

Atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen

Een verkenning van de literatuur verschenen na 2003

J.W. Deneer & R. Kruijne

werkdocumenten



wot

Wetenschappelijke Onderzoekstaken Natuur & Milieu



WAGENINGEN UR

For quality of life

Atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen

De reeks 'Werkdocumenten' bevat tussenresultaten van het onderzoek van de uitvoerende instellingen voor de unit Wettelijke Onderzoekstaken Natuur & Milieu (WOT Natuur & Milieu). De reeks is een intern communicatiemedium en wordt niet buiten de context van de WOT Natuur & Milieu verspreid. De inhoud van dit document is vooral bedoeld als referentiemateriaal voor collega-onderzoekers die onderzoek uitvoeren in opdracht van de WOT Natuur & Milieu. Zodra eindresultaten zijn bereikt, worden deze ook buiten deze reeks gepubliceerd.

Dit werkdocument is gemaakt conform het Kwaliteitshandboek van de WOT Natuur & Milieu en is goedgekeurd door Jennie van der Kolk (deel)programmameider WOT Natuur & Milieu.

WOT-werkdocument **161** is het resultaat van een onderzoeksopdracht van het Planbureau voor de Leefomgeving (PBL), gefinancierd door het Ministerie van Landbouw, Natuur en Voedselkwaliteit (LNV). Dit onderzoeksrapport draagt bij aan de kennis die verwerkt wordt in meer beleidsgerichte publicaties zoals Natuurbalans, Milieubalans en thematische verkenningen.

Atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen

Een verkenning van de literatuur
verschenen na 2003

J.W. Deneer

R. Kruijne

Werkdocument 161

Wettelijke Onderzoekstaken Natuur & Milieu

Wageningen, maart 2010

©2010 **Alterra – Wageningen UR**

Postbus 47, 6700 AA Wageningen

Tel: (0317) 48 07 00; fax: (0317) 41 90 00; e-mail: info.alterra@wur.nl

De reeks WOt-werkdocumenten is een uitgave van de unit Wettelijke Onderzoekstaken Natuur & Milieu, onderdeel van Wageningen UR. Dit werkdocument is verkrijgbaar bij het secretariaat. **Het document is ook te downloaden via www.wotnatuurenmilieu.wur.nl.**

Wettelijke Onderzoekstaken Natuur & Milieu, Postbus 47, 6700 AA Wageningen

Tel: (0317) 48 54 71; Fax: (0317) 41 90 00; e-mail: info.wnm@wur.nl; Internet: www.wotnatuurenmilieu.wur.nl

Alle rechten voorbehouden. Niets uit deze uitgave mag worden veelevoudigd en/of openbaar gemaakt door middel van druk, fotokopie, microfilm of op welke andere wijze ook zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van de uitgever. De uitgever aanvaardt geen aansprakelijkheid voor eventuele schade voortvloeiend uit het gebruik van de resultaten van dit onderzoek of de toepassing van de adviezen.

Inhoud

Samenvatting	7
1 Inleiding	11
1.1 Algemeen	11
1.2 Doelstelling	11
2 Gebruikte literatuur	13
3 Depositie op middenlange afstand en landbouwkundig gebruik	15
3.1 Inleiding	15
3.2 Temporeel verband tussen gebruik en depositie	15
3.3 Ruimtelijk verband tussen gebruik en depositie	16
3.4 Welke gewasbeschermingsmiddelen worden in depositie aangetroffen?	17
3.5 Welke concentraties gewasbeschermingsmiddelen worden in natte depositie aangetroffen?	19
3.6 Het relatieve belang van droge en natte depositie	21
3.7 Vergelijking vrachten oppervlaktewater via atmosferische depositie en spuitdrift	22
4 Schatting van risico's en effecten	27
4.1 Inleiding	27
4.2 Vertaling van depositie naar blootstelling	27
4.3 Waargenomen effecten als gevolg van atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen	30
5 Conclusies en discussie	33
5.1 Conclusies	33
5.2 Discussie	34
5.3 Aanbeveling voor de EDG-2010	35
Literatuur	37
Bijlage 1 Samenvattingen van de gevonden studies	43

Samenvatting

In deze verkenning wordt een inventarisatie gegeven van literatuur over atmosferische depositie die na 2003 is verschenen. Er wordt getracht inzicht te krijgen in hoeverre er sprake is van een kwantitatief verband tussen het landbouwkundig gebruik van gewasbeschermingsmiddelen en hun depositie op middenlange afstand, en of atmosferische depositie van belang is voor risico's voor waterleven (en indien mogelijk: bodemleven) in natuurgebieden. Op basis hiervan kan tevens worden beoordeeld of het wenselijk is om atmosferische depositie een rol te laten spelen in beleidsevaluaties zoals EDG-2010 (Evaluatie Duurzame Gewasbescherming).

In de periode 2003 tot mei 2009 is een aantal (ca. 40) studies gepubliceerd over metingen van de concentraties van gewasbeschermingsmiddelen in lucht en/of neerslag. Een groot deel van de studies is uitgevoerd in Canada en de Verenigde Staten van Amerika, maar ook in Aziatische landen werd in deze periode onderzoek naar atmosferische depositie verricht. Binnen Europa blijken vooral in Duitsland en Frankrijk groepen actief. Er werden slechts drie rapportages gevonden die metingen in Nederland beschrijven.

Verband tussen landbouwkundig gebruik en depositie

Veel studies vinden een relatief duidelijk verband tussen het landbouwkundig gebruik van gewasbeschermingsmiddelen en hun aantreffen in lucht en neerslag. Veel moderne gewasbeschermingsmiddelen zijn weinig persistent in lucht en worden daarom alleen in lucht en depositie aangetroffen tijdens en kort na de periode waarin zij in de landbouw worden gebruikt. Sommige oudere (niet meer toegelaten) gewasbeschermingsmiddelen worden gedurende het hele jaar aangetroffen. Dit betreft vooral organochloorverbindingen. Algemeen geldt dat stoffen alleen buiten hun toepassingsperiode in depositie worden aangetroffen als zij slechts langzaam worden afgebroken.

Dicht bij de plaats van toepassing worden vaak hogere concentraties aangetroffen dan ver verwijderd van de plaats van toepassing. Voor een aantal Nederlandse locaties lijken de verschillen die zijn gevonden voor aangetroffen gewasbeschermingsmiddelen een afspiegeling te zijn van het verschillende middelengebruik in de gebieden. Snelle menging en transport via de atmosfeer betekent echter dat gewasbeschermingsmiddelen snel na gebruik tot op grote afstand (tientallen km en verder) kunnen worden getransporteerd om vervolgens via natte en/of droge depositie op bodem, vegetatie en oppervlaktewater terecht te komen.

Pogingen om natte depositie te relateren aan fysisch-chemische eigenschappen lijken niet erg goed ontwikkeld; er bestaan geen algemeen geaccepteerde methoden om depositie kwantitatief te voorspellen op basis van stofeigenschappen. Wel lijkt afbraak in lucht een belangrijke rol te spelen bij de mate van depositie die op kan treden. Empirische bepalingen van gewasbeschermingsmiddelen in depositie en lucht schetsen een beeld dat op veel locaties een breed scala aan gewasbeschermingsmiddelen wordt aangetroffen, waarbij de verbindingen die in de naaste omgeving worden toegepast meestal in hogere concentraties worden gevonden dan de verbindingen die in de naaste omgeving niet worden toegepast.

De onzekerheden in de uitkomsten van berekeningen met modellen als OPS ((Operationeel model Prioritaire Stoffen) kunnen voor individuele gewasbeschermingsmiddelen groot (> 3x) zijn, mede door het ontbreken van een geverifieerd theoretisch raamwerk dat inzicht geeft welke stofeigenschappen bepalend zijn voor depositie.

Eventuele landsdekkende modelberekeningen kunnen wel een beeld geven van de effecten van Nederlands beleid op een deel van de depositie die in Nederland optreedt, maar dit beschrijft niet de depositie in Nederland als gevolg van gebruik in het buitenland. Metingen van depositie zullen deels worden beïnvloed door wijzigingen in buitenlands beleid.

Uit een vergelijking van de atmosferische depositie (metingen uitgevoerd in 2001) en de te verwachten spuitdrift (rekening houdend met de implementatie van driftreducerende maatregelen zoals die golden in 2004) blijkt dat de atmosferische depositie van chloorprofaam en vinchlozolin tenminste 4,7 resp. 7,9 maal lager was dan de driftdepositie die in relevante gewassen op zou treden. Voor stoffen met lagere dampdruk (95% van de in 2004 in Nederland toegelaten gewasbeschermingsmiddelen) mag worden verwacht dat minder emissie naar lucht op zal treden en daardoor relatief minder atmosferische depositie op zal treden dan voor chloorprofaam en vinchlozolin.

Effecten en risico's

In veel studies zijn mediane concentraties van insecticiden en fungiciden in regenwater gevonden die lager dan 100 ng/L waren, terwijl de mediane concentraties van herbiciden tot 1000 ng/L kunnen oplopen. Dit zijn gemiddelde concentraties voor grote groepen van gewasbeschermingsmiddelen, en de concentraties voor een enkel gewasbeschermingsmiddel kunnen hier sterk van afwijken. Onder ongunstige omstandigheden (hoog verbruik, depositie dicht bij de locatie van gebruik, kortdurende regenbui) kunnen ook hogere concentraties in regenwater optreden. Veel studies waarin gerapporteerd wordt over de gevonden concentraties geven daarnaast geen of weinig informatie over de stoffen die niet zijn gevonden. Dit maakt het onmogelijk om algemene uitspraken over depositieniveaus over langere perioden en op verschillende schaalniveaus te doen.

Op basis van gemeten en/of berekende deposities kunnen concentraties in oppervlaktewater en bodem worden berekend. Er bestaat geen algemeen geaccepteerde procedure om deze 'vertaling' uit te voeren. Een eenvoudige methode om acute risico's te beoordelen kan aansluiten bij de principes zoals die nu in de Nederlandse toelating worden gehanteerd (neerslag valt op een sloot met stagnant water, waarna menging optreedt; depositie op bodem wordt over de bovenste 5 cm vermengd). Om chronische risico's te beoordelen, moet wellicht de afbraak van het gewasbeschermingsmiddel in water of bodem worden verdisconteerd om een 'time weighed average' concentratie te berekenen die aan een chronische toxiciteitswaarde kan worden getoetst.

Waarnemingen van toxische effecten op waterleven en/of bodemleven als gevolg van atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen zijn in de bestudeerde literatuur niet aangetroffen. In twee studies zijn effecten van opgevangen regenwater op watervlooiën resp. op een in-vitro enzym assay (remming van acetylcholine-esterase) aangetoond. In een studie waarbij gewasbeschermingsmiddelen via depositie in het oppervlaktewater terecht waren gekomen bleek dat de concentraties in het oppervlaktewater circa 300 maal lager waren dan nodig om acute en/of chronische effecten in watervlooiën te veroorzaken. Bij bepaling van residuen van gewasbeschermingsmiddelen in organismen worden veelal hogere residuen gevonden in organismen die benedenwinds van intensief agrarisch gebruikte gebieden zijn verzameld. Vooral organochloor en organofosfor insecticiden worden in verband gebracht met verhoogde residuen en effecten, wat mogelijk het gevolg is van de veelal lage afbreekbaarheid en de beschikbaarheid van zeer gevoelige analyse en bio-assay methoden voor deze typen gewasbeschermingsmiddelen.

Er zijn geen concrete aanwijzingen dat atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen in natuurgebieden in Nederland tot een verhoogd risico voor water- en/of

bodemleven leidt. De maximale concentraties die in regenwater worden aangetroffen kunnen echter soms zo hoog zijn (honderden ng/L voor fungiciden en insecticiden, voor herbiciden nog hoger) dat niet te allen tijde kan worden uitgesloten dat er risico's op effecten zijn.

Aanbeveling voor de EDG-2010

In 2011 wordt het Nederlandse gewasbeschermingsbeleid geëvalueerd (EDG-2010), zoals verwoord in de Nota Duurzame Gewasbescherming. In de nota is de operationele doelstelling voor het oppervlaktewater gedefinieerd als een reductie van de milieubelasting gedurende de evaluatieperiode 1998 - 2008. Met landsdekkende modelberekeningen voor Nederland kan een beeld worden gegeven van dat deel van de depositie dat afkomstig is uit Nederland, maar de gegevens ontbreken om de depositie in Nederland als gevolg van gebruik van gewasbeschermingsmiddelen in het buitenland vast te stellen.

Het grensoverschrijdend transport van gewasbeschermingsmiddelen in de atmosfeer over middenlange afstand maakt dat het bijzonder lastig is om de gevolgen te bepalen van het Nederlands gewasbeschermingsbeleid voor de atmosferische depositie in natuurgebieden in Nederland. Op grond van deze overweging, en de conclusie dat er in de onderzochte literatuur geen concrete aanwijzingen zijn gevonden dat atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen in natuurgebieden in Nederland tot een verhoogd risico voor water- en/of bodemleven leidt, wordt geadviseerd om de atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen in natuurgebieden in Nederland in de EDG-2010 buiten beschouwing te laten.

1 Inleiding

1.1 Algemeen

Veel gewasbeschermingsmiddelen (gbm) vinden hun weg naar het milieu via bespuiting van gewas en bodem bij toepassingen om onkruiden, schimmels of insecten te bestrijden, zowel in de open als in de bedekte teelten. Een deel van het gebruikte middel zal tijdens of na de toepassing vervluchtigen. Na transport door de lucht kan een deel door bodem, vegetatie en water worden ingevangen. Tijdens transport door de lucht kan na invangen door precipitatie (regen, sneeuw, mist) een deel de grond bereiken. Deze atmosferische depositie kan zowel op korte afstand (enkele meters) van de plek van toepassing plaatsvinden, maar zal door transport in de atmosfeer ook optreden in gebieden die (zeer) ver verwijderd zijn van de plaatsen waarop de gewasbeschermingsmiddelen werden toegepast, en kan in die gebieden mogelijk aanleiding geven tot negatieve effecten op waterleven en bodemleven. Uit metingen van gewasbeschermingsmiddelen in regenwater is duidelijk geworden dat ook in Nederland depositie optreedt in gebieden waar deze middelen niet worden gebruikt (zie bijv. Van Zalinge, 2000; Duyzer en Vonk, 2002). Er is echter slechts weinig bekend over de effecten die dit mogelijk heeft op waterleven en terrestrische natuur.

De meest recente studie over depositie van gewasbeschermingsmiddelen in Nederland en wat dit betekent in termen van mogelijke risico's voor waterleven is in 2004 opgesteld (Deneer *et al.*, 2004). Deze studie maakte gebruik van gegevens tot en met 2002. De rapportage van FOCUS (2008) geeft een overzicht van gegevens tot 2004. Onduidelijk is in hoeverre sindsdien nieuwe gegevens beschikbaar zijn gekomen die eventueel tot nieuwe inzichten kunnen leiden. Intussen is ook het gebruik van modellen voor de schatting van atmosferische depositie gevorderd. Het is echter onduidelijk in hoeverre de uitkomsten van dergelijke modellen stroken met experimentele meetgegevens.

In de Nationale Milieu Indicator (NMI) is het mogelijk om de emissie van gewasbeschermingsmiddelen via vervluchtiging als gevolg van landbouwkundig gebruik te schatten, op basis van een gedetailleerde, landsdekkend gemiddelde beschrijving van toepassingen in uiteenlopende teelten. Indien zou blijken dat de toepassing van gewasbeschermingsmiddelen tot risico's in natuurgebieden kan leiden, zou het wenselijk zijn als kwantitatieve methoden om deze risico's te schatten beschikbaar zouden zijn. Op basis van NMI-resultaten voor het jaar 2004 is het model OPS (Operationeel model Prioritaire Stoffen) ingezet voor landsdekkende berekening van deposities op natuurgebieden en voor een risicoschatting volgens de (ms)PAF-methode (De Nijs *et al.*, 2008). In hoeverre het technisch mogelijk is en of het uit kostenoverweging efficiënt is om de principes van bestaande depositiemodellen te combineren met de NMI, is op dit moment echter onduidelijk.

1.2 Doelstelling

Het doel van deze verkenning is om een inventarisatie te geven van de nieuwste literatuur over atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen en, zo mogelijk, hieruit conclusies te trekken omtrent de mate waarin atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen van belang is voor het waterleven in natuurgebieden. Met dit inzicht kan worden beoordeeld in hoeverre het wenselijk is om deze route een rol te laten spelen in berekeningen ter

ondersteuning van beleidsevaluaties zoals de eindevaluatie van de Nota Duurzame Gewasbescherming (EDG-2010).

De volgende onderzoeksvragen zijn geformuleerd om het inzicht te verkrijgen in welke mate atmosferische depositie van belang is voor de waterkwaliteit en welke stoffen hierbij betrokken zijn;

1. Is er een kwantitatief verband tussen de depositie op middenlange afstand en landbouwkundig gebruik van gewasbeschermingsmiddelen aan te geven?
2. Zijn er risico's als gevolg van depositie in natuurgebieden voor het waterleven en terrestrische natuur te verwachten?
3. Is het wenselijk om dit kwantitatieve verband (ad 1) te combineren met de NMI-berekeningen in het kader van de EDG-2010?

