

## Determinación del contenido total y lixiviable de antimonio en contenedores plásticos PET por espectroscopia de fluorescencia atómica

C.A. Chapa-Martínez, L. Hinojosa-Reyes, E. Ruiz-Ruiz, A. Hernández-Ramírez, J.L. Guzmán-Mar\*.

Universidad Autónoma de Nuevo León (UANL), Facultad de Ciencias Químicas, Cd. Universitaria, C.P. 64570. San Nicolás de los Garza, Nuevo León, México.

\*E-mail: jorge.guzmanmr@uanl.edu.mx

Recibido 26 de febrero 2015, Aceptado 14 de mayo 2015

### Resumen

El antimonio (Sb) es un elemento tóxico para la salud humana. Trabajos recientes realizados en Estados Unidos y Europa sugieren que el tereftalato de polietileno (PET) puede lixiviar Sb, por lo cual es de interés realizar este estudio en México, donde presenta un elevado uso para embotellar agua de consumo este material plástico. Para evaluar la concentración de Sb lixiviado de plásticos PET para almacenar agua de consumo, se estudiaron las condiciones a las cuales estos contenedores son sometidos y que pueden favorecer la lixiviación del Sb contenido en el PET de botellas, como son: pH, tiempo de exposición y temperatura. Las condiciones de lixiviación fueron evaluadas aplicando un diseño de experimentos factorial completo  $2^3$ . Además se determinó el contenido total de Sb presente en los plásticos después de una digestión ácida asistida por microondas. El análisis del contenido total de Sb en las muestras de digestión ácida y de lixivados se llevó a cabo por Espectroscopia de Fluorescencia Atómica con sistema de Generación de Hidruros (HG/AFS). El análisis de la concentración total así como el contenido de Sb potencialmente lixiviable se aplicó a envases para contener agua o bebidas carbonatadas disponibles comercialmente en la región. La concentración inicial lixivada de Sb en el agua contenida en las botellas de PET fue de  $0.06 \pm 0.02$  a  $2.21 \pm 0.40$   $\mu\text{g Sb/L}$ , de la misma forma el contenido total de Sb en el plásticos presente en las diferentes marcas evaluadas fue desde  $68.6 \pm 6.1$  hasta  $110.1 \pm 9.1$   $\text{mg Sb/kg}$  de PET. A partir del diseño de experimentos se estableció que concentraciones altas de Sb lixivado de los plásticos PET se presentan a pH 7 y 5 días de exposición a una temperatura de  $75^\circ\text{C}$ . Las concentraciones encontradas van de  $1.2 \pm 0.1$  a  $16.4 \pm 0.3$   $\mu\text{g/L}$ , de entre las cuales solo dos muestras están por arriba y tres muestras en el límite máximo permitido para agua potable de la Unión Europea (UE) que es de  $5$   $\mu\text{g/L}$ , representando un riesgo potencial para la salud humana.

**Palabras clave:** Antimonio, PET, Lixiviación, HG/AFS.

### 1. Introducción

En los últimos años la industria de los productos plásticos se ha incrementado notablemente, sobre todo de productos empleados para contener y almacenar bebidas y alimentos, tal es el caso de la producción de botellas de tereftalato de polietileno (PET por sus siglas en inglés). Para el proceso de fabricación del PET se emplean principalmente catalizadores de antimonio como el trióxido de antimonio [1].

Algunos estudios realizados en Estados Unidos y en Europa [2-8] han demostrado que el antimonio empleado en los contenedores PET puede lixivarse a los líquidos contenidos y este elemento puede llegar a ser tóxico para el humano aun en concentraciones bajas. La absorción gastrointestinal de sales solubles de antimonio ejerce un fuerte efecto irritante sobre la mucosa gastrointestinal y provocan vómitos sostenidos. Otros efectos incluyen calambres abdominales, diarrea y toxicidad cardíaca. Puede ocasionar efectos neurológicos, cardiovasculares, respiratorios, gastrointestinales y hematopoyéticos, los cuales son similares a los observados por la intoxicación por vía oral con arsénico [7]. Gebel [9] reportó que el antimonio tiene un comportamiento toxicológico similar al arsénico, que es un compuesto carcinógeno; y la

Agencia Internacional para la Investigación sobre el Cáncer (IARC) clasificó el trióxido de antimonio como posible cancerígeno para los seres humanos.

