

文章编号: 1000-5641(2009)02-0061-11

三丁基锡(TBT)法规实施对全球海洋底泥中 TBT 含量的影响

朱小兰, 刘青坡, 钱丽娟, 郭素珍, 施华宏

(华东师范大学 环境科学系 上海市城市化过程与生态恢复重点实验室, 上海 200062)

摘要: 用于船舶防污漆的三丁基锡(TBT)由于对海洋生态系统危害严重而受到不同程度的限制. 本文根据大量文献资料, 分析了各国或地区 TBT 控制性法规、海洋底泥中 TBT 的变化趋势以及二者之间的关系. 全球至少有 22 个国家或地区制定和实施了 TBT 限制性法规, 其中欧洲占 59.1%, 法规出台的时间集中在 1991 年之前, 从 2008 年 9 月 17 日起, IMO 实行的全面禁止 TBT 的法规将进入强制执行阶段. 从世界范围来看, 在 1986-2006 年之间, 海洋底泥中的 TBT 并没有表现出明显的下降趋势, 相反 1990 年之后还有所增加. 这主要是由于近几十年来世界航运的快速发展、制定法规的国家有限以及 TBT 污染的全球化特征所导致的; 从区域范围看, TBT 往往需要在法规出台 4~5 年甚至更长时间才能出现明显下降, 半限制性法规对小型港口 TBT 的控制有一定效果, 而没有出台法规的国家 TBT 污染仍在不断恶化. 这主要是由于法规的迟滞效应和底泥 TBT 的难降解特性所决定的. 预计底泥和水体中 TBT 含量的有效下降和生态的良好恢复仍需十多年甚至数十年的时间.

关键词: 三丁基锡(TBT); 底泥; 法规; 性畸变

中图分类号: X820.6 **文献标识码:** A

Effects of implementation of TBT legislation on TBT concentrations in marine sediments all over the world

ZHU Xiao-lan, LIU Qing-po, QIAN Li-juan, GUO Su-zhen, SHI Hua-hong

(Shanghai Key Laboratory of Urbanization Processes and Ecological Restoration, Department of
Environment Science, East China Normal University, Shanghai, 200062, China)

Abstract: Tributyltin (TBT) used to be widely used as biocides in antifouling paints, but now has been banned in different degrees due to its harmful effects on marine ecosystems. Based on rich references, this paper analyzed relationship between legislations against TBT and concentrations of TBT in marine sediment. At least 22 countries or areas have legislations against TBT and 59.1% of them are in Europe. Most of the legislations were published before 1991. IMO

收稿日期: 2008-09

基金项目: 近海海洋环境科学国家重点实验室开放课题(MEL0503); 上海市城市化过程与生态恢复重点实验室开放基金(UPER0608); 长江水环境教育部重点实验室开放基金(YRWEF06003)

第一作者: 朱小兰, 女, 硕士研究生, 研究方向为污染生态学. E-mail: lanlan_sky2004@163.com.

通讯作者: 施华宏, 男, 副教授, 研究方向为生态毒理学. E-mail: hhshi@des.ecnu.edu.cn.

legislation to ban TBT totally will come into force on September 17, 2008. In the world scale, TBT in sediment did not show significant decrease during 1986 to 2006. In contrast, TBT in sediment was a little higher after 1990s' than before. It was mainly due to the great development of marine transportations, the limited countries with legislation and the global pollution of TBT. As for the areas with registrations against TBT, TBT in sediment usually did not decrease significantly until 4~5 years later. Partial legislation of TBT had positive effect on controlling TBT pollution in small harbors. However, TBT pollution in sediment got worse in those countries without legislation of TBT in recent years. Due to the lag effect of TBT legislation and the slow degradation of TBT in sediment, it will take more decades for TBT concentrations to decrease in sediment and water, and for a ecosystem to recover effectively.

Key words: TBT; sediment; TBT legislations; imposex

0 引 言

海洋中的船舶和船坞等经常被藤壶和牡蛎等污损生物附着,给海洋运输业造成了巨大的损失. 20 世纪 60 年代投放到市场的有机锡化合物,尤其是三丁基锡(tributyltin, TBT),因其对海洋污损生物具有良好的杀生效果而倍受市场青睐. 然而, TBT 在防污的同时对许多非目标生物也造成了严重的损伤. 从 20 世纪 70 年代开始, TBT 便被列入了联合国有毒污染物黑名单; 20 世纪 80 年代初开始, TBT 由于能特异性地引起腹足类的性畸变(imposex)和牡蛎贝壳的球形增厚等现象被广泛调查和研究^[1,2], 随后一些国家和地区陆续出台了 TBT 限制性法规, 直到 2001 年国际海事组织(IMO)制定了全面禁止 TBT 的法规, 即《国际控制船舶有害防污底系统公约》, 简称 AFS 公约, 公约规定到 2008 年 1 月 1 日所有船舶的船壳和外表面不得含有有机锡化合物^[3].

从 TBT 被人为引入海洋环境到被完全逐出防污漆市场, 经历了半个多世纪, TBT 已作为一种典型的持久性有机污染物和内分泌干扰物而倍受关注, 对其研究的意义已远远超出了对单个污染物污染特征和毒性效应的研究^[4]. TBT 全面禁令的颁布与实施有望使海洋环境中 TBT 的含量得到消减, 生态危害得到缓解, 而这仍需通过进一步的追踪研究进行证实. 因此, 研究法规与 TBT 含量以及生态恢复之间的关系是整个 TBT 污染中最后也是最重要的一环.