Deze verkenning is globaal opgebouwd rondom de eerste twee onderzoeksvragen, welke de basis vormen voor een aanbeveling met betrekking tot de derde vraag.

Voor sommige van de deelvragen zal het antwoord mogelijk op een 'indirecte' wijze moeten worden gegeven doordat het niet altijd mogelijk zal zijn de vraag te beantwoorden op basis van de gevonden literatuur, maar de literatuur wel een indicatie geeft van de voortgang van het onderzoek op dat specifieke terrein. Elke paragraaf zal zoveel mogelijk worden afgesloten met een of meer conclusies die zoveel mogelijk aansluiten op bovengenoemde onderzoeksvragen en deelvragen. De conclusies van de afzonderlijke paragrafen zijn ook in verzamelde vorm terug te vinden in paragraaf 5.1.

2 Gebruikte literatuur

Beoordeling van de juistheid en volledigheid van de gebruikte gegevens en hun interpretatie door de auteurs kon in deze studie slechts zeer beperkt worden uitgevoerd. Om deze reden zijn de conclusies zoals die in de oorspronkelijke literatuur door de auteurs zijn verwoord in hun geheel overgenomen.

Er is uitsluitend naar literatuur gezocht die in 2003 of later was gepubliceerd, met behulp van de in 'Wageningen Desktop Library' beschikbare literatuur-zoekmachine Scopus.

In Scopus zijn in maart 2009 de volgende zoektermen ingevoerd, met als veldkeuze 'article title, abstract, keywords'; tevens wordt het aantal gevonden referenties weergegeven:

(atmos* AND depos*) AND (pestic* OR gewasbes* OR plant) → 1372

(depos* AND pestic*) AND (effect* OR effek*) → 351

(precipitat* AND (pestic* OR prot* OR gewasb*)) → 225

(rain OR regen) AND (pestic* OR gewasb*) → 312

(precip* OR depos*) AND (pestic* OR gewasbes*) AND (effect* OR effek*) → 422

Daarnaast is voor een aantal auteurs gezocht op naam:

Asman, W.A.H.

George, T.K.

Teil, M.-J.

Siebers, J.

Van de gevonden referenties is op basis van de titel nauwkeuriger bepaald of zij op het gezochte onderwerp van toepassing waren. De zoektocht resulteerde in een veertigtal recente publicaties (zie Literatuurlijst). Korte samenvattingen van de gevonden studies zijn weergegeven in Bijlage 1.

Er blijkt na 2002 een groot aantal (vrijwel uitsluitend buitenlandse) studies te zijn gepubliceerd met rapportages van de metingen van de concentraties van gewasbeschermingsmiddelen in lucht dan wel depositie van gewasbeschermingsmiddelen. Het merendeel van deze studies is uitgevoerd in Canada en de Verenigde Staten van Amerika; ook in Aziatische landen groeit echter steeds meer het besef dat atmosferische depositie bij de verspreiding van gewasbeschermingsmiddelen een rol kan spelen. Binnen Europa blijken sinds 2002 vooral in Duitsland en Frankrijk wetenschappelijke groepen actief te zijn die zich met de atmosferische verspreiding en depositie van gewasbeschermingsmiddelen bezig houden. Het aantal na 2002 gerapporteerde metingen in Nederland is zeer beperkt; slechts drie rapportages werden gevonden.

3 Depositie op middenlange afstand en landbouwkundig gebruik

3.1 Inleiding

Resultaten uit de rapportage van de FOCUS Working Group on Pesticides in Air (FOCUS, 2008) worden in onderstaande tekst geregeld aangehaald. Deze rapportage was gericht op kennis over depositie op het water- en landoppervlak direct naast het behandeld perceel (transport over korte afstand) en op transport over de lange afstand, van gewasbeschermingsmiddelen die vervluchtigen tijdens of na de toediening. De FOCUS-werkgroep heeft werkdefinities gegeven voor de korte afstand (tot 1 km) en de lange afstand (> 1000 km). De thans uitgevoerde literatuurstudie richt zich vooral op atmosferische depositie op middenlange afstand van de bron (van 1 tot honderden km). Over depositie op middenlange afstand zijn door FOCUS geen uitspraken gedaan. Hierdoor zijn sommige resultaten en conclusies uit het FOCUS-rapport niet van toepassing voor deze verkenning. Dit neemt niet weg dat de rapportage van FOCUS (2008) de meest omvattende samenvatting geeft van de stand van kennis over atmosferisch transport en depositie van gewasbeschermingsmiddelen die op dit moment beschikbaar is.

Begrippen

De belangrijkste bronnen van gewasbeschermingsmiddelen in de lucht zijn vervluchtiging tijdens en gedurende de periode na de toepassing (op locatie). Daarnaast kan op plaatsen waar na transport door de lucht depositie van een gewasbeschermingsmiddel is opgetreden een deel van het middel opnieuw vervluchtigen (herverdampen).

Met de term ***atmosferische depositie*** wordt bedoeld de som van droge depositie en natte depositie. Onder ***droge depositie*** verstaan we de hoeveelheid gewasbeschermingsmiddel als damp of gebonden aan deeltjes wordt ingevangen door bodem, vegetatie en wateroppervlak. Onder ***natte depositie*** verstaan we de hoeveelheid gewasbeschermingsmiddel die door precipitatie (regen, sneeuw, mist) terecht komt op bodem, vegetatie en wateroppervlak.

Onder ***drift*** wordt verstaan het verwaaien van fijne druppeltjes spuitvloeistof die ontstaan tijdens het spuiten, en waarvan een deel op korte afstand van de bron (tot enkele tientallen meter) op aangrenzend land- en wateroppervlak terecht kan komen.

Conform de rapporten die zijn verschenen in het kader van de tussenevaluatie van de Nota Duurzame gewasbescherming wordt de term belasting gebruikt in de zin van milieurisico's (en niet in de zin van een hoeveelheid).

3.2 Temporeel verband tussen gebruik en depositie

Uit een inventarisatie door Dubus *et al.* (2000) en gepubliceerd in FOCUS (2008) wordt voor een zeer brede groep van gewasbeschermingsmiddelen geconcludeerd dat er voor Europese meetgegevens een goede correlatie was tussen de aanwezigheid en het optreden van een maximale concentratie van een gewasbeschermingsmiddel in depositie en de periode van lokaal gebruik. Er werden soms ook gewasbeschermingsmiddelen in regenwater aangetroffen op momenten die niet overeenkwamen met de lokale periode van gebruik, of op plekken ver

verwijderd van toepassing, wat duidt op enige vorm van transport via de atmosfeer over grotere afstanden.

Vergelijkbare resultaten werden ook bijv. door Scheyer *et al.* (2007) en Sauret *et al.* (2009) gerapporteerd. Bernhardt en Ruck (2004) vinden een aantal herbiciden aan de rand van een beukenbos gedurende en kort na toepassing van deze gewasbeschermingsmiddelen op een bovenwinds gelegen landbouwgebied.

De gegevens van de Rossi *et al.* (2003) waarbij tegelijkertijd deposities van zowel gewasbeschermingsmiddelen als polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAKS) werden gemeten, laten zien dat PAKS gedurende het hele jaar werden aangetroffen, terwijl gewasbeschermingsmiddelen alleen in de periode van toepassing (voorjaar en zomer) in regenwater werden opgevangen.

Van Dijk en Guicherit (1999) concluderen dat relatief vluchtige verbindingen met lage persistentie, bijv. alachlor en metolachloor, vaak korte maar hoge piekconcentraties geven die sterk beperkt zijn tot de periode van toepassing, terwijl meer persistente en minder vluchtige verbindingen, zoals lindaan, atrazin, simazin en 2,4-D, minder hoge piekconcentraties geven maar langer na hun toepassing in de lucht en in neerslag terug zijn te vinden.

Conclusie

Stoffen kunnen alleen buiten hun toepassingsperiode in depositie worden aangetroffen als zij slechts langzaam worden afgebroken.

3.3 Ruimtelijk verband tussen gebruik en depositie

Hiermee is echter nog niet de vraag beantwoord wat de 'reikwijdte' is van gewasbeschermingsmiddelen bij transport via de atmosfeer. Tot hoever kunnen deze verbindingen worden getransporteerd buiten hun gebied van toepassing, om vervolgens tot depositie op de grond en op het oppervlaktewater te leiden?

Van Dijk en Guicherit (1999) concluderen dat, net als de oudere organochloor gewasbeschermingsmiddelen, ook de modernere gewasbeschermingsmiddelen niet alleen worden aangetroffen in lucht en regenwater in de directe omgeving van gebieden waar zij worden gebruikt, maar dat deze verbindingen ook meer afgelegen gebieden kunnen bereiken.

Veel van de meetprogramma's die in de literatuur na 2003 zijn beschreven, werden uitgevoerd op ten hoogste enkele km afstand van agrarisch gebied waar gewasbeschermingsmiddelen werden toegepast. In dichtbevolkte gebieden met intensief landgebruik laat dit zich bijna niet vermijden. Veelal waren de metingen dan vooral gericht op het aantreffen van gewasbeschermingsmiddelen waarvan bekend was dat ze in het gebied werden gebruikt. Er zijn veel minder meetprogramma's die op grote afstand van agrarisch gebied werden uitgevoerd, mogelijk doordat deze gebieden lastiger toegankelijk zullen zijn.

Scheyer *et al.* (2007) hebben van de nood een deugd gemaakt door tegelijkertijd metingen in regenwater uit te voeren op een landelijke en een stedelijke locatie. De stedelijke locatie was ca. 25 km verwijderd van de landelijke locatie en ca. 15 km verwijderd van het dichtstbijzijnde agrarische gebied. Verschillende van de in het landelijke gebied in regenwater aangetroffen gewasbeschermingsmiddelen werden eveneens, zij het in lagere concentraties, aangetroffen in het stedelijke gebied, bijv. atrazin, metolachloor, MCPA en Mecoprop. De auteurs concluderen dat hier sprake is van transport via de atmosfeer (over tenminste 15 km).

Vergelijkbare resultaten zijn door Sauret *et al.* (2009) beschreven voor de depositie van een negental gewasbeschermingsmiddelen in een bosachtig park binnen Strasbourg, waar geen agrarische activiteiten plaatsvonden binnen een straal van 5 km.

Muir *et al.* (2004) vonden in 30 meren in Canada en het noordoosten van de V.S. een groot aantal nog in gebruik zijnde gewasbeschermingsmiddelen, die ook in regenwater op verschillende locaties werden aangetroffen. Er vonden binnen enkele tientallen km van de meetlocaties geen agrarische activiteiten plaats, zodat de auteurs concluderen dat de middelen via atmosferisch transport over tenminste enkele tientallen km in de meren terecht zijn gekomen.

Vergelijkbare resultaten worden ook door onder andere Asman *et al.* (2005) gerapporteerd. In de in Denemarken opgevangen neerslag werden ook enkele verbindingen (atrazin, chloridazon, 2,4-D, disulfoton, fenitrothion, isoproturon, lenacil, metazachlor en propachlor) gevonden die op dat moment in Denemarken niet waren toegelaten, waaruit de auteurs concluderen dat transport vanuit het buitenland (tenminste 60 – 80 km, maar voor sommige verbindingen waarschijnlijk veel verder) moet hebben plaatsgevonden.

Tuduri *et al.* (2006b) komen in hun overzicht van de depositie van nog in gebruik zijnde gewasbeschermingsmiddelen in Canada tot de conclusie dat het niet altijd duidelijk is of de aanwezigheid in lucht en neerslag is geassocieerd met lokaal gebruik of met transport vanuit andere regio's.

Kuang *et al.* (2003) concluderen voor metingen aan de oostkust van de V.S. dat voor chloorthalonil en metolachloor ook gebruik buiten het gebied een niet onaanzienlijke bijdrage leverde aan de in een landbouwgebied opgetreden natte depositie.

Hamers *et al.* (2003) komen tot de conclusie dat de verschillen tussen een aantal Nederlandse locaties wat betreft aangetroffen pesticiden een afspiegeling zijn van de verschillen in middelengebruik tussen de verschillende gebieden.

Duyzer concludeert voor de Nederlandse situatie 1999 – 2001 dat er over het algemeen een sterk verband is tussen landbouwkundig gebruik van een stof in een regio en diens aanwezigheid in neerslag in dat gebied (Duyzer, 2003). Voor enkele stoffen waren er echter aanwijzingen dat grensoverschrijdend transport vanuit het buitenland naar Nederland van belang was voor de depositie in Nederland (Duyzer en Vonk, 2001).

Conclusie

De concentraties van gewasbeschermingsmiddelen die in depositie worden gevonden zijn veelal hoger naarmate dichter bij de plaats van toepassing wordt gemeten. Snelle menging en transport via de atmosfeer betekent echter dat gewasbeschermingsmiddelen snel na landbouwkundig gebruik tot op grote afstand (tientallen km en verder) kunnen worden getransporteerd om vervolgens via droge en/of natte depositie op bodem, vegetatie en oppervlaktewater terecht te komen.

3.4 Welke gewasbeschermingsmiddelen worden in depositie aangetroffen?

In de rapportage van FOCUS (2008) staat een overzicht dat eerder door Dubus *et al.* (2000) was opgesteld, met gegevens over gewasbeschermingsmiddelen die in precipitatie zijn

aangetroffen in verschillende landen van Europa in de periode van 1985 – 1993. FOCUS (2008) concluderen dat gewasbeschermingsmiddelen in de atmosfeer door heel Europa zijn aangetroffen, van Italië in het zuiden tot Noorwegen in het noorden. Voor de meeste van de aangetroffen gewasbeschermingsmiddelen waren de concentraties in regenwater minder dan 100 ng/L, maar op de meeste locaties kwamen incidenteel ook hogere concentraties tot enkele duizenden ng/L voor. Er is weinig uniformiteit tussen de uitgevoerde metingen, zowel qua methodiek, keuze van locaties, keuze van gewasbeschermingsmiddelen waarnaar wordt gezocht etc. Bovendien waren alle studies van relatief korte duur (meestal niet langer dan 1 jaar, soms tot 3 jaar) en niet grensoverschrijdend. Hierdoor is het niet goed mogelijk om conclusies te trekken met betrekking tot trends over langere perioden of atmosferisch transport van gewasbeschermingsmiddelen op internationale schaal. De auteurs concluderen dat de meeste pogingen om natte depositie van gewasbeschermingsmiddelen te correleren aan hun fysisch-chemische eigenschappen mislukt zijn (Dubus *et al.*, 2000). Er bestaan geen algemeen geaccepteerde methoden om depositie kwantitatief te voorspellen op basis van fysisch-chemische eigenschappen, maar wel lijkt de afbraaksnelheid in lucht een grote rol te spelen bij de mate waarin depositie op kan treden. Deze snelheden zijn echter vaak niet bekend en kunnen slechts worden geschat.

Duyzer en Vonk (2001) concluderen dat de verhouding tussen natte en droge depositie voor de verschillende door hen gemeten gewasbeschermingsmiddelen zeer variabel is en dat de verhouding tussen de concentratie van stoffen in neerslagmonsters en luchtmonsters niet goed kan worden verklaard op basis van theoretische overwegingen.

Van Pul *et al.* (1999) concluderen dat de onzekerheid in modellen en stofeigenschappen tot een toename van de onzekerheid in de schattingen van depositie met een factor 3 zal leiden. De auteurs benadrukken dat dit een indicatieve waarde is en dat niet kan worden uitgesloten dat voor een specifiek gewasbeschermingsmiddel de werkelijke onzekerheid hier sterk van afwijkt.

Ook de voor deze verkenning verzamelde literatuur bevat geen theoretisch raamwerk dat kan dienen om te voorspellen of een gewasbeschermingsmiddel wel of niet in atmosferische depositie zal worden aangetroffen. Daly *et al.* (2007a) beschrijven de concentraties van een aantal verbindingen in de bodem op hellingen van bergen in Costa Rica. De auteurs concluderen dat voor individuele stoffen de mate van verdamping en sorptie op hoger gelegen plaatsen sterk wordt bepaald door twee stofeigenschappen, namelijk de verdeling van de stof tussen lucht en water en de verdeling van de stof tussen octanol en water. De verdeling van de stof tussen lucht en water bepaalt in hoeverre de verbinding wordt ingevangen door regen, terwijl de verdeling van de stof tussen octanol en water van invloed is op de binding aan de bodem en de mate van herverdamping vanaf/vanuit de bodem. Toename van concentraties van gewasbeschermingsmiddelen in de bodem door afname van de temperatuur op grotere hoogte wordt verklaard door een betere 'scavenging' ('invangen') van de verbindingen bij lagere temperatuur, wat vaak vergezeld gaat van een toename van de hoeveelheid regen bij lagere temperatuur (uitregenen van lucht die uit lagere gebieden wordt aangevoerd).