Organizaciones como la Agencia de Protección Ambiental de Estados Unidos, la Organización Mundial de la Salud y la Administración de Seguridad y Salud Ocupacional y otras más, establecen límites máximos permisibles de Sb en agua potable, por ejemplo en Japón es de  $2$   $\mu\text{g/L}$ , mientras que en la Comunidad Europea, EE.UU. y Canadá se mantiene en  $5$   $\mu\text{g/L}$  [2, 3, 10]. En lo que respecta a nuestro país, no se cuenta con ninguna regulación en cuanto al límite máximo permitido de Sb en agua de consumo humano. En los últimos años debido al uso indiscriminado de plástico PET y al desconocimiento en nuestro país y particularmente en nuestra región, sobre la cantidad de antimonio lixiviable en plásticos PET, se crea un ambiente de desconfianza sobre la calidad del agua que bebemos. Para estudiar la lixiviación de Sb en envases de PET se requiere evaluar las condiciones a las que el material plástico se somete potencialmente durante su periodo de almacenamiento en anaquel, por lo tanto es importante simular algunas condiciones de pH, temperatura, y tiempo de exposición [11-14]. Por lo anterior, resulta de interés el evaluar las condiciones que favorezcan la lixiviación del antimonio contenido en el PET y conocer el grado de exposición que se tiene al Sb a través del consumo de líquidos o

alimentos almacenados en PET. Una de las técnicas analíticas más utilizadas para la determinación del Sb a niveles de concentraciones traza ( $\mu\text{g/L}$ ) es la espectroscopia de fluorescencia atómica con generación de hidruros (HG-AFS) que compete en sensibilidad con la espectrometría de masas con fuente de plasma de acoplamiento inductivo (ICP-MS), resultado esta última en costos de operación más elevado.

## 2. Parte experimental

### 2.1 Muestreo de contenedores PET.

Las botellas de PET fueron adquiridas en establecimientos locales en diferentes puntos de la zona metropolitana de Monterrey, N.L. México, donde se distribuye agua purificada en botellas de PET, adquiriendo 12 marcas comerciales de agua embotellada y adquiriendo 3 botellas por marca. Las muestras se almacenaron a temperatura ambiente y bajo oscuridad.

### 2.2 Determinación de Sb lixiviado en el agua embotellada en contenedores PET.

Para la determinación del contenido total de Sb en las muestras de agua, se implementó un procedimiento de preconcentración, empleando una resina de intercambio iónico DOWEX® 1X8-100 (Sigma-Aldrich) empacada en una jeringa de 3 mL (1.5 g), la cual fue lavada con agua grado MilliQ y acondicionada con 10 mL de 1M de acetato de amonio a pH 9 (CTR Scientific, 96.7%). Posteriormente, se preconcentró 100 mL de muestra de agua a un caudal de 1 mL/min y para eluir se empleó 5 mL de una disolución 2M de  $\text{HNO}_3$  (Sigma-Aldrich, ACS 70%), teniendo un factor de preconcentración de 20 veces y este procedimiento permitió cuantificar concentraciones de Sb a niveles de partes por trillón ( $\text{ng/L}$ ). A los 5 mL de la disolución eluida se le añadió 400  $\mu\text{L}$  de una disolución reductora (yoduro de potasio (Sigma-Aldrich 99%) y ácido ascórbico (Sigma-Aldrich, 99%) al 2 y 0.5%, respectivamente) y se dejó reaccionar durante 1 h. Concluida la etapa de reducción se procedió a medir las muestras en el espectrofotómetro de fluorescencia atómica con sistema de generación de hidruros (HG-AFS, marca RayLeigh, modelo AF-640A). Para la medición se empleó  $\text{NaBH}_4$  (Fluka Analytical, 99%) al 0.7% en  $\text{NaOH}$  (Sigma-Aldrich, 97%) 0.1M para la formación del hidruros correspondiente y  $\text{HCl}$  al 10% (CTR Scientific, 96.7%) como agente acarreador, como gas separador se utilizó argón (600 mL/min), empleando como fuente de excitación una lámpara de cátodo hueco de Sb (217.6 nm).

