

# 愛河口沉積物中丁基錫分布和來源

陳秋姩

國立高雄海洋科技大學海洋環境工程系暨研究所副教授

陳志峰

國立高雄海洋科技大學海洋環境工程系暨研究所博士後研究員

張麗珍

嘉南藥理科技大學藥學系講師

蕭有松

高雄醫學大學附設中和紀念醫院環境保護室組長

董正欽

國立高雄海洋科技大學海洋環境工程系暨研究所教授

## 摘 要

本研究於 2009 年採集愛河口(Love River mouth)共 10 個沉積物樣品，並利用氣相層析儀/火焰光度偵測器(GC/FPD)進行單丁基錫(monobutyltin, MBT)、二丁基錫(dibutyltin, DBT)及三丁基錫(tributyltin, TBT)濃度分析。沉積物丁基錫濃度分析結果顯示，愛河口沉積物總丁基錫( $\Sigma$ BTs)濃度介於 10.4 - 153.9 ng Sn/g dry wt 之間，平均濃度為  $60.0 \pm 45.9$  ng Sn/g dry wt，其中 MBT 為主要物種( $57 \pm 29\%$ )。由沉積物丁基錫濃度分佈、組成及相關性分析顯示，愛河口沉積物 TBT 主要來自港區的船舶作業，而 DBT 及 MBT 主要可能來自上游河川廢污水之輸入。以美國環保署之 TBT 毒性指引(Toxicity guidelines)及 OSPAR (Oslo and Paris Commission)的雄化標準評估等級 (Assessment Class Criterion for Imposex, ACCI) 評估愛河口區沉積物 TBT 對生物造成的影響效應顯示，除了最接近港區之測站外，愛河口沉積物 TBT 對生物造成的影響效應低，雌性生物預計不會有不孕的現象。

關鍵字：丁基錫、沉積物、單丁基錫、二丁基錫、三丁基錫、河口



## 一、前言

自 1960 年代，丁基錫(butyltins, BTs)已被廣泛的應用在商業、工業及農業等用途上，例如：聚氯乙烯(polyvinyl chloride, PVC)穩定劑、殺菌劑(bactericides)、殺蟲劑(insecticides)、抗生物附著塗料(antifouling paint)及木材防腐劑(wood preservatives)等(Hoch, 2001)。單丁基錫(monobutyltin, MBT)及二丁基錫(dibutyltin, DBT)主要使用在 PVC 產品製程中的光及熱穩定劑(Hoch, 2001)。而具有生物抑制性質的三丁基錫(tributyltin, TBT)主要是使用在船舶外殼的抗生物附著塗料(antifouling paint)中(Omae, 2003)。BTs 是一種可以模仿或干擾生物內分泌生理系統之內分泌干擾物質(endocrine disruptors)，即環境荷爾蒙(environmental hormone)。水體中即使 TBT 僅有 ng/L 的濃度亦可造成水生系統中的生物體有高度的生態毒理風險或不利的影響，如腹足類的雄化現象(imposex) (Zhou et al., 2003)、牡蠣畸形及貽貝類幼生的死亡(Tanabe et al., 2000; Zhou et al., 2003)。由於多樣化及廣泛的應用，使得此一有機金屬化合物普遍存在於水域環境中，因此，許多國家紛紛立法規定禁止或管控 TBT 的使用(如，法國、美國、英國、加拿大、澳洲、紐西蘭等)。此外，國際海事組織(International Maritime Organization, IMO)建議逐步禁止 TBT 使用在抗生物附著塗料之規範(Hoch, 2001; Champ, 2000; Michaud and Pelletier, 2006)，而我國環保署(Taiwan Environmental Protection Agency, TWEPA)亦採用 IMO 之建議規定自 2003 年起全面禁止小於 25 m 長之船舶使用含 TBT 之抗生物塗料，在 2008 年起則全面禁止所有船舶使用含 TBT 之抗生物塗料。雖然，這些法規已使水體中的丁基錫逐漸下降(Omae 2003; Regoli et al. 2001)，但在許多區域之水體、沉積物及生物體中 BTs 仍可被偵測到(Sousa et al., 2009; Chen et al., 2010; Kim et al., 2011)。

愛河位於台灣南部的高雄市，河川全長 12 公里，集水面積 56.06 平方公里，約涵蓋高雄市 40%的面積。此河川發源於曹公圳，流經高雄市中心精華區，最後注入高雄港(台灣最大的國際商港)(圖 1)。高雄市為台灣最大的工業都市，擁有 150 萬人口。早期因下水道建設缺乏許多未經處理或處理不當之廢污水直接排入鄰近的河川，造成河川水域環境品質逐漸惡化。雖然高雄市政府積極推動污水下水道及污水處理廠等公共設施的設置，但至 2009 年高雄市下水道接管率僅有 56%(KCG, 2011)。此外，高雄市政府亦積極進行河川截流整治工程(如，愛河)，即於河川中段興建截流站，疏導上游之污染物至污水廠處理，減少污染物流入河川下游。然而，在雨季時，為疏導暴雨所帶來之流量，截流之閘門會開啟而使污染物進入河川下游。愛河沿岸人口密集，工商業發達，主要之污染源包括都市家

