に近い地点でも、他の 2 地点の出現率が 100%、70.4%だったのに対して 38.1%だった上五島-3 や、95.7%、100%に対して 56.3%だった対馬-2 のように、インボセックス出現率に差がある地点があった。そこで、周辺状況調査を行ったところ、インボセックス出現率が高い地点の数百メートル以内には、図 2、3（緑

丸）で示したように船底塗料を取り扱っていた事業所があり、出現率が低かった地点は地理的にこれらの事業所廃水の影響を受けにくいと思われる地点だった。このことから、これらの事業所が、局所的な有機スズ汚染に寄与している可能性も考えられる。

（2）体内有機スズ濃度調査

平成 13～14 年度の形態調査と同時に、生息海域中の有機スズ濃度調査を行ったところ、インボセックス高率出現地点でも、有機スズ化合物が検出されない場所があった¹⁾。この結果は、水槽内での曝露実験において、1ng/l の TBT でインボセックスが誘導されるという報告²⁾とは異なっている。この原因としては、開放系の水には様々な一過性のバイアス加わることから、採取した検水がその海域の通常時の平均的な有機スズ濃度でなかったことが考えられる。

水中の有機スズ濃度とインボセックス出現率の関係が明瞭にならなかったため、水質よりもイボニシの生存中の有機スズ化合物への曝露程度を、より反映していると考えられる体内有機スズ濃度について、測定を行った。その結果を表 2 に示す。表 2 の結果から、今回測定した 4 項目の体内有機スズ濃度とインボセックス出現率について、図 8～図 11 の分散図を得た。図 8 と図 9 から、TBT、TPT とインボセックス出現率の間には、正相関があることがわかった。これは、有機スズ化合物をイボニシに直接注入し、インボセックスの誘導を行った報告³⁾ともよく合致する。また、インボセックス誘導濃度も、TBT でおよそ 20ng/g・wet という結果²⁾とほぼ同傾向を示している。図 10 の DBT の分散図でも、前出の 2 つと同様に正相関が確認出来るが、DBT のみの直接注入では顕著なインボセックスの誘導が確認されなかった報告³⁾もあり、TBT の体内濃度が高いイボニシにおいては、代謝産物でもある DBT が、結果的に高濃度蓄積していたとも考えられる。図 11 の DPT の結果は、他の 3 つと異なり、濃度と発生率に相関が見られなかった。さらに、DPT が不検出でもインボセックスが高率に発生している地点があることも併せて考えると、DPT のインボセックス発生への寄与は小さいと思われる。また他の 3 つの有機スズ化合物に比べ、検出濃度が低かった。これは、DPT のみではインボセックスが誘導されず、体内の DPT は非常に代謝されやすく、MPT に変化しやすくと

いう報告³⁾とも合っている。次に、今回調べた 4 項目の有機スズ化合物の体内濃度の合計と、インボセックス発生率との関係を調べてみると、図 12 のような結果となり、正相関の関係にあることがわかった。これらの結果、特に図 12 の結果から、一定濃度以上の有機スズ化合物を体内に蓄積したイボニシには、インボセックスが発生することが確認された。以上のことから、有機スズ化合物汚染の現況把握や経時モニタリングにおいて、煩雑な操作を必要としない形態調査は有効であると言える。

今後は、有機スズ化合物のイボニシ体内への蓄積が、何に由来するか調査するために、生息地の泥中の有機スズ化合物濃度を調査すると共に、有機スズ化合物汚染の動向把握のため、引き続き形態調査を実施し、解析を行っていく予定である。

参考文献

- 1) 田中良徳, 他: イボニシに関する環境ホルモンの影響調査(2001年度), 長崎県衛生公害研究所報, 47, pp.73-75 (2001)
- 2) Horiguchi, T. (1993): Imposex Induced by Organotin Compounds in Gastropods in Japan. PhD Thesis, University of Tokyo.
- 3) Horiguchi, T. *et al* (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.