### 2.3 Determinación de Sb en plástico PET.

Para la determinación del contenido total de Sb en los contenedores PET se pesó 0.1 g de muestra (plástico cortado en pequeños trozos) que se pre-digirió con 1 mL de  $\text{HCl}$  y 4 mL de  $\text{HNO}_3$  por 15 min, posterior a ese tiempo, las muestras fueron colocadas en el microondas (marca CEM, modelo Mars 6), el procediendo para la digestión fue: (1) de temperatura ambiente a  $180^\circ\text{C}$  por 15 min y (2) posteriormente se mantuvo a esa temperatura por 20 min. Las muestras digeridas fueron

diluidas y reducidas, concluida la reducción se procedió a la determinación del Sb presente en las muestras en el equipo de HG-AFS, como se especificó en el apartado 2.2. El experimento se llevó a cabo por triplicado para cada una de las 12 marcas de botellas comerciales estudiadas.

### 2.4 Diseño de experimentos factorial $2^3$ para la evaluación de la lixiviación de Sb del material PET.

El diseño de experimentos se aplicó en la muestra que presentó una mayor concentración de Sb en el PET. El diseño aplicado fue de tipo factorial completo  $2^3$ , los factores fueron el pH, tiempo de exposición y temperatura, y la respuesta de los experimentos fue el porcentaje de lixiviación de Sb en la muestra de PET seleccionada. Cada factor tuvo dos niveles. En el caso de la temperatura se evaluaron el efecto de la lixiviación a  $25$  y  $75^\circ\text{C}$ . En el caso del pH, se evaluó dicho efecto a pH 3 y 7. En el tiempo de exposición, se estudió a 5 y 15 días. Los experimentos se realizaron por duplicado resultando un número total de 16 experimentos. Las muestras de PET se cortaron en pequeños trozos de aproximadamente  $5 \times 4$  cm y se utilizaron cuatro piezas de dichas dimensiones (aproximadamente 2.1 g de PET por experimento), las cuatro piezas se colocaron en un frasco de vidrio añadiendo 100 mL de la disolución al pH correspondiente. Se introdujeron en un baño de agua con agitación mecánica (Marca Thermo Scientific, modelo Precision) a las diferentes temperaturas ( $25$  y  $75^\circ\text{C}$ ) y diferentes tiempos de exposición (5 y 15 días). Una vez concluido el tiempo de exposición se retiró el PET y la muestra de agua se preconcentró empleando el procedimiento descrito en el apartado 2.2. Posteriormente las muestras fueron reducidas y se determinó el contenido de Sb lixiviado por HG-AFS. En base a los resultados se estableció las mejores condiciones para la lixiviación del Sb.

### 2.5 Determinación el contenido total y lixiviable de Sb en los contenedores PET comerciales.

Una vez establecidas las condiciones de lixiviación, se procedió al análisis de Sb total y lixiviado en las 12 muestras de PET. Los análisis se realizaron por triplicado y en el caso del Sb lixiviado, se emplearon las condiciones de tiempo, pH y temperatura, que favorecen la lixiviación de antimonio (obtenidas a partir del diseño de experimentos).

## 3. Resultados y discusión

### 3.1 Determinación del contenido de Sb lixiviado en el agua embotellada en material plástico PET.

Previo al análisis de Sb en el PET y en agua, se realizó la curva de calibración para la determinación de Sb y se obtuvieron los parámetros analíticos del método, en la Tabla 1 se presentan los resultados obtenidos. El método presentó una buena linealidad, el límite de detección fue de  $0.9 \mu\text{g/L}$ , y el coeficiente de variación para un estándar de  $6 \mu\text{g/L}$  fue de 1.2%.

