

Exponering för kemiska bekämpningsmedel hos landsbygdsbefolkning i Skåne 2010-11.

Rapport till Naturvårdsverket 2011

(överenskommelse nr 215 0907, dnr 235-1472-09Mm)

**Margareta Littorin, Åsa Amilon, Margareta Maxe, Anna Axmon, BAG
Jönsson, Christian Lindh**

Avdelningen för Arbets- och miljömedicin, Lunds Universitet och
Universitetssjukhuset i Lund

Sammanfattning

Såväl allmänbefolkning som vissa yrkesarbetande exponeras för kemiska bekämpningsmedel (BM), allmänbefolkning främst genom födan, särskilt färska frukter och grönsaker. Analys av exponeringsbiomarkörer för BM i t ex urin ger ett tillförlitligt mått på hela kroppsbelastningen och utgör ett gott komplement till andra sätt att uppskatta befolkningens exponering. Arbets- och miljömedicin i Lund har med Naturvårdsverkets stöd tidigare med hjälp av LC/MS/MS undersökt halter av BM i dygns- alternativt morgonurin hos befolkning i Skåne. Nu har exponeringen undersökts också hos 79 boende på landsbygden, som lämnat ett morgonurinprov. En mindre grupp lämnade ytterligare urinprover vid tillfällen när BM antogs ha spridits på närliggande åkrar. Deltagarna besvarade också enkäter med frågor om matvanor och livsstil.

De BM som studerades var: 2,4-diklorfenoxiättiksyra (2,4-D), 3,4-dikloranilin (3,4-DKA, metabolit till anilider), 3,5-dikloranilin (3,5-DKA, metabolit till dikarboximider), etylenthioourea (ETU, metabolit till etylenbisdithiokarbamater), 4-klor-2-metylfenoxiättiksyra (MCPA), hydroxi-MCPA (HMCPA, metabolit till MCPA), 2,4,5-triklorfenoxiättiksyra (2,4,5-T), 3-fenoxibensylsyra (3-PBA, metabolit till pyretroider) samt 2,4,6-triklorfenoxiättiksyra (2,4,6-T, metabolit till prokloraz) och O,O dietyl-O-(3,5,6-triklor-2-pyridyl)thiofosfat (=triklorpyridinol=TCP, metabolit till klorpyrifos), klormekvatklorid (CCC) och mepikvat. Analysmetodernas detektionsgränser var mellan 0,1 och 1,0 ng/mL. CCC och mepikvat används i Sverige vid odling av råg och prydnadsväxter, i andra länder också till andra produkter.

Nästan alla deltagare hade egen brunn och använde brunnsvattnet till dricksvatten och bostäder var mestadels belägna nära åkermark. 13% använde v b BM i yrket och 21% bejakade hemanvändning. Alla biomarkörerna kunde påvisas men för några medel i något olika frekvens jämfört med våra tidigare undersökta urbana grupper: Något lägre andel hade rester av de fungicida medlen 3,5-DKA och ETU men något högre andel av insekticidmetaboliten 3-PBA och herbiciden MCPA. Bland de nu undersökta boende på landsbygden fanns indikationer på små skillnader i urinhalter av några BM som relaterade till ålder, vinkonsumtion och kanske till boende nära besprutade åkrar.

Retarderingsmedlen CCC och mepikvat undersöktes även i 100 tidigare insamlade prover från en stadsbefolkning. CCC fanns hos samtliga undersökta från landsbygd och stad och mepikvat hos nästan alla.

Bakgrund

Användning av kemiska bekämpningsmedel (BM) är i ett globalt perspektiv förenad med betydande risker för hälsa och miljö (Eddleston et al. 2002; Smith et al. 2008). Beträffande långsiktiga hälsoeffekter finns farhågor om neutotoxiska, hormonstörande, genotoxiska och reproduktionstoxiska effekter. Också i Sverige exponeras både allmänbefolkning och yrkesarbetande för BM. Rester av BM återfinns i vatten, mark och luft (Törnquist et al. 2002; Kreuger et al. 2004 och 2009) och i livsmedel. På senare år finns en tendens till ökning av resthalterna av BM i livsmedel och dessutom till fynd av två eller flera BM per enskild livsmedelsprodukt (Andersson et al. 2008; Andersson och Jansson 2008). Vid kontroll år 2009 påvisades rester i 59% av stickprover tagna i frukt och grönt (Jansson et al. 2011).

På Arbets- och miljömedicin i Lund (AMM) har vi valt att övervaka BM-exponering genom analys av resthalter av BM i biologiska prov (biomarkörer), som har visats vara överlägsna andra metoder att klassificera exponering för BM i allmänbefolkningen liksom bland yrkesexponerade (Kurttio och Savolainen 1990; Hill et al. 1995; Heudorf och Angerer 2001a och b; MacIntosh et al. 2001; Hardt och Angerer 2003; Arbuckle et al. 2004 och 2006; Arbuckle och Ritter 2005; Heudorf et al. 2006; Perry et al. 2006; Alexander et al. 2007; Barr et al. 2010). Det är dock ett fåtal typer av medel som studerats på detta vis bl a därför att analysmetoder inte finns eller därför att tillgängliga metoder varit alltför okända (Maroni et al. 2000; Barr och Needham 2002). Inte minst är exponeringen för fungicider otillräckligt undersökt men exponering för dithiokarbamater och dikarboximider har presenterats i några publikationer (Colosio et al. 2002 och 2006; Turci et al. 2006; Fustioni et al. 2008).

Vi har i en tidigare rapport till Naturvårdsverket redovisat exponeringen för flera moderna växtskyddsmedel i en sydsvensk stadsbefolkning, en grupp vegetarianer och en grupp nyanlända invandrare genom bestämning av urinhalter av BM (Littorin et al. 2009). Exponeringen i allmänbefolkningen sker sannolikt huvudsakligen via mat och dryck men det finns andra tänkbara källor (Lu et al. 2001 och 2006; Saieva et al. 2004). I föreliggande rapport belyses exponeringen för boende på landsbygd i Skåne. Landsbygdsbefolkning, inte minst barn, kan också exponeras för BM genom bostadens läge i förhållande till besprutade åkrar, användning av vatten från kontaminerad egen brunn, och genom yrkesanvändning, där såväl en direkt (aktiva inom lantbruk och trädgård) som en indirekt (familjemedlemmar, grannar) exponering är möjlig (Heudorf et al. 2004; Weppner et al. 2006; Couture et al. 2009; Lee et al. 2011; Rodriguez et al. 2011; Wu et al. 2011). Det är känt att enskild vattenförsörjning – egen brunn - är den dricksvattenkälla som i vårt land är mest kontaminerad med BM (Maxe 2007; Stigsdotter 2008; Christiansson 2009). Det fanns 2007 1,2 miljoner

personer som nyttjade vatten från egen brunn (Maxe 2007). Lika många bedömes använda sådant vatten på fritiden.