図 1 調査地点(その1)



図 2 調査地点(その2)



図 3 調査地点(その3)



図 4 調査地点(その4)



図5 調査地点(その5)

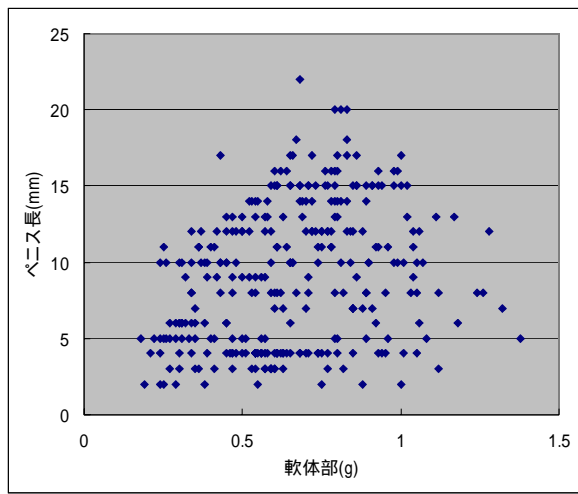


図6 オスの軟体部重量とペニス長の関係

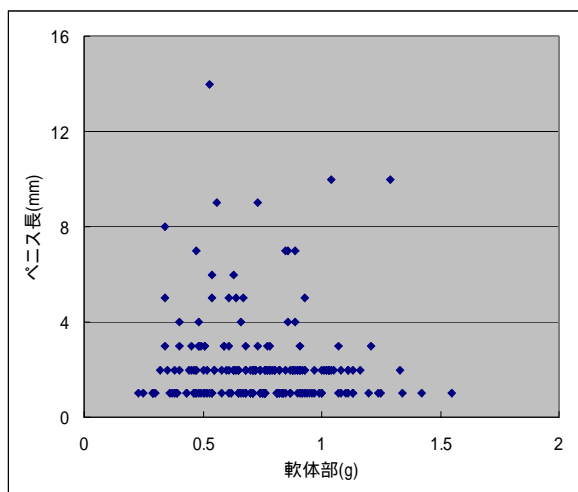


図7 メスの軟体部重量とペニス長の関係

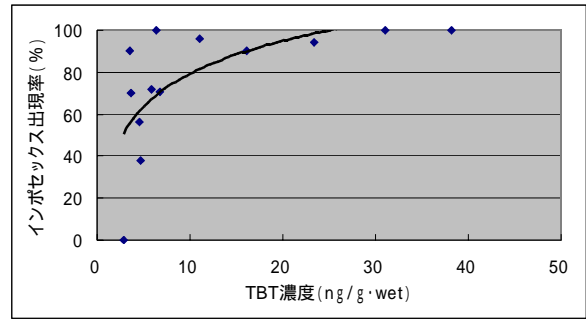


図8 TBT濃度に対するインポセックス出現率

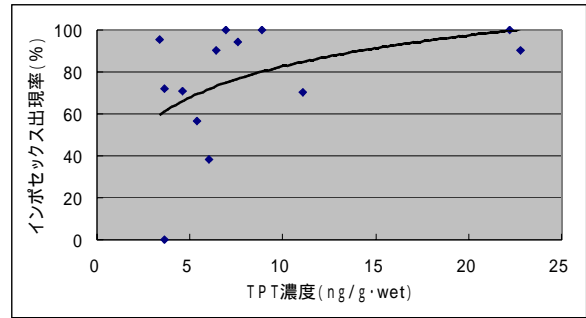


図9 TPT濃度に対するインポセックス出現率

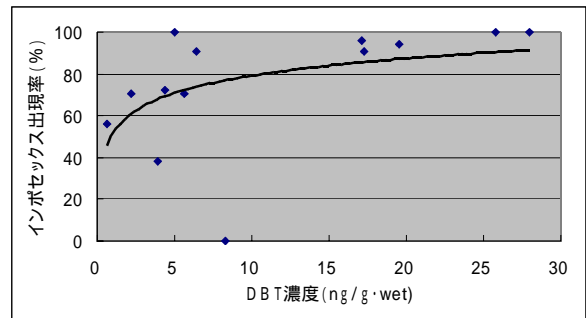


図10 DBT濃度に対するインポセックス出現率

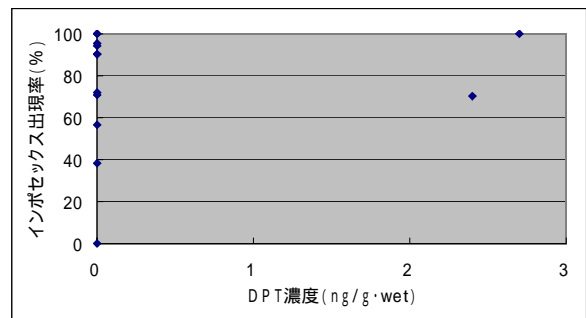


図11 DPT濃度に対するインポセックス出現率

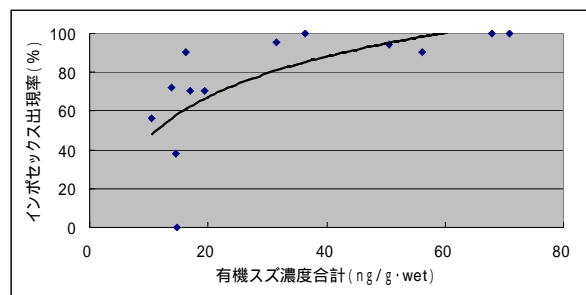


図12 有機スズ濃度合計に対するインポセックス出現率

表 1 形態調査結果

地点名	殻高 (mm)	殻幅 (mm)	体重 (g)	軟体部 (g)	検体数 (個)	雄 (個)	雌 (個)	imposex	
								(個)	(%)
壱岐 1	20.9	13.6	1.93	0.53	62	41	21	19	90.5
壱岐 2	19.6	13.2	1.74	0.43	60	38	22	22	100
壱岐 3	21.5	14.4	2.42	0.63	63	45	18	17	94.4
対馬 1	21.9	14.8	2.33	0.65	39	16	23	22	95.7