**Tabla 1.** Parámetros analíticos obtenidos en la determinación de Sb lixiviado en el agua embotellada en PET.

Parámetros analíticos	
Ecuación de la recta	$IF = 29.2 + 42.2 [Sb, \mu\text{g/L}]$
Coefficiente de correlación	0.9985
Límite de detección	0.9 $\mu\text{g/L}$
Límite de cuantificación	2.6 $\mu\text{g/L}$
CV (6 $\mu\text{g/L}$ )	1.2%

Se determinó el Sb lixiviado en el agua embotellada en el contenedor PET aplicando el procedimiento de preconcentración previamente descrito (apartado 2.2), el límite de cuantificación obtenido después de aplicar este procedimiento fue de 60 ng/L alcanzando un factor de preconcentración de 20. Previamente, se evaluó la recuperación de antimonio con el procedimiento de preconcentración, encontrando porcentajes de recuperación entorno al 98% para muestras de agua en concentraciones de 400 y 800 ng/L. Los resultados obtenidos se presentan en la Tabla 2. Las concentraciones de Sb se encuentran en el rango de  $0.06 \pm 0.02$  a  $2.21 \pm 0.40 \mu\text{g[Sb]/L}$  en el agua embotellada, siendo las muestras que mayor concentración de Sb presentaron las siguientes: PET-10, PET-11, PET-8, PET-9, PET-6 y PET-12 con un contenido de Sb de  $2.21 \pm 0.10$ ,  $1.82 \pm 0.10$ ,  $1.47 \pm 0.21$ ,  $1.13 \pm 0.11$ ,  $1.08 \pm 0.21$ , y  $1.06 \pm 0.07 \mu\text{g/L}$ , respectivamente. Sin embargo, ninguna superó el límite máximo permitido para agua potable establecido por la Unión Europea (UE) que es de 5  $\mu\text{g/L}$ .

**Tabla 2.** Determinación de Sb lixiviado en el agua embotellada de diversas marcas comerciales (n = 3).

No. de Muestra	Clave	Concentración de Sb [ $\mu\text{g/L}$ ]
1	PET-1	$0.28 \pm 0.06$
2	PET-2	$0.31 \pm 0.02$
3	PET-3	$0.31 \pm 0.13$
4	PET-4	$0.41 \pm 0.14$
5	PET-5	$0.06 \pm 0.02$
6	PET-6	$1.08 \pm 0.28$
7	PET-7	$0.75 \pm 0.08$
8	PET-8	$1.47 \pm 0.21$
9	PET-9	$1.13 \pm 0.11$
10	PET-10	$2.21 \pm 0.10$
11	PET-11	$1.82 \pm 0.10$
12	PET-12	$1.06 \pm 0.07$

### 3.2 Determinación de Sb total en el plástico PET.

Una vez digeridas las muestras de PET, se procedió a determinar la concentración total de Sb que fue en el intervalo de  $68.6 \pm 6.1$  hasta  $110.1 \pm 9.1 \text{ mg[Sb]/Kg}$  de PET, tal y como se presenta en la Tabla 3, siendo las muestras que presentaron un mayor contenido de Sb en su matriz plástica las siguientes: PET-2, PET-4, PET-5, PET-3 y PET-6, con un concentración de  $110.1 \pm 9.1$ ,  $107.4 \pm 10.6$ ,  $95.5 \pm 9.0$ ,  $93.9 \pm 5.5$  y  $90.5 \pm 5.6 \text{ mg[Sb]/kg}$  de PET, respectivamente.

**Tabla 3.** Determinación del contenido total de Sb en las 12 muestras comerciales de PET por digestión ácida asistida por microondas.

No. de Muestra	Clave	Concentración de Sb [ $\text{mg/kg}$ ]
1	PET-1	$78.0 \pm 8.9$
2	PET-2	$110.1 \pm 9.1$
3	PET-3	$93.9 \pm 5.5$
4	PET-4	$107.4 \pm 10.6$
5	PET-5	$95.5 \pm 9.0$
6	PET-6	$90.5 \pm 5.6$
7	PET-7	$68.6 \pm 6.1$
8	PET-8	$72.6 \pm 7.7$
9	PET-9	$72.2 \pm 7.2$
10	PET-10	$75.9 \pm 8.1$
11	PET-11	$85.8 \pm 7.3$
12	PET-12	$82.8 \pm 6.3$

El rango de concentración de Sb encontradas en el análisis del PET concuerda con el estudio realizado por Saowaluk *et al.* [15] donde se reportando una concentración de Sb en la matriz de PET en el intervalo de 0.1 a 216 mg/kg.