I tidigare rapport tillämpades de nya metoder som tagits fram på AMM. Ytterligare en metod, för retarderingsmedlen klormekvatklorid (CCC) och mepikvat, har nu etablerats och tillämpas i undersökningen av de boende på landsbygden och dessutom i en av de tidigare undersökta stadsboende grupperna (Lindh et al. 2011). Retarderingsmedel används i Sverige vid odling av råg, gräsfrö för utsäde samt i prydnadsväxtodling, i andra länder får medlen användas också i odling av frukt och grönsaker. Livsmedelsverket har funnit rester av retarderingsmedlen i spannmål som råg och vete, päron, vindruvor och morötter (Anders Jansson, personligt meddelande).

Syftet med den studie som redovisas här är att i någon mån spegla exponering för BM i landsbygdsbefolkning, bl a med avseende på bostadens läge i förhållande till odlad mark under sprutsäsong och med hänsyn till ev. användning av eget brunnsvatten samt i relation till exponeringen i stadsbefolkning.

Karakteristika för de undersökta grupperna

En grupp (A) på 29 personer rekryterades ur bekantskapskretsen och genom kontakt med ett företag beläget på landsbygden i sydöstra Skåne (tabell 1). Deltagarna undersöktes under vår-sommar (april-juni) 2010.

Grupp B (N=50; tabell 1) rekryterades från landsbygden i mellersta Skånes västra del via Miljöförvaltningen i Landskrona, som erbjöd fastighetsägare med egen brunn en undersökning av brunnsvattnet. Denna grupp undersöktes höst-vinter (oktober-februari) 2010-11.

Metoder.

Enkätundersökning.

Information om matvanor och översiktligt om livsstil och hälsa inhämtades genom enkäter som deltagarna själva fyllde i. Enkäten som användes var samma enkät som vi tidigare använt (Littorin et al. 2009). Dessutom tillfrågades deltagarna nu om bostadens läge i förhållande till närliggande åkrar eller trädgårdsföretag/växthus samt om förekomst och typ av egen brunn och om hur brunnsvattnet användes. Deltagarna fyllde också i en detaljerad matdagbok under veckan före de basala urinproven. Alla besvarade inte alla frågor. En person har inte lämnat in enkät och matdagbok.

Exponeringsbiomarkörer

Urinprov från grupp A insamlades under vår-sommar. Alla lämnade ett morgonurinprov, som skulle avsluta matdagbokveckan. Enligt våra tidigare erfarenheter speglas exponeringen för de BM vi analyserar tillräckligt väl

av ett morgonurinprov (Littorin et al. 2009). Provinsamlingen i grupp B skedde under höst-vinter då morgonurinprov samlades.

Exponeringsbiomarkörerna enligt faktaruta nedan bestämdes i samtliga urinprov (jfr tabell 2). Med 'exponeringsbiomarkör' avses urinhalt av BM självt eller dess metabolit. Vätskekromatografi-tandem masspektrometri (LC/MS/MS)-metoder med isotopmärkta interna standarder har utvecklats och validerats vid AMM för 2,4-D, MCPA, HMCPA, 2,4,5-T, 3,4- och 3,5-DKA, ETU, 3-PBA, klormekvatklorid (CCC) och mepikvat.

Analysmetoderna och validering med humanexperiment finns publicerade i Lindh et al. 2007, 2008a och b och 2011 samt Elfman et al. 2009. Metoden i Lindh et al. 2008a har efter modifiering använts också för 2,4,6-T och TCP. Detektionsgränserna för de enskilda substanserna var mellan 0,1 och 1,0 ng/mL.

Ett antal (N=20) av deltagarna i grupp A lämnade utöver de basala urinproven också prov vid flera tidpunkter under andra dagar (jfr tabell 6). Dessa tidpunkter avsågs spegla tillfällena när åkrarna intill deltagarnas bostad nyligen besprutats, enligt uppgift med MCPA eller CCC.

Biomarkörer och deras detektionsgränser (ng/ml):

CCC (klormekvatklorid)	0,1
2,4-D (2,4-diklorfenoxiättiksyra)	0,05
3,4-DKA (3,4-dikloranilin; metabolit till anilider)	0,1
3,5-DKA (3,5-dikloranilin; metabolit till dikarboximider som vinklozolin, iprodion och procymidon)	0,1
ETU (etylenthiourea; metabolit till etylenbisdithiokarbamater som mankozeb)	0,1
MCPA (4-klor-2-metylfenoxiättiksyra)	0,1
HMCPA (hydroxi-MCPA; metabolit till MCPA)	0,4
Mq (mepikvat)	0,3
2,4,5-T (2,4,5-triklorfenoxiättiksyra)	0,1
3-PBA (3-fenoxibensylsyra, metabolit till flera pyretroider)	0,2
2,4,6-T (2,4,6-triklorfenoxiättiksyra; metabolit till prokloraz)	0,1
TCP (O,O dietyl-O-(3,5,6-triklor-2-pyridyl)thiofosfat = triklorpyridinol; metabolit till klorpyrifos)	1,0

Behandling av data.

Biomarkörerna mäts i ng/mL men i redovisningen här används de densitetsjusterade halterna. Värden under detektionsgränsen (LOD) för respektive metod har åsatts halva detektionsvärdet vid kvantitativa

beräkningar. Beskrivningar/analyser i denna rapport har gjorts i statistikprogrammet SPSS v. 18.0 för Windows. Om inte annat utsägs, är de halter som presenteras de basala halter som uppmättes i morgonurinprov insamlade i anslutning till matdagböckerna.