庭污水，工業廢水(油漆及染料工業、化學品生產廠，金屬加工廠，電子工業，紙和紙板的造紙廠，汽車電鍍和整理廠，鑄造廠)，都市逕流及交通污染源等(Chen et al., 2007)，然而，這些污染終將隨河川傳輸至河口最後沉降或吸附累積於河口區沉積物。許多研究結果指出海域生態系統中的 BTs 主要來源與船舶的抗生物塗料的使用有關，而河川的 BTs 主要來源則與 PVC 的釋出、工業來源及市政廢水排入有關(Díez et al., 2002; Díez et al., 2005; Chen et al., 2010)。據此，河口區(河、海交界處)的丁基錫來源可能同時與上述兩種污染來源有密切的相關，特別是沉積物，因為丁基錫(butyltins, BTs)屬於疏水性化合物，一旦進入水體中，容易吸附於懸浮顆粒上，並隨顆粒沉降於底床(Hoch, 2001)。

本研究主要進行位於高雄港區的愛河口表層沉積物丁基錫(TBT、DBT 及 MBT)濃度分析，並藉由監測結果評估沉積物 BTs 的污染程度、組成及污染來源。此外，亦評估河口區沉積物 TBT 之潛在生態毒理效應。

## 二、研究材料與方法

### (一)採樣作業

愛河口的 10 個沉積物樣品採樣測站如圖 1 所示，詳細的沉積物樣品採樣位置列於別處(Chen et al., 2011)。10 個測站的表層沉積物於 2009 年 5 月利用 6" × 6" × 6" 之艾克曼採泥器(Jae Sung International Co., Taiwan)進行採集。採得之沉積物利用勺子直接挖取置於棕色玻璃瓶內(預先以正己烷淋洗過)並以含有鋁片的螺旋蓋密封後，暫存於含有碎冰的冰桶中，直到運送回實驗室。樣品運送至實驗室後，以冷凍乾燥方式進行沉積物樣品乾燥(72 小時)，以 0.5 mm 篩網過篩及均質。乾燥均質後的沉積物樣品，放置於棕色玻璃瓶內(預先以正己烷淋洗過)，以含有鋁片的螺旋蓋密封，並儲存於-20°C 的冰庫中直到進一步分析。表 1 列出沉積物樣品之粒徑(黏粒、粉粒及砂粒)及有機碳量分佈(資料來自 Chen et al., 2011)。

### (二)樣品前處理及分析

沉積物 BTs 分析方法詳如 Chen et al., (2010)所述，其分析步驟簡述如下：精稱 2.0 g 的乾基沉積物置於 40 mL 棕色玻璃瓶中，加入 10 mL 醋酸緩衝液(pH = 4.5)，0.2 mL 10%的四乙基硼化鈉(sodium tetraethylborate, NaBEt<sub>4</sub>)衍生劑及 500 ng 的內標準品(Tetrapentyltin, TePeT)，蓋上含有鐵氟龍墊片的蓋子後以旋轉震盪器(vortex)混合均勻 1 min，再加入 5 mL 0.02%雀普隆(Tropolone) - 正



己烷溶液(n-hexane)，以超音波裝置震盪 15 min 萃取後，以 2000 rpm 離心 5 分鐘，再以 Pasteur 玻璃滴管取上層有機相於 15 mL 玻璃試管中，原沉積物樣品再加入 5mL 相同溶劑以超音波震盪萃取，重複此步驟兩次，最後收集混合有機相溶液，加入銅絲去硫及以無水硫酸鈉除水後，以高純氮氣慢速吹拂定量至 0.5mL，抽取 3  $\mu$  L 以氣相層析儀-火焰光感應偵測器 (gas chromatography/flame photometric detector, GC/FPD)分析之。沉積物 BTs 濃度以相當於錫(tin, Sn) ng Sn/g dry wt 表示。

本研究之每批次樣品皆進行五點檢量線 (20 - 320 pg as Sn)、程序空白及查核標準品。檢量線的線性相關係數(r)皆大於 0.995、程序空白樣品分析結果皆低於偵測下限值、查核標準品的回收率介於 85% 到 100%。MBT、DBT 及 TBT 的偵測下限分別為 0.5, 0.6, 及 0.4 ng Sn/g dry wt。依樣品前處理程序處理並分析之國際參考標準品 PACS-2 (harbor sediment)，其實際分析平均值 (n = 3)為 TBT (830 $\pm$ 24 ng/g)、DBT (997 $\pm$ 11 ng/g)及 MBT (497 $\pm$ 7 ng/g)；參考濃度分別為 TBT (890 $\pm$ 105 ng/g)、DBT (1,047 $\pm$ 64 ng/g)及 MBT (600 ng/g)。