### 3.3 Evaluación de las condiciones que favorecen la lixiviación de Sb del material PET.

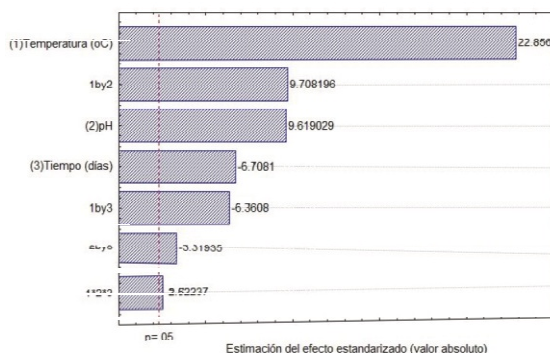
En la Tabla 4 se muestran los resultados obtenidos del diseño de experimentos factorial completo  $2^3$ , como respuesta se consideró el porcentaje de lixiviación. La muestra donde se evaluaron las condiciones de lixiviación fue PET-2 ya que presentó la mayor concentración de Sb, de la cual se cortaron en trozos pequeños de aproximadamente  $5 \times 4 \text{ cm}$  (ver apartado 2.2 y 2.4) y posteriormente fueron analizadas por HG/AFS. Se calculó el porcentaje de lixiviación a partir del contenido total de Sb obtenido por digestión ácida.

**Tabla 4.** Porcentaje de lixiviación para cada uno de los experimentos resultantes del diseño factorial 2<sup>3</sup> aplicado a la muestra PET-2.

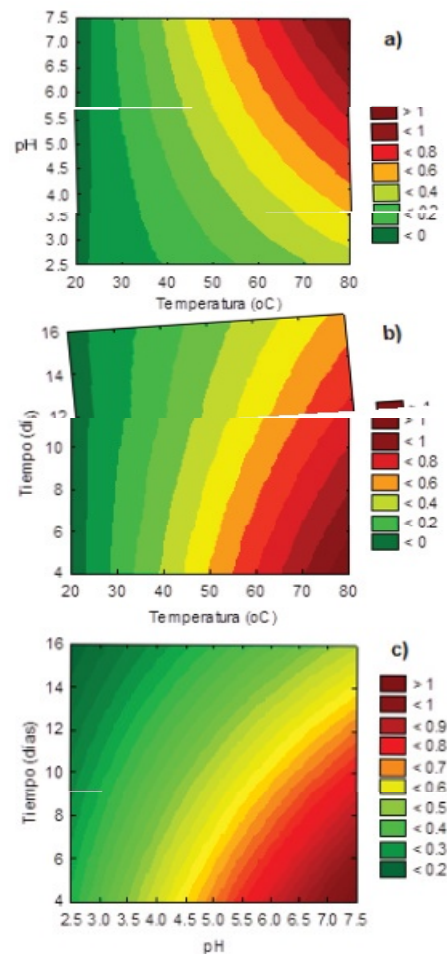
Exp.	Réplica	T (°C)	pH	t (días)	Lixiviación de Sb (%)
1	1	25	3	5	0.012
2	1	75	3	5	0.097
3	1	25	7	5	0.020
4	1	75	7	5	0.210
5	1	25	3	15	0.023
6	1	75	3	15	0.071
7	1	25	7	15	0.018
8	1	75	7	15	0.144
9	2	25	3	5	0.018
10	2	75	3	5	0.104
11	2	25	7	5	0.025
12	2	75	7	5	0.234
13	2	25	3	15	0.019
14	2	75	3	15	0.060
15	2	25	7	15	0.015
16	2	75	7	15	0.117

Con los porcentajes de lixiviación obtenidos se procedió al análisis de los resultados estadísticos con ayuda del software STATISTICA v8.0.

Como se puede observar en la Figura 1, las tres variables evaluadas en este diseño, temperatura (T), pH y tiempo de lixiviación (t), tienen un efecto significativo sobre la lixiviación del Sb, siendo la variable que ejerce una mayor influencia de forma positiva sobre el proceso de lixiviación la T, en menor medida el pH y posteriormente con una influencia negativa el tiempo de lixiviación (t). De igual manera las interacciones entre las variables estudiadas, presentan un efecto significativo en la lixiviación, siendo la interacción entre la T y pH la que ejerce una mayor influencia.