Resultat och Diskussion

Undersökta grupper boende på landsbygden

De flesta deltagarna, 66%, var män (tabell 1). Grupp B var generellt äldre än grupp A. I grupp A arbetade 11 personer i gröna sektorn med olika uppgifter inom lant- och skogsbruk, praktiskt eller administrativt. I grupp B fanns 12 personer i gröna arbeten. Övriga deltagare arbetade i hemmet, hade yrkesarbete på annat håll än där bostaden fanns och 27 hade uppnått pensionsåldern 65 år.

I grupp A uppgav tre personer att de använde BM i sina arbeten men endast en av dem utförde bekämpning med kemiska medel under den tid studien pågick (tabell 1). I grupp B uppgav sju personer att arbete med BM kunde förekomma i deras aktuella anställningar, dock inte under pågående höst-vinter. Bland alla 79 deltagare uppgav alltså 13% att användning av BM förekom i arbetet, medan en större andel, 21%, hade använt BM för hemmabruk, dock inte under den period när undersökningen utfördes. Det var glyfosat (t ex Roundup) som nämndes kunna förekomma vid hemanvändning.

96% av alla deltagare uppgav att den egna bostaden var belägen nära åkermark (tabell 1). "Nära" angavs till "0 meter", "några meter" upp till 50 meter. Som högst nämndes 400 meter, av en person. Åtta av deltagarna med närhet till åker bodde också nära trädgårds- och växthusodling.

I grupp A hade 82% av deltagarna egen brunn (tabell 1). Grupp B bestod av fastighetsägare som alla hade egen brunn. Av de som besvarade frågan, var det 96% i båda grupperna som använde brunnsvattnet till dricksvatten. I grupp A var det också 96% som använde brunnsvattnet till andra hushållsändamål, i grupp B 100%.

Exponeringsbiomarkörer - basundersökning

Andelen av de undersökta som inte hade detekterbara halter samt uppmätta halter i morgonurin, justerade för urinens densitet, visas i tabell 2. CCC fanns hos alla och mepikvat hos 90%, 2,4-D hos 92%, 2,4,5-T inte hos någon och övriga BM hos mellan 14 och 76% av alla. De båda fenoxisyrorna 2,4-D och 2,4,5-T ingick bl a i Agent Orange och i Hormoslyr. 2,4,5-T är förbjudet i de flesta länder sedan många år. 2,4-D har varit tillåtet inom och utanför EU men inte i Sverige mellan 1982 och juni 2011, då en 2,4-D-ester registrerades för användning här. Fenoxisyrans MCPA som efter glyfosat är det mest förekommande BM i svenskt lantbruk påvisades hos 13 av 79 (16%), en begränsad andel, som dock är

större än andelen bland stadsboende (och invandrare; tabell 2 och 3). Likaså hade en högre andel boende på landet förekomst av 3-PBA, biomarkör för pyretroider, jämfört med stadsboende, ett tecken på en större exponering för insektsmedel. I tabell 3 noteras vidare, att alla är exponerade för CCC. 2,4,6-T (och TCP) påvisades hos de landsbygdsboende men 25 invandrare; undersökta 2008-2009, hade dessa biomarkörer betydligt oftare.

Exponeringsbiomarkörer och årstid

I våra tidigare undersökningar av stadsbefolkningar sågs ett årstidsberoende för en del biomarkörer. Grupp A och grupp B bland de landsbygdsboende undersöktes vid olika årstider. Vissa biomarkörer skiljde något mellan grupperna: ETU och HMCPA var litet högre i grupp A, 2,4,6-T och 3,4-DKA i grupp B (ej i tabell). Skillnaderna baseras dock på få personer och förutom årstid finns också andra systematiska skillnader mellan grupperna, såsom rekryteringssätt och geografisk hemvist. De diskreta skillnaderna mellan land och stad kan därför inte enkelt förklaras med faktorer kopplade endast till årstid. En andel av de landsbygdsboende kan dock ha matvanor mera associerade till hemodlade produkter och mindre till importerade varor än befolkningar i städer..

Exponeringsbiomarkörer hos kvinnor och män

Det fanns inga påtagliga skillnader i BM-biomarkörerna mellan kvinnor och män. I våra tidigare undersökningar i stadsbefolkning hade kvinnor litet högre halter av en del BM, män av andra. Åter kan diskrepansen mellan stad och land kanske bero på mera stabila matvanor hos kvinnor och män på landsbygden med "hemmatillverkade" livsmedel hela året hos åtminstone en andel av deltagarna.

Exponeringsbiomarkörer och ålder

ETU och 3,5-DKA var något högre bland de som inte var ålderspensionärer (yngre än 65 år; tabell 4). Bland tidigare undersökta stadsboende (som också lämnat morgonurin), en grupp som var yngre än den här aktuella befolkningen, hade de som var yngre än 40 år högre halter av ETU än de som var äldre (Littorin et al. 2009). Skilda matvanor i olika åldersgrupper kanske kan ha betydelse för observationerna men för konklusion krävs hänsyn till deltagarnas matvanor före provtagningarna.

Exponeringsbiomarkörer, gröna arbeten och bekämpningsmedel

De tio som arbetade inom den gröna sektorn och uppgav att det ingick i deras arbetsuppgifter att vid behov hantera BM (tabell 1) hade litet högre halter av MCPA än de 67 som inte hade sådant arbete (medelvärde 0,32 vs <LOD). De 16 som uppgav att de kunde använda BM hemma skilde sig också något i halt av MCPA från de 59 som inte gjorde det (medelvärde 0,23 vs <LOD). Tre av de 75 som besvarat båda frågorna uppgav användning vid behov såväl i arbetet som i hemmet. De hade högre

biomarkörhalter för bl a MCPA (medelvärde 0,92, median 0,62, range 0,33-1,80) än alla andra.

Exponeringsbiomarkörer och närhet till åker/trädgård

Nästan alla uppgav boende i närhet till åker. Åtta personer bodde dessutom nära trädgård/växthus. De åtta med närhet till åker och också till trädgård/växthus hade vid basprovtagningen något högre halter av TCP, metaboliten till klorpyrifos, än övriga deltagare. Klorpyrifos är sedan 2008 inte godkänt för användning i trädgård och lantbruk i Sverige men kan finnas på importerade produkter.

Exponeringsbiomarkörer och egen brunn

Både i grupp A och grupp B uppgav så många som 96% att de använde brunnsvatten till dricksvatten, till övrig hushållsanvändning nästan alla (tabell 1).