Conclusie

Het is niet erg duidelijk welke eigenschappen bepalen of een verbinding wel of niet in depositie zal worden aangetroffen, maar wel lijkt de afbraaksnelheid in lucht een grote rol te spelen. Verbindingen met een lage concentratie in lucht (laag verbruik of lage dampdruk) die (in lucht) snel afbreken zullen minder kans hebben om over grotere afstanden te worden getransporteerd dan verbindingen met een hoge concentratie in lucht (hoog verbruik of hoge dampdruk) die langzaam afbreken.

3.5 Welke concentraties gewasbeschermingsmiddelen worden in natte depositie aangetroffen?

Dubus *et al.* (2000) geven een overzicht van in de literatuur gerapporteerde concentraties van gewasbeschermingsmiddelen in natte depositie in Europese landen. Voor een breed scala van gewasbeschermingsmiddelen was de gemiddelde concentratie in regenwater minder dan 250 ng/L, terwijl de maximaal opgetreden concentratie in regenwater vrijwel altijd beneden de 1000 ng/L was. Incidenteel werden echter zeer hoge concentraties van enkele duizenden ng/L aangetroffen. Het overzicht van Dubus bevat 103 waarden van gemiddelde concentraties (90-percentiel: 260 ng/L) en 242 waarden van maximale concentraties (90-percentiel: 875 ng/L).

Ook in meer recente literatuur worden vergelijkbare waarden gerapporteerd (of zijn te berekenen indien voldoende gedetailleerde data in de publicatie wordt gegeven). Gegevens met betrekking tot de 'oude' niet meer in gebruik zijnde organochloor insecticiden zijn hierbij grotendeels buiten beschouwing gelaten omdat deze verbindingen qua stofeigenschappen (persistentie en lage oplosbaarheid in water) sterk verschillen van de meeste gewasbeschermingsmiddelen die tegenwoordig nog toegelaten zijn.

Vogel *et al.* (2008) geven maximale en mediane waarden voor de concentraties van circa 25 gewasbeschermingsmiddelen in regenwater in vier Amerikaanse staten (Maryland, Indiana, Nebraska en California). De hoogste concentraties die in regenwater werden aangetroffen waren 19 000 ng/L (atrazin, Nebraska), 15 600 ng/L (simazin, California), 6 580 ng/L (atrazin, Indiana), 4 390 ng/L (metolachloor, Nebraska), 3 440 ng/L (iprodion, California), 1 980 ng/L (acetochlor, Indiana) en 1 760 ng/L (metolachloor, Nebraska). Voor de overige 90 combinaties van locatie en gewasbeschermingsmiddel was de maximaal opgetreden concentratie steeds beneden 1000 ng/L, en veelal beneden de 100 ng/L. De hoogste mediane concentratie was 74 ng/L (iprodion, California).

Mediane concentraties in regenwater in Quebec gegeven door Aulagnier *et al.* (2008) variëren van 0.4 – 644 ng/L voor herbiciden, 6 – 62 ng/L voor insecticiden en 9 – 83 ng/L voor fungiciden. Brun *et al.* (2008) rapporteren mediane concentraties in regenwater aan de oostkust van Canada. Alle (mediane) waarden zijn lager dan 25 ng/L, behalve voor metolachloor (57 ng/L) en cyanazin (82 ng/L).

Yao *et al.* (2008) geven mediane concentraties in regenwater voor enkele organochloor insecticiden (1 – 10 ng/L), organofosfor insecticiden (1 – 10 ng/L) en atrazin-achtige herbiciden (1 – 200 ng/L). De hoogste mediane concentraties werden gevonden voor atrazin en metolachloor.

Asman *et al.* (2005) geven maximum concentraties voor een groot aantal gewasbeschermingsmiddelen in Deens regenwater dat in 2000 – 2001 op twee locaties werd verzameld. Voor alle 40 gemeten gewasbeschermingsmiddelen waren de maximale concentraties lager dan 100 ng/L, behalve voor de herbiciden atrazin, DNOC, lenacil, MCPA, Mecoprop, metamitron, pendimethalin en het fungicide fenpropimorf, waarvan de maximale concentraties boven de 100 ng/L lagen.

Opvallend is dat in vrijwel al deze studies de hoogste mediane concentraties worden aangetroffen voor herbiciden, terwijl de mediane concentraties van insecticiden en fungiciden veelal circa een factor 10 lager zijn. Een deel van de insecticiden en fungiciden worden in lagere doseringen (10 – 100 g/ha) gebruikt dan voor herbiciden gebruikelijk is (0,5 – 1,5

kg/ha); onduidelijk is in hoeverre verschillen in (gemiddelde) stofeigenschappen zoals afbraaksnelheid in lucht, een rol spelen bij de geconstateerde verschillen.

Deze verhouding tussen insecticiden, fungiciden en herbiciden is ook enigszins terug te vinden in de door Duyzer en Vonk (2002) gerapporteerde gemiddelde concentraties in Nederlands regenwater. Voor alle aangetroffen gewasbeschermingsmiddelen bedroeg de 90-percentiel van de gemiddelde concentraties 15 ng/L (55 waarden). Er werden zeer hoge concentraties gevonden voor de herbiciden DNOC (1057 ng/L), chloorprofam (117 ng/L), propachloor (104 ng/L), isoxaflutool (75 ng/L) en dicofol (64 ng/L). Insecticiden die in relatief hoge concentraties terug werden gevonden waren azinfos-methyl (10 ng/L) en lindaan (14 ng/L). Daarnaast werden enkele fungiciden met relatief hoge concentraties aangetroffen: chloorthalonil (20 ng/L) en vinchlozolin (18 ng/L).

De door De Rossi *et al.* (2003) uitgevoerde metingen aan enkele herbiciden, maar vooral insecticiden en fungiciden in de wijnbouw in Duitsland geven een iets ander beeld te zien: de gemiddelde concentraties van de herbiciden simazin, atrazin en terbutylazine in regenwater bedroegen 7 – 69 ng/L, waarbij de hoogste concentraties voor atrazin werden gevonden. Fungiciden (vinchlozolin, dichlofluanide, triadimefon, penconazool, procymidon, pyrifenoxy en tebuconazool) werden gevonden met gemiddelde concentraties van 10 – 74 ng/L, met als enige uitschieter dichlofluanide (192 ng/L). Voor de drie insecticiden werden gemiddelde concentraties van 9 – 298 ng/L gevonden. In deze regio waren er dus geen grote verschillen tussen de gehalten van herbiciden, fungiciden en insecticiden in regenwater. EuroStat (Heidorn, 2002) geeft informatie over het middelengebruik in de druiventeelt, waar in 1999 het gebruik aan fungiciden (exclusief zwavel en koperverbindingen), insecticiden en herbiciden ca. 11, 3,5 resp. 5 ton actieve stof bedroeg (gemiddelden voor heel Europa). De relatief kleine verschillen tussen de stofgroepen zijn waarschijnlijk mede het gevolg van vergelijkbare verbruiksvolumina van de verschillende stofgroepen.

Voor de door Hamers *et al.* (2003) uitgevoerde metingen in regenwater bedroeg de 90-percentiel van de gemiddelde waarden 16 ng/L (52 waarden) terwijl de 90-percentiel van de maximaal gevonden concentraties 100 ng/L (111 waarden) bedroeg.

Buijsman en Van Pul (2003) rapporteren mediane waarden van lindaan in neerslag voor vijf locaties in Nederland (circa 1980 – 2002) variërend van 10 – 50 ng/L.

In regenwater in India werden relatief hoge concentraties van verschillende insecticiden aangetroffen (Kumari *et al.*, 2007), waarbij de gemiddelde concentraties variëerden van 360 ng/L (quinalphos) tot 2000 ng/L (chlorpyrifos) en 3500 ng/L (monocrotophos). Deze gemiddelde concentraties liggen beduidend hoger dan wat in Amerikaans en Europees regenwater gemiddeld aan insecticiden wordt aangetroffen. Hierbij dient echter te worden aangetekend dat de auteurs de ligging van de meetlocatie(s) niet beschrijven, zodat onduidelijk is hoe groot de afstand tot de plaats van toepassing was.

Conclusie

In veel studies zijn mediane concentraties van insecticiden en fungiciden gevonden die lager dan 100 ng/L waren, terwijl de mediane concentraties van herbiciden tot 1000 ng/L kunnen oplopen. Dubus *et al.* (2000) vonden een 90-percentiel waarde van de gemiddelde concentratie van 260 ng/L, waarbij geen onderscheid is gemaakt tussen herbiciden, fungiciden en insecticiden. Het 90-percentiel van de maximale concentraties bedroeg 875 ng/L. De genoemde getallen zijn slechts globale, indicatieve waarden. Onder ongunstige omstandigheden (hoog verbruik, depositie dicht bij de locatie van gebruik, kort durende regenbui) kunnen ook hogere concentraties in regenwater worden aangetroffen. Veel studies

waarin gerapporteerd wordt over de gevonden concentraties geven daarnaast geen of weinig informatie over de stoffen die niet zijn gevonden. Dit maakt het onmogelijk om uitspraken over depositieniveau's over langere perioden en op een ander schaalniveau te onderbouwen.

Deze 90-percentielen omvatten zowel herbiciden als fungiciden en insecticiden. Onderscheid maken tussen deze 3 groepen en aan de hand van Dubus *et al.* (2000) aparte getallen afleiden voor herbiciden, fungiciden en insecticiden is bewerkelijk, en de toepasbaarheid van de getallen is waarschijnlijk beperkt. Om deze reden is deze exercitie in dit stadium achterwege gelaten.

3.6 Het relatieve belang van droge en natte depositie

Bovenstaande beschouwingen zijn gebaseerd op metingen aan natte depositie. Daarnaast bestaat echter een deel van de depositie uit droge depositie. Hierbij worden stoffen (uit de gasfase of via depositie van deeltjes) aan het oppervlak opgenomen zonder dat er neerslag aan te pas komt. Om een schatting van de totale depositie te kunnen maken is informatie nodig omtrent de verhouding tussen droge en natte depositie.

De werkgroep FOCUS (2008) beschrijft metingen aan droge depositie op vrij korte afstand (binnen 50 m) van de plaats van toepassing. Ook de door hen beschreven windtunnel-experimenten hebben betrekking op depositie op ten hoogste 20 m van de plaats van toepassing. Deze metingen geven weinig uitsluitel over de factoren die relevant zijn voor depositie op grotere afstand.

Droge depositie kan in principe worden berekend uit de gemiddelde concentratie van een stof in de lucht en zijn depositiesnelheid. Duyzer en Vonk (2001) merken op dat de depositiesnelheid sterk afhankelijk is van meteorologische condities en de ondergrond waarop de depositie plaatsvindt. Zij gebruiken voor de berekening van de droge depositie eerder door Baart *et al.* (1995) gemaakte schattingen van depositiesnelheden. Opvallend is dat er grote verschillen zijn tussen de verschillende gewasbeschermingsmiddelen wat betreft de verhouding tussen droge en natte depositie; voor dichlobenil is de geschatte droge depositie over heel Nederland bijna 17 keer hoger dan de natte depositie (7192 resp. 405 kg per jaar), voor chloorprofam zijn beiden vergelijkbaar (3931 resp. 3155 kg/jaar), terwijl voor terbutylazine de geschatte droge depositie veel lager is dan de natte depositie (4 resp. 253 kg/jaar). De gemiddelde verhouding tussen droge en natte depositie (voor 51 gewasbeschermingsmiddelen) in de door Duyzer en Vonk (2001) gegeven getallen bedroeg 1,7, de mediane waarde was 0,85, terwijl de 90-percentiel van de verhouding tussen droge en natte depositie 4,2 bedroeg. Deze waarden zijn gebaseerd op metingen van natte depositie en schattingen van de droge depositie.

In de emissie-evaluatie van het Meerjarenplan Gewasbescherming 2000 (De Nie, 2002) is voor de Nederlandse situatie een schatting gemaakt van de atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen. Bij de berekeningen van de depositie is hierbij een zodanig lage droge depositiesnelheid verondersteld dat de effectieve droge depositie verwaarloosbaar bijdroeg aan de totale depositie. De auteurs geven niet aan waarom hiervoor gekozen is (De Nie, 2002).

Sauret *et al.* (2009) hebben de natte en droge depositie van een aantal herbiciden in een park in Strasbourg bepaald, waarbij de natte depositie werd gemeten en de droge depositie werd geschat op basis van metingen in de lucht. De droge depositie werd berekend zowel voor grond waarop geen bomen stonden als voor grond met daarop bomen; de depositie op

bebost land is hierbij een factor 100 tot 1000 hoger dan de depositie op land zonder bomen. De verhouding tussen (maximale, dus op bebost land) droge en natte depositie voor de zeven onderzochte herbiciden was gemiddeld 0,44, de mediane waarde was 0,37, terwijl de 90-percentiel van de verhouding tussen droge en natte depositie 5,4 bedroeg. De gemiddelde en mediane verhouding zijn iets lager dan bij Duyzer en Vonk (2001), terwijl de 90-percentiel van de verhouding tussen droge en natte depositie iets hoger is.

Gioia *et al.* (2005) geven atmosferische depositiefluxen voor enkele organochloor gewasbeschermingsmiddelen waarbij de flux zowel voor droge als voor natte depositie wordt gegeven. De metingen zijn voor zes verbindingen uitgevoerd op drie locaties, waarbij de gemiddelde verhouding tussen droge en natte depositie 2,1 bedroeg, de mediane waarde 1,5 bedroeg en de 90-percentiel van de verhouding tussen droge en natte depositie 5,2 bedroeg.

Uit deze getallen lijkt op te maken dat de bijdrage van droge depositie aan de totale depositie zeker niet verwaarloosbaar is. Het is echter bijzonder lastig om aan te geven welk deel van de totale depositie door droge depositie wordt veroorzaakt omdat dit per stof zal verschillen en bovendien mede wordt bepaald door de aard van het oppervlak waarop de depositie plaatsvindt. De studie van Gioia *et al.* (2005) was gericht op sterk sorberende organochloor verbindingen en is daarom wellicht minder representatief voor het gedrag van modernere gewasbeschermingsmiddelen. Uit de studies van Sauret *et al.* (2009) en Duyzer en Vonk (2001) blijken gemiddeld droge en natte depositie ongeveer in dezelfde mate aan de totale depositie bij te dragen. Dit is een gemiddelde waarde voor de stoffen die in deze studies werden gemeten, waarbij de verschillen tussen verschillende gewasbeschermingsmiddelen tot een factor 100 kunnen oplopen en niet alleen van de stof maar ook van de aard van de ondergrond afhangen.

Conclusie

Gemiddeld over alle gewasbeschermingsmiddelen lijken droge en natte depositie in vergelijkbare mate bij te dragen aan de totale depositie; voor individuele gewasbeschermingsmiddelen kunnen droge en natte depositie echter sterk (factor 100) verschillen. Naast stoffeigenschappen zijn hierin de eigenschappen van de ondergrond bepalend.

3.7 Vergelijking vrachten oppervlaktewater via atmosferische depositie en spuitdrift

In veel beschouwingen over de risico's voor waterleven die mogelijk optreden als gevolg van landbouwkundig gebruik van gewasbeschermingsmiddelen, wordt vooral de depositie op het wateroppervlak via spuitdrift beoordeeld. Hoe de atmosferische depositie op middenlange afstand zich verhoudt tot de driftdepositie is af te leiden uit de verhouding van de vrachten die met deze routes zijn gemoeid, en het verloop in de tijd van de depositie.

Om de grote onzekerheden die gepaard gaan met modelberekeningen van atmosferische depositie te vermijden, wordt de vergelijking uitgevoerd voor een stof (voorbeeldstof) waarvoor experimenteel bepaalde gegevens over atmosferische depositie voor de Nederlandse situatie beschikbaar zijn. Dit betekent dat de voorbeeldstof deel moet hebben uitgemaakt van het 2000/2001 meetprogramma van TNO (Duyzer en Vonk, 2002).

Gegevens over driftdepositie op oppervlaktewater zijn ontleend aan de Nationale Milieu Indicator (NMI versie 2.4 zoals gebruikt voor de EDG-2006), waarbij voor de betreffende

voorbeeldstof is nagegaan welke gewassen het grootste verbruik kenden en welk driftpercentage hierbij volgens de gegevens van de NMI optrad. Ten slotte is de dosering (kg/ha) waarin de stof in het betreffende gewas werd toegepast gebruikt om in combinatie met het gemiddelde driftpercentage een vracht naar oppervlaktewater (g/ha) te berekenen. Omdat de gebruiksdosering in de NMI is opgeslagen als een grootte waarin verschillende andere zaken zijn verdisconteerd, zoals het afzetvolume, de gebruiksfrequentie en een behandeld deel van het areaal, is de dosering ontleend aan het gebruiksvorschrift zoals te vinden op de bestrijdingsmiddelenbank van het Ctgb (<http://www.ctgb.nl/>).