**Figura 1.** Gráfico de Pareto para el diseño de experimentos factorial 2<sup>3</sup> evaluado en la muestra PET-2.



**Figura 2.** Gráfico de superficie de respuesta para la lixiviación de Sb obtenido de acuerdo a las condiciones evaluadas en el diseño de experimentos.

En la Figura 2 (a, b y c) se presenta el gráfico de superficie de respuesta para la función de deseabilidad donde se puede observar que las condiciones donde se presenta mayor porcentaje de lixiviación de Sb de la matriz de PET corresponde a temperatura de 75°C, pH de 7.0 y a un tiempo de exposición de 5 días, por lo que se establecieron estas condiciones para llevar a cabo el proceso de lixiviación a las 12 marcas comerciales de PET, utilizado para embotellar agua para consumo. Estos resultados coinciden con lo previamente descrito [8, 14, 15] donde se reporta que temperaturas mayores de 60°C favorecen la lixiviación de antimonio. En el caso del efecto del pH, aunque Saowaluk *et al.* [15] describe que pH ácidos (disoluciones de ácido acético al 4%) favorecen la lixiviación de antimonio, en un estudio realizado por Sánchez *et al.* [13] no encontró una diferencia significativa en la concentración de Sb lixiviable del PET a partir de agua y en disoluciones de ácido acético al 3%.

### 3.4 Determinación del contenido de Sb lixiviable bajo las condiciones que favorecieron la lixiviación.

Bajo las condiciones establecidas en el diseño de experimentos se realizó el estudio de lixiviación para las 12 marcas comerciales de PET, los resultados obtenidos se presentan en la Tabla 5 para muestras de PET estudiadas, después de 5 días a 70°C y pH 7.0.

**Tabla 5.** Sb lixiviado bajo las condiciones obtenidas del diseño de experimentos factorial para cada una de las marcas analizadas (n = 3).

No. de Muestra	Clave	Antimonio lixiviado [µg/L]
1	PET-1	1.2±0.1
2	PET-2	7.3±0.5
3	PET-3	3.2±0.2
4	PET-4	3.6±0.3
5	PET-5	16.4±0.3
6	PET-6	1.9±0.2
7	PET-7	4.7±0.4
8	PET-8	5.2±0.7
9	PET-9	3.2±0.3
10	PET-10	2.7±0.5
11	PET-11	3.4±0.6
12	PET-12	5.3±0.6

Se encontró un rango de concentración de Sb lixiviado que va desde 1.2±0.1 a 16.4±0.3 µg/L, de entre las cuales solo dos marcas están por arriba del límite máximo permitido para agua potable de la Unión Europea (UE) que es de 5 µg/L, siendo las muestras PET-5 con una concentración lixiviada de 16.4±0.3 µg/L, la cual contiene tres veces más del Sb permitido en agua potable, y PET-2 con 7.3±0.5 µg/L, por lo que estas dos muestras representa un riesgo para la salud de las personas que consuman el agua embotellada, siempre y cuando los envases de PET pudieran ser sometidos a las condiciones de temperatura, pH y tiempo, descritas en el apartado 3.3.

Por otro parte, tres de las 12 marcas analizadas están en el límite máximo permitido, dichas muestras fueron PET-12, PET-8, y PET-7 con concentraciones de Sb lixiviado de 5.3±0.6, 5.2±0.7 y 4.7±0.4 µg/L, respectivamente. Por lo que estas muestras al estar en el límite máximo permitido de igual forma un riesgo potencial para la salud humana.

Con respecto al resto de las muestras todas están por debajo del límite máximo permitido por la Unión Europea por lo que estas muestras bajo las condiciones descritas anteriormente no representan un riesgo a la salud de aquellas personas que pudieran consumir el agua embotellada en PET.