Inga skillnader i halter av BM-biomarkörer mellan de med grävd och de med borrard brunn noterades. Detta kan antyda, att halterna av BM som uppmättes i brunnarna här (Amir Arvin, personligt meddelande) kan vara försumbara för human exponering jämfört med exponering från andra källor (Törnquist et al. 2002; Alkhatib och Nordell 2006). Vi har dock undersökt endast ett fåtal av de BM som används i lantbruket. Skärpt kontroll av vårt dricksvatten inklusive av BM rekommenderas (cf. Rosling 2008).

Exponeringsbiomarkörer och livsstilsfaktorer

Ekologisk kost. Den huvudsakliga exponeringen för BM hos allmänbefolkningen är födointaget och de barn som konsumerar ekologiska livsmedel får en lägre exponering, åtminstone för organiska fosforföreningar (cf. Curl et al. 2003; Lu et al. 2006). I föreliggande undersökning var det endast tre deltagare som uppgav att de flesta livsmedel de konsumerat veckan före urinprovet var av ekologisk typ. Merparten av deltagarna hade intagit ekologiska produkter mera sällan eller inte alls; biomarkörhalterna hos de tre skiljde sig inte påtagligt från de senare. Det fanns dock ingen som endast intog ekologisk kost.

Tobaksbruk. Endast 7 av 77 (9%) svarande var rökare. Rökvanorna hade inte någon statistiskt signifikant betydelse för halterna av BM i urinen ; rökarna hade dock högre halter av ETU än ickerökarna.

Alkoholvanor. Resthalter av BM finns i vin (Aprea et al 1996 och 1997; Cabras och Angioni 2000; Lorenzin 2007; Poulsen et al. 2007). Vid odling av vindruvor har fungiciderna vinklozolin och iprodion samt mankozeb använts under flera år (Colosio et al. 2002; Rial-Otero et al. 2004). Vinklozolin, förbjudet i Sverige sedan 1996, får från 2007 inte heller användas i EU:s övriga medlemsstater

(<http://eurlex.europa.eu/LexUriServ/LexUriServ.do?uri=OJ:L:2010:006:0001:0005:SV:PDF>).

I tidigare undersökningar av stadsbefolkning fann vi att vinkonsumtion dagarna före urinprovet var tydligt associerad med halterna av 3,5-DKA och ETU och intag av vindruvor/russin till halten av 3,5-DKA (Littorin et al. 2009). I den aktuella undersökningen ses associationer mellan vinkonsumtion och ETU, 3,5-DKA och också TCP och 2,4-D (tabell 5). Konsumtion av vindruvor dagen före prov var associerad med högre halt av särskilt TCP.

Fritid/hobby. Golfbanor, särskilt greener, har tidigare behandlats med bl a iprodion mot snömögel (Strömstedt och Jarvis 2005) och hos allmänheten med golf som hobby såg vi tidigare litet högre halt av metaboliten 3,5-DKA. Det svenska godkännandet för iprodion upphörde 20081231. I aktuell landsbygdsbefolkning fanns inga skillnader i 3,5-DKA mellan 7 golfare och övriga men nu liksom tidigare antyds högre halt av 2,4-D. 2,4-D har länge tillåtits inom EU och har använts extensivt på golfbanor i bl a Spanien, också i USA och Kanada (cf. Moret et al. 2005). Sedan juni 2011 är en 2,4-D-ester registrerad för användning (i spannmål) i Sverige.

Exponeringsbiomarkörer - upprepad provsamling

I tabell 6 ses min- och max-värden av biomarkörerna som bestämts hos de tjugo som bidrog med upprepade urinprover. Den *individuella variationen* i mätvärden var för 2,4,6-T som lägst vid LOD och som högst 0,24 ng/mL, för 2,4-D 0,07 respektive 6,0 ng/mL, för 3,4-DKA vid LOD och 0,45 ng/mL, för 3,5-DKA vid LOD och 3,9 ng/mL, för 3-PBA LOD och 7,4 ng/mL, för CCC 1,1 och 19 ng/mL, för ETU vid LOD och 7,7 ng/mL, för HMCPA 0,12 och 0,61 ng/mL, för MCPA vid LOD och 0,56 ng/mL, för MQ 0,10 och 7,5 ng/mL och för TCP vid LOD och 4,3 ng/mL.

Avsikten med de upprepade provtagningarna var att undersöka en eventuell indirekt exponering från närliggande besprutade åkrar. Det visade sig vara ytterst svårt både för deltagarna och för projektansvariga att alltid ha kontroll över när sprutning skett eller inte skett och se till att samla urin vid utifrån planerna "rätt" tillfällen. Alltför många faktorer – väderleken främst – påverkade åtgärderna i lantbruken och ändringar skedde med kort varsel, både v g att initiera och att avstå från planerad besprutning. Det medel som mest frekvent spriddes på aktuella åkrar vid provtillfällena var CCC. I tabell 7 visas en sammanställning av CCC-halterna i de tjugos basprov och i deras 37 resterande prov. Här antyds ökade halter i prover samlade vid tillfällen då besprutning av närliggande åkrar förmodades ske.

Nya exponeringsbiomarkörer i tidigare insamlade prov från stadsbefolkning

Metoden för analys av CCC och mepikvat har nu tillämpats också på de 100 dygnsurinprov som vi tidigare samlat in från allmänbefolkningen

2004-05 (Littorin et al. 2009). CCC fanns i *alla* prov, mepikvat hos nästan alla, 92% (tabell 8). Det fanns inga signifikanta korrelationer mellan CCC och mepikvat eller mellan dem och tidigare analyserade exponeringsbiomarkörer.

Slutord

Halterna av exponeringsbiomarkörer för BM hos bosatta på landsbygden är liksom i våra tidigare undersökta grupper låga men intressanta associationer antyds som stärker tidigare misstänkta kopplingar till exponeringskällor. Det fanns små skillnader i urinhalter av några BM som relaterade till ålder, vinkonsumtion och kanske till boende nära besprutade åkrar. Vissa skillnader mellan landsbygds- och stadsbefolkning anses också. Något lägre andel av de boende på landet hade rester av de fungicida medlen 3,5-DKA och ETU men något högre andel av insekticidmetaboliten 3-PBA och herbiciden MCPA. Fördjupade analyser av våra studier med multivariat metodik krävs dock för konklusiva sambandsanalyser. Anmärkningsvärt är att den nu framtagna biomarkören CCC, ett retarderingsmedel, förekom hos alla i såväl landbygds- som stadsbefolkning. Ett annat retarderingsmedel, mepikvat, återfanns hos nästan alla.