底泥是 TBT 的沉积库, 同时又是水体新的污染源. 底泥中 TBT 的含量能反映 TBT 污染的历史, 也是评价法规长期效果的重要标尺. 全球许多国家或地区在法规颁布的前后, 对海洋环境中的 TBT 含量进行了大量的调查, 并对一些部分性限制法规的效果进行了评价^[5-10]. 然而, 由于这些评价是基于各个国家或地区短时期的调查结果, 即使对同一法规在相同区域效果的评价也会大相径庭, 甚至截然相反. 由于海洋的连通性、海运的全球化 and 底泥 TBT 的降解特征等多重因素的影响, 针对局部和短时期的调查数据无法正确评价法规的效果, 尤其是在全球全面禁止 TBT 使用的背景下, 更需要分析全球 TBT 长期的变化趋势来综合评价和预测法规的效果.

本文全面收集了 TBT 限制性法规和海洋底泥中 TBT 含量的调查结果, 通过分析法规的细则、TBT 的变化趋势以及二者之间的关系, 综合评价了法规的实施对 TBT 消减的效果, 以便为 TBT 全面禁令的实施提供科学依据, 同时为今后类似环境内分泌干扰物的生态

风险评价和法规制定提供启示.

1 方 法

1.1 文献的收集

文献主要来源于以下几个方面:(1) 国际国内期刊,包括 ISI 文献快速检索平台、ScienceDirect 全文电子期刊、SpringerLink 全文电子期刊、Blackwell 全文电子期刊和维普中文电子期刊等;(2) 20 世纪 70 年代到 90 年代的纸质期刊资料;(3) 互联网上搜集的各国政府和国际组织实施的 TBT 使用的控制法规等.

1.2 法规范围的界定和细则的划分

本文将所有国家或地区针对 TBT 生产、销售和使用等方面的限制性条文都视为法规,包括法律条文和管理规章等.根据 TBT 限制性法规的内容,划分为若干细则.

1.3 海洋底泥中 TBT 含量的确定

文献中 TBT 含量为一确定的值,直接采用;TBT 含量在一定范围内,采用均值. TBT 含量的单位统一为 ng/g(干重).

1.4 数据处理

在 Microsoft Office Access 2003 中将底泥中 TBT 的含量按统一的数据处理方式建立数据库,用 Origin 7.0 作图,用 SPSS 13.0 进行数据的统计分析.

2 结果与讨论

2.1 法规制定

到目前为止,全球至少有 22 个国家或地区制定和实施了 TBT 限制性法规(见图 1). 从

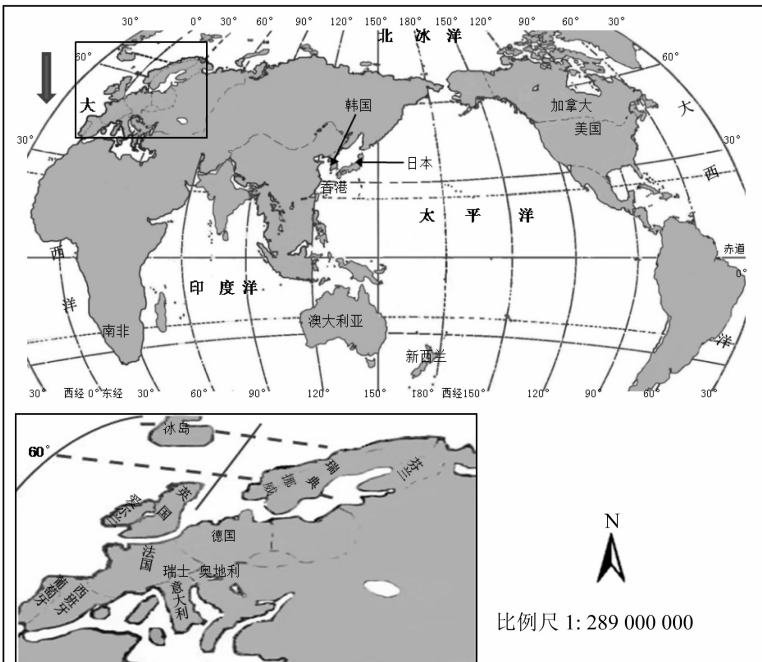


图 1 全球实施 TBT 法规的国家或地区^[10,11]

Fig. 1 Countries or areas with TBT legislation in the world

地域分布上看,实施法规的国家或地区大多集中在欧洲沿海区域,占整个实施法规国家或地区的 59.1%;非洲只有南非颁布了 TBT 法规.从法规实施的具体时间上看 20 世纪 80 年代末到 90 年代初是 TBT 法规实施较为集中的年份,82%的国家或地区是在 1982-1991 年间实施 TBT 法规的(见表 1).根据 IMO 的要求,截至到 2007 年 9 月 17 日,世界上已经有 25 个国家约占世界船舶吨位的 38.09%通过了国际控制有害船底防污漆系统(AFS)的公约,这表明从 2008 年 9 月 17 日起,该公约已进入了强制执行阶段.

