

Original breve

# Exposición a plaguicidas persistentes y no persistentes en población no expuesta laboralmente de la isla de Tenerife



Guillermo Burillo-Putze<sup>a,b,\*</sup>, Octavio P. Luzardo<sup>c</sup>, Carlos Pérez García<sup>d</sup>, Manuel Zumbado<sup>c</sup>, Carmen Yanes<sup>d</sup>, María del Mar Trujillo-Martín<sup>a,e</sup>, Carlos Boada Fernández del Campo<sup>a</sup> y Luis D. Boada<sup>c</sup>

<sup>a</sup> Grupo de Investigación en Toxicología Clínica, Hospital Universitario de Canarias, Santa Cruz de Tenerife, España

<sup>b</sup> Facultad de Ciencias de la Salud, Universidad Europea de Canarias, La Orotava, Tenerife, España

<sup>c</sup> Unidad de Toxicología, Departamento de Ciencias Clínicas, Universidad de Las Palmas de Gran Canaria; Instituto Canario de Investigación del Cáncer (ICIC), CIBER de Fisiopatología de la Obesidad y Nutrición (CIBEROBN), Las Palmas de Gran Canaria, España

<sup>d</sup> FORAGRO IRIS, S.L., La Esperanza, Santa Cruz de Tenerife, España

<sup>e</sup> Fundación Canaria de Investigación y Salud (FUNCIS), Santa Cruz de Tenerife, España

## INFORMACIÓN DEL ARTÍCULO

### Historia del artículo:

Recibido el 13 de septiembre de 2013

Aceptado el 15 de noviembre de 2013

On-line el 18 de febrero de 2014

### Palabras clave:

Residuos de plaguicidas  
Plaguicidas no persistentes  
Organofosforados  
Piretroides  
Plaguicidas persistentes  
Plaguicidas organoclorados

### Keywords:

Pesticide residues  
Non-persistent pesticides  
Organophosphates  
Pyrethroids  
Persistent pesticides  
Organochlorine pesticides

## R E S U M E N

**Objetivo:** La exposición crónica a plaguicidas no persistentes se ha relacionado con diversas patologías crónicas; sin embargo, pocos estudios han evaluado la exposición a plaguicidas no persistentes en población española.

**Métodos:** En 2007 se determinó la presencia de 24 plaguicidas mediante cromatografía de gases/espectrometría de masas en 363 muestras de suero de adultos no laboralmente expuestos de Tenerife.

**Resultados:** El 99,45% presentaron residuos ( $6 \pm 2$  plaguicidas/muestra). Los plaguicidas más frecuentes fueron piretroides (96,1%), organofosforados (93,9%) y organoclorados (92,3%). En el 81% de los sujetos se detectaron bifentrina y malatión, considerados neurotóxicos, y en el 50% hexaclorobenceno, DDT y buprofezina. El malatión, un «obesógeno ambiental», se detectó en el 82%, y plaguicidas considerados «disruptores endocrinos» en el 97,2% de las muestras.

**Conclusiones:** Existe una exposición inadvertida a plaguicidas no persistentes que puede afectar a la salud de nuestra población, por lo que se hace necesario incluirlos en los estudios de monitorización.

© 2013 SESPAS. Publicado por Elsevier España, S.L. Todos los derechos reservados.

## Exposure to persistent and non-persistent pesticides in a non-occupationally exposed population in Tenerife Island (Spain)

### A B S T R A C T

**Objective:** Chronic exposure to non-persistent pesticides (NPPs) is of concern because these substances have been associated with chronic diseases. However, few studies have addressed chronic exposure to NPPs in Spanish populations.

**Methods:** We determined the presence of 24 pesticide residues by gas chromatography/mass spectrometry in 363 serum samples obtained from non-occupationally exposed adults from Tenerife island in 2007.

**Results:** Most of the samples (99.45%) showed detectable residues ( $6 \pm 2$  pesticides per sample). The most frequently detected pesticides were pyrethrins (96.1%), organophosphates (93.9%) and organochlorines (92.3%). The neurotoxicants bifenthrin and malathion were detected in 81% of the samples and hexachlorobenzene DDT and buprofezin in more than 50%. Malathion, an “environmental obesogen”, was detected in 82%, and “endocrine disrupter” pesticides were present in 97.2% of the samples.

**Conclusions:** Because there is clear, continuous and inadvertent exposure to NPPs that may be inducing adverse effects on human health, NPPs should be included in biomonitoring studies.