Tack till

Naturvårdsverkets Hälsorelaterade Miljöövervakningsprogram, Amir Arvin Ghazvinizadeh och Miljöförvaltningen i Landskrona, Elisabet Wirfält, som bidragit med synpunkter på kostrelaterade enkätfrågor.

Referenser

Alexander BH, Mandel JS, Baker BA, Burns CJ, Bartels MJ, Acquavella JF et al.

Biomonitoring of 2,4-dichlorophenoxyacetic acid exposure and dose in farm families. *Environ Health Perspect* 2007;115:370-6.

Alkhatib A, Nordell O. Enskilda brunnar. Rapport från Miljöförvaltningen Landskrona kommun 2006.

Andersson A, Broman F, Jansson A. The Swedish monitoring of pesticide residues in food of plant origin: 2007. Part 1: National Report. Rapport nr 5, 2008 Part 1. Livsmedelsverket, Uppsala.

Andersson A, Jansson G. The Swedish monitoring of pesticide residues in food of plant origin: 2007. Part 2: Report to Commission and EFSA. Rapport nr 5, 2008 Part 2. Livsmedelsverket, Uppsala.

Apra C, Betta A, Catenacci G, Lotti A, Minoia C, Passini W et al. Reference values of urinary ethylenethiourea in four regions of Italy (multicentre study). *Sci Total Environ* 1996;192:83-93.

Apra C, Betta A, Catenacci G, Colli A, Lotti A, Minoia C et al. Urinary excretion of ethylenethiourea in five volunteers on a controlled diet (multicentric study). *Sci Total Environ* 1997;203:167-79.

- Arbuckle TE, Cole DC, Ritter L, Ripley BD. Farm children's exposure to herbicides: comparison of biomonitoring and questionnaire data. *Epidemiology* 2004;15:187-94.
- Arbuckle TE, Ritter L. [Phenoxyacetic acid herbicide exposure for women on Ontario farms](#). *Toxicol Environ Health A* 2005;68:1359-70.
- Arbuckle TE, Bruce D, Ritter L, Hall JC. Indirect sources of herbicide exposure for families on Ontario farms. *J Exp Science Environ Epidemiol* 2006;16:98-104
- Barr DB, Needham LL. Analytical methods for biological monitoring of exposure to pesticides: a review. *J Chromtogr B Analyt Technol Biomed Life Sci* 2002;778(1-2):5-29.
- Barr DB, Olsson AO, Wong LY, Udunka S, Baker SE, Whitehead RD, Magsumbol MS, Williams BL, Needham LL. Urinary concentrations of metabolites of pyrethroid insecticides in the general U.S. population: National Health and Nutrition Examination Survey 1999-2002. *Environ Health Perspect* 2010;118:742-8.
- Cabras P, Angioni A. Pesticide residues in grapes, wine, and their processing products. *J Agric Food Chem* 2000;48:967-73.
- Christiansson H. Bekämpningsmedel i skånska brunnar. En sammanställning av undersökta enskilda vattentäkter. Examensarbete 2009 vid Inst. för Miljövetenskaplig Utbildning, Lunds Universitet.
- Colosio C, Fustioni S, Birindelli S, Bonomi I, DE Paschale G, Mammone T et al. Ethylenethiourea in urine as an indicator of exposure to mancozeb in vineyard workers. *Toxicol Lett* 2002;134:133-40.
- Colosio C, Visentin S, Birindelli S, Campo L, Fustinoni S, Mariani F et al. Reference values for ethylenethiourea in urine in Northern Italy: results of a pilot study. *Toxicol Lett* 2006;162:153-7.
- Couture C, Fortin MC, Carrier G, Dumas P, Tremblay C, Bouchard M. Assessment of exposure to pyrethroids and pyrethrins in a rural population of the Monteregie area, Quebec, Canada. *J Occup Environ Hyg* 2009;6:341-52.
- Curl CL, Fenske RA, Elgethun K. Organophosphorus pesticide exposure of urban and suburban preschool children with organic and conventional diets. *Environ Health Perspect* 2003;111:377-82.
- Eddleston M, Karalliedde L, Buckley N, Fernando R, Hutchinson G, Isbister G et al. Pesticide poisoning in the developing world – a minimum pesticide list. *Lancet* 2002;360:1163-7.
- Elfman L, Hogstedt C, Engvall K, Lampa ELindh CH. Acute Health Effects on Planters of Conifer Seedlings Treated with Insecticides. *Ann Occup Hyg* 2009;53:383-90.
- Fustinoni S, Campo L, Liesivuori J, Pennanen S, Vergieva T, van Amelsvoort L et al. Biological monitoring and questionnaire for assessing exposure to ethylenebisdithiocarbamates in a multicenter European field study. *Hum Exp Toxicol* 2008;27:681-91.
- Hardt J, Angerer J. Biological monitoring of workers after the application of insecticidal pyrethroids. *Int Arch Occup Environ Health* 2003;76:492-8.