各国或地区 TBT 法规的内容和严厉程度不尽相同,根据 TBT 防污漆的生产销售和使用等方面的要求,本文将法规内容划分为 16 条细则(见表 1).不过,由于是综合不同国家或地区的具体要求,这些细则并非全为并列的关系.在 TBT 防污漆的使用方面,船舶的大小是一个重要的区分标准.在 2003 年之前,限制性法规主要针对小于 25 m 的船舶,仅少数国

表 1 世界各国或地区 TBT 法规细则及实施年代

Tab. 1 Specific rules and publish time of the TBT legislations in different countries or areas over the world

法规细则	法国	英国	瑞典	荷兰	冰岛	爱尔兰	芬兰	德国	奥地利	葡萄牙	西班牙	瑞士	挪威	加拿大	美国	澳大利亚	新西兰	南非	日本	韩国	中国香港	中国大陆
1. 零售的 TBT 防污漆如超过 20L,则锡总含量在干燥的共聚物油漆中不超过 7.5%;或锡总含量在其他非共聚物油漆中不得超过 2.5%	-	85	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2. TBT 在共聚油漆中的含量最大不超过 3.8%	-	-	-	-	-	-	-	90	90	-	-	90	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3. 禁止在鱼类养殖的设施上使用 TBT 防污漆	-	87	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4. 禁止在淡水湖泊中使用 TBT 防污漆	-	-	-	-	-	-	-	-	90	-	-	87	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
5. 规定含有 TBT 的废弃物为危险废物,必须进行安全处置	-	87	-	90	-	-	-	90	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6. 船舶<25 m,禁止使用所有的有机锡防污漆,除铝制材料的船舶	82	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	89	88	-	89	-	-	-	-	-
7. 船舶<25 m,禁止使用 TBT 防污漆,铝制材料的船舶不例外	-	87	89	90	90	91	91	90	-	93	90	-	89	-	-	89	-	91	-	-	-	-
8. 船舶>25 m;可用的 TBT 防污漆只能有 20L 的包装	-	87	-	90	-	91	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	91	-	-	-	-
9. 船舶>25 m;释放到水体中 TBT 最大不超过 4 ug/cm ² /day	-	-	92	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	89	88	-	-	-	-	-	92	-
10. 船舶>25 m;释放到水体中 TBT 最大不超过 5 ug/cm ² /day	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	89	89	-	-	-	-	-
11. 所有的防污漆须经过登记注册	-	87	92	90	-	91	-	-	-	-	-	87	-	89	90	89	93	91	-	01	92	03
12. TBT 防污漆使用必须由专业的操作人员操作	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	90	-	-	-	-	-	-	-
13. 新生产的船舶上禁止使用 TBT 防污漆	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	90	-	-	-
14. 禁止使用一切含有有机锡的防污漆	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	93	93	-	-	-	-	-
15. 所有船舶上禁止使用 TBT 防污漆	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	92	-	-	-
16. 禁止 TBT 防污漆的生产	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	97	-	-	-

家或地区对大于 25 m 长的船舶进行了限制. 部分国家或地区在出合法规若干年后又对原法规进行了修订,所有修订部分都是更为严厉的限制条文. 日本、澳大利亚和新西兰经过修订后,分别在生产和使用方面出台了最严厉的法规.

2.2 全球海洋底泥中 TBT 污染现状

本文收集到 36 篇有关底泥中 TBT 污染调查的文献,包括 1986 - 2006 年 25 个国家或地区在内的 913 个站点. 总体而言,历年来全球海洋底泥中 TBT 含量集中在 2~600 ng/g 范围之内,占有所有站点的 79.8%,而低于 2 ng/g 和高于 600 ng/g 的站点分别占 9.8%和 10.4%(见图 2). 其中高于 600 ng/g 的站点均位于大型港口或大型造船厂附近,其中部分站点高达 1 000 ng/g 以上. 分析 1986 - 2006 年海洋底泥 TBT 年平均均值表明,1986 - 1990 年间海洋底泥中 TBT 的含量在 100 ng/g 左右,并保持在比较平稳的水平;1991 年到 2006 年之间,底泥 TBT 的含量呈现明显的波动,除 2006 年之外,其余年份均高于 1986 - 1990 年的水平.

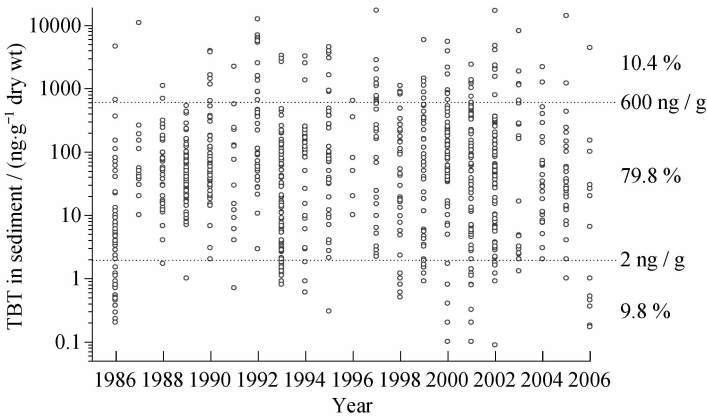


图 2 1986 - 2006 年全球海洋底泥中 TBT 含量^[5-9,12-42]

Fig. 2 Concentrations of TBT in marine sediment over the world from 1986 to 2006

部分国家如美国、英国、日本和印度等底泥 TBT 含量的调查数据相对比较丰富,且不同文献的数据之间具有较好的对比性,这为分析 TBT 在某一区域的长期变化提供了可能.