### (三)資料分析

實驗室的分析結果係利用 EXCEL 2003 (Microsoft)進行統計分析。丁基錫等濃度圖係利用 Surfer(R) Version 8.0 (Golden Software, Inc. 2002)繪製。沉積物特性及丁基錫濃度之間的相關性測試是使用皮爾森線性相關技術(linear correlation of Pearson technique)進行分析。皮爾森相關分析(Pearson correlation analysis)是使用 SPSS 12.0 軟體執行。本研究進行的數據分析包含：(a) 個別的丁基錫化合物濃度；(b) 總丁基錫濃度( $\Sigma$ BTs)：MBT, DBT, 及 TBT 濃度總和；(c) 以 1% TOC 正規化總丁基錫濃度 Normalized  $\Sigma$ BTs (Nor.  $\Sigma$ BTs)：計算式為 Nor.  $\Sigma$ BTs =  $\Sigma$ BTs $\times$ 1%/TOC% (Michaud and Pelletier, 2006)。

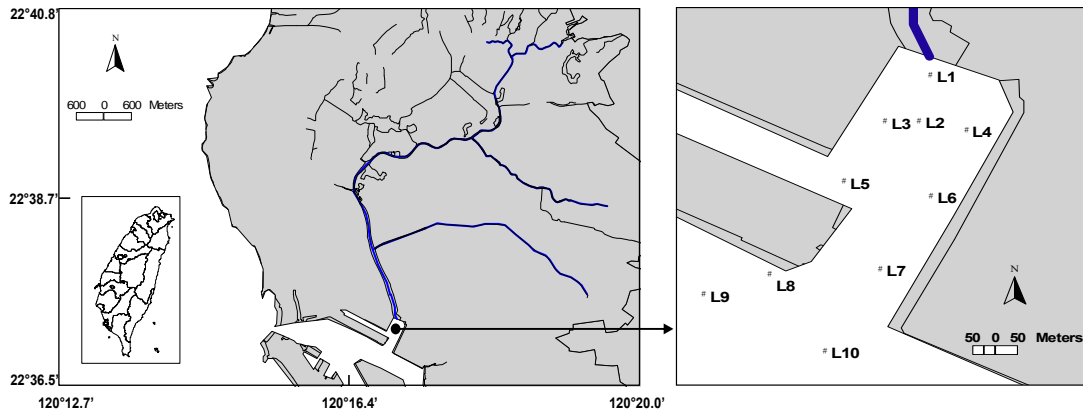


圖 1 研究區域及採樣位置圖

### 三、結果與討論

#### (一) 沉積物丁基錫濃度分布

愛河口沉積物 MBT、DBT、TBT、 $\Sigma$ BTs 及 Nor. BTs 濃度如表 1 所示。TBT 在所有測站中皆有測得濃度值。愛河口沉積物的 TBT 濃度介於 2.1 – 100.1 ng Sn/g dry wt 之間，平均濃度為  $18.3 \pm 29.2$  ng Sn/g dry wt。依據 Dowson et al. (1993) 建議之 TBT 污染等級分類 (TBT-contaminated sediments class)，愛河口被歸類為中度污染 (moderate) (TBT = 8.2 – 41 ng Sn/g dry wt)。DBT 在所有測站亦皆有測得濃度值，各測站 DBT 濃度介於 1.8 – 23.9 ng Sn/g dry wt 之間，平均濃度為  $8.5 \pm 6.9$  ng Sn/g dry wt。MBT 同樣在所有測站被測得濃度值，各測站 DBT 濃度介於 1.5 – 83.4 ng Sn/g dry wt 之間，平均濃度為  $33.2 \pm 25.5$  ng Sn/g dry wt。 $\Sigma$ BTs 濃度介於 10.4 – 153.9 ng Sn/g dry wt 之間，平均濃度為  $60.0 \pm 45.9$  ng Sn/g dry wt。愛河口 (Love River mouth) 沉積物之平均 Nor.  $\Sigma$ BTs 濃度 (以 1% TOC 正規化) 以離河口較遠的測站 L9 之濃度 36.0 ng Sn/g 1% TOC 最高，其餘測站濃度介於 2.0 – 19.5 ng Sn/g 1% TOC (表 1)。



表 1 愛河口沉積物粒徑分布、總有機碳及丁基錫濃度(ng Sn/g dry wt)