- Heudorf U, Angerer J. Metabolites of pyrethroid insecticides in urine specimens: current exposure in an urban population in Germany. *Environ Health Perspect* 2001a;109:213-7.
- Heudorf U och Angerer J. Metabolites of organophosphorous insecticides in urine specimens from inhabitants of a residential area. *Environ Res* 2001b;86:80-7.
- Heudorf U, Angerer J, Drexler H. [Current internal exposure to pesticides in children and adolescents in Germany: urinary levels of metabolites of pyrethroid and organophosphorus insecticides](#). *Int Arch Occup Environ Health* 2004;77:67-72.
- Heudorf U, Butte W, Schulz C, Angerer J. Reference values for metabolites of pyrethroid and organophosphorous insecticides in urine for human biomonitoring in environmental medicine. *Int J Hyg Environ Health* 2006;209:393-9.
- Hill RH Jr, Head SL, Baker S, Gregg M, Shealy DB, Bailey SL, Williams CC, Sampson EJ, Needham LL. [Pesticide residues in urine of adults living in the United States: reference range concentrations](#). *Environ Res* 1995;71:99-108.
- Jansson A, Holmbäck X, Wannberg A. Kontroll av bekämpningsmedelsrester i livsmedel 2009. Rapport 17 2011, Livsmedelsverket, Uppsala.
- Kreuger J, Törnquist M, Kylin K. Bekämpningsmedel i vatten och sediment från typområden och åar samt i nederbörd under 2003. *Ekohydrologi* 81, Institutionen för markvetenskap, Avd för vattenvårdslära, 2004. Rapport 2004:18, Institutionen för miljöanalys, SLU Uppsala.
- Kreuger J, Graaf S, Patring J, Adielsson S. Bekämpningsmedel i vattendrag från områden med odling av trädgårdsgrödor under 2008. *Ekohydrologi* 110, Avd för vattenvårdslära, 2009. SLU Uppsala.
- Kurttio P, Savolainen K. Ethylenethiourea in air and urine as an indicator of exposure to ethylenebisdithiocarbamate fungicides. *Scand J Work Environ Health* 1990;16:203-7.
- Lee S-J, Mehler L, Beckman J, Diebolt-Brown B, Prado J, Lackovic M, Waltz J, Mulay P, Schwartz A, Mitchell Y, Moraga-McHaley S, Gergely R, Calvert GM. Acute pesticide illnesses associated with off-target pesticide drift from agricultural applications: 11 states, 1998-2006. *Environ Health Perspect* 2011;119:1162-9.
- Lindh CH, Littorin M, Amilon A, Jönsson BA. Analysis of 3,5-dichloroaniline as a biomarker of vinclozolin and iprodione in human urine using liquid chromatography/triple quadropole mass spectrometry. *Rapid Commun Mass Spectrom*. 2007;21:536-42.
- Lindh CH, Littorin M, Amilon A, Jönsson BA. Analysis of phenoxyacetic acid herbicides as biomarkers in human urine using liquid chromatography/triple quadropole mass spectrometry. *Rapid Commun Mass Spectrom*. 2008;22:143-50.
- Lindh CH, Littorin M, Johannesson G, Jönsson BA. Analysis of ethylenethiourea as a biomarker in human urine using liquid chromatography/triple quadropole mass spectrometry. *Rapid Commun Mass Spectrom*. 2008;22:2573-9.
- Lindh CH, Littorin M, Johannesson G, Jönsson BA. Analysis of chlormequat in human urine as a biomarker of exposure using liquid chromatography triple quadropole mass spectrometry. *J Chromatogr B Analyt Technol Biomed Life Sci* 2011 Mar 31.

Littorin M, Lindh C, Amilon Å, Johannesson G, Assarsson E, Jönsson BAG. Uppskattning av befolkningens exponering för kemiska bekämpningsmedel 2004-2008 (dnr 721-1556-04Mm, 721-1395-05Mm, 721-1521-07Mm, 235-3413-08Mm). Rapport till Naturvårdsverket 2009.

Lorenzin M. Pesticide residues in Italian Ready-Meals and dietary intake estimation. *J Environ Sci Health B* 2007; 42:823-33.

Lu C, Knutson DE, Fisker-Andersen J, Fenske RA [Biological monitoring survey of organophosphorus pesticide exposure among pre-school children in the Seattle metropolitan area](#). *Environ Health Perspect* 2001;109:299-303.

Lu C, Toepel K, Irish R, Fenske RA, Barr DB, Bravo R. Organic diets significantly lower children's dietary exposure to organophosphorus pesticides. *Environ Health Perspect* 2006;114:260-3.

MacIntosh DL, Kabiru C, Echols SL, Ryan PB. [Dietary exposure to chlorpyrifos and levels of 3,5,6-trichloro-2-pyridinol in urine](#). *J Expo Anal Environ Epidemiol* 2001;11:279-85.

Maroni M, Colosio C, Ferioli A, Fait A. Biological monitoring of pesticide exposure: a review. Introduction. *Toxicology* 2000;143:1-118.

Maxe L. Enskild vattenförsörjning – kunskapsunderlag inför uppföljning av ett nytt delmål. SGU-rapport 2007:10.

Moret S, Sánchez JM, Salvadó V, Hidalgo M. The evaluation of different sorbents for the preconcentration of phenoxyacetic acid herbicides and their metabolites from soils. *J Chromatogr A* 2005;1099:55-63.

Perry MJ, Marbella A, Layde PM. Nonpersistent pesticide exposure self-report versus biomonitoring in farm pesticide applicators. *Ann Epidemiol* 2006;16:701-7.

Poulsen ME, Hansen HK, Sloth JJ, Christensen HB, Andersen JH. Survey of pesticide residues in table grapes: determination of processing factors, intake and risk assessment. *Food Addit Contam* 2007;24:886-95.

Rial-Otero R, González-Rodríguez RM, Cancho-Grande B, Simal-Gándara J. Parameters affecting extraction of slected fungicides from vineyard soils. *J Agric Food Chem* 2004;52:7227-34.

Rodríguez T, van Wendel de Joode B, Lindh CH, Rojas M, Lundberg I, Wesseling C. Assessment of long-term and recent pesticide exposure among rural school children in Nicaragua. *Occup Environ Med* 2012;69:119-25.

Rosling D. Rapportering av dricksvattenkontrollen 2007. Livsmedelsverket. Rapport 11/2008.

Saieva C, Aprea C, Tumino R, Masala G, Salvini S, Frasca G et al. Twenty-four-hour urinary excretion of ten pesticide metabolites in healthy adults in two different areas of Italy (Florence and Ragusa). *Sci Total Environ* 2004;332(1-3):71-80.

Smith C, Kerr K, Sadripour A. Pesticide exports from U.S. ports 2001-2003. *Int J Occup Environ Health* 2008;14:176-86.

Stigsdotter R-M. Undersökning av kemiska bekämpningsmedel i 100 brunnar. Miljöförvaltningen I Landskrona. Rapport 2008:5.

Strömkvist J, Jarvis N. Sorption, degradation and leaching of the fungicide iprodione in a golf green under Scandinavian conditions: measurements, modelling and risk assessment. *Pest Manag Sci* 2005;61: 1168-78.