© 2013 SESPAS. Published by Elsevier España, S.L. All rights reserved.

## Introducción

A pesar de que la toxicidad aguda por plaguicidas es bien conocida<sup>1</sup>, poco se sabe de la potencial toxicidad crónica causada por la exposición continua a residuos de ellos<sup>2</sup>.

La exposición a residuos de plaguicidas persistentes y sus consecuencias han sido extensamente estudiadas en diferentes poblaciones, incluyendo la española<sup>2–8</sup>. Por el contrario, apenas se ha evaluado en el caso de los plaguicidas no persistentes, al considerarse compuestos químicamente inestables que no se acumulan en el organismo. Sin embargo, su potencial asociación con patologías endocrinas y del desarrollo o neurocognitivas, y sus efectos carcinógenos y mutágenos<sup>2,5–9</sup>, hacen necesario conocer los grados de exposición a residuos de plaguicidas no persistentes en nuestra población.

\* Autor para correspondencia.

Correos electrónicos: gburillo@telefonica.net, gburput@gobiernodecanarias.org (G. Burillo-Putze).

**Tabla 1**  
Frecuencia de detección de los plaguicidas incluidos en este estudio, indicando el grupo a que pertenecen y su uso más frecuente, así como su grado de persistencia en el medio ambiente

Grupo	Plaguicida	Frecuencia de detección N (%)	Uso	Persistencia medioambiental	
<i>Piretroides</i>		349 (96,1)			
	Bifentrina	319 (87,8)	Insecticida/acaricida	No	
	Cipermetrina	156 (42,9)	Insecticida	No	
	Permetrina	134 (36,9)	Insecticida	No	
	Fluvalinato	35 (9,5)	Insecticida	No	
<i>Organofosforados</i>		341 (93,9)			
	Malatión	296 (81,5)	Insecticida/acaricida	No	
	Buprofezina	189 (52,0)	Insecticida	No	
	Diazinón	31 (8,5)	Insecticida	No	
	Fentión	7 (1,9)	Insecticida	No	
Clorpirifós-metil	4 (1,1)	Insecticida	No		
<i>Organoclorados</i>		335 (92,3)			
	o,p'-DDT	205 (56,4)	Insecticida	Sí	
	Hexaclorobenceno	202 (55,6)	Fungicida	Sí	
	p,p'-DDT	173 (47,6)	Insecticida	Sí	
	Lindano	111 (30,5)	Insecticida	Sí	
	Endosulfán II	23 (6,3)	Insecticida/acaricida	Sí	
	Endosulfán I	2 (0,5)	Metabolito	Sí	
	Endosulfán sulfato	2 (0,5)	Insecticida/acaricida	Sí	
<i>Otros</i>	Alaninopirimidina	Ciprodinil	8 (2,2)	Fungicida	No
	Estrobilurina	Kresoxim-metil	11 (3,0)	Fungicida	No
		Azoxistrobín	0 (0,0)	Fungicida	No
	Fenilamida	Benalaxil	137 (37,7)	Fungicida	No
	Piridazinona	Piridabén	75 (20,6)	Acaricida	No
	Sulfona	Tetradifón	4 (1,1)	Acaricida	No
	Tiadiazol	Etridiazol	57 (15,7)	Fungicida	No
	Triazol	Triadimefón	3 (0,8)	Fungicida	No

La población de las Islas Canarias presenta unos altos valores de contaminación por plaguicidas persistentes<sup>4,10</sup>. Sin embargo, no existe información sobre la contaminación por plaguicidas no persistentes empleados recientemente en el archipiélago. Por ello se planteó realizar este estudio en Tenerife, en 2007, con el fin de determinar la presencia de residuos de plaguicidas no persistentes en población no expuesta laboralmente.

## Métodos

Estudio transversal prospectivo con muestras de suero de pacientes que acudieron al Servicio de Urgencias del Hospital Universitario de Canarias, Tenerife, a quienes se realizó una determinación de la troponina I (el suero sobrante se congeló). La recogida de muestras se realizó en mayo y junio de 2007. El tamaño muestral se calculó basándose en una población de referencia de 360.000 habitantes y 64.000 urgencias/año, para una potencia del 80% y un error tipo I del 5%. Los criterios de exclusión fueron incapacidad o negativa para firmar el consentimiento informado, y exposición laboral (agricultores) o accidental (intoxicaciones agudas) a plaguicidas.