美国 Valkirs 等 1988 - 1990 年对美国 San Diego 海湾 9 个站点底泥中的 TBT 含量进行调查发现,在 8~24 个月内,有 6 个站点底泥 TBT 的含量出现了下降(见图 3),平均降幅为 36%,其余 3 个站点略有升高^[6];美国的 Navy 计划调查了诺福克和圣地亚哥海湾两个区域中海洋底泥中的 TBT 含量^[13],结果表明 1992 年比 1986 - 1988 期间底泥的含量下降 51%,而不同类型站点的下降幅度有较大差别,依次为商运码头(58%)、小港口(57%)和生态区(38%);美国的 LTMP 计划调查了普捷湾、纳拉甘塞特海湾以及加尔维斯敦海湾 3 个海区^[13],结果表明,在 1991 - 1995 年期间,底泥中的 TBT 含量降低了 47%;在对美国缅因州卡斯科海湾的调查表明^[14],1994 - 2001 年期间,底泥中的 TBT 含量约降低了 48%.

英国 Waite 等 1986 - 1989 年调查了英格兰南部和威尔士地区底泥中的 TBT 含量(见图 4A)^[7],在可对比的 8 个站点中,底泥中 TBT 的含量在年间和站点间的变化均不同步. 与 1986 年相比,1987 年有 5 个站点下降,其中 4 个站点的降幅超过了 50%;而 1988 年却有 4 个站点升高,且最高增幅达 400%;1989 年总体污染水平也高于 1986 年. Smith 等对艾塞克斯的克劳奇地区长达 18 年的调查结果表明,5 个站点的 TBT 含量均有明显的下降,1987 - 1997 年平均降

幅约为 78%，1987 - 2005 年平均降幅约为 93% (见图 4B)^[9]。

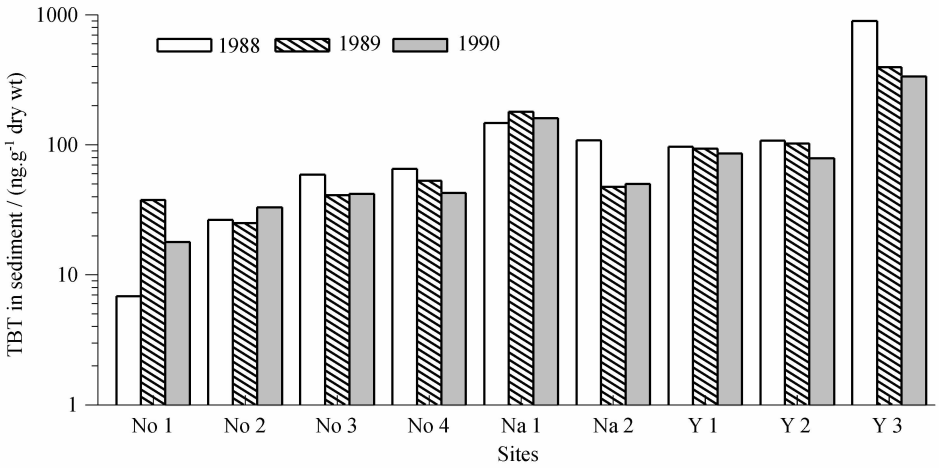


图 3 1988 - 1990 年美国 San Diego 海湾底泥中 TBT 含量的变化^[6]

Fig. 3 TBT concentrations in the sediment in San Diego Bay of America from 1988 to 1990

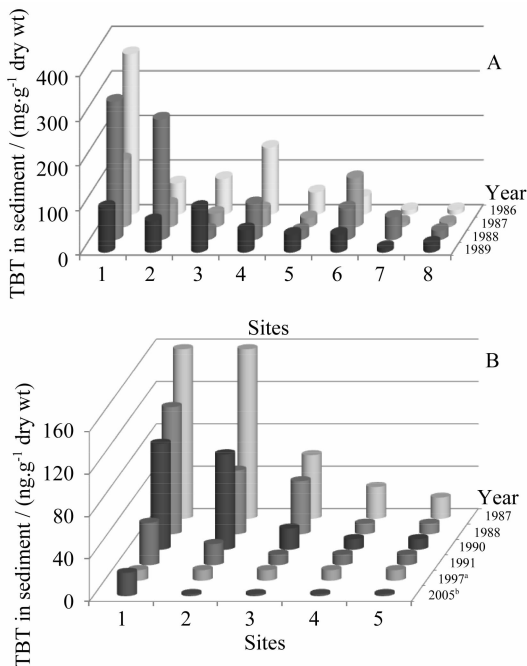


图 4 英国海洋底泥中 TBT 含量的变化^[7]

Fig. 4 TBT concentrations in sediments in England

注: A 1986 - 1989 年英格兰南部及威尔士地区 8 个站点底泥中 TBT 含量的变化;