Sits	Clay <sup>a</sup> (%)	Silt <sup>a</sup> (%)	Sand <sup>a</sup> (%)	TOC <sup>a</sup> (%)	MBT	DBT	TBT	ΣBTs	Nor. ΣBTs <sup>b</sup>
L1	10.6	81.4	8.0	5.9	83.4	14.7	15.9	114.1	19.5
L2	9.0	73.5	17.5	5.2	1.5	3.8	5.1	10.4	2.0
L3	9.7	87.8	2.5	6.6	10.9	1.8	2.1	14.8	2.2
L4	11.3	79.5	9.2	5.6	26.2	3.8	3.4	33.4	6.0
L5	8.8	86.1	5.1	2.3	3.3	12.5	13.8	29.6	12.7
L6	11.1	79.0	9.9	4.0	47.9	9.2	12.4	69.5	17.5
L7	7.5	77.0	15.5	4.9	30.7	1.8	4.4	36.9	7.5
L8	9.5	87.5	3.0	3.2	40.4	6.7	8.6	55.7	17.5
L9	12.6	80.2	7.2	4.3	30.0	23.9	100.1	153.9	36.0
L10	12.2	85.9	1.9	4.9	57.8	7.0	16.9	81.7	16.5
Mean	10.2	81.0	8.8	4.7	30.3	8.1	17.1	55.5	12.7
SD <sup>c</sup>	1.6	5.2	5.8	1.2	26.0	6.7	28.0	46.1	10.3

<sup>a</sup> Data com from Chen et al. (2011).

<sup>b</sup> Nor. ΣBTs = ΣBTs×1%/TOC% (Michaud and Pelletier, 2006)

<sup>c</sup> SD: standard deviation.

圖 2 為河口區 MBT、DBT、TBT 及 ΣBTs 等濃度擴散圖，由圖顯示 MBT 濃度主要以河口最高(測站 L1)，且逐漸往港區方向遞減；而 DBT 及 TBT 濃度則是以靠近港區航道濃度最高(測站 L9)，且往河口方向遞減；ΣBTs 的濃度分布則呈現河口及港區兩邊往中間遞減的情況。此結果顯示，愛河口沉積物 BTs 來源可能包含河川上游沿岸之工業及城市污水的排放及港區船舶活動；其中，TBT 主要來自港區的船舶作業(如航運，船舶修理，船舶建造等作業)(Chen et al., 2010)，而 DBT 及 MBT 可能來自上游河川廢污水及港區來源之 TBT 降解，且 MBT 大部分是由上游河川所貢獻。

表 2 顯示沉積物丁基錫濃度、粒徑及有機質之間的相關性(粒徑及有機質資料來自 Chen et al., 2011)。ΣBTs 與黏粒之間具有顯著的正相關( $p < 0.05$ )，但與 TBT、DBT 及 MBT 濃度無顯著相關( $r = 0.432 - 0.579, p > 0.05$ )。除了 MBT 與 DBT 及 TBT 沒有顯著相關 ( $p > 0.05$ )外，MBT、DBT、TBT、ΣBTs 及 Nor. ΣBTs 之間皆具有顯著的正相關性( $p < 0.05$ )，此結果顯示 MBT 除了來自 TBT 降解外，應有其他直接輸入之來源(如上游工業及城市污水的排放)。

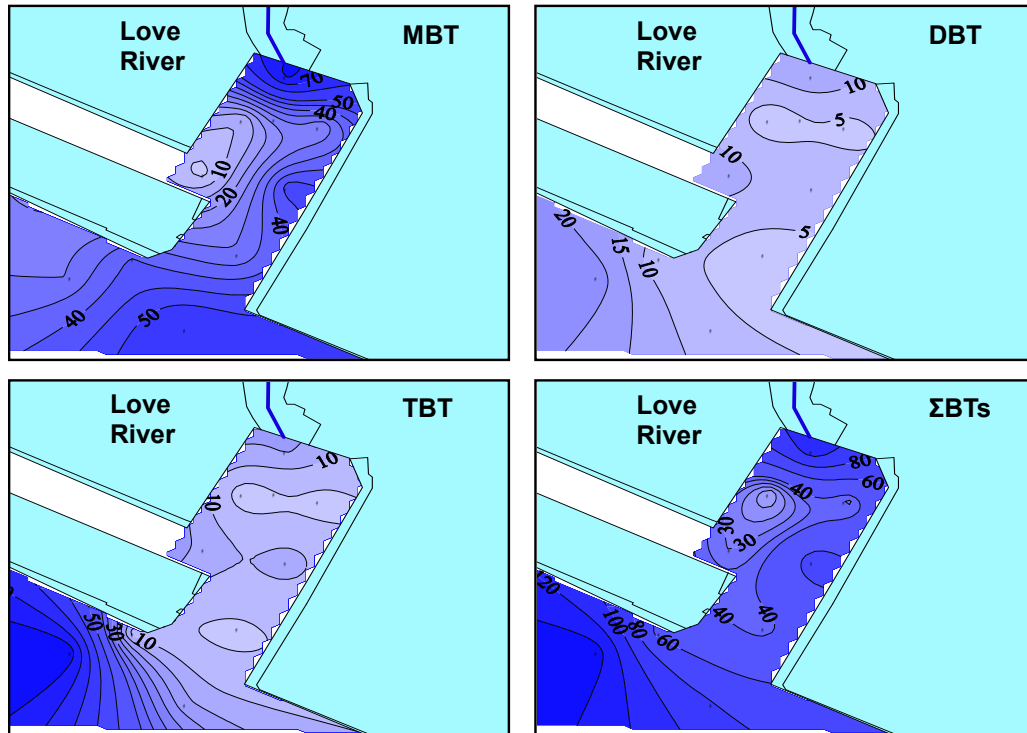


圖 2 愛河口沉積物丁基錫等濃度分布圖

表 2 愛河口沉積物丁基錫濃度、粒徑及有機質之間的相關性 (n=10)