Se analizó la presencia de los 24 plaguicidas más empleados en nuestro medio en la actualidad o en el pasado: siete organoclorados (DDT, isómeros *o,p'*- y *p,p'*-; endosulfán, isómeros I y II, y su metabolito endosulfán sulfato; hexaclorobenceno y  $\gamma$ -hexaclorociclohexano o lindano), cinco organofosforados (clorpirifós-metil, buprofezina, diazinón, fentión y malatión), cuatro piretroides (bifentrina, fluvalinato, cipermetrina y permetrina), una piridazinona (piridabén), una sulfona (tetradifón), dos estrobilurinas (azoxistrobin y kresoxim metil); una fenilamida (benalaxil); una alaninopirimidina (ciprodinil); un tiadiazol (etridiazol) y un triazol (triadimefón).

La metodología analítica empleada ya ha sido publicada previamente<sup>11</sup>. Se realizó una microextracción en fase sólida

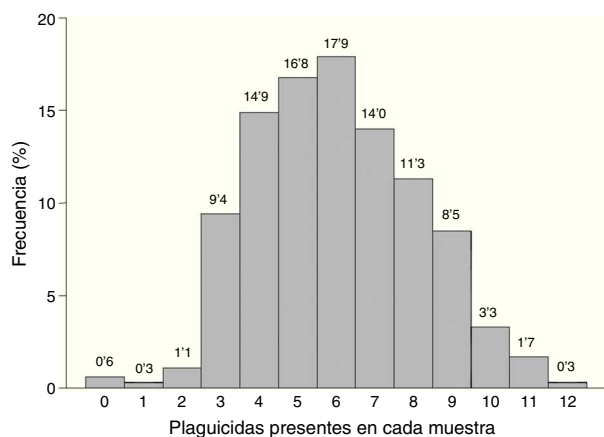
de los analitos y se identificaron mediante cromatografía de gases/espectrometría de masas (VARIAN SATURN 2200), empleando la librería NIST 11/2008. En el presente trabajo sólo se ofrecen los resultados cualitativos (detección/no detección), quedando establecido el límite de detección para el método en 1,5 ng/ml. Las comparaciones de proporciones se llevaron a cabo con las pruebas de ji al cuadrado o exacta de Fisher, según procediera. Las comparaciones entre pares de grupos independientes se realizaron con la prueba de Mann-Whitney. El estudio fue aprobado por el Comité Ético de Investigación Clínica del hospital.

## Resultados

Se incluyeron en el estudio 363 sujetos adultos. La edad media fue de  $67 \pm 17$  años, y el 52% eran hombres. Se detectaron residuos en 361 personas (99,4%), con una media de  $6 \pm 2$  plaguicidas por muestra. En un caso (0,3%) se detectaron 12 plaguicidas, mientras que el 75% de los sujetos presentaron entre cuatro y ocho plaguicidas (fig. 1).

De los 24 plaguicidas evaluados, 12 se identificaron en más del 10% de la población estudiada. La bifentrina y el malatión fueron detectados en más del 80% de los sujetos, y otros tres (hexaclorobenceno, DDT y buprofezina) en más del 50%. Sólo un plaguicida, el azoxistrobín, no fue detectado (tabla 1). No se evidenciaron diferencias en la presencia de residuos de plaguicidas persistentes y no persistentes en cuanto a edad, sexo ni municipio de residencia.

El grupo de mayor presencia (96,1%) fue el de los piretroides, seguido de los organofosforados (93,9%). Los plaguicidas organoclorados estaban presentes en el 92,3% de las muestras, y destaca que el 88,2% de los sujetos presentaron residuos de compuestos organoclorados incluidos en la «docena sucia» del Convenio de Estocolmo (DDT,  $\gamma$ -hexaclorociclohexano o lindano y hexaclorobenceno)<sup>12</sup>, mientras que los organoclorados no pertenecientes a la «docena sucia» (endosulfán y endosulfán sulfato) se detectaron sólo en el



**Figura 1.** Número de plaguicidas por muestra en la población estudiada.

7,2% de las muestras. El DDT se detectó en el 73% los sujetos. Es relevante el hecho de que más del 97% de los sujetos estudiados presentaban valores detectables de compuestos con conocida capacidad de producir disrupción endocrina (DDT, diazinón, hexaclorobenceno, lindano y malatión).