Als maat voor de atmosferische depositie is in de dataset van TNO gezocht naar de meetlocatie en tijdstip waarop voor de voorbeeldstof de hoogste gemiddelde concentratie in regenwater werd geconstateerd. In verband met variabele hoeveelheden neerslag wordt deze (over 28 dagen gemiddelde) concentratie door TNO gerapporteerd als een vracht van g/(ha . jaar). De gedurende die periode opgetreden depositie in g/(ha . 4 weken) is berekend door te delen door 13. De meetgegevens zijn in 2003 verstrekt door Duyzer voor gebruik in Deneer *et al.* (2004). Hoewel deze depositie de som kan zijn van de totale depositie gedurende meerdere regenbuien wordt aangenomen dat de depositie op een enkel moment, gedurende één regenbui, is opgetreden.

De voorbeeldstof moet aan de volgende randvoorwaarden voldoen:

- De stof moet deel uit hebben gemaakt van het TNO-meetprogramma 2001;
- Vanwege het beschikbaar zijn van relevante gegevens in de NMI moet de stof in 2004 een toepassing in de Nederlandse landbouw hebben gekend;
- De stof kende grote toepassingen waarbij drift optrad;
- Bij voorkeur wordt gebruik gemaakt van een voorbeeldstof die volgens de metingen van TNO een hoge depositie had ten opzichte van andere stoffen (een top-10 stof). Dit leidt tot een conservatieve, relatief hoge, schatting van de bijdrage van atmosferische depositie op middenlange afstand.

Depositiegegevens gewasbeschermingsmiddelen

Duyzer en Vonk (2002) vermelden depositiegegevens van gewasbeschermingsmiddelen naar oppervlaktewater in Nederland in 2001. De gewasbeschermingsmiddelen met de hoogste depositie zijn weergegeven in tabel 3.1.

Tabel 3.1: Overzicht van de enkele stoffen met de hoogste depositie op oppervlaktewater in 2001.

Werkzame stof	Depositie op oppervlaktewater in 2001 ^a (kg/jr)	Toegelaten in Nederland ^b		Driftgegevens beschikbaar in NMI
		1999	2006	2004
DNOC	1209	X	-	-
Dichlobenil	444	X	X	X
Pirimifos-methyl	352	X	X	-
Chloorprofam	290	X	X	X
Propachloor	194	X	-	X
Vinchlozolin	107	X	X	X

^a Overgenomen uit Duyzer en Vonk (2002), p. 21.

^b Ontleend aan gewasbeschermingsgidsen 1999 en 2006.

Van de grootste stoffen vallen DNOC en dichlobenil af. DNOC was in 2004 niet meer toegelaten en de NMI bevat geen driftgegevens van deze stof. Van dichlobenil betrof het verbruik in 2004 circa 70% niet-landbouwkundige toepassingen en de stof kende slechts

weinig landbouwkundige toepassingen waarbij drift optrad. De depositie van pirimifos-methyl is volgens de gegevens van TNO van 4 kg in 2000 gestegen tot 352 kg in 2001. De reden voor deze stijging is niet duidelijk, maar de stijging wijkt sterk af van de veranderingen die voor veel andere stoffen werden geconstateerd. Bovendien zijn er geen gegevens over spuittoepassingen van pirimifos-methyl in de NMI 2. Om deze redenen is pirimifos-methyl niet geschikt om als voorbeeldstof te fungeren.

Chloorprofam is een stof met groot verbruik (> 100 ton in 2004); het grootste verbruik kende de bollenteelt en de akkerbouw, waarbij de stof vooral in de teelt van tulpen en uien werd ingezet. Daarnaast is een grote toepassing het gebruik als kiemremmer in bewaarruimten voor aardappelen, waarbij geen drift maar wel emissie naar de lucht optreedt.

Vinchlozolin kent volgens de gegevens van TNO een depositie die circa driemaal lager is dan de depositie van chloorprofam, terwijl het verbruik meer dan driemaal lager is dan het verbruik van chloorprofam. De stof kent toepassingen in de akkerbouw, bloembollen en vollegrond groententeelt, waarbij vooral stamslabonen en tulpen een relatief groot verbruik kennen.

De dampdrukken van chloorprofam en vinchlozolin bedragen 24 resp. 0,14 mPa (bij 20°C; Tomlin, 2003) waarmee beide stoffen in de hoogste dampdrukklasse vallen zoals die door FOCUS (2008) worden gehanteerd. Van de in 2004 in Nederland toegelaten gewasbeschermingsmiddelen behoorde slechts circa 5% tot deze hoogste klasse, waarvan verwacht mag worden dat atmosferische depositie een relatief grotere rol speelt dan voor gewasbeschermingsmiddelen met lagere dampdrukken. Het gaat bij chloorprofam en vinchlozolin om gewasbeschermingsmiddelen waarvan FOCUS (2008) verwacht dat er relatief hoge emissies naar lucht op zullen treden, wat deels de door TNO (2002) geconstateerde hoge atmosferische deposities van deze stoffen verklaart.

Depositie als gevolg van spuitdrift

De NMI bevat gegevens omtrent het verbruik (totaal kg/ha . jaar) van de toegelaten stoffen in verschillende gewassen, gekoppeld aan plagen en technieken waarmee de stof is toegediend. In tabel 3.2 wordt voor chloorprofam en vinchlozolin aangegeven in welke gewassen de stoffen het grootste verbruik kenden, wat de 'typische' dosering volgens de wettelijke gebruiksaanwijzing is, en met welke driftpercentage voor deze stof-gewascombinatie in de NMI (situatie 2004) is gerekend. Hierbij zijn eventuele voor de stof-gewascombinatie geldende driftreducerende maatregelen verdisconteerd in het driftpercentage.

Tabel 3.2: Depositie als gevolg van drift (uitgedrukt als gram per hectare) van chloorprofam en vinchlozolin, berekend op basis van het gemiddelde driftpercentage in de Nationale Milieu Indicator/NMI 2, en de dosering volgens het wettelijk gebruiksvoorschrift van de belangrijkste toelating (Ctgb).

Gewasbeschermings- middel	Gewas	Drift NMI (%, 2004)^a	Toelatings- nummer	Dosering (kg/ha)	Drift (g/ha)
Chloorprofam	Tulpen	0,38	5134 N	0,80	3,04
	Zaaiuien	0,39	3992 N		3,12
Vinchlozolin	Stamslabonen	1,00	10232 N	0,50	5,00
	Tulpen	0,38	7986 N	0,25	0,95

^a het driftpercentage geldt voor een standaardslot van 1 m breedte en wordt berekend als kg depositie per eenheid wateroppervlak gedeeld door kg gebruik per eenheid behandeld gewasoppervlak.

De doseringen voor chloorprofam zijn ontleend aan de wettelijke gebruiksvoorschriften voor Brabant Chloor-IPC vl, toelatingsnummer 5134 N en Certis Chloor-IPC 40% vloeibaar,

toelatingsnummer 3992 N (beide middelen maken voor bloembolgewassen en zaaiuien gebruik van dezelfde dosering). De doseringen voor vinchlozolin zijn ontleend aan de wettelijke gebruiksvoorschriften voor Agrichem Vinchlozolin, toelatingsnummer 10232 N en Ronilan FL, toelatingsnummer 7986 N. Het gebruiksvoorschrift van Ronilan is in de periode 2002 – 2006 bijgesteld, maar dit betrof niet de hier gebruikte toepassingen in stamslabonen en tulpen.

Atmosferische depositie

Tabel 3.3 geeft een overzicht van de atmosferische deposities die door Duyzer en Vonk (2002) zijn gerapporteerd voor 2001.

Tabel 3.3: Atmosferische depositie (uitgedrukt als gram per hectare) van chloorprofam en vinchlozolin, ontleend aan Duyzer en Vonk (2002).

Gewasbeschermingsmiddel	Lokatie en datum met hoogste cumulatieve 4-wekelijkse depositie	Cumulatieve depositie gedurende 4 weken (g/ha)
Chloorprofam	De Zilk, 10 april	0,65
Vinchlozolin	Anna Paulowna, 25 april	0,12

De hoeveelheid drift in Tabel 3.2 en atmosferische depositie in Tabel 3.3 zijn beide uitgedrukt per hectare wateroppervlak. Beide stoffen kenden in de metingen van TNO hun hoogste atmosferische depositie vroeg in het groeiseizoen. Zowel voor chloorprofam als voor vinchlozolin geldt dat de vrachten geassocieerd met atmosferische depositie lager zijn dan de vrachten die bij spuitdrift optreden. Voor chloorprofam bedraagt het verschil circa een factor 4,7 terwijl het verschil voor vinchlozolin een factor 7,9 resp. 41 bedraagt voor tulpen resp. bonen. Bij atmosferische depositie betreft het een cumulatieve vracht over 4 weken. In het slechtst denkbare scenario is deze vracht met een enkele regenbui in het oppervlaktewater bereikt, maar het is niet uit te sluiten dat de vracht in veel gevallen verdeeld over meerdere buien het oppervlaktewater heeft bereikt, zodat de vracht per bui lager is. Dit kan uit de ons beschikbare gegevens niet worden achterhaald. Verdeling over meerdere buien leidt tot een verdere verlaging van de vracht ten opzichte van de vracht ten gevolge van spuitdrift.

Het betreft hier uitsluitend atmosferische depositie als gevolg van transport over middenlange en lange afstanden; de door TNO gebruikte meetlocaties werden naar alle waarschijnlijkheid niet rechtstreeks beïnvloed door toepassingen op korte (< 1 km) afstand. Het valt dan ook niet uit te sluiten dat de atmosferische depositie op oppervlaktewater in de onmiddellijke nabijheid van de plaats van toepassing hoger zal zijn.

Conclusie

Uit een vergelijking van de atmosferische depositie (metingen uitgevoerd in 2001) en de te verwachten spuitdrift (rekening houdend met de implementatie van driftreducerende maatregelen zoals die golden in 2004) blijkt dat de atmosferische depositie van chloorprofam en vinchlozolin tenminste 4,7 resp. 7,9 maal lager was dan de driftdepositie. Beide stoffen hebben een relatief hoge dampdruk. Voor stoffen met lagere dampdruk (95% van de in 2004 in Nederland toegelaten gewasbeschermingsmiddelen) mag worden verwacht dat minder emissie naar lucht en daardoor relatief minder atmosferische depositie op zal treden dan voor chloorprofam en vinchlozolin.

4 Schatting van risico's en effecten

4.1 Inleiding

Dat er atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen optreedt, is uit de vele metingen die zijn uitgevoerd wel komen vast te staan, waarbij echter nog veel onduidelijkheid bestaat over de hoogte van de optredende deposities.

In hoeverre deze depositie mogelijk leiden tot risico's voor water- en bodemleven is nauwelijks beschreven. Uit door TNO in 2001 uitgevoerde metingen (Duyzer en Vonk, 2002) bleek dat een groot deel van de belasting van waterorganismen als gevolg van depositie werd veroorzaakt door gewasbeschermingsmiddelen die op dat moment in Nederland niet meer waren toegelaten. Het is bijzonder lastig om dergelijke stoffen in modelberekeningen op te nemen omdat er weinig tot geen informatie is over plaats en hoogte van verbruik. Deneer *et al.* (2004) concluderen dat van de door TNO gemeten gewasbeschermingsmiddelen vooral voor insecticiden niet kan worden uitgesloten dat deze mogelijk in natuurgebieden effecten in aquatische systemen kunnen veroorzaken. De Jong en Luttik (2003) komen op basis van dezelfde gegevens tot de conclusie dat voor de 60 gewasbeschermingsmiddelen waarvoor een Maximaal Toelaatbaar Risico voor bodem (MTR_{bodem}) beschikbaar was, deze door drie gewasbeschermingsmiddelen werd overschreden, terwijl het Verwaarloosbaar Risico (= 0,01 MTR_{bodem}) door 20 van de 60 gewasbeschermingsmiddelen werd overschreden. Hierbij dient echter aangetekend te worden dat in de berekeningen van De Jong en Luttik wordt verondersteld dat de totale jaarlijkse vracht aan gewasbeschermingsmiddel op één enkel moment de bodem bereikt en wordt afbraak na depositie verwaarloosd; beide aannamen leiden tot een overschatting van het werkelijk optredende risico. Uit berekeningen voor de Nederlandse situatie in 1998 en 2004 concluderen Den Hollander *et al.* (2007, persoonlijke mededeling) dat het gedurende deze periode uit de markt nemen van een aantal gewasbeschermingsmiddelen (atrazin, simazin, diuron) heeft geleid tot een sterke afname van de toxische druk op terrestrische ecosystemen in niet-agrarische gebieden.

4.2 Vertaling van depositie naar blootstelling

FOCUS (2008) geeft een uitgebreid overzicht van de modelbeschrijvingen die bestaan voor de verschillende deelprocessen emissie (vanaf verschillende oppervlakken), transport via de lucht en depositie op water en bodem. Tevens worden enkele criteria beschreven waaraan een model volgens FOCUS minimaal zou moeten voldoen om voor een uitgebreidere beschrijving in aanmerking te komen. Drie transport en zes multimedia (box) modellen voor beschrijving van transport en depositie over grote afstand voldeden aan de door FOCUS gestelde criteria. FOCUS benadrukt echter dat de modellen onvoldoende zijn gevalideerd, en dat geen aanbeveling kan worden gedaan welk van de modellen te gebruiken (FOCUS, 2008). Voor gebruik van de procesgebaseerde (niet-multimedia) modellen zijn bovendien gedetailleerde emissie- en depositie-scenario's nodig die op dit moment nog ontbreken (FOCUS, 2008).

Modellen die worden gebruikt om de emissie, het transport en de depositie te beschrijven op regionale of grotere schaal beperken zich gewoonlijk tot het schatten van de depositie in kg per oppervlakte- en tijdseenheid. Om een risicobeoordeling uit te voeren is het nodig om de opgetreden depositie te 'vertalen' naar een blootstellingsconcentratie in de compartimenten waarin organismen aan de neergedaalde gewasbeschermingsmiddelen zullen worden

blootgesteld. In het eenvoudigste geval kunnen rekenregels worden gehanteerd die geen rekening houden met afbraak van de gewasbeschermingsmiddelen; hierbij wordt een homogene verdeling (inclusief bijbehorende verdunning) van de atmosferische depositie verondersteld. Voor het uitvoeren van een risicobeoordeling op basis van een acute blootstelling is dit in principe voldoende, omdat hierbij de initieel optredende piekconcentratie als maat voor de blootstelling wordt gehanteerd.

Een voorbeeld van een acute risicobeoordeling wordt beschreven door De Jong en Luttk (2003). Zij gebruiken atmosferische depositie gegevens voor Nederland om risico's te schatten voor verschillende terrestrische organismen (regenworm, bij, planten, vogels). Bij de conversie van depositie (g/(ha . jaar)) naar concentratie in de bodem wordt een bodemdikte van 5 cm en een bodemdichtheid van 1,4 kg/L verondersteld. Een depositie van 1 g/ha leidt tot een gemiddelde concentratie in de bodem van 1,43 µg/kg. Omdat wordt verondersteld dat de hele depositieflux op één moment neerkomt en er geen afbraak optreedt is de berekende concentratie in de bodem een sterke overschatting van de werkelijk optredende concentratie. De Jong en Luttk veronderstellen in hun berekening van de bodemconcentratie dat de totale jaarlijkse depositie van een stof op één enkel moment optreedt (extreme worst-case situatie). Uiteraard kan de berekening ook worden uitgevoerd voor de depositie als gevolg van een enkele regenbui.

Deneer *et al.* (2004) beschrijven een methode om depositie om te rekenen naar concentratie in water door te veronderstellen dat de depositie neerkomt op een wateroppervlak met een volume van 210 liter/m² (analoog aan de bij de Nederlandse toelating in TOXSWA gebruikte 'standaard sloot'). Er wordt geen stroming in het water verondersteld (stagnant systeem). Een depositie van 1 g/ha leidt tot een gemiddelde waterconcentratie van 476 ng/L. Doordat de concentratie niet wordt verlaagd door afbraak of door binding aan sediment en zwevend stof is de berekende concentratie hoger dan de werkelijk optredende concentratie.

De Jong en Luttk (2003) schatten de effecten op planten op basis van toxiciteitsgegevens voor planten die zijn bepaald door directe bespuiting van de planten. Dit maakt het mogelijk de depositie rechtstreeks met toxiciteitsgegevens te vergelijken. De in standaardtoetsen bepaalde EC25 voor een plant wordt omgezet in een acceptabele acute depositie concentratie (min of meer een acute NOEC) door de EC25 te delen door 3. Effectconcentraties voor chronische effecten worden geschat door de acute NOEC door 10 te delen. Er wordt aangenomen dat de gehele jaarlijkse depositie op één moment optreedt. Wij zijn niet in het bezit van acute en chronische NOEC's voor planten die op deze wijze zijn berekend.