対馬 2	26.1	17.1	3.52	0.97	30	14	16	9	56.3
対馬 3	24.7	16.2	2.76	0.89	30	16	14	14	100
上五島 1	26.4	17.8	3.58	0.77	40	17	23	23	100
上五島 2	26.5	17.8	3.86	0.92	40	13	27	19	70.4
上五島 3	24.6	16.7	3.18	0.70	40	19	21	8	38.1
松浦 1	24.7	16.0	2.69	0.71	40	19	21	19	90.5
松浦 2	26.6	17.3	3.18	0.92	40	15	25	18	72.0
松浦 3	25.2	16.4	2.83	0.78	40	23	17	12	70.6
野母崎 1	22.8	15.5	2.22	0.57	40	17	23	0	0
野母崎 2	24.3	16.7	2.93	0.70	40	15	25	0	0

表 2 体内有機スズ濃度調査結果

地点名	DBT (ng/g・wet)	TBT (ng/g・wet)	DPT (ng/g・wet)	TPT (ng/g・wet)	計 (ng/g・wet)
壱岐 1	17.3	16.1	0	22.8	56.2
壱岐 2	28.0	31.0	0	8.9	67.9
壱岐 3	19.5	23.4	0	7.6	50.5
対馬 1	17.1	11.0	0	3.4	31.5
対馬 2	0.6	4.5	0	5.4	10.5
対馬 3	25.8	38.2	0	6.9	70.9
上五島 1	5.0	6.4	2.7	22.2	36.3
上五島 2	2.2	3.7	2.4	11.1	19.4
上五島 3	3.9	4.7	0	6.0	14.6
松浦 1	6.4	3.5	0	6.4	16.3
松浦 2	4.4	5.8	0	3.6	13.8
松浦 3	5.6	6.8	0	4.6	17.0
野母崎 1	8.3	2.8	0	3.6	14.7