B 1987 - 2005 年克劳奇地区 5 个站点底泥中的 TBT 含量变化(a 1 - 5 站点 TBT 含量均

小于 10 ng/g, b 2 - 4 站点 TBT 含量均小于 2 ng/g)

日本 日本大阪港是日本五大集装箱港口之一,与世界 100 多个国家和地区的 400 多个港口有贸易往来。本文选取了 1990 - 1996 年间大阪海区两个典型站点底泥 TBT 含量的变化

(见图 5A)^[15], 尽管 TBT 的年间变化有明显的起伏, 就总体趋势而言, TBT 含量有所下降, 两个站点的平均降幅约为 40%。

印度 印度在 1999–2002 年进行了大量的调查, 结果表明, 海洋底泥年平均含量高于 100 ng/g, 除 2000 年较 1999 年稍低之外, 底泥中的 TBT 呈明显的增加趋势(见图 5B)^[16, 17]。

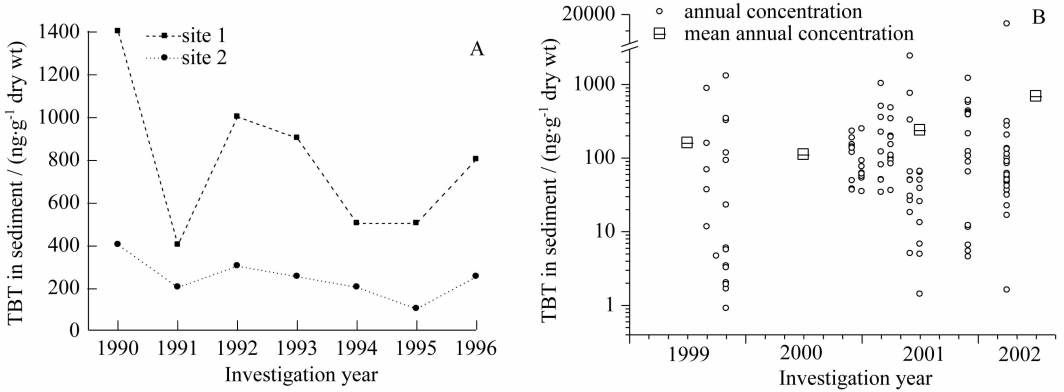


图 5 1990–1996 年日本大阪(A)^[15]和 1999–2002 年印度部分海区(B)底泥中 TBT 的含量^[16, 17]

Fig. 5 TBT concentrations in sediment in Osaka, Japan (1990–1996) and part sea areas of India (1999–2002)

2.3 法规对底泥中 TBT 含量的影响

从世界范围来看, 在 1986–2006 年之间, 海洋底泥中 TBT 含量并没有表现出明显的下降趋势, 相反 1990 年之后较之前还有所增加, 这表明尽管大部分制定法规的国家在 1991 之前就出台了限制性措施, 但整体上还没有达到促使全球 TBT 下降的效果. 其中一个最重要的原因在于, 20 世纪 90 年代初全球经济快速发展, 海洋运输业也处于快速发展时期, 世界各地大型船舶和港口吞吐量在不断增加, 如 1980 年世界船舶总吨位为 6.8 DWT(亿载重吨), 而 2002 年增加到 8.3 亿 DWT^[43]. 加之, 大多数国家并没有制定相应的法规, 这必然会导致新的 TBT 污染. 如韩国 Ulsan 海湾一造船厂多年的调查数据就充分证明了这一点^[21]. 韩国在 2001 年之前一直没有 TBT 的相关法规出台, 在 1975–2000 年期间, 该造船厂的新船产量呈快速增长的态势, 而其附近底泥中 TBT 的含量也随之增长(见图 6). Choi 等人 2002 年到 2004 年对韩国 Ulsan, Busan 和 Jinhae 3 个海湾底泥中的 TBT 含量调查显示造船厂附近底泥中的 TBT 含量最高能达到 5 372 ng/g, 且 TBT 含量的较高值点都分布在造船厂附近; 分析表明韩国严寒水域中的 TBT 仍主要来源于造船厂^[42]. 全球其他一些大型港口 TBT 含量普遍在数百 ng/g 水平以上, 而且区域性特征并不明显, 这充分说明海运的全球化导致了 TBT 的污染呈全球化的特征. 因此, TBT 的污染控制必须遵循“战略全球化, 行动本土化”的环保方针.

英国和日本等是实施法规较早的国家, 从上述分析可以看出, 法规出台之后, 这两个国家的海域底泥 TBT 含量有不同程度的下降, 并且在不同时段和不同区域 TBT 的下降幅度也有所不同. 从时间上看, 法规刚执行的 2~3 年时间内, 法规的效果并不明显, 需要 4~5 年甚至更长时间才能显示出效果. 有两个方面的原因决定了底泥中 TBT 的下降是一个缓慢而长期的过程, 其一是法规的迟滞效应, 即使新的船舶不使用 TBT, 但已含有 TBT 防污漆的船舶仍在释放 TBT; 其二是 TBT 在底泥中的降解速度十分缓慢, 平均为 8~15 年. 从区域上看, 法规对含量较高的站点影响比较大. 不同类型站点 TBT 的变化与法规的细则有密

切关系. 如美国在 1988 年分别针对大于和小于 25 m 的船舶做出了相应的规定, 因此其调查表明法规实施 4~5 年后无论是大型商运港口还是生态区都取得了较好的效果. 而冰岛、葡萄牙和西班牙等国家最初仅针对小于 25 m 的船舶出台了限制性法规, 结果在大型商运码头 TBT 含量仍比较高. 日本 1990 年开始实施 TBT 控制性法规, 但大阪港地区两个站点 TBT 的含量的下降幅度并不大, 其中外来船舶尤其是大型船舶可能是该区域 TBT 污染的主要来源之一.