	Clay	Silt	Sand	TOC	MBT	DBT	TBT	ΣBTs
Silt	0.129							
Sand	-0.422	-0.954 <sup>a</sup>						
TOC	0.140	-0.209	0.149					
MBT	0.432	0.103	-0.226	0.177				
DBT	0.544	0.045	-0.206	-0.338	0.284			
TBT	0.579	-0.063	-0.118	-0.177	0.071	0.865 <sup>a</sup>		
ΣBTs	0.690 <sup>b</sup>	0.024	-0.232	-0.065	0.644 <sup>b</sup>	0.858 <sup>a</sup>	0.806 <sup>a</sup>	
Nor. ΣBTs	0.620	0.125	-0.303	-0.367	0.469	0.908 <sup>a</sup>	0.854 <sup>a</sup>	0.941 <sup>a</sup>

<sup>a</sup>Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed).

<sup>b</sup>Correlation is significant at the 0.05 level (2-tailed).



## (二)沉積物中丁基錫組成

本研究之愛河口(Love River mouth)沉積物中 MBT、DBT 及 TBT 的濃度百分比分布如圖 3 所示。各測站沉積物 MBT 占  $\Sigma$ BTs 之濃度百分比介於 11 - 83%之間,除了測站 L2、L5 及 L9 外,各測站沉積物 BTs 組成主要為 MBT (69 - 83%);測站 L2、L5 及 L9 沉積物 TBT 占  $\Sigma$ BTs 之濃度百分比分別為 49%、47%及 65%,其餘各測站沉積物 TBT 占  $\Sigma$ BTs 之濃度百分比介於 10 - 21%之間。各測站沉積物 DBT 占  $\Sigma$ BTs 之濃度百分比介於 5 - 42%之間,其中測站 L2 及 L5 相對較高,分別為 37%及 42%。本研究之愛河口沉積物中含有高比例之 MBT,可能來自港區船舶活動所貢獻之 TBT 的降解產物與來自河川上游的 MBT 污染注入;但由於 TBT 在海洋沉積物中主要藉由生物降解,降解速率相當緩慢,尤其是在厭氧條件下(De Mora et al., 2003),因此,高比例之 MBT 較可能自河川上游的 MBT 污染注入。

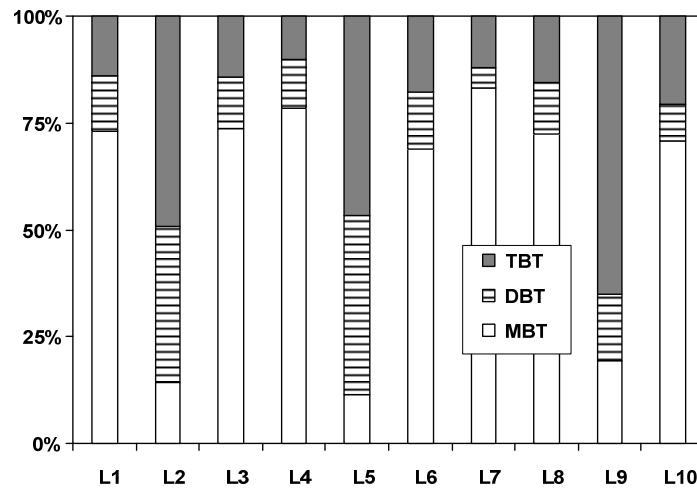


圖 3 愛河口沉積物丁基錫(MBT、DBT 及 TBT)組成百分比

## (三)丁基錫來源

愛河口沉積物之 BTs 濃度分布、等濃度擴散圖、相關性分析及  $\Sigma$ BTs 組成百分比結果顯示,MBT 除了來自 TBT 的降解外,尚有可能來自河川上游的污染注入。Yang (2009)針對愛河流域進行沉積物 BTs 調查研究指出,愛河流域之表層沉積物 BTs 主要以 MBT (12.5 - 69.2 ng Sn/g dry wt)為主,其次為 DBT (7.1 - 31.2 ng Sn/g dry wt),而 TBT 僅於接近河口之下游測得(15.8 - 22.6 ng Sn/g dry wt),此結果顯示愛河流域沉積物之 MBT 來自人為污染來源,而下游段之 TBT 主要來自港區船舶活動。本研究愛河口區的 BTs 組成以 MBT 為主(57%)與該研究相吻合,因此,愛河口高濃度的 MBT 應來自河川上游的



人為污染。綜合言之，愛河口區沉積物 TBT 主要的來源應與高雄港區船舶相關活動(如航運，船舶修理，船舶建造等作業)有關，而 MBT 可能主要是來自上游人為污染源的輸入。