## Discusión

La mayoría de los sujetos estudiados presentaban residuos de plaguicidas en suero. Respecto a los plaguicidas persistentes, confirmamos que la población canaria presenta valores detectables de DDT, a pesar de su prohibición en España a finales de 1970, con cifras similares a las descritas anteriormente para la población canaria adulta<sup>4</sup>. Es de señalar que, a pesar de que actualmente todos los compuestos organoclorados están prohibidos en la Unión Europea, de los 12 plaguicidas más frecuentes en nuestra muestra cuatro son compuestos organoclorados. Ello puede deberse a la presencia en el mercado canario de alimentos procedentes de países donde estos productos aún se utilizan, a una contaminación del medio ambiente isleño (suelos, aguas) o a la llegada por vía atmosférica desde África, donde siguen empleándose productos como el DDT<sup>3,4,10</sup>.

Respecto a los plaguicidas no persistentes, nuestros resultados coinciden con los de Neta et al. de 2010<sup>13</sup>, que detectaron en sangre de cordón umbilical de población norteamericana carbamatos, piretroides y organofosforados. En nuestra serie, dos organofosforados (buprofezina y malatión) fueron de los plaguicidas más frecuentemente identificados, a pesar de su escasa persistencia y estabilidad, lo que indica un continuo aporte de ellos (sobre todo a través de la dieta)<sup>13</sup>. Diversos estudios señalan la capacidad de los organofosforados y de los piretroides de inducir neurotoxicidad tras exposiciones crónicas a bajas concentraciones, y se han relacionado con el desarrollo de enfermedad de Parkinson<sup>5,9</sup> y de trastornos neurocognitivos, en especial en los niños<sup>7-9</sup>. Otros, como el malatión, detectado en más del 80% de nuestras muestras, son considerados «obesógenos ambientales», esto es, contaminantes ambientales capaces de producir alteraciones metabólicas y predisposición a la ganancia de peso<sup>6</sup>.

La frecuente detección de fungicidas, en particular de benalaxil (38%) y de etridiazol (16%), aun siendo plaguicidas de escasa persistencia medioambiental, podría deberse a su frecuente hallazgo como residuos en alimentos de gran consumo, como frutas, vino o agua. Aunque de escasa toxicidad aguda, se ha demostrado su efecto carcinógeno y mutágeno en animales<sup>14,15</sup>.

Puesto que la mayoría de la población estudiada presentaba residuos de más de un plaguicida, el problema radica en evaluar el efecto de las mezclas, ya que puede ser muy diferente del efecto tóxico inducido por cada plaguicida de manera aislada<sup>16</sup>.

Nuestro trabajo presenta algunas limitaciones: una es el sesgo de selección, al utilizar pacientes de urgencias hospitalarias con motivos de consulta concretos; y otra es que, al tratarse de un estudio transversal, nuestros resultados podrían deberse a una exposición concreta y no a una exposición mantenida en el tiempo. Además, no se han tenido en cuenta los hábitos dietéticos de los sujetos estudiados.

En todo caso, la exposición continuada, inadvertida y combinada a residuos de plaguicidas parece ser una realidad; no en vano diferentes agencias internacionales han establecido límites máximos de residuos plaguicidas en los alimentos<sup>15</sup>. Por todo ello, los estudios de monitorización deben incluir también los plaguicidas no persistentes, ya que los efectos adversos originados por esta exposición crónica han de ser estudiados en profundidad, teniendo en cuenta las mezclas de plaguicidas encontradas en cada población. Ante estos preocupantes resultados, se hacen imprescindibles nuevos estudios que evalúen cuantitativamente y cualitativamente el grado de contaminación por plaguicidas persistentes y no persistentes de la población española.

### ¿Qué se sabe sobre el tema?

Apenas existe información sobre la exposición crónica a plaguicidas no persistentes en la población española. De estas sustancias, se van conociendo cada día más datos sobre sus potenciales efectos sobre la salud, fundamentalmente de tipo carcinógeno, mutágeno, neurotóxico o de disrupción endocrina.

### ¿Qué añade el estudio realizado a la literatura?

Se constata la presencia de plaguicidas organoclorados en población adulta, sustancias prohibidas hace más de 30 años, y además la mayoría de los individuos estudiados presentaban residuos de insecticidas piretroides y organofosforados. Prácticamente en todos se detectaron productos con capacidad de disrupción endocrina. Estos hallazgos indican la necesidad de considerar los insecticidas no persistentes dentro de los sistemas de vigilancia biológica ambiental.

### Editora responsable del artículo

Carme Borrell.