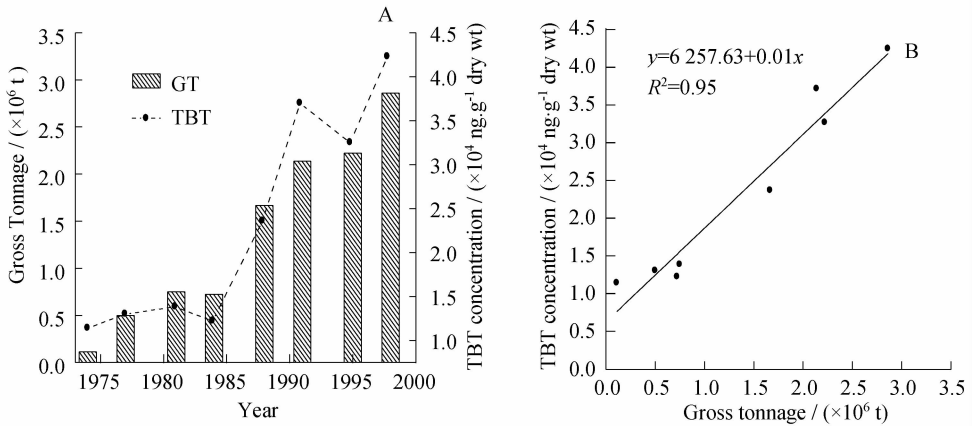


图 6 韩国 Ulsan 造船厂每年的船舶生产总吨位、该地区底泥中的 TBT 含量(A)以及二者之间的关系(B)^[21]

Fig. 6 Annual production of ships in gross tonnage, TBT concentrations in sediment and their relation in the shipyard of Ulsan Bay in Korea

印度的调查结果表明, 对于至今还没有实施法规的国家, TBT 污染还在不断的恶化. 类似的情况也发生在泰国和马来西亚等国家. Cao 等人对中国沿海有机锡污染现状的分析表明, 中国海域底泥中 TBT 含量与船舶活动具有很高的相关性, 例如香港、深圳和九龙江西部港口地区底泥中的 TBT 含量都比较高, 而一些水流交换条件较好的非工业海域底泥中的 TBT 含量相对较低^[44]. 我国 2003 年才对 TBT 的使用进行登记注册管理, 缺少强制性的法律, 而且到目前为止, 还没有被批准加入 AFS 公约. 许多发展中国家虽然已经认识到 TBT 污染的危害性, 但还没有引起足够的重视. 对水体、生物体以及底泥中 TBT 含量监测研究较少; 尤其是当国际性的法规实施后能够做到完全禁止 TBT 使用还很困难, 这也给全球 TBT 含量的消减造成了一定的影响^[45].

底泥是一个巨大的 TBT 蓄积库, 根据上述的分析可以预测, 即使全球严格实行新的禁令, 至少需要 5 年以上的时间表层底泥中的 TBT 才有可能降低到现在的一半, 而要使全球 TBT 下降到 10 ng/g 的水平则至少需要 10 年甚至更长的时间. 德国在实施法规后 8 年^[41], 法国至少 10 年^[46], 日本在 11 年后的调查都表明^[47], 水体中 TBT 的含量仍然很高. 其中一个重要因素就是底泥中的 TBT 能向水体不断输入, 并由此导致在部分海区生态恢复的效果也不理想. 因此, 整个海洋环境中 TBT 的有效下降和生态的良好恢复可能需要更长的时间, 而底泥中 TBT 的含量及其降解速度是决定这一进程的关键, 期间诸如港口清淤等一些工程性的操作也可能给海区生态环境重新带来灾难性的后果. 因此, 在今后制定针对类似持久性有机污染物的管理法规时, 应充分考虑其在底泥的蓄积和降解过程.

3 结 论

对于大量文献资料的分析表明,由于航运的快速发展、制定法规的国家有限以及 TBT 污染的全球化,从世界范围来看,在 1986-2006 年之间,海洋底泥并没有表现出明显的下降趋势,相反 1990 年之后还有所增加。由于法规的迟滞效应和底泥 TBT 的难降解特性导致 TBT 需要在法规出台 4~5 年甚至更长时间才能出现明显下降。半限制性法规对小型港口 TBT 的控制有一定效果,而没有出台法规的国家 TBT 污染仍在不断恶化。法规的实施和执行仅靠一小部分国家是不行的,需要全世界的积极参与。2008 年 9 月 AFS 公约进入强制执行阶段,Gipperth 指出 TBT 化合物的使用仍将持续很长一段时间,对还没有被批准加入 AFS 公约的国家的海域以及公海将会产生不利的影 响,从而最终将会影响到 AFS 公约缔约国的海域^[45]; Sonak 等人也指出 AFS 公约在具体实施过程中可能会遇到各种困难^[48]。中国作为航运大国面临着严峻的挑战,需要积极应对,尽快结合本国实际出台强制性的法律。全球性法规实施后,底泥中 TBT 是否能有效降解,生态环境是否能得到有效恢复仍需进一步研究。