許多研究常使用丁基錫降解指數(butyltin degradation index, BDI) [ $BDI=(MBT+DBT)/TBT$ ]進行 BTs 在環境中的宿命及降解的評估，然而，使用 BDI 須假設 DBT 及 MBT 除了來自 TBT 降解外，沒有其他來源(Diez et al., 2002)。本研究中顯示，河口域可能有 TBT 降解產物(如，MBT)的直接輸入，因此以 BDI 評估河口環境中 BTs 的宿命及降解時，需特別注意是否有 DBT 及 MBT 的來源輸入。

#### (四)沉積物 TBT 的生態毒理效應評估

愛河口沉積物 TBT 的生態毒理效應評估係使用現有的 TBT 毒性指引 (Toxicity guidelines)進行評估。雖然此方式有所限制，但對於生態風險評估而言，它是一個相當有用的篩檢工具(Chapman and Mann, 1999; Díez and Bayona, 2009)。本研究引用的指引為美國環保署(USEPA, 1996)所提出的 2 個 TBT 篩選值 ERM (effect range-median)與 ERL (effect range-low)值及由 OSPAR (Oslo and Paris Commission)所提出的雄化標準評估等級 (Assessment Class Criterion for Imposex, ACCI) (OSPAR, 2009)。

ERM 及 ERL 是以 Puget Sound 的數據為基礎及使用沉積物-水分配的方式，計算出  $ERL = 515 \text{ ng Sn/g TOC}$  及  $ERM = 7,204 \text{ ng Sn/g TOC}$  兩個篩選值。為了方便比較，ERM 及 ERL 被換算成  $5.15 \text{ ng Sn/g 1\% TOC}$  及  $72.04 \text{ ng Sn/g 1\% TOC}$ 。本研究 10 個沉積物的 Nor. TBT 濃度(經 1%TOC 正規化)介於  $0.2 - 23.4 \text{ ng Sn/g 1\% TOC}$  之間。除了測站 L2 ( $5.9 \text{ ng Sn/g 1\% TOC}$ )及 L5 ( $23.4 \text{ ng Sn/g 1\% TOC}$ )之 Nor. TBT 濃度介於 ERL 與 ERM 之間外，所有測站之 Nor. TBT 濃度皆低於 ERL 的濃度值(圖 4)。

ACCI 是依據 OSPAR Co-ordinated Environmental Monitoring Program (CEMP)的資料所建立的，它是整合腹足類生物效應與沉積物 TBT 濃度所產生 A 至 F 的 6 個生物效應等級。Class A (not detected): 接近零影響(Close to zero effects)、Class B ( $<0.82 \text{ ng Sn/g dry wt}$ ): TBT 濃度所引起的生物效應低於生態毒性評估標準 (Response caused by TBT concentrations below the ecotoxicological assessment criteria (EAC;  $0.0041 \text{ ng Sn/g dw}$ ))、Class C ( $0.82 - <20.5 \text{ ng Sn/g dry wt}$ ): 雌性生物預計不會有不孕的現象(Level of response where females are not expected to be sterile)、Class D ( $20.5 - <82 \text{ ng Sn/g dry$



wt)：族群中出現不孕之雌螺，但不影響族群繁殖 (Sterile females are present in the population, but reproductively capable females remain)、Class E (82 – 205 ng Sn/g dry wt)：族群無法繁殖下一代(Populations are unable to reproduce)及 Class F (>205 ng Sn/g dry wt)：生物已經絕種(Populations of Nucella have expired) (OSPAR, 2009)。依據 ACCI，測站 L1 - L8 及 L10 沉積物 TBT 濃度可被歸類於 Class C，而測站 L9 則被歸類於 Class E (圖 5)。L9 測站離河口最遠，而最接近港區(圖 1)，顯示河口區沉積物 TBT 對生物造成的影響效應相對較港區低。

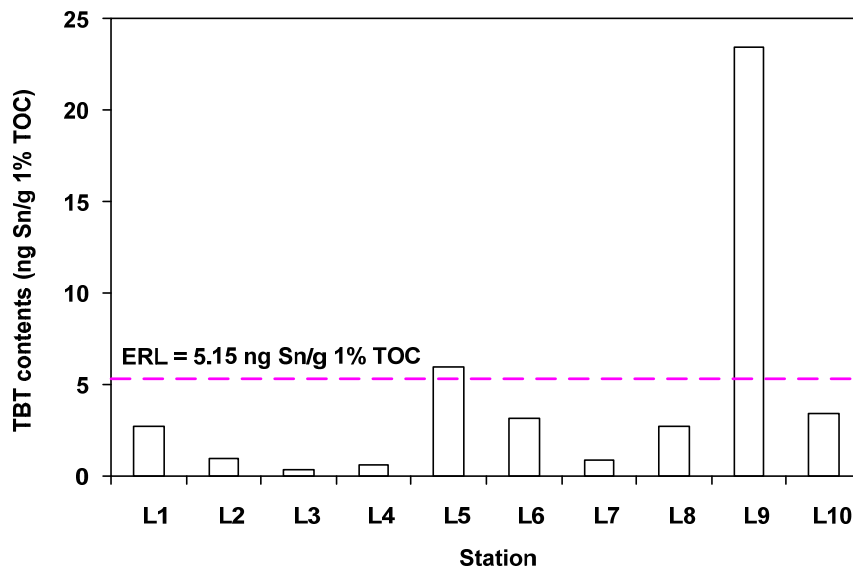


圖 4 愛河口沉積物 TBT 濃度分布(虛線為美國環保署毒性指引(Toxicity guidelines)之 ERL (effect range-low)值)