Voor een risicobeoordeling op basis van een chronische, langer durende blootstelling kan het wenselijk zijn om afbraak van het gewasbeschermingsmiddel in het compartiment te verdisconteren. Hiertoe zou gebruik kunnen worden gemaakt van complexere rekenregels of modellen die afbraak en verdamping van gewasbeschermingsmiddelen in het water of bodemcompartiment expliciet in de berekening meenemen. Uiteraard zullen door het verdisconteren van verdwijprocessen de berekende tijdgemiddelde blootstellingen lager zijn dan de initiële concentratie. Als de chronische risicobeoordeling wordt uitgevoerd op basis van de initiële concentratie die voor de acute risicobeoordeling wordt gehanteerd dan betekent dit ook dat het chronische risico enigszins wordt overschat, vooral voor gewasbeschermingsmiddelen die snel uit het water of bodemcompartiment verdwijnen.

Voor atmosferische depositie na transport over zeer korte (< 1 km) en zeer lange (> 1000 km) afstanden bepleit FOCUS een aanpak die aansluit bij de gangbare handelwijze zoals die in EU Directive 91/414 wordt beschreven voor de risicoschatting in en naast akkers.

Atmosferische depositie wordt behandeld als een aanvullende route naast spuitdrift en drainage. De 'vertaling' van depositie (vracht) naar concentratie gebeurt dan in modellen zoals FOCUS-TOXSWA analoog aan de manier zoals dat met andere vrachten gebeurt. Hoewel in het FOCUS (2008) rapport de depositie na transport over middenlange afstand niet wordt behandeld, is de door hen aangegeven manier om depositie naar blootstelling (concentratie) om te rekenen in principe ook hiervoor toepasbaar.

Een voorbeeld van modellen waarin chronische blootstellingsconcentraties worden berekend waarbij rekening wordt gehouden met afbraak van de gewasbeschermingsmiddelen in bodem en water zijn de door Bakker en Van den Hout (1993) beschreven SIMPLESAL en WATERBOX. Met behulp van deze modellen zijn de atmosferische deposities van een tiental stoffen (koper, cadmium, zink, chroom, fluorantheen, benzo(a)pyreen, benzo(g,h,i)peryleen, lindaan, atrazin, 1,1,1-trichloorethaan) omgerekend naar blootstellingsconcentraties in bodem en oppervlaktewater. De modellen berekenen 'steady state' concentraties waarbij ook rekening wordt gehouden met omzetting van (organische) stoffen door microbiële en chemische omzettingen. Deze modellen berekenen voor atrazin bij een bodemdepositie van 7,5 g/(ha jaar) een steady state concentratie van 8,86 µg/kg in natuurterrein op veengrond en in verschillende andere bodemtypen van 0,35 – 2,36 µg/kg, en een steady state concentratie in oppervlaktewater van 83 – 167 ng/L.

Een eenvoudige methode om chronische blootstelling te schatten op basis van de initiële concentratie waarbij toch rekening wordt gehouden met afbraak (en eventueel verdamping) van de stof is het vermenigvuldigen van de initiële concentratie met een 'restfactor' die aangeeft in welke mate de stof tijdens de duur van een chronische blootstelling uit het compartiment verdwijnt (Smidt en Deneer, 2001).

In tabel 4.1 wordt de blootstellingsconcentratie in water en bodem gegeven die volgens de verschillende methoden zou worden berekend bij een depositie van 7,5 g/ha.

In de modellen SIMPLESAL en WATERBOX wordt rekening gehouden met afbraak, waardoor blootstellingsconcentraties in deze modellen afhankelijk zijn van de gebruikte stof. Bakker en Van den Hout (1993) gebruiken in hun berekeningen atrazin als voorbeeld. Hierbij wordt een jaarlijkse depositie van 7,5 g/(ha.jaar) van deze stof verondersteld.

Tabel 4.1: Blootstellingsconcentratie in water en bodem volgens verschillende methoden berekend bij een veronderstelde atmosferische depositie van atrazin van 7,5 g/(ha.jaar)

Auteurs	Concentratie in bodem (µg/kg bodem)	Concentratie in oppervlaktewater (ng/L)
Bakker & Van den Hout, 1993	8,86 0,35 – 2,36	83 – 167
De Jong & Luttkik, 2003	$7,5 \times 1,43 / 27 = 0,40$	
Deneer, 2004		$7,5 \times 476 / 27 = 132$

SIMPLESAL en WATERBOX maken gebruik van een atmosferische depositie (van atrazin) van 7,5 g/ha die over het hele jaar is verdeeld, waaruit een gemiddelde (steady state) concentratie voor atrazin in beide compartimenten wordt berekend.

De 'modellen' van De Jong en Luttkik (2003) en Deneer (2003) berekenen geen gemiddelde maar een initiële concentratie meteen na het optreden van depositie. Uiteraard is het niet erg realistisch om te veronderstellen dat de gehele jaarlijkse atmosferische depositie (van 7,5

g/(ha.jaar) voor atrazin) op een enkel moment op een lokatie terecht komt. Zoals uit bovenstaande tabel valt te concluderen leiden de eenvoudige aannames voor de modellen van De Jong en Luttik (2003) en Deneer (2004) tot concentraties die vergelijkbaar zijn met de door Bakker en Van den Hout (1993) berekende concentraties. De vergelijking is uitgevoerd met een relatief persistente stof (atrazin) als voorbeeld. Voor beter afbreekbare stoffen zullen de modellen van De Jong en Luttik (2003) en van Deneer (2004) over het algemeen tot hogere concentraties leiden dan het model van Bakker en Van den Hout (1993) of bij gebruik van FOCUS-TOXSWA waarin ook rekening wordt gehouden met verdwijning van de stof uit de waterfase door afbraak, sorptie en verdamping.

4.3 Waargenomen effecten als gevolg van atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen

Er is slechts zeer weinig literatuur gevonden waarin de mogelijke effecten als gevolg van atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen worden onderzocht. De meeste literatuur beschrijft de metingen aan de depositie zelf en houdt zich niet bezig met potentiële effecten als gevolg van de optredende blootstelling.

In enkele studies worden de concentraties van gewasbeschermingsmiddelen in vissen afkomstig uit bergmeren vermeld, waarbij wordt aangenomen dat de belangrijkste aanvoer-route van gewasbeschermingsmiddelen in de meren atmosferische depositie was. Deze studies zijn gericht op 'oude' organochloor gewasbeschermingsmiddelen en andere persistente verbindingen (PCB's, polybroom brandvertragers, PAKS, synthetische musken); er zijn geen metingen verricht aan nog in gebruik zijnde 'moderne' gewasbeschermingsmiddelen. In een van de door Ackerman *et al.* (2008) onderzochte meren waren de concentraties van DDT (en metabolieten) en chlordane voldoende hoog om via doorvergiftiging boven de voor visetende vogels, nertsen en otters acceptabele niveaus te komen. De door Schmid *et al.* (2007) gevonden concentraties aan totaal polybroom verbindingen (13 – 110 ng/g vet), totaal DDT (130 – 1100 ng/g vet) en PCB's (max 570 ng/g vet) in vissen in Zwitserse meren zijn in dezelfde orde van grootte als de door Ackerman *et al.* (2008) gevonden concentraties in meren in het westen van de Verenigde Staten. Veelal worden in hoger gelegen meren iets hogere residuen gevonden dan in lager gesitueerde meren. Mogelijk is dit deels het gevolg van verhoogde atmosferische depositie in hoger gelegen meren als gevolg van lagere temperaturen en grotere hoeveelheden neerslag. Studies van Blais *et al.* (2003) voor de kreeftachtige *Gammarus lacustris* en van Demers *et al.* (2007) voor forellen maken aannemelijk dat het verhoogde gehalte aan organochloorverbindingen bij toenemende hoogte deels het resultaat is van verlaagde 'eliminatie' van deze verbindingen op grotere hoogte door de geringere groei van de organismen als gevolg van lagere temperaturen.

Sparling *et al.* (2001) hebben in California in de Verenigde Staten van Amerika residuen van enkele organofosfor insecticiden (chlorpyrifos en diazinon) en van enkele persistente gewasbeschermingsmiddelen (endosulfan, 4,4'-DDT) in juveniele en adulte stadia van de amfibie *Hyla regilla* bepaald. Hierbij bleken de concentraties van chlorpyrifos en diazinon in *Hyla* die benedenwinds van intensief agrarisch gebruikte gebieden waren verzameld hoger dan in dieren die waren verzameld in de buurt van de kust (controle gebied). Maximaal gevonden concentraties waren hoger dan 190 ng/g (nat gewicht). Dit ging gepaard met een verlaging van de cholinesterase-activiteit van minder dan 50% in de hoogst belaste dieren. De juveniele stadia van *Hyla regilla* bleken gevoeliger voor de aanwezigheid van cholinesterase-remmende gewasbeschermingsmiddelen dan de adulte stadia. De auteurs wijzen er op dat andere amfibische soorten die langer in een juveniel stadium doorbrengen en intensiever met water in

aanraking komen/blijven, zoals *Rana* spp., wellicht meer risico lopen als gevolg van de aanwezigheid van dergelijke gewasbeschermingsmiddelen.

Ook Davidson (2004) tracht middels een statistische analyse een verband te leggen tussen de aan- of afwezigheid van vijf amfibische soorten (padden en kikkers) in California en het bovenwinds gebruik van gewasbeschermingsmiddelen. Vooral gebruik van organofosfor verbindingen in het verleden vertoonde een sterke correlatie met de afname van benedenwindse populaties van amfibieën. Het betreft een statistische analyse waarbij geen gebruik is gemaakt van chemisch-analytische of toxicologische gegevens. Daarom is een causaal verband tussen eventueel in het verleden opgetreden atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen en het verdwijnen van amfibische soorten niet duidelijk; mogelijk zijn andere processen en/of parameters verantwoordelijk voor de waargenomen afname in populaties.

George *et al.* (2003) hebben de acute en chronische toxiciteit van een mengsel van stoffen bepaald dat qua samenstelling overeenkwam met de droge depositie die in centraal Canada was gemeten. Hiertoe werd de sterfte en groeiremming bij een watervlo (*Ceriodaphnia dubia*) van een mengsel van zes herbiciden, 4,4'-DDT, lindaan en pentachloorfenol bepaald, waarbij elk van de stoffen in het mengsel aanwezig was in een verhouding die correspondeerde met zijn maximale gemeten dagelijkse droge depositie (maximum van wekelijkse metingen over een periode van 1,5 jaar). Er werd verondersteld dat de gemeten atmosferische depositie neer zou komen op zeer ondiep (1 cm) oppervlaktewater. Bij de hierbij te verwachten concentraties werden geen effecten op de watervlo waargenomen. Regenwater zou met een factor 340 moeten worden geconcentreerd om 50% acute sterfte in het oppervlaktewater te veroorzaken, en met een factor 300 moeten worden geconcentreerd om chronische effecten in het oppervlaktewater te verkrijgen. Hierbij droeg DDT het meest bij aan de toxiciteit van het mengsel.

In een studie in Yokohama City heeft Sakai (2006) regenwater opgevangen, waarna met het opgevangen water toetsen werden uitgevoerd met watervlooien. In 5 van de 13 opgevangen watermonsters trad na 48 uur blootstelling meer dan 90% immobiliteit op. Bij chemische analyse van het regenwater werden de organofosfaat verbindingen dichloorvos, fenitrothion, fenitrothion-oxon, malathion (allen insecticiden) en het fungicide chloorthalonil boven de detectielimiet aangetroffen. Met name dichloorvos werd zeer vaak in relatief hoge concentraties aangetroffen en het optreden van effecten was volgens de auteur sterk gerelateerd aan de aanwezigheid van dit organofosfaat insecticide (Sakai, 2006). Dichloorvos is zeer giftig voor kreeftachtigen; bij de Nederlandse toelating werd voor kreeftachtigen een 48-uurs EC50 van 0,19 µg/L gehanteerd (College voor de Toelating van Bestrijdingsmiddelen, http://www.ctb.agro.nl/ctb_files/06017_01.html). In de door Sakai (2006) verzamelde regenwater monsters was de concentratie van dichloorvos 0,07 – 0,74 µg/L, oftewel 0,5 – 4 maal de EC50.

Hamers *et al.* (2003) hebben atmosferische depositie bestudeerd op drie locaties in Zuid-Holland: in de naaste omgeving van een glastuinbouw gebied (Naaldwijk), een gebied met bollenteelt (Hillegom) en een gebied zonder intensieve landbouw (Noorden, aan de rand van de Nieuwkoopse plassen). In de opgevangen monsters werden de gehalten van 20 organofosfor, 10 carbamaat, 31 organochloor verbindingen (allen insecticiden, uitgezonderd enkele polychloorbifenylen) en een zestal herbiciden en fungiciden bepaald gedurende de periode van januari 1998 t/m december 1998. Met de opgevangen regenwater monsters werden in vitro bio-assays uitgevoerd waarmee de remming van acetylcholine-esterase door het regenwater werd vastgesteld. De remmende werking bleek sterk te verschillen tussen locaties, maar niet tussen seizoenen. De gemiddelde esterase-remmende activiteit op de achtergrond locatie en

in het bollengebied was vergelijkbaar, terwijl de remming van esterase in het regenwater uit het glastuinbouwgebied circa tweemaal hoger was. De remming van esterase was sterk gecorreleerd aan de aanwezigheid van organofosfor- en carbamaat-insecticiden. Directe effecten op waterleven zijn niet onderzocht.

Waarnemingen van effecten hebben grotendeels betrekking op organochloor insecticiden (die in 1998 in grote delen van de wereld al niet meer waren toegelaten) of op organofosfor insecticiden. Dit suggereert dat effecten als gevolg van blootstelling aan andere typen gewasbeschermingsmiddelen minder optreden. Voor de twee genoemde typen verbindingen bestaan echter zeer gevoelige detectiemethoden (chemisch-analytisch voor de organochloorverbindingen en enzymatische methoden voor de organofosfor verbindingen). Mogelijk ontstaat hierdoor een ten nadele van deze typen verbindingen vertekend beeld.

Conclusie

Er is slechts zeer weinig literatuur waarin de mogelijke effecten als gevolg van atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen worden onderzocht; de meeste literatuur beschrijft de metingen aan de atmosferische depositie zelf en houdt zich niet bezig met potentiële effecten. In weefsel van amfibieën is een verhoogde concentratie van organofosforinsecticiden en een verlaagde cholinesterase-activiteit waargenomen benedenwinds van agrarisch gebieden. De overige waarnemingen hebben betrekking op blootstelling van organismen of enzymen aan opgevangen regenwater (en niet in oppervlaktewater, waar de optredende concentraties door verdunning veel lager zullen zijn).

5 Conclusies en discussie

5.1 Conclusies

Hier volgt een korte opsomming van de conclusies uit eerdere paragrafen:

1. Stoffen kunnen alleen buiten hun toepassingsperiode in atmosferische depositie worden aangetroffen als zij slechts langzaam worden afgebroken.
2. De concentraties van gewasbeschermingsmiddelen die in atmosferische depositie worden gevonden zijn veelal hoger naarmate dichter bij de plaats van toepassing wordt gemeten. Snelle menging en transport via de atmosfeer betekent echter dat gewasbeschermingsmiddelen snel na landbouwkundig gebruik tot op grote afstand (tientallen km en verder) kunnen worden getransporteerd om vervolgens via droge en/of natte depositie op bodem, vegetatie en oppervlaktewater terecht te komen.
3. Het is niet erg duidelijk welke eigenschappen bepalen of een verbinding wel of niet in atmosferische depositie zal worden aangetroffen, maar wel lijkt de afbraaksnelheid in lucht een grote rol te spelen. Verbindingen met een lage concentratie in lucht (laag verbruik of lage dampdruk) die (in lucht) snel afbreken zullen minder kans hebben om over grotere afstanden te worden getransporteerd dan verbindingen met een hoge concentratie in lucht (hoog verbruik of hoge dampdruk) die langzaam afbreken.
4. In veel studies zijn mediane concentraties van insecticiden en fungiciden in regenwater gevonden die lager dan 100 ng/L waren, terwijl de mediane concentraties van herbiciden tot 1000 ng/L kunnen oplopen. Dubus *et al.* (2000) vonden een 90-percentiel waarde van de gemiddelde concentratie van 260 ng/L, waarbij geen onderscheid is gemaakt tussen herbiciden, fungiciden en insecticiden. Het 90-percentiel van de maximale concentraties bedroeg 875 ng/L. De genoemde getallen zijn slechts globale, indicatieve waarden. Onder ongunstige omstandigheden (hoog verbruik, atmosferische depositie dicht bij de locatie van gebruik, kort durende regenbui) kunnen ook hogere concentraties in regenwater worden aangetroffen. Veel studies waarin gerapporteerd wordt over de gevonden concentraties geven daarnaast geen of weinig informatie over de stoffen die niet zijn gevonden. Dit maakt het onmogelijk om uitspraken over depositieniveau's over langere perioden en op een ander schaalniveau te doen. Deze 90-percentielen omvatten zowel herbiciden als fungiciden en insecticiden. Onderscheid maken tussen deze drie groepen en aan de hand van Dubus *et al.* (2000) aparte getallen afleiden voor herbiciden, fungiciden en insecticiden is bewerkelijk, en de toepasbaarheid van de getallen is waarschijnlijk beperkt. Om deze reden is deze exercitie in dit stadium achterwege gelaten.
5. Gemiddeld over alle gewasbeschermingsmiddelen lijken droge en natte depositie in vergelijkbare mate bij te dragen aan de totale depositie; voor individuele gewasbeschermingsmiddelen kunnen droge en natte depositie echter sterk verschillen. De verhouding tussen droge en natte depositie wordt bepaald door eigenschappen van de stof en van de ondergrond.
6. Uit een vergelijking van de atmosferische depositie (2001) en de te verwachten spuitdrift (2004) blijkt dat de atmosferische depositie van chloorprofam en vinchlozolin tenminste 4,7 resp. 7,9 maal lager was dan de driftdepositie die in relevante gewassen op zou treden. Voor stoffen met lagere dampdruk (95% van de in 2004 in Nederland toegelaten gewasbeschermingsmiddelen) mag worden verwacht dat minder emissie naar lucht en daardoor relatief minder atmosferische depositie op zal treden dan bij chloorprofam en vinchlozolin.