Turci R, Barisano A, Balducci C, Colosio C, Minmoia C. Determination of dichloroanilines in human urine by gas chromatography/mass spectrometry: validation protocol and establishment of Reference Values in a population group living in central Italy. *Rapid Commun Mass Spectrom* 2006;20:2621-5.

Törnquist M, Kreuger J, Ulén B. Förekomst av bekämpningsmedel i svenska vatten 1985-2001. Sammanställning av en databas. Resultat från monitoring och riktad provtagning i yt-, grund- och dricksvatten. 2002. Avdelningen för vattenvårdslära, SLU, Uppsala.

Weppner S, Elgethun K, Lu C, Hebert V, Yost MG, Fenske RA. The Washington aerial spray drift study: children's exposure to methamidophos in an agricultural community following fixed-wing aircraft applications. *J Expo Sci Environ Epidemiol* 2006;16:387-96.

Wu X, Bennett DH, Ritz B, Frost J, Cassady D, Lee K, Hertz-Picciottot I. Residential insecticide usage in northern California homes with young children. *J Exp Sci Environ Epidemiol* 2011;21:427-36.

Tabell 1. Några karakteristika för två grupper av personer boende på landsbygden.

Kategori	Grupp		Totalt (N=79)
	A ² (N=29)	B ³ (N=50)	
Kvinnor [N (%)]	12 (41)	15 (30)	27 (34)
Ålder [median (min-max)]	45 (20-74)	64 (15-86)	57 (15-86)
Arbetar i gröna näringen [N (%)] ¹	11 (38)	12 (24)	23 (29)
Bekämpningsmedel i arbetet [N (%)] ¹	3 (11)	7 (14) ¹	10 (13)
Bekämpningsmedel hemma [N (%)] ¹	6 (23)	10 (20)	16 (21)
Bor nära åker [N (%)] ¹	27 (93)	49 (98)	76 (96)
Har egen brunn [N (%)] ¹	23 (82)	50 (100)	73 (94)
Brunnsvattnet som dricksvatten [N (%)] ¹	22 (96)	48 (96)	70 (96)

¹Alla har inte besvarat alla frågor²Provinsamling april-juni³Provinsamling oktober-februari

Tabell 2. Densitetsjusterade urinhalter (ng/mL) av biomarkörer för bekämpningsmedel hos 79 personer boende på landsbygden. (LOD=detektionsgräns)

	<LOD N	<LOD %	N	Min	5%	25%	Median	75%	95%	Max
2,4-D	6	8	73	<LOD	0,06	0,08	0,14	0,21	0,55	1,6
2,4,5-T	79	100	0
2,4,6-T	68	86	11	<LOD	<LOD	0,10	0,14	0,29	0,75	0,75
3-PBA	30	38	49	<LOD	<LOD	0,24	0,30	0,40	2,3	8,5
3,4-DKA	59	75	20	<LOD	<LOD	0,12	0,19	0,26	0,72	0,84
3,5-DKA	25	32	54	0,11	0,12	0,23	0,46	0,82	3,5	4,3
CCC	0	0	79	0,23	0,36	1,2	2,2	5,0	19	22
ETU	19	24	60	<LOD	0,11	0,21	0,42	0,79	3,4	13
HMCPA	68	86	11	<LOD	<LOD	<LOD	0,52	0,66	1,4	1,4
MCPA	66	84	13	0,10	0,10	0,13	0,16	0,38	1,8	1,8
MQ	8	10	71	<LOD	0,48	1,1	2,2	4,7	9,3	15
TCP	45	57	34	<LOD	0,84	1,3	1,8	2,6	8,0	16

Tabell 3. Andel av detekterbara urinhalter av biomarkörer för bekämpningsmedel i landsbygdsbefolkning 2010-11, tidigare undersökt stadsbefolkning 2004-05 och invandrargrupp undersökt 2008-09 (%).

Biomarkör	Landsbygdsboende N=79¹	Allmänbefolkning stad 2004-05 N=100²	Invandrare 2006- 09 N=25¹
2,4-D	92	94	100
2,4,5-T	0	0	0
2,4,6-T	14	Ej analyserat	68
3-PBA	62	19	78
3,4-DKA	25	27	70
3,5-DKA	68	99	96
CCC	100	100	Ej analyserat
ETU	76	98	92
HMCPA	14	17	0
MCPA	16	6	4
Mepikvat	90	92	Ej analyserat
TCP	43	Ej analyserat	74

¹Morgonurinprov.

²Dygnsurinprov.

Tabell 4. Densitetsjusterade urinhalter (ng/mL) av biomarkörer för bekämpningsmedel i relation till ålder. (LOD=detektionsgräns)

Biomarkör	<65 år (N=52)¹	>65 år (N=27)¹
ETU		
Medelvärde	0,80	0,63
Median	0,46	0,11
Range	<LOD-4,2	<LOD-13
3,5-DKA		
Medelvärde	0,72	0,36
Median	0,34	0,18
Range	<LOD-4,3	<LOD-3,2

¹Ingen var 65 år.

Tabell 5. Densitetsjusterade urinhalter (ng/mL) av biomarkörer för vissa bekämpningsmedel bland de som konsumerat vin sista dagen eller minst en av de senaste tre dagarna före prov. (LOD=detektionsgräns)

Biomarkör	Vin dagen före prov	
	Ja (N=9)	Nej (N=65)
ETU		
Medelvärde	3,0	0,43
Median	2,5	0,21
Range	0,12-13	<LOD-4,2
3,5-DKA		
Medelvärde	1,5	0,47
Median	1,1	0,18
Range	0,12-4,3	<LOD-3,9
TCP		
Medelvärde	2,4	1,3
Median	1,8	<LOD
Range	<LOD-8,0	<LOD-16
	Vin minst en av senaste tre dagarna	
	Ja (N=29)	Nej (N=49)
ETU		
Medelvärde	1,4	0,35
Median	0,60	0,18
Range	<LOD-13	<LOD-3,0
2,4-D		
Medelvärde	0,29	0,14
Median	0,20	0,10
Range	<LOD-1,25	<LOD-1,6
TCP		
Medelvärde	1,5	1,3
Median	1,2	<LOD
Range	<LOD-8,0	<LOD-16
	Vindruvor/russin dagen före prov	
	Ja (N=12)	Nej (N=62)
TCP		
Medelvärde	3,2	1,1
Median	1,7	<LOD
Range	<LOD-16	<LOD-8,0