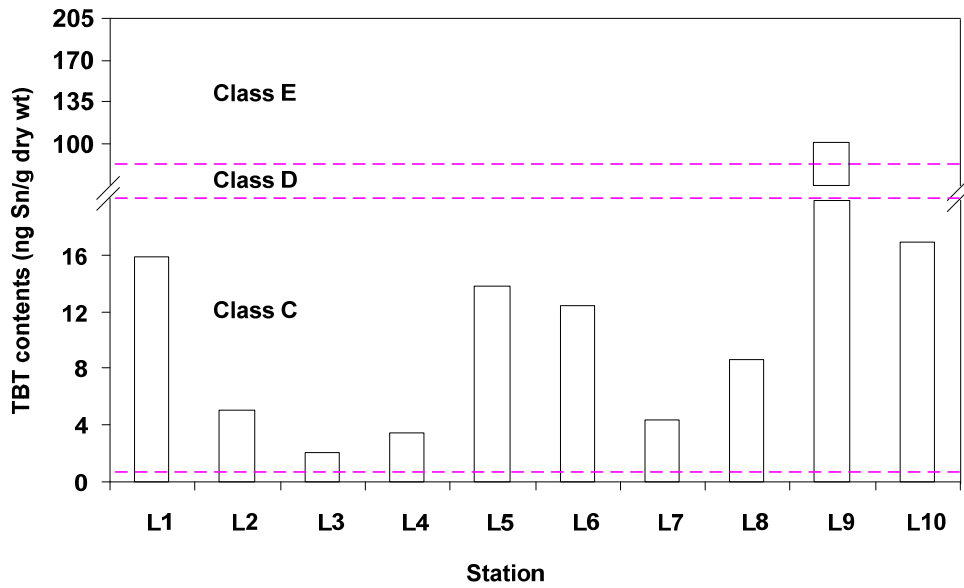


圖 5 愛河口沉積物 TBT 濃度之雄化等級評估(Class C: Level of response where females are not expected to be sterile, Class D: Sterile females are present in the population, but reproductively capable females remain, Class E: Populations are unable to reproduce; OSPAR, 2009)

#### 四、結 論

愛河口沉積物  $\Sigma$ BTs 濃度介於 10.4 - 153.9 ng Sn/g dry wt 之間，平均濃度為  $60.0 \pm 45.9$  ng Sn/g dry wt，其中 MBT 為主要物種( $57 \pm 29\%$ )。由沉積物丁基錫濃度分佈、組成及相關性分析顯示，愛河口沉積物 TBT 主要來自港區的船舶作業，而 DBT 及 MBT 主要可能來自上游河川廢污水之輸入。由於河口可能有 TBT 降解產物(如，MBT)的直接輸入，因此以 BDI 評估河口環境中 BTs 的降解時，需特別注意是否有 DBT 及 MBT 的來源輸入。以 USEPA 之毒性指引及 OSPAR 之 ACCI 評估愛河口區沉積物 TBT 對生物造成的影響效應顯示，除了最接近港區之 L9 測站外，愛河口沉積物 TBT 對生物造成的影響效應低，雌性生物預計不會有不孕的現象。