[参 考 文 献]

- [1] GIBBS P E, BRYAN G W. Reproductive failure in populations of the dog-whelk, *Nucella lapillus*, caused by imposex induced by tributyltin from antifouling paints [J]. Journal of the Marine Biological Association of the United Kingdom, 1986, 66:767-777.
- [2] ALZIEU C, SANJUAN J, DELTREIL J P, et al. Tin contamination in Arcachon Bay: effects on oyster shell anomalies [J]. Marine Pollution Bulletin, 1986, 17:494-498.
- [3] IMO. AFS/CONF/26. International conference on the control of harmful anti-fouling systems for ships[S]. London: IMO, 2001.
- [4] SUMPTER J P, JOHSON A C. Lessons from endocrine disruption and their application to other issues concerning trace organics in the aquatic environment [J]. Environment Science and Technology, 2005, 39: 4321-4332.
- [5] DOWSON P H, BUBB J M, LESTER J N. Temporal distribution of organotins in the aquatic environment: five years after the 1987 UK retail ban on TBT-based anti-fouling paints [J]. Marine Pollution Bulletin, 1993, 26: 487-494.
- [6] VALKIRS A O, DAVIDSON B M, KEAR L L, et al. Long term monitoring of tributyltin in San Diego Bay, California [J]. Marine Environmental Research, 1991, 32:151-167.
- [7] WAITE M E, WALDOCK M J, THAIN J E, et al. Reductions in TBT concentrations in UK estuaries following legislation in 1986 and 1987 [J]. Marine Environmental Research, 1991, 32:89-111.
- [8] RUIZ J M, SZPUNAR J, DONARD O F X. Butyltins in sediments and deposit-feeding bivalves *Scrobicularia plana* from Arcachon Bay, France [J]. The Science of the Total Environment, 1997, 198:225-231.
- [9] SMITH R, BOLAM S G, REES H L, et al. Macrofaunal recovery following TBT ban: Long-term recovery of subtidal macrofaunal communities in relation to declining levels of TBT contamination [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2008, 136:245-256.
- [10] CHAMP M A. A review of organotin regulatory strategies, pending actions, related costs and benefits [J]. The Science of the Total Environment, 2000, 258:21-71.
- [11] International Paint. Antifoulings: The legislative position key points summary [EB/OL]. 2007[2008-7-25]. <http://www.international-marine.com>.
- [12] SARRADIN P M, ASTRUC A, DESAUZIERS V, et al. Butyltin pollution in surface sediments of Arcachon Bay after ten years of restricted use of TBT-based paints [J]. Environmental Technology, 1991, 12: 537-543.
- [13] RUSSELL D, BRANCATO M S, BENNETT H J. Comparison of trends in tributyltin concentrations among three monitoring programs in the United States [J]. Journal of Marine Science and Technology, 1996(1):230-238.