### 4. Conclusiones

El Sb está presente en la matriz polimérica de las botellas de PET, las cuales son usadas como contenedores para agua de consumo humano, el cual varía en su concentración según la marca comercial del contenedor, además de que éste se puede determinar con una buena precisión por medio de la técnicas de espectroscopia de fluorescencia atómica con sistema de generación de hidruros (HG/AFS), permitiendo así la determinación de Sb a concentraciones bajas, a su vez el procedimiento de preconcentración implementado permitió la determinación de antimonio en el orden de partes por trillón (ng/L). El Sb es capaz de lixiviarse hacia el agua que contiene dichos contenedores, en diferente medida según sea el contenido de Sb en el material plástico, o posiblemente también a las condiciones a las cuales se hayan sometidos las botellas durante su almacenamiento (temperatura y tiempo). La condición que principalmente afecta la lixiviación del Sb fue la temperatura, por lo que las botellas que se encuentren almacenadas a temperaturas altas son muy susceptibles a lixiviar Sb. Por otra parte el pH también presenta una influencia considerable, ya que a valores de pH alrededor de 7.0 se presentó un mayor grado de lixiviación, por lo que se presenta un mayor riesgo para la salud humana al beber agua embotellada en PET, bajo estas condiciones.

### 5. Agradecimientos

Los autores agradecen el apoyo económico otorgado por el Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACyT) Ciencias Básica proyectos 177990 y 167372; y a la Facultad de Ciencias Químicas, UANL.

### 6. Referencias

1. National Association for PET Container Resources, PET Basics PET Features, Benefits & Information Resources, 20/02/14 10:00 am [www.napcor.com](http://www.napcor.com).
2. TFO CANADA (2010) Plastic packaging films & laminates; properties, specifications & purchasing, 17-22. Workshop: Procurement of Packaging for Exports. Guyana, April 19-23.
3. EnvaPack, Revista Online del Encase, Empaque y Embalaje, 2003, El polietilenterftalato, politereftalato de etileno, PET. 20/02/14 10:25 am. <http://www.envapack.com/216/>.
4. Webb H., Arnott J., Crawford R., Ivanova E., (2013) Plastic degradation and its environmental implications with special reference to Poly(ethylene terephthalate), *Polymers*, 5, 1-18.
5. Radulović J., (2006) Degradation of polyethylene terephthalate in natural conditions, *Scientific-Technical Review*, 56, 45-51.
6. Ramírez Z. (2011) Bajo tierra, el negocio de reciclaje de PET. *El Universal*, 20/02/14 10:45 am. <http://www.eluniversal.com.mx/notas/812230.html>.
7. World Health Organization (2003) Water Sanitation Health "Antimony in drinking-water, background document for development of WHO Guidelines for Drinking-water Quality", 17-18.

8. Westerhoff P., Prapaipongb P., Shock E., Hillaireaud A., (2008) Antimony leaching from polyethylene terephthalate (PET) plastic used for bottled drinking water, *Water Res.*, 42, 551–556.
9. Gebel T., (1997) Arsenic and antimony: comparative approach on mechanistic toxicology, *Chem. Biol. Interact.* 107, 131-144.
10. Diario Oficial de la Unión Europea (2011) reglamento (UE) No 10/2011 de la comisión de 14 de enero de 2011 sobre materiales y objetos plásticos destinados a entrar en contacto con alimentos, 86.
11. Andra S., Makris K., Shine J., Lu C., (2011) Co-leaching of brominated compounds and antimony from bottled water, *Environ. Int.* 38, 45–53.
12. Rungchang S, Numthuam S., Qiu X., Li Y., Takaai S., (2013) Diffusion coefficient of antimony leaching from polyethylene terephthalate bottles into beverages, *J. Food Eng.* 115, 323-329.
13. Sánchez M., Pérez C., Cámara C., Madrid Y., (2013) Migration of antimony from PET containers into regulated EU food simulants, *Food Chem.*, 141, 816–822.
14. Carneado S., Hernández E., López J., Sahuquillo A., (2015) Migration of antimony from polyethylene terephthalate used in mineral water bottles, *Food Chem.*, 166, 544-550.
15. Saowaluk R., Sonthaya N., Xiaoli Q., Yanjie L., Takaaki S., (2013) Diffusion coefficient of antimony leaching from polyethylene terephthalate bottles into beverages, *J. Food Eng.* 115, 323-329.