## 參考文獻

1. Alzieu, C., Tributyltin: Case Study of a Chronic Contaminant in the Coastal Environment. *Ocean & Coastal Management*, Vol. 40, pp. 23–36, 1998.
2. Blunden, S. J., Hobbs, L. A., & Smith, P. J., Then Environmental Chemistry of Organotin Compounds. In: H.J.M. Bowen (Ed.), *Environmental Chemistry*. London: The Royal Society of Chemistry. 1984.
3. Champ, M.A., A Review of Organotin Regulatory Strategies, Pending Actions, Related Costs and Benefits. *Science of the Total Environment*, Vol. 258, pp. 21–71, 2000.
4. Chen, C.W., Kao, C.M., Chen, C.F., & Dong, C.D., Distribution and Accumulation of Heavy Metals in the Sediments of Kaohsiung Harbor, Taiwan. *Chemosphere*, Vol. 66, pp. 1431–1440, 2007.
5. Chen, C.F., Kao, C.M., Dong, C.D., & Chen, C.W., Butyltin Contamination in Sediments and Seawater from Kaohsiung Harbor, Taiwan. *Environmental Monitoring and Assessment*, Vol. 169, pp. 75–87, 2010.
6. Yang P., Studies of the Distribution and Species of Organotin in Love River of Kaohsiung City. Institute of Marine Resources, National Sun Yat-sen University, Master Thesis, 2009.
7. Connelly, D.P., Readman, J.W., Knap, A.H., & Davies, J., Contamination of the Coastal Waters of Bermuda by Organotins and the Triazine Herbicide Irgarol 1051. *Marine Pollution Bulletin*, Vol. 42, pp. 409–414, 2001.
8. de Mora, S.J., Fowler, S.W., Cassi, R., Tolosa, I., Assessment of Organotin Contamination in Marine Sediments and Biota from the Gulf and Adjacent Region. *Marine Pollution Bulletin*, Vol. 46, pp. 401–409, 2003.
9. Díez, S., Ábalos, M., & Bayona, J.M., Organotin Contamination in Sediments from the Western Mediterranean Enclosures Following 10 years of TBT Regulation. *Water Research*, Vol. 36, pp. 905–918, 2002.
10. Díez, S., & Bayona, J.M., Butyltin Occurrence and Risk Assessment in the Sediments of the Iberian Peninsula. *Journal of Environmental Management*, Vol. 90, pp. S25–S30, 2009.
11. Dowson, P.H., Bubb, J.M., Williams, T.P., & Lester, J.N., Degradation of Tributyltin in Freshwater and Estuarine Marina Sediments. *Water Science and Technology*, Vol. 28, pp. 133–137, 1993.
12. Fent, K., Ecotoxicology of Organotin Compounds. *Critical Reviews in Toxicology*, Vol. 26, pp. 3–117, 1996.
13. Fernandez, M.A., Wagener, A.L.R., Limaverde, A.M., Scofield, A.L., Pinheiro,

- F.M., & Rodrigues, E., Imposed and Surface Sediment Speciation: A Combined Approach to Evaluate Organotin Contamination in Guanabara Bay, Rio de Janeiro, Brazil. *Marine Environmental Research*, Vol. 5, pp. 435–452, 2005.
14. Godoi, A.F.L., Montone, R.C., & Santiago-Silva, M., Determination of Butyltin Compounds in Surface Sediments from the São Paulo State Coast (Brazil) by Gas Chromatography–Pulsed Flame Photometric Detection. *Journal of Chromatography A*, Vol. 985, pp. 205–210, 2003.
15. Hoch, M., Organotin Compounds in Environment—An Overview. *Applied Geochemistry*, Vol. 16, pp. 719–743, 2001.
16. Michaud, M.H., & Pelletier, É., Sources and Fate of Butyltins in the St. Lawrence Estuary Ecosystem. *Chemosphere*, Vol. 64, pp. 1074–1082, 2006.
17. Mzoughi, N., Lespes, G., Bravo, M., Dachraoui, M., & Potin-Gautier, M., Organotin Speciation in Bizerte lagoon (Tunisia). *Science of the Total Environment*, Vol. 349, pp. 211–222, 2005.
18. Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD), Report on the Test Results of Endocrine Disrupting Effects of Tributyltin (TBT) on Fish (Draft). 2001.
19. Omae, I., Review Organotin Antifouling Paint and Their Alternatives. *Environment Biology and Toxicology*, Vol. 17, pp. 81–105, 2003.
20. Regoli, L., Chan, H.M., de Lafontaine, Y., & Mikaelian, I., Organotins in Zebra Mussels (*Dreissena polymorpha*) and Sediments of the Quebec City Harbor Area of the St. Lawrence River. *Aquatic Toxicology*, Vol. 53, pp. 115–126, 2001.
21. Stewart, C., & Thompson, A.J., Vertical Distribution of Butyltin Residues in Sediments of British Columbia harbors. *Environmental Technology*, Vol. 18, pp. 1195–1203, 1997.
22. Sun, H., Huang, G., & Dai, S., Adsorption Behavior and QSPR Studies of Organotin Compounds on Estuarine Sediment. *Chemosphere*, Vol. 33, pp. 831–838, 1996.
23. Ünlü, S., & Alpar, B., Distribution and Sources of Hydrocarbons in Surface Sediments of Gemlik Bay (Marmara Sea, Turkey). *Chemosphere*, Vol. 65, pp. 764–777, 2006.
24. Verslycke, T., Vethaak, A.D., Arijs, K., & Janssen, C.R., Flame Retardants, Surfactants and Organotins in Sediment and Mysid Shrimp of the Scheldt Estuary (The Netherlands). *Environmental Pollution*, Vol. 136, pp. 19–31, 2005.
25. Sousa, A., Laranjeiro, F., Takahashi, S., Tanabe, S., & Barroso, C.M., Imposed and Organotin Prevalence in a European Post-legislative Scenario: Temporal Trends from 2003 to 2008. *Chemosphere*, Vol. 77, pp. 566–573, 2009.