- [14] WADE T L, SWEET S T, KLEIN A G. Assessment of sediment contamination in Casco Bay, Maine, USA [J]. *Environmental Pollution*, 2008, 152:505-521.
- [15] HARINO H, FUKUSHIMA M, KAWAI S. Temporal trends of organotin compounds in the aquatic environment of the Port of Osaka, Japan [J]. *Environmental Pollution*, 1999, 105:1-7.
- [16] BHOSLE N B, GARG A, HARJI R, et al. Butyltins in the sediments of Kochi and Mumbai harbours, west coast of India [J]. *Environment International*, 2006, 32:252-258.
- [17] BHOSLE N B, GARG A, JADHAV S, et al. Butyltins in water, biofilm, animals and sediments of the west coast of India [J]. *Chemosphere*, 2004, 57(8):897-907.
- [18] KO M M, BRADLEY G C, NELLER A H, et al. Tributyltin contamination of marine sediments of Hong Kong [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1995, 31: 249-253.
- [19] HARINO H, FUKUSHIMA M, YAMAMOTO Y, et al. Contamination of butyltin and phenyltin compounds in the marine environment of Otsuchi Bay, Japan [J]. *Environmental Pollution*, 1998, 101:209-214
- [20] SHIM W J, OH J R, KAHNG S H, et al. Horizontal distribution of butyltins in surface sediments from an enclosed bay system, Korea [J]. *Environmental Pollution*, 1999, 106:351-357.
- [21] SHIM W J, HONG S H, YIM U H, et al. Horizontal and vertical distribution of butyltin compounds in sediments from shipyards in Korea [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2002, 43:277-283.
- [22] ARAMBARRI I, GARCIA R, MILLAN E. Assessment of tin and butyltin species in estuarine superficial sediments from Gipuzkoa, Spain [J]. *Chemosphere*, 2003, 51:643-649.
- [23] DE MORA S J, FOWLER S W, CASSI R, et al. Assessment of organotin contamination in marine sediments and biota from the Gulf and adjacent region [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2003, 46: 401-409.
- [24] STRAND J, JACOBSEN J A, PEDERSEN B, et al. Butyltin compounds in sediment and molluscs from the shipping strait between Denmark and Sweden [J]. *Environmental Pollution*, 2003, 124:7-15.
- [25] NEGRI A P, HALES L T, BATTERSHILL C, et al. TBT contamination identified in Antarctic marine sediments [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2004, 48:1142-1144.
- [26] WADE T L, SWEET S T, QUINN J G, et al. Tributyltin in environmental samples from the former derecktor shipyard, Coddington Cove, Newport RI [J]. *Environmental Pollution*, 2004, 129:315-320.
- [27] MIDORIKAWA S, ARAI T, HARINO H, et al. Concentrations of organotin compounds in sediment and clams collected from coastal areas in Vietnam [J]. *Environmental Pollution*, 2004, 131: 401-408.
- [28] LEE C C, HSIEH C Y, TIEN C J. Factors influencing organotin distribution in different marine environmental compartments, and their potential health risk [J]. *Chemosphere*, 2006, 65: 547-559.
- [29] MICHAUD M H, PELLETIER E. Sources and fate of butyltins in the St. Lawrence Estuary ecosystem [J]. *Chemosphere*, 2006, 64: 1074-1082.
- [30] HARINO H, OHJI M, WATTAYAKOM G, et al. Occurrence of antifouling biocides in sediment and green mussels from Thailand [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2006, 51:400-407.
- [31] LIN Y T. The distribution of organotin compounds in sediments from the ports in Kaohsiung and Pingtung, Taiwan [D]. Kaohsiung, China; Department of Marine Biotechnology and Resources, National Sun Yat-Sen University, 2006:139.
- [32] MARTINEZ-LLADO X, GIBERT O, MARTI V, et al. Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs) and tributyltin(TBT) in Barcelona harbor sediments and their impact on benthic communities [J]. *Environmental Pollution*, 2007, 149:104-113.
- [33] OHJI M, ARAI T, MIDORIKAWA S, et al. Distribution and fate of organotin compounds in Japanese coastal waters [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2007, 178:255-265.
- [34] KURIHARA R, SHIRAIISHI F, RAJENDRAN R B, et al. Evaluation of ecotoxicity and fate of methylated butyltins in sediments and seawater from Tokyo Bay, Japan [J]. *Environmental Chemistry*, 2007, 26(12):1-31.
- [35] HARINO H, YAMAMOTO Y, EGUCHI S, et al. Concentrations of antifouling biocides in sediment and mussel samples collected from Otsuchi Bay, Japan [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2007, 52:179-188.
- [36] SCANCAR J, ZULIANI T, TURK T, et al. Organotin compounds and selected metals in the marine environment of Northern Adriatic Sea [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2007, 127:271-282.
- [37] BERTO D, GIANI M, BOSCOLO R, et al. Organotins (TBT and DBT) in water, sediments, and gastropods of

- the southern Venice lagoon (Italy) [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2007, 55:425-435.
- [38] WANG X H, HONG H S, ZHAO D M, et al. Environmental behavior of organotin compounds in the coastal environment of Xiamen, China [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2008, 57:419-424.
- [39] JADHAV S, BHOSLE N B, MASSANISSO P, et al. Organotins in the sediments of the Zuari estuary, west coast of India [J]. *Journal of Environmental Management*, 2008, doi:10.1016/j.jenvman.2008.08.015.
- [40] MENG P J, LIN J D, LIU L L. Aquatic organotin pollution in Taiwan [J]. *Journal of Environmental Management*, 2008, doi:10.1016/j.jenvman.2008.06.008.
- [41] BRACK K. Organotin compounds in sediments from the Götaälv Estuary [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2002, 135:131-140.
- [42] CHOI M, MOON H B, YU J, et al. Butyltin contamination in industrialized bays associated with intensive marine activities in Korea [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2008, doi: 10.1007/s00244-008-9235-1.
- [43] United Nations Conference on Trade and Development. Review of Maritime Transport [M]. Switzerland: UNCTAD Secretariat, 2003: 1-162.
- [44] CAO D D, JIANG G B, ZHOU Q F, et al. Organotin pollution in China: An overview of the current state and potential health risk [J]. *Journal of Environmental Management*, 2008, doi:10.1016/j.jenvman.2008.06.007.
- [45] GIPPERTH L. The legal design of the international and European Union ban on tributyltin antifouling paint: Direct and indirect effects [J]. *Journal of Environmental Management*, 2008, doi: 10.1016/j.jenvman.2008.08.013.
- [46] MICHEL P, AVERTY B. Contamination of French coastal waters by organotin compounds: 1997 update [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 1999, 38:268-275.
- [47] MURAI R, TAKAHASHI S, TANABE S, et al. Status of butyltin pollution along the coasts of western Japan in 2001: 11 years after partial restrictions on the usage of tributyltin [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2005, 51:940-949.
- [48] SONAK S, PANGAM P, GIRIYAN A, et al. Implications of the ban on organotins for protection of global coastal and marine ecology [J]. *Journal of Environmental Management*, 2008, doi:10.1016/j.jenvman.2008.08.017.