### Contribuciones de autoría

G. Burillo-Putze, C. Pérez García, C. Yanes, O.P. Luzardo, M. Zumbado y L.D. Boada participaron en la concepción y el diseño del trabajo. G. Burillo-Putze, C. Boada Fernández del Campo, C. Pérez García y M.M. Trujillo-Martín participaron en la recogida de muestras. C. Pérez García, C. Yanes, M.M. Trujillo-Martín, O.P. Luzardo, M. Zumbado y L.D. Boada participaron en el análisis de las muestras. Todos los autores han participado en el análisis de los datos y han contribuido a la redacción del manuscrito de forma sustancial, revisando su contenido previamente al envío a la revista.

### Financiación

Estudio financiado por la Fundación Canaria de Investigación y Salud (FUNCIS) mediante los Proyectos 36/2003 y 33/2006.

### Conflictos de intereses

Ninguno.

## Bibliografía

1. Burillo Putze G, Mesa Fumero J. Toxicología clínica, urgencias y urgencias pediátricas. *Emergencias.* 2012;24:346–7.
2. Mostafalou S, Abdollahi M. Pesticides and human chronic diseases: evidences, mechanisms, and perspectives. *Toxicol Appl Pharmacol.* 2013;268:157–77.
3. Porta M, López T, Gasull M, et al. Distribution of blood concentrations of persistent organic pollutants in a representative sample of the population of Barcelona in 2006, and comparison with levels in 2002. *Sci Total Environ.* 2012;423:151–61.
4. Zumbado M, Goethals M, Álvarez-León EE, et al. Inadvertent exposure to organochlorine pesticides DDT and derivatives in people from the Canary Islands (Spain). *Sci Total Environ.* 2005;339:49–62.
5. Moretto A, Colosio C. The role of pesticide exposure in the genesis of Parkinson's disease: epidemiological studies and experimental data. *Toxicology.* 2001;307:24–34.
6. Holtcamp W. Obesogens: an environmental link to obesity. *Environ Health Perspect.* 2012;120:a62–8.
7. Polńska K, Jurewicz J, Hanke W. Review of current evidence on the impact of pesticides, polychlorinated biphenyls and selected metals on attention/deficit hyperactivity disorder in children. *Int J Occup Med Environ Health.* 2013;26:16–38.
8. Roberts JR, Karr CJ, and Council on Environmental Health 2012. Pesticide exposure in children. *Pediatrics.* 2012;130e:1765–88.
9. Elwan MA, Richardson JR, Guillot TS, et al. Pyrethroid pesticide-induced alteration in dopamine transporter function. *Toxicol Appl Pharmacol.* 2006;211:188–97.
10. Luzardo OP, Goethals M, Zumbado M, et al. Increasing serum levels of non-DDT-derivative organochlorine pesticides in the younger population of the Canary Islands (Spain). *Sci Total Environ.* 2006;367:129–38.
11. Kasiotis KM, Souki H, Tsakirakis AN, et al. Headspace solid phase micro extraction gas chromatographic determination of fenthion in human serum. *Int J Mol Sci.* 2008;9:906–13.
12. United Nations Environmental Programme. 2001. Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants. (Consultado el 18/10/2013.) Disponible en: <http://www.pops.int/documents/context/context.en.pdf>
13. Neta G, Goldman L, Barr D, et al. Distribution and determinants of pesticide mixtures in cord serum using principal component analysis. *Environ Sci Technol.* 2010;44:5641–8.
14. Centers for Disease Control and Prevention (CDC). Fourth National Report on Human Exposure to Environmental Chemicals. Updated tables. September 2012. (Consultado el 17/10/2013.) Disponible en: <http://www.cdc.gov/exposurereport/.12/28/12>
15. European Commission, Scientific Committee on Food (SCF), 2000. A maximum residue limit (MRL) of 0.001 mg/kg for pesticides in foods intended for infants and young children. (Consultado el 07/07/2013.) Disponible en: <http://europa.eu.int/comm/food/fs/sc/scf/out90.en.pdf>
16. WHO (World Health Organization). 2009. Assessment of combined exposures to multiple chemicals: report of a WHO/IPCS International Workshop on Aggregate/Cumulative Risk Assessment. (Consultado el 22/07/2013.) Disponible en: [http://www.oecd.org/env/ehs/testing/serieson\\_testingandassessmentworkshopreportsmeetingreports.htm](http://www.oecd.org/env/ehs/testing/serieson_testingandassessmentworkshopreportsmeetingreports.htm)