7. Er is slechts zeer weinig literatuur waarin de mogelijke effecten als gevolg van atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen worden onderzocht; de meeste literatuur beschrijft de metingen aan de depositie zelf en houdt zich niet bezig met potentiële effecten. In weefsel van amfibieën is een verhoogde concentratie van organofosforinsecticiden en een verlaagde cholinesterase-activiteit waargenomen benedenwinds van agrarisch gebieden. De overige waarnemingen hebben betrekking op blootstelling van organismen of enzymen aan opgevangen regenwater (en niet in oppervlaktewater).

5.2 Discussie

Uit een vergelijking van de atmosferische depositie (metingen uitgevoerd in 2001) en de te verwachten spuitdrift (rekening houdend met de implementatie van driftreducerende maatregelen zoals die golden in 2004) blijkt dat de atmosferische depositie van chloorprofam en vinchlozolin tenminste 4,7 resp. 7,9 maal lager was dan de driftdepositie die in relevante gewassen op zou treden. Het betreft hier stoffen die beiden een relatief hoge dampdruk hebben en waarvan verwacht mag worden dat emissie naar de lucht en daaropvolgende depositie een grotere rol speelt dan bij gewasbeschermingsmiddelen met een lagere dampdruk; van de in 2004 in Nederland toegelaten gewasbeschermingsmiddelen had circa 95% een lagere dampdruk.

Er zijn geen concrete aanwijzingen dat landbouwkundig gebruik van gewasbeschermingsmiddelen in Nederland (of elders) leidt tot atmosferische depositie in natuurgebieden resulterend in een verhoogd risico voor water- en/of bodemleven. Daar staat tegenover dat de concentraties die in regenwater worden aangetroffen relatief hoog kunnen zijn (honderden ng/L voor fungiciden en insecticiden, voor herbiciden zelfs nog hoger). Bij neerdalen op een water- of bodemoppervlak zal meestal aanzienlijke verdunning optreden, maar bij dergelijk hoge maximale concentraties kan niet te allen tijde worden uitgesloten dat er risico's op effecten zijn.

Er is echter slechts zeer weinig literatuur waarin de mogelijke effecten als gevolg van atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen worden onderzocht; de meeste literatuur beschrijft de metingen aan de depositie zelf en houdt zich niet bezig met potentiële effecten. In weefsel van amfibieën zijn verhoogde concentraties van organofosforinsecticiden en een verlaagde cholinesterase-activiteit waargenomen benedenwinds van agrarisch gebieden. De overige waarnemingen hebben betrekking op blootstelling van organismen of enzymen aan opgevangen regenwater (en niet in oppervlaktewater).

Op dit moment is onduidelijk in hoeverre de in het verleden gebruikte modellen en berekeningsmethoden voor depositie accuraat zijn. Voor de emissie-evaluatie MJP-G 2000 is het Operationeel model Prioritaire Stoffen (OPS) gebruikt om de atmosferische depositie te berekenen (als vracht op jaarbasis). Dit is wel getoetst voor NO_x en SO_x , maar niet voor gewasbeschermingsmiddelen (De Nie, 2002). De onzekerheid in de uitkomsten van berekeningen met OPS zijn naar schatting een factor 3, maar voor individuele gewasbeschermingsmiddelen kan de onzekerheid hiervan sterk afwijken. Ook is niet erg duidelijk welke eigenschappen bepalen of een verbinding wel of niet in atmosferische depositie zal worden aangetroffen.

Voor individuele gewasbeschermingsmiddelen zullen lokale bronnen (binnen een straal van enkele km) vaak een grotere bijdrage aan de atmosferische depositie leveren dan gebruik op veraf gelegen locaties. Doordat transport via de atmosfeer echter zeer snel verloopt kunnen

ook verderaf gelegen bronnen aanzienlijk bijdragen aan de totale depositie. Dit impliceert dat zelfs bij gebruik van een accuraat model de berekeningen van atmosferische depositie slechts een onvolledig beeld geven omdat de bijdrage van gebruik op bijv. buitenlandse locaties niet kan worden meegenomen. De berekeningen geven uiteraard wel een beeld van de gevolgen van wijzigingen in het gebruik in de Nederlandse landbouw en in overige sectoren op (een deel van) de depositie die in Nederland optreedt, maar hiermee kan niet de volledige atmosferische depositie in Nederland worden beschreven. Ook geldt dat metingen van depositie zullen worden beïnvloed door wijzigingen in het gebruik in het buitenland. Naar schatting komt van de atmosferische depositie met een Nederlandse oorsprong circa 10% in Nederland terecht (De Nie, 2002). Wellicht heeft het Nederlands beleid in kwantitatieve zin meer invloed op de atmosferische depositie in het buitenland dan in Nederland.

Conclusie

Er zijn geen concrete aanwijzingen dat atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen in natuurgebieden in Nederland tot een verhoogd risico voor water- en/of bodemleven leiden. De maximale concentraties die in regenwater worden aangetroffen kunnen echter soms zo hoog zijn (honderden ng/L voor fungiciden en insecticiden, voor herbiciden nog hoger) dat niet te allen tijde kan worden uitgesloten dat er risico's op effecten zijn.

5.3 Aanbeveling voor de EDG-2010

In 2011 wordt het Nederlandse gewasbeschermingsbeleid geëvalueerd (EDG-2010), zoals verwoord in de Nota Duurzame Gewasbescherming. In de nota is de operationele doelstelling voor het oppervlaktewater gedefinieerd als een reductie van de milieubelasting gedurende de evaluatieperiode 1998 - 2008.

De NMI-berekeningen van de milieubelasting in het kader van de EDG-2010 zijn gebaseerd op een beschrijving van het landsdekkend gemiddelde gebruik in de Nederlandse landbouw, met afzetcijfers van fabrikanten en een correctie voor het niet-landbouwkundig gebruik in 1998 en 2008. Emissies, blootstellingsconcentraties en risico's worden berekend voor de edge-of-field situatie. Atmosferische depositie over middenlange afstand is een grensoverschrijdend proces; de atmosferische depositie op Nederlands grondgebied is voor een aanzienlijk deel afkomstig van bronnen in het buitenland. Om dezelfde reden is het gebruik in Nederland in de eerste plaats een bron van atmosferische deposities buiten Nederland, en in de tweede plaats een bron van atmosferische deposities binnen Nederland. Het grensoverschrijdend transport van gewasbeschermingsmiddelen in de atmosfeer over middenlange afstand maakt dat het bijzonder lastig is om de gevolgen van het Nederlands gewasbeschermingsbeleid voor de atmosferische depositie in natuurgebieden in Nederland te bepalen.

Op grond van bovenstaande overweging, en de conclusie dat er in de onderzochte literatuur geen concrete aanwijzingen zijn gevonden dat atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen in natuurgebieden in Nederland tot een verhoogd risico voor water- en/of bodemleven leidt, wordt geadviseerd om de atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen in natuurgebieden in Nederland in de EDG-2010 buiten beschouwing te laten.

Literatuur

- Ackerman, L.K., A.R. Schwindt, S.L.M. Simonich, D.C. Koch, T.F. Blett, C.B. Schreck, M.L. Kent, D.H. Landers, 2008. Atmospherically deposited PDBEs, pesticides, PCBs, and PAHs in Western U.S. national park fish: concentrations and consumption guidelines. *Environ. Sci. Technol.* 42, 2334 – 2341.
- Asman, W.A.H., A. Jorgensen, R. Bossi, K.V. Vejrup, B.B. Mogensen, M. Glasius, 2005. Wet deposition of pesticides and nitrophenols at two sites in Denmark: measurements and contributions from regional sources. *Chemosphere* 59, 1023 – 1031.
- Aulagnier, F., L. Poissant, 2005. Some pesticides occurrence in air and precipitation in Quebec, Canada. *Environ. Sci. Technol.* 39, 2960 – 2967.
- Aulagnier, F., L. Poissant, D. Brunet, C. Beauvais, M. Pilote, C. Deblois, N. Dassylva, 2008. Pesticides measured in air and precipitation in the Yamaska basin (Quebec): Occurrence and concentrations in 2004. *Sci. Tot. Env.* 394, 338 – 348.
- Bakker, D.J., K.D. van den Hout, 1993. De invloed van atmosferische depositie op de kwaliteit van bodem en oppervlaktewater in Nederland. Beschrijving rekenmethode en berekeningsresultaten. TNO-Rapport IMW – R 93/200. TNO Instituut voor Milieuwetenschappen, Delft.
- Berg, E. van den, C. Jacobs, H. van Jaarsveld, 2009. Development of a methodology to assess atmospheric deposition on nature areas. Alterra, Wageningen.
- Bernhardt, A., W. Ruck, 2004. Determination of herbicides in stemflow and throughfall of beeches (*Fagus sylvatica* L.) and in rainfall. *Chemosphere* 57, 1563 – 1570.
- Bidleman, T.F., A.D. Leone, F. Wong, L. van Vliet, S. Szeto, B.D. Ripley, 2006. Emission of legacy chlorinated pesticides from Agricultural and orchard soils in British Columbia, Canada. *Environ. Toxicol. Chem.* 25, 1448 – 1457.
- Blais, J.M., F. Wilhelm, K.A. Kidd, D.C.G. Muir, D.B. Donald, D.W. Schindler, 2003. Concentrations of organochlorine pesticides and polychlorinated biphenyls in amphipods (*Gammarus Lacustris*) along an elevation gradient in mountain lakes of Western Canada. *Environ. Toxicol. Chem.* 22, 2605 – 2613.
- Brun, G.L., R.M. MacDonald, J. Verge, J. Aubé, 2008. Long-term atmospheric deposition of current-use and banned pesticides in Atlantic Canada; 1980 – 2000. *Chemosphere* 71, 314 – 327.
- Carlson, D.L., I. Basu, R.A. Hites, 2004. Annual variations of pesticide concentrations in Great Lakes precipitation. *Environ. Sci. Technol.* 38, 5290 – 5296.
- Daly, G.L., Y.D. Lei, C. Teixeira, D.C.G. Muir, F. Wania, 2007. Pesticides in Western Canadian mountain air and soil. *Environ. Sci. Technol.* 41, 6060 – 6025.

- Daly, G.L., Y.D. Lei, C. Teixeira, D.C.G. Muir, L.E. Castillo, F. Wania, 2007a. Accumulation of current-use pesticides in neotropical montane forests. *Environ. Sci. Technol.* 41, 1118 – 1123.
- Daly, G.L., Y.D. Lei, C. Teixeira, D.C.G. Muir, L.E. Castillo, L.M.M. Jantunen, F. Wania, 2007b. Organochlorine pesticides in the soils and atmosphere of Costa Rica. *Environ. Sci. Technol.* 41, 1124 – 1130.
- Davidson, C., 2004. Declining downwind: amphibian population declines in California and historical pesticide use. *Ecological Applications* 14, 1892 – 1902.
- De Jong, F.M.W., R. Luttik, 2003. Effects of atmospheric deposition of pesticides on terrestrial organisms in the Netherlands. RIVM rapport 716601006/2003, RIVM, Bilthoven.
- De Jong, F.M.W., G.R. de Snoo, J.C. van de Zande, 2008. Estimated nationwide effects of pesticide spray drift on terrestrial habitats in the Netherlands. *Journal of Environmental Management* 86, 721–730.
- De Nie, D.S., 2002. Emissie-evaluatie MJP-G 2000. RIVM rapport 716601004/2002. RIVM, Bilthoven.
- De Nijs, A.C.M., A. Driesprong, H.A. den Hollander, L.R.M. de Poorter, W.H.J. Verweij, J.A. Vonk, D. de Zwart, 2008. Risico's van toxische stoffen in de Nederlandse oppervlaktewateren. RIVM rapport 607340001. RIVM, Bilthoven.
- Demers, M.J., E.N. Kelly, J.M. Blais, F.R. Pick, V.L. St. Louis, D.W. Schindler, 2007. Organochlorine compounds in trout from lakes of a 1600 meter elevation gradient in the Canadian Rocky Mountains. *Environ. Sci. Technol.* 41, 2723 – 2729.
- Den Hollander, H., T. van der Linden, A. Hollander, 2007. Poster 'Effects of Dutch plant protection policy on the toxic pressure in terrestrial ecosystems'. RIVM, Bilthoven.
- Deneer, J.W., G.H.P. Arts, F. van den Berg, P.J. van den Brink, T.C.M. Brock, 2004. Atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen en mogelijke risico's voor waterleven. Alterra rapport 934, Alterra, Wageningen.
- Donald, D.B., A.J. Cessna, E. Sverko, N.E. Glozier, 2007. Pesticides in surface drinking-water supplies of the Northern Great Plains. *Environ. Health Persp.* 115, 1183 – 1191.
- Dubus, I.G., J.M. Hollis, C.D. Brown, 2000. Pesticides in rainfall in Europe. *Environ. Poll.* 110, 331 – 344.
- Duyzer, J.H., A.W. Vonk, 2001. Atmosferische depositie van POP in Nederland: Resultaten van metingen in het jaar 2000. TNO-MEP rapport R2001/307, TNO, Apeldoorn.
- Duyzer, J.H., A.W. Vonk, 2002. Atmosferische depositie van pesticiden, PAK en PCB's in Nederland. TNO-MEP rapport R2002/606, TNO, Apeldoorn.
- Duyzer, J.H., 2003. Pesticide concentrations in air and precipitation in the Netherlands. *J. Environ. Monit.* 5, 77N – 80N.

- FOCUS, 2008. Pesticides in air: considerations for exposure assessment. Report of the FOCUS Working Group on Pesticides. EC Document Reference /Sanco/10553/2006 Rev 2 June 2008.
- Fu, S., K. Li, Z.Z. Yang, X.B. Xu, 2008. Composition, distribution, and characterization of organochlorine pesticides in sandstorm depositions in Beijing, China. *Water Air Soil Pollut* 193, 343 – 352.
- George, T.K., D. Waite, K. Liber, J. Sproull, 2003. Toxicity of a complex mixture of atmospherically transported pesticides to *Ceriodaphnia dubia*. *Environ. Mon. Assessment* 85, 309 – 326.
- Gioia, R., J.H. Offenberg, C.L. Gigliotti, L.A. Totten, S. Du, S.J. Eisenreich, 2005. Atmospheric concentrations and deposition of organochlorine pesticides in the US Mid-Atlantic region. *Atmospheric Environment* 39, 2309 – 2322.
- Goel, A., L.L. McConnell, A. Torrents, 2005. Wet deposition of current use pesticides at a rural location on the Delmarva peninsula: impact of rainfall patterns and agricultural activity. *J. Agric. Food Chem.* 53, 7915 – 7924.
- Gouin, T., M. Shoeib, T. Harner, 2008. Atmospheric concentrations of current-use pesticides across south-central Ontario using monthly-resolved passive air samplers. *Atmospheric Environment* 42, 8096 – 8104.
- Gryniewicz, M., Z. Polkowska, T. Gorecki, J. Namiesnik, 2003. Pesticides in precipitation from an urban region in Poland (Gdansk-Sopot-Gdynia tricity) between 1998 and 2000. *Water, Air, and Soil Poll.* 149, 3 – 16.
- Hageman, K.J., S.L. Simonich, D.H. Campbell, G.R. Wilson, D.H. Landers, 2006. Atmospheric deposition of current-use and historic-use pesticides in snow at national parks in the Western United States. *Environ. Sci. Technol.* 40, 3174 – 3180.
- Hamers, T., P.J. van den Brink, L. Mos, S.C. van der Linden, J. Legler, J.H. Koeman, A.J. Murk, 2003. Estrogenic and esterase-inhibiting potency in rainwater in relation to pesticide concentrations, sampling season and location. *Environ. Poll.* 123, 47 – 65.
- Heidorn, C., 2002. The use of plant protection products in the European Union, data 1992 – 1999. Eurostat, Theme 8: Environment and Energy. European Communities, Luxembourg: Office for official publications of the European Communities.
- Jacobs, C.M.J., F. van den Berg, J.A. van Jaarsveld, 2007. Principles and main uncertainties of a methodology to assess gaseous deposition of pesticides onto small water bodies. In: *Environmental Fate and Ecological Effects of Pesticides, XIII International Symposium in Pesticide Chemistry, Piacenza, Italy, 3 – 6 September 2007*. –Pavia (Italy): La Goliardica Pavese XIII International Symposium in Pesticide Chemistry; pp. 270 – 277.
- Kuang, Z., L.L. McConnell, A. Torrents, D. Meritt, S. Tobash, 2003. Atmospheric deposition of pesticides to an agricultural watershed of the Chesapeake Bay. *J. Environ. Qual.* 32, 1611 – 1622.
- Kumari, B., V.K. Madan, T.S. Kathpal, 2007. Pesticide residues in rain water from Hisar, India. *Environ. Monit. Assess.* 133, 467 – 471.