Tabell 6. Individuella densitetsjusterade min- och max-värden av urinhalter (ng/mL) av biomarkörer för bekämpningsmedel för 20 individer som lämnat prov flera gånger. (LOD=detektionsgräns)

ID/provantal		246T	24D	34DKA	35DKA	3PBA	CCC	ETU	HMCPPA	MCPA	MQ	TCP
A/3	Min	<LOD	0,09	<LOD	0,36	<LOD	1,7	0,21	<LOD	<LOD	1,0	<LOD
	Max	<LOD	0,25	0,46	11	0,36	12	1,3	<LOD	<LOD	11	2,8
B/3	Min	<LOD	0,11	<LOD	1,9	0,45	4,1	<LOD	<LOD	<LOD	6,6	2,6
	Max	<LOD	0,49	<LOD	2,2	0,63	14	0,22	<LOD	<LOD	8,2	6,3
C/3	Min	<LOD	0,20	<LOD	0,55	0,68	6	0,41	<LOD	<LOD	3,8	<LOD
	Max	<LOD	0,63	<LOD	1,6	1,2	23	0,97	0,42	0,17	6,6	<LOD
D/3	Min	<LOD	0,24	0,12	0,70	0,26	17	0,25	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD
	Max	<LOD	17	0,19	2,4	0,46	22	0,72	<LOD	<LOD	2,8	2,0
E/4	Min	<LOD	0,06	<LOD	<LOD	<LOD	2,5	<LOD	<LOD	<LOD	0,49	<LOD
	Max	<LOD	0,09	0,15	<LOD	0,25	7,6	0,14	<LOD	<LOD	13	<LOD
F/3	Min	<LOD	0,07	<LOD	<LOD	<LOD	0,36	0,13	<LOD	<LOD	4,3	<LOD
	Max	0,10	0,22	0,21	0,10	<LOD	8,1	0,41	<LOD	<LOD	9,5	<LOD
G/2	Min	0,10	0,25	0,10	0,42	<LOD	1,3	0,90	<LOD	<LOD	0,87	<LOD
	Max	0,37	0,44	0,18	0,91	0,34	2,7	1,1	<LOD	<LOD	1,8	2,2
H/4	Min	<LOD	0,13	<LOD	<LOD	<LOD	1,4	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD
	Max	<LOD	0,31	0,23	<LOD	0,31	5,2	0,17	<LOD	<LOD	<LOD	2,0
I/2	Min	<LOD	0,07	<LOD	<LOD	<LOD	1,1	<LOD	<LOD	<LOD	3,3	<LOD
	Max	<LOD	0,09	<LOD	<LOD	<LOD	11	0,42	<LOD	<LOD	9,9	<LOD
J/3	Min	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD	1,1	0,15	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD
	Max	0,11	0,17	0,12	0,92	0,22	7,1	0,40	1,4	<LOD	3,5	0,99
K/3	Min	<LOD	<LOD	<LOD	0,12	<LOD	0,53	0,12	<LOD	<LOD	<LOD	<LOD
	Max	<LOD	0,23	0,18	1,1	<LOD	1,8	4,0	<LOD	<LOD	0,72	2,1
L/2	Min	<LOD	0,08	0,18	0,39	<LOD	1,4	0,36	<LOD	<LOD	1,4	1,2
	Max	<LOD	0,08	0,72	6,2	0,74	2,6	0,55	<LOD	<LOD	1,6	1,3
M/7	Min	<LOD	0,05	<LOD	<LOD	<LOD	0,60	0,10	<LOD	<LOD	0,56	<LOD
	Max	<LOD	0,12	0,29	0,29	0,47	8,6	0,82	0,81	1,4	7,8	1,9
N/2	Min	<LOD	0,09	<LOD	0,12	<LOD	3,4	0,73	<LOD	<LOD	1,5	0,97
	Max	0,10	0,15	<LOD	0,55	0,22	19	0,76	0,52	<LOD	7,5	3,0
O/2	Min	<LOD	0,13	<LOD	<LOD	<LOD	1,5	0,12	<LOD	<LOD	0,87	<LOD
	Max	<LOD	0,53	0,18	0,17	0,27	1,6	0,78	<LOD	<LOD	1,2	0,89
P/3	Min	<LOD	0,18	<LOD	<LOD	1,4	0,99	<LOD	<LOD	<LOD	2,4	<LOD
	Max	<LOD	0,23	<LOD	0,48	8,5	8,4	0,15	<LOD	0,15	14	<LOD
Q/2	Min	<LOD	0,15	<LOD	0,24	0,26	4,9	0,97	<LOD	<LOD	1,7	1,3
	Max	<LOD	0,20	0,28	1,3	0,44	29	1,2	0,47	<LOD	2,1	5,8
R/2	Min	<LOD	0,19	<LOD	2,2	<LOD	3,2	2,2	<LOD	<LOD	<LOD	2,2
	Max	<LOD	0,37	<LOD	3,2	<LOD	4,3	13	<LOD	<LOD	<LOD	2,7
S/2	Min	<LOD	0,09	<LOD	1,9	<LOD	3,8	1,0	<LOD	<LOD	1,5	1,5
	Max	<LOD	0,25	<LOD	5,2	0,27	11	3,8	<LOD	<LOD	2,4	3,5
T/2	Min	<LOD	0,12	<LOD	0,28	6,6	2,4	0,27	<LOD	<LOD	1,8	<LOD
	Max	<LOD	0,39	<LOD	0,59	8,1	22	0,29	<LOD	<LOD	6,1	<LOD

Tabell 7. Densitetsjusterade urinhalter (ng/mL) av CCC hos 20 individer som lämnat prov upprepade gånger.

	Basprov	Alla upprepade prov
Medel	4,5	7,5
Median	2,0	5,6
Min	0,36	0,53
Max	22	29

Tabell 8. Densitetsjusterade halter (ng/mL) av CCC och mepikvat i 100 tidigare insamlade dygnsurinprover från allmänbefolkning 2004-05. (LOD=detektionsgräns)

	CCC	Mepikvat
Medelvärde	5,7	3,2
Median	4,5	2,6
Min	0,47	<LOD
Max	25	10
5%	0,86	<LOD
95%	18	8,3