- Ma, J., S. Daggupaty, T. Harner, Y. Li, 2003. Impacts of lindane usage in the Canadian prairies on the Great Lakes ecosystem. 1. Coupled atmospheric transport model and modeled concentrations in air and soil. *Environ. Sci. Technol.* 37, 3774 – 3781.
- Ma, J., S. Venkatesh, Y.-f. Li, Z. Cao, S. Daggupaty, 2005. Tracking toxaphene in the North American Great Lakes basin. 2. A strong episodic long-range transport event. *Environ. Sci. Technol.* 39, 8132 – 8141.
- Malik, A., V.K. Singh, K.P. Singh, 2007. Occurrence and distribution of persistent trace organics in rainwater in an urban region (India). *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* 79, 639 – 645.
- Mast, M.A., W.T. Foreman, S.V. Skaates, 2007. Current-use pesticides and organochlorine compounds in precipitation and lake sediment from two high-elevation national parks in the Western United States. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 52, 294 – 305.
- Muir, D.C.G., C. Teixeira, F. Wania, 2004. Empirical and modeling evidence of regional atmospheric transport of current-use pesticides. *Environ. Toxicol. Chem.* 23, 2421 – 2432.
- Pistocchi, A., 2008. A GIS-based approach for modeling the fate and transport of pollutants in Europe. *Environ. Sci. Technol.* 42, 3640 – 3647.
- Prevedouros, K., M. MacLeod, K.C. Jones, A.J. Sweetman, 2004. Modelling the fate of persistent organic pollutants in Europe: parameterization of a gridded distribution model. *Environ. Poll.* 128, 251 – 261.
- Roemer, M., A. Baart, J.-M. Libre, 2005. ADEPT – Development of an atmospheric deposition and transport model for risk assessment. TNO rapport B&O AR 2005-208. TNO Apeldoorn.
- Sakai, M., 2003. Investigation of pesticides in rainwater at Isogo Ward of Yokohama. *J. Health Sci.* 49, 221 – 225.
- Sakai, M., 2006. Acute toxicity tests of rainwater samples using *Daphnia magna*. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 64, 215 – 220.
- Sauret, N., H. Wortham, R. Strekowski, P. Herckès, L.I. Nieto, 2009. Comparison of annual dry and wet deposition fluxes of selected pesticides in Strasbourg, France. *Environ. Poll.* 157, 303 – 312.
- Scheyer, A., S. Morville, P. Mirabel, M. Millet, 2007. Pesticides analysed in rainwater in Alsace region (Eastern France): comparison between urban and rural sites. *Atmospheric Environment* 41, 7241 – 7252.
- Schmid, P., M. Kohler, E. Gujer, M. Zennegg, M. Lanfranchi, 2007. Persistent organic pollutants, brominated flame retardants and synthetic musks in fish from remote alpine lakes in Switzerland. *Chemosphere* 67, S16 – S21.
- Scholtz, M.T., T.F. Bidleman, 2007. Modelling of the long-term fate of pesticide residues in agricultural soils and their surface exchange with the atmosphere: Part II. Projected long-term fate of pesticide residues. *Sci. Tot. Env.* 377, 61 – 80.

- Smidt, R.A. en J.W. Deneer, 2001. Reductie van de belasting van oppervlaktewater met gewasbeschermingsmiddelen in het stroomgebied van de Drentsche Aa door driftbeperkende maatregelen. Alterra rapport 191, Alterra, Wageningen.
- Sparling, D.W., G.M. Fellers, L.L. McConnell, 2001. Pesticides and amphibian population declines in California, USA. *Environ. Toxicol. Chem.* 20, 1591 – 1595.
- Takase, Y., H. Murayama, H. Mitobe, T. Aoki, H. Yagoh, N. Shibuya, K. Shimizu, Y. Kitayama, 2003. Persistent organic pollutants in rain at Niigata, Japan. *Atmospheric Environment* 37, 4077 – 4085.
- Teil, M.-J., M. Blanchard, M. Chevreuil, 2004. Atmospheric deposition of organochlorines (PCBs and pesticides) in northern France. *Chemosphere* 55, 501 – 514.
- Tomlin, C.D.S., 2003. *The Pesticide Manual*, 13th edition. British Crop Protection Council, Alton, Hampshire, U.K.
- Usenko, S., D.H. Landers, P.G. Appleby, S.L. Simonich, 2007. Current and historical deposition of PBDEs, pesticides, PCBs, and PAHs to Rocky Mountain national park. *Environ. Sci. Technol.* 41, 7235 – 7241.
- Van Dijk, H.F.G., R. Guicherit, 1999. Atmospheric dispersion of current-use pesticides: a review of the evidence from monitoring studies. *Water, Air, and Soil Pollution* 115, 21 – 70.
- Van Pul, W.A.J., T.F. Bidleman, E. Brorström-Lundén, P.J.H. Builtjes, S. Dutchak, J.H. Duyzer, S.-E. Gryning, K.C. Jones, H.F.G. van Dijk, J.H.A. van Jaarsveld, 1999. Atmospheric transport and deposition of pesticides: an assessment of current knowledge. *Water, Air, and Soil Pollution* 115, 245 – 256.
- Vogel, J.R., M.S. Majewski, P.D. Capel, 2008. Pesticides in rain in four agricultural watersheds in the United States. *J. Environ. Qual.* 37, 1101 – 1115.
- Waite, D.T., A.J. Cessna, R. Grover, L.A. Kerr, A.D. Snihura, 2004. Environmental concentrations of agricultural herbicides in Saskatchewan, Canada: bromoxynil, dicamba, diclofop, MCPA, and trifluralin. *J. Environ. Qual.* 33, 1616 – 1628.
- Waterschap Hollandse Delta, 2008. Emissiereductie van gewasbeschermingsmiddelen vanuit de glastuinbouw. Samenvattingsrapport, December 2008.
- Yao, Y., E. Galarneau, P. Blanchard, N. Alexandrou, K.A. Brice, Y-F. Li, 2007. Atmospheric atrazin at Canadian IADN sites. *Environ. Sci. Technol.* 41, 7639 – 7644.
- Yao, Y., T. Harner, P. Blanchard, L. Tuduri, D. Waite, L. Poissant, C. Murphy, W. Belzer, F. Aulagnier, E. Sverko, 2008. Pesticides in the atmosphere across Canadian agricultural regions. *Environ. Sci. Technol.* 42, 5931 – 5937.

Bijlage 1 Samenvattingen van de gevonden studies

Het betreft uitsluitend literatuur die na 2003 is gepubliceerd. Beoordeling van de juistheid en volledigheid van de gebruikte gegevens en hun interpretatie door de auteurs kon in deze studie slechts zeer beperkt worden uitgevoerd. Om deze reden zijn de conclusies zoals die in de oorspronkelijke literatuur door de auteurs zijn verwoord in hun geheel overgenomen.

I. Atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen in Nederland

Duyzer (2003) geeft een zeer summier overzicht van de resultaten van het meetprogramma dat door TNO in de periode 1999 – 2001 is uitgevoerd op achttien locaties verdeeld over Nederland. De resultaten zijn eerder beduidend uitvoeriger besproken in de TNO rapportage (Duyzer en Vonk, 2002). Zeventien verschillende gewasbeschermingsmiddelen (gbm) overschreden het maximaal toegelaten risico (MTR) één of meerdere keren. Tweeëntwintig gbm werden in neerslag aangetroffen met concentraties boven de drinkwaternorm van 100 ng/L. Duyzer concludeert dat er over het algemeen een sterk verband is tussen landbouwkundig gebruik van een stof in een regio en de aanwezigheid van de stof in neerslag in dat gebied. De depositie van atrazin blijkt voor een groot deel te verklaren met behulp van aannames over het gebruik van deze stof in België.

Buijsman en Van Pul (2003) geven een overzicht van de metingen van lindaan in regenwater op verschillende locaties in Nederland in de periode van 1980 – 2000. Voor zover bekend waren er geen emissies van lindaan in de nabije omgeving van de meetstations. Er is sprake van een duidelijke seizoensinvloed, met verhoogde niveaus van lindaan in april – juni. Voor sommige jaren is het mogelijk om de concentraties die op verschillende locaties werden gemeten te vergelijken; deze tonen over het algemeen een sterke overeenkomst, wat wijst op het belang van transport over grote afstand. De gehalten in Nederlands regenwater in 1990 en 1996 waren duidelijk verlaagd ten opzichte van de gehalten gemeten in 1980 en 1985. Vergelijkbare resultaten worden gerapporteerd voor Duitsland, waar eveneens een grote verlaging van de depositie van lindaan heeft plaatsgevonden. Dit geldt niet voor de gehalten die in dezelfde periode waren gemeten in België en Frankrijk, waar geen sprake is van een duidelijke verlaging.

Hamers *et al.* (2003) hebben de atmosferische depositie (zowel totale als alleen natte depositie) bepaald op drie locaties in Zuid-Holland. De locaties liggen in de naaste omgeving van een glastuinbouwgebied (Naaldwijk), een gebied met bollenteelt (Hillegom) en een gebied zonder intensieve landbouw (Noorden, aan de rand van de Nieuwkoopse plassen). In de opgevangen monsters werden de gehalten van 20 organofosfor, 10 carbamaat, 31 organochloorverbindingen (alle insecticiden, uitgezonderd enkele polychloorbifenylen) en een zestal herbiciden en fungiciden bepaald gedurende een periode van januari 1998 t/m december 1998. Meer dan 80% van de gezochte gewasbeschermingsmiddelen werd ook daadwerkelijk in één of meer watermonsters aangetroffen, terwijl slechts de helft van de geanalyseerde organochloorverbindingen werden gevonden. De auteurs concludeerden dat verschillen tussen de locaties wat betreft aangetroffen pesticiden een afspiegeling zijn van de verschillen in middelengebruik tussen de verschillende gebieden (Hamers *et al.*, 2003).

Met de opgevangen regenwatermonsters werden bio-assays uitgevoerd waarmee de mate van remming van acetylcholine-esterase en de estrogene activiteit van het opgevangen regenwater werd vastgesteld. De esterase-activiteit bleek sterk te verschillen tussen locaties, maar niet

tussen seizoenen. De gemiddelde esterase-activiteit was vergelijkbaar op de achtergrond lokatie en in het bollengebied, terwijl de activiteit in het regenwater dat was opgevangen in het glastuinbouwgebied circa tweemaal hoger was. De esterase-activiteit was sterk gecorreleerd aan de aanwezigheid van organofosfor- en carbamaat-insecticiden. De gemiddelde estrogene-activiteit was voor alle drie de gebieden vergelijkbaar en was gecorreleerd aan de aanwezigheid van organochloor verbindingen, hoewel de auteurs benadrukken dat niet duidelijk is of deze verbindingen wel verantwoordelijk waren voor de geconstateerde estrogene-activiteit (Hamers *et al.*, 2003). De auteurs concludeerden dat, indien de esterase-activiteit werd uitgedrukt in 'dichloorvos equivalenten', sommige van de opgevangen regenwatermonsters hogere concentraties dcv-equivalenten bevatten dan de maximaal toegestane concentratie (MPC) van dichloorvos.

In een studie uitgevoerd door het Waterschap Hollandse Delta (2008) naar de aanwezigheid van gbm in de waterstromen in bedekte teelt (kassen) werden verschillende gbm aangetroffen in bassinwater, dat grotendeels bestaat uit opgevangen hemelwater. Hieraan wordt op veel bedrijven het opgevangen condenswater toegevoegd, wat voor een deel van de gbm hun aanwezigheid in het bassinwater kan verklaren. Er werden echter ook middelen (herbiciden) aangetroffen die op het betreffende bedrijf vrijwel zeker niet werden gebruikt. Er is geen verder onderzoek uitgevoerd om te achterhalen langs welke route deze gbm in het bassinwater terecht waren gekomen. Voor verschillende van de aangetroffen herbiciden wordt verondersteld dat de aanwezigheid het gevolg is van de aanwezigheid van akkerbouwgewassen in de directe omgeving van de kassen, wat impliceert dat atmosferische depositie een rol heeft gespeeld.

II. Atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen in andere Europese landen

Prevedouros *et al.* (2004) beschrijven de toepassing van een oorspronkelijk Amerikaans model op de beschrijving van het gedrag van linaan op basis van emissiegegevens uit 1998. Europa bestaat in het model uit 50 regio's en wordt gebruikt om de concentraties van linaan in lagere luchtlagen en in bodem te beschrijven (hoewel ook andere compartimenten in principe mogelijk moeten zijn). In overeenstemming met de overheersende windrichting in Europa voorspelt het model hoge concentraties in de omgeving van de belangrijkste bronnen en in centrale en noordoostelijke delen van Europa. Het model voorspelt concentraties in de lucht met een factor 5 – 10, wat wordt geweten aan onjuiste schattingen van bronsterkten en Europese achtergrondniveaus. Toepassing van het model lijkt vooral gericht op de beschrijving van het gedrag van relatief persistente (organochloor) verbindingen; beschrijving van het gedrag van minder persistente (moderne) gbm valt buiten het bestek van het model.

Scheyer *et al.* (2007) beschrijven metingen in regenwater op twee locaties in de Franse Elzas tussen januari 2002 en juni 2003. Een van de locaties bevond zich in landelijk gebied, de andere lokatie was in stedelijk gebied gesitueerd. De gbm die in de hoogste concentraties werden gevonden waren alachlor en metolachlor, die vooral gedurende de gebruikperiode (april 2003, voor opkomst in maïs, een grote teelt in het betreffende gebied). Chlorfenvinphos, diflufenican, parathion-methyl, phosalone, Mecoprop, MCPA en 2,4-D werden in enkele monsters gedurende de gebruikperiode aangetroffen (eind april tot half mei), terwijl diuron, endosulfan en linaan in zeer veel van de (wekelijkse) monsters werd aangetroffen. Alle gbm werden in het landelijke gebied in hogere concentraties aangetroffen dan in het stedelijke gebied, behalve diuron; volgens de auteurs is dit waarschijnlijk het gevolg van het gebruik van diuron op verhardingen.

Teil *et al.* (2004) beschrijven de resultaten van metingen aan organochloorverbindingen (waaronder lindaan, maar ook PCBs en hexachloorbenzenen) in de periode oktober 1999 – oktober 2000 op zes locaties in Frankrijk. Concentraties in het westen van Frankrijk waren dicht bij de achtergrond concentratie (1.7 ng/L), maar waren hoger op de centraal gelegen stedelijke lokatie (15.9 ng/L) en meer oostelijk gelegen agrarische lokatie (19.2 ng/L), met maximale concentraties gedurende het voorjaar en de herfst. Uit vergelijking met concentraties die in 1986 zijn gemeten wordt duidelijk dat de concentraties van lindaan circa 10x lager zijn geworden, waarschijnlijk door beperkingen in het gebruik, terwijl de concentraties van PCBs in dezelfde periode niet zijn verlaagd. De auteurs concluderen dat er voor PCBs een duidelijke invloed is van de overheersend zuidwestelijke windrichting op de hoogte van de PCB depositie op de verschillende locaties (transport van zuidwest naar noordoost en hierdoor toenemende concentraties verder naar het zuidoosten).

Sauret *et al.* (2009) beschrijven metingen aan negen gbm en twee triazine (atrazin) afbraakproducten op een lokatie in stedelijke omgeving (een bosachtig park binnen Strasbourg), waar zowel gas, deeltjes en regen werden bemonsterd in de periode van augustus 2000 tot augustus 2001. De belangrijkste agrarische activiteiten zijn circa 5 km van de meetlocatie verwijderd, maar de auteurs zijn van mening dat de gemeten concentraties niet rechtstreeks worden beïnvloed door agrarische activiteiten en dus kunnen dienen als maat voor de achtergrondconcentratie van de gemeten gbm. Desalniettemin is er een goede overeenkomst tussen de periode waarin maximale deposities worden waargenomen en de periode waarin de verschillende gbm in de landbouw worden toegepast. Het belangrijkste doel van de publicatie is om op basis van de waargenomen verdeling van de deeltjesgrootte met behulp van een aangepast model te schatten welke bijdrage droge depositie aan de totale depositie heeft, en de invloed die de aanwezigheid van begroeiing (bos of bosachtig oppervlak) hierop heeft. Volgens door de auteurs uitgevoerde berekeningen draagt droge depositie aanzienlijk bij aan de totale depositie; voor de negen gemeten gbm bedroeg droge depositie 10% (fenoxaprop-ethyl en terbutylazine) tot 61% (cymoxanil) van de totale depositie.

Asman *et al.* (2005) beschrijven de resultaten van meting van een groot aantal gbm, afbraakproducten en nitrophenolen (in totaal 79 verbindingen) op twee locaties in Denemarken tussen januari en juli 2001. Van de gbm werden de hoogste concentraties gevonden voor pendimethalin en een afbraakproduct van terbutylazine; de hoogste concentraties werden aangetroffen gedurende de periode van gebruik van de gbm. De concentraties van nitrophenolen waren beduidend hoger dan die van de gbm (2,4-dinitrophenol 40x hoger dan pendimethalin), en waren hoger op de meetlocatie in de stedelijke omgeving dan op het meer landelijk gelegen meetpunt (nitrophenolen worden behalve in de atmosfeer ook gevormd in automotoren). Er werden in de neerslag ook enkele verbindingen gevonden die op dat moment in Denemarken niet waren toegelaten, waaruit de auteurs concluderen dat transport vanuit het buitenland (tenminste 60 – 80 km, maar voor sommige verbindingen waarschijnlijk veel verder) moet hebben plaatsgevonden. Een van de aanbevelingen van de auteurs is dat metingen van gbm in lucht en neerslag zowel voor als na beëindigen van de toelating zou moeten plaatsvinden; dit geeft informatie over het gedrag van gbm in de atmosfeer en geeft bovendien de toelatingsinstanties beter de mogelijkheid te onderzoeken wat het effect van hun beleid is.

Siebers *et al.* (2003) beschrijven metingen aan spuitdrift en depositie op wateroppervlak op korte en langere afstand (10 – 50 m) van toepassing van lindaan, parathion en pirimicarb in gerst. Lindaan gaf door zijn hoge vluchtigheid en persistentie de hoogste depositie, waarbij de concentraties hoger waren dan door spuitdrift kon worden verklaard. Parathion en pirimicarb gaven vergelijkbare, maar lagere waarden voor depositie.

De Rossi *et al.* (2003) beschrijven metingen aan gbm (vooral fungiciden) en PAHs in de omgeving van Trier, waar veel druiventeelt wordt bedreven. Er werden in de loop van juli 1999 – december 2000 metingen uitgevoerd in regenwater dat was verzameld op negen verschillende stedelijke, landelijke en industriële locaties. Atrazin, simazin, methyl-parathion, penconazool en procymidon werden in meer dan 30% van de monsters aangetroffen. Gbm werden ook op stedelijke locaties aangetroffen, maar gbm werden alleen in de lente en zomer (tijd van toepassing) aangetroffen. PAHs werden daarentegen gedurende het hele jaar in regenwater gevonden, waarbij de hoogste concentraties op de stedelijke en industriële locaties werden gemeten.

Bernhardt en Ruck (2004) verrichtten tussen mei en november 2001 metingen aan de concentraties van gbm (17 herbiciden) in regenwater dat aan de rand van een beukenbos door een bladerendek heen de bodem had bereikt, en in regenwater dat via de stam langs bomen naar beneden was gelopen. Daarnaast werd ook net buiten het bos regenwater opgevangen om dit te vergelijken met het in het bos opgevangen water. Isoproturon, metolachloor, terbutylazine en prosulfocarb werden gedurende en kort na hun toepassing in bovenwinds landbouwgebied aangetroffen in concentraties van 20 – 360 ng/L voor isoproturon en 5 – 65 ng/L voor de andere gbm. De concentraties in water dat langs bomen naar beneden liep waren in het algemeen (tot 3x) hoger dan in regenwater en bovendien werden de gbm gedurende langere perioden aangetroffen. Het water dat via het bladerendek de bodem bereikte bevatte concentraties prosulfocarb en isoproturon die 8 – 20x hoger waren dan wat in dezelfde periode in regenwater werd aangetroffen. De auteurs schatten dat de depositie van isoproturon op bosbodem (900 – 2700 ng/m²) 50 – 70x hoger was dan de depositie op open grasland in dezelfde periode. Een mogelijke verklaring is dat het bladerendek van bomen fungeert als tijdelijke opslag voor gbm in de lucht, waarna de gbm tijdens regenval vrijkomen en de bodem bereiken.

Grynkiewicz *et al.* (2003) hebben metingen verricht aan organostikstof (triazine) herbiciden, organofosfor (insecticiden) en organochloor (insecticiden) gbm in regenwater dat in de periode van 1998 – 2000 was opgevangen op tien locaties in het noorden van Polen. Simazin, atrazin, propazine, fenitrothion, chlofenvinfos, α -HCH, en DDT en zijn metabolieten werden het meest gevonden. Concentraties in neerslag varieerden, maar waren het hoogst gedurende het groeiseizoen (juni en juli). Er was een duidelijk verband tussen de gevonden concentraties in de monsters en de aanwezigheid van 'groene gebieden' (bos, landbouwvelden, tuinen en boomgaarden) in de nabijheid van de meetlocatie. De auteurs concluderen dat voor monsters die binnen het gemeentelijke gebied waren verzameld de bron vooral gebruik in de directe omgeving is, terwijl voor de open gebieden buiten het gemeentelijke gebied vooral transport over grotere afstanden een rol speelt.

Schmid *et al.* (2007) publiceerden metingen van organochloor verbindingen (DDT, PCBs, PBDEs en synthetische musken) in forellen die in de loop van 2003 waren gevangen in Zwitserse meren op 2062 en 2637 m boven zeeniveau. De gehalten van de meeste van deze verbindingen waren vergelijkbaar met eerder gevonden gehalten in vissen uit lager gelegen gebieden, wat er op duidt dat atmosferische depositie voor beide typen meren de belangrijkste route van aanvoer was. De gehalten van synthetische musken waren in de laagland meren beduidend hoger, wat duidt op de belangrijke rol die aanvoer via rioolwaterzuiveringsinstallaties voor dit type verbindingen speelt.

III. Atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen in de Verenigde Staten van Amerika, Canada en Centraal-Amerika

Veel van de in de V.S. en Canada uitgevoerde metingen richtten zich op gbm die in het verleden zijn toegepast maar nu niet meer worden gebruikt, zoals de organochloorverbindingen DDT, chloordaan en mirex. Daarnaast is in Canada in 2003 een nieuw meetprogramma gestart dat zich richt op nog in gebruik zijnde gbm (Tuduri *et al.*, 2006a). In rapportages vanaf 2005 is er dan ook minder aandacht voor de 'oude' organochloorverbindingen en is er meer aandacht voor de moderne, nog in gebruik zijnde gbm.

Ma *et al.* (2003) beschrijven een door hen ontwikkeld model dat een verband legt tussen het landbouwkundig gebruik van lindaan in een aantal Canadese provincies en transport via de lucht naar een verderop (100 – 200 km) gelegen gebied met een aantal meetstations. Het model weet een goede beschrijving te geven van de concentraties van lindaan in lucht en bodem op de meetlocaties.

Carlson *et al.* (2004) beschrijven de metingen van organochloor verbindingen in neerslag in het Great Lakes gebied over de periode van 1997 – 2002. Gedurende deze periode bleken de gehalten aan DDT-metabolieten significant te dalen in de tijd, terwijl de gehalten aan β -HCH hoger werden. Concentraties van de meeste verbindingen fluctueerden sterk gedurende het jaar, maar de hoogste concentraties werden in de zomer gevonden voor nog in gebruik zijnde verbindingen en in de winter voor niet meer gebruikte verbindingen.

Gioia *et al.* (2005) beschrijven gedurende 2000 – 2001 aan de oostkust van de V.S. uitgevoerde metingen van organochloor verbindingen. De luchtconcentraties van dieldrin, aldrin en de HCH's waren vergelijkbaar met de concentraties die in het Great Lakes district waren gevonden, terwijl de concentraties van DDT, chlordane en heptachlor hoger waren, zodat verwacht kan worden dat de estuaria per eenheid van oppervlakte hogere vrachten van deze verbindingen ontvangen dan de Great Lakes. Van de gemeten concentraties in lucht was slechts een klein deel (ca. 5%) gebonden aan vaste deeltjes. De auteurs doen geen poging om een temporele trend in de gemeten data vast te stellen; mogelijk is hiervoor de bestreken tijdsperiode te kort.

Aulagnier en Poissant (2005) beschrijven metingen aan de luchtconcentratie en depositie van organochloor pesticiden (lindaan, DDT, chlordane, mirex) op een drietal meetstation in de Canadese provincie Quebec gedurende juni 1994 – juni 1995. De hoogste concentraties in lucht werden in het algemeen gevonden tijdens warme perioden in de lente en zomer.

Bidleman *et al.* (2006) beschrijven de metingen aan luchtconcentraties van DDT en enkele afbraakproducten van DDT, hexachloorcyclohexaan en chlordane. De metingen werden uitgevoerd boven landbouwgronden, om na te gaan in hoeverre de in het verleden gebruikte middelen nog uit deze gronden verdampen, wat inderdaad het geval blijkt. Scholtz en Bidleman (2007) beschrijven modelberekeningen waaruit zij concluderen dat ook bij jaarlijks gebruik van de landbouwgrond kan worden verwacht dat over 20 jaar nog meer dan 76% van de gemeten gehalten aanwezig zal zijn in de bovenste 7 cm grond.

Usenko *et al.* (2007) analyseren de trends in de concentraties van enkele organochloor verbindingen (waaronder een aantal gbm) en nieuwere, nog in gebruik zijnde, gbm in sedimenten van op grote hoogte gesitueerde meren in de Rocky Mountains. Daarnaast werden in april 2003 metingen in sneeuwmonsters verricht. Uit de gehalten die werden gemeten in sedimenten concluderen de auteurs dat de depositie van nog in gebruik zijnde gbm in de tijd aan het toenemen is, terwijl de depositie van de niet meer in gebruik zijnde gbm dalende is. Bij

sommige windomstandigheden treedt opwaarts transport van gbm op, wat door de hoge ligging en relatief lage temperaturen in het gebied van grote invloed is op de depositie. Vergelijkbare resultaten zijn gevonden door Mast *et al.* (2007) in sneeuwmonsters en sedimenten in meren op grotere hoogte in het westen van de V.S. Endosulfan, dacthal en chloorthalonil werden regelmatig in sneeuw aangetroffen in concentraties van 0,07 – 2,4 ng/L. In regenwater werden vooral atrazin, carbaryl en dacthal gevonden in concentraties van 3 – 95 ng/L. Meer dan 85% van de depositie van nog in gebruik zijnde gbm vond plaats in de zomer. De concentraties van DDT, DDD en DDE in sedimenten geven aan dat hun depositie op hoog gelegen gebieden aan het verminderen is sinds hun verbod in de jaren zeventig van de vorige eeuw. Dacthal en endosulfan waren de enige nog in gebruik zijnde gbm die in sediment werden gevonden, wat een indicatie is dat ook enkele van de nog in gebruik zijnde gbm via atmosferische depositie hoger gelegen gebieden kunnen bereiken om vervolgens te accumuleren in sedimenten en mogelijk in biota.

Hageman *et al.* (2006) hebben in een bredere studie sneeuwmonsters geanalyseerd die gedurende het voorjaar van 2003 waren verzameld in zeven nationale parken in het westen van de V.S. De meest gevonden gbm waren dacthal, chlorpyrifos, endosulfan en lindaan, terwijl van de historische middelen vooral dieldrink, α -HCH, chlordane en hexachloorbenzeen werden aangetroffen. Vooral huidig en historisch regionaal landbouwkundig gebruik zijn verantwoordelijk voor het aantreffen van de verbindingen. Door het ontbreken van landbouwkundig gebruik in de noordelijk gelegen parken (Alaska) speelt op deze locaties atmosferisch transport over lange afstand een belangrijke rol. Regionaal transport over kortere afstanden speelt vooral een rol in gebieden met hoger landbouwkundig gebruik en voor gbm met lage dampdruk en snelle afbraak in lucht.

Daly *et al.* (2007) bestuderen de invloed van hoogte (en daarmee zowel temperatuur als hoeveelheid neerslag) op het aantreffen van organochloor verbindingen in de lucht en bodem in bergachtig gebied. In drie gebieden werden meerdere meetstation ingericht op verschillende hoogten, waar jaargemiddelde depositie en de concentratie in de bodem (en op een enkele locatie de concentratie in begroeiing) werd gemeten. Luchtconcentraties waren vergelijkbaar voor de drie gebieden, wat duidt op goede menging in de lucht. Op de twee westelijke gebieden werden beduidend hogere concentraties in de bodem en hogere bodem/lucht concentratieverhoudingen gevonden dan het oostelijke gebied. In het westen treden hogere deposities op als gevolg van hogere regenval bij lagere temperaturen. Retentie in de bodem is beneden de boomlijn hoger dan boven de boomlijn als gevolg van de hogere organisch stofgehalte in de bodem. De hoogste gehalten in bodem worden gevonden in gematigde berggronden die rijk zijn aan organisch stof en die grote hoeveelheden koude neerslag ontvangen.

Tuduri *et al.* geven een overzicht van door verschillende auteurs gerapporteerde metingen die in de periode 1980 – 2005 zijn uitgevoerd in diverse delen van Canada.

In het eerste deel (Tuduri *et al.*, 2006a) worden de gegevens met betrekking tot lindaan en endosulfan beschreven, de twee in Canada meest bestudeerde middelen. Lindaan wordt in die periode in Canada uitgefaseerd, terwijl endosulfan nog volop in gebruik is. In het tweede deel (Tuduri *et al.*, 2006b) wordt een overzicht gegeven van metingen aan nog in gebruik zijnde gbm, opgedeeld naar verschillende Canadese regio's. De beschreven meetprogramma's lijken over het algemeen sterk gestuurd door de overheersende teelten in de betreffende regio, zodat de programma's zich vooral richten op stoffen waarvan wordt aangenomen (of bekend is) dat zij in de betreffende regio worden gebruikt. In de Prairies en het Great Lakes gebied zijn metingen uitgevoerd voor herbiciden. In British Columbia, de Pacific Region en de Atlantic region werden vooral herbiciden (glyphosate, 2,4-D, mecoprop, dicamba) en enkele insecticiden (malathion, chlorpyrifos, diazinon, dichlorvos) en fungiciden (captan, metalaxyl,

chloorthalonil en mancozeb) aangetroffen. De auteurs komen tot de conclusie dat het voor nog in gebruik zijnde gbm niet altijd duidelijk is of de aanwezigheid in lucht en neerslag is geassocieerd met lokaal gebruik of met transport vanuit andere regio's. Tevens concluderen zij dat er behoefte is om de veelheid aan beschikbare temporele data te koppelen aan modelberekeningen, maar dat dit sterk wordt gehinderd door een gebrek aan verbruiksgegevens.

George *et al.* (2003) hebben op drie locaties in Canada de droge depositie gemeten van een aantal gbm die in eerdere studies geregeld in depositie in centraal Canada waren aangetroffen. Het pakket aan middelen is vrij beperkt; het betreft zes herbiciden, pentachloorfenol, lindaan en DDT. Het wordt niet duidelijk of in eerdere studies naar een breder middelenpakket is gezocht, waarbij de andere middelen niet werden gevonden, of dat ook in de eerdere studies niet breder is gezocht, bijv. naar insecticiden. De studie was gericht op droge depositie omdat regen in de prairies van centraal Canada slechts sporadisch voorkomt en lokale verschillen in neerslag zeer groot kunnen zijn. In de periode van mei 1993 t/m augustus 1994 werden wekelijks droge depositiemonsters verzameld. De gemeten deposities lopen uiteen van $1 \mu\text{g m}^{-2} \text{dag}^{-1}$ voor 4,4'-DDT, dicamba en trifluralin tot $10 \mu\text{g m}^{-2} \text{dag}^{-1}$ voor lindaan en $200 \mu\text{g m}^{-2} \text{dag}^{-1}$ voor triallaat. De auteurs doen geen poging om de aanwezigheid van de aangetroffen verbindingen, of de verhouding waarin zij zijn aangetroffen, te verklaren. Van een mengsel van deze negen gewasbeschermingsmiddelen werd de toxiciteit voor de watervlo *Ceriodaphnia dubia* bestudeerd. Effecten op zowel acute (48 uur) sterfte als chronische (7 dagen) reproductieremming werden bestudeerd. Elk van de middelen was in het mengsel aanwezig in een verhouding die correspondeerde met zijn maximale gemeten dagelijkse droge depositie (maximum van wekelijkse metingen over een periode van ca. 1,5 jaar). Er werd verondersteld dat deze depositie neer zou komen op zeer ondiep (1 cm) water. De resulterende concentraties lagen ver onder het niveau waarop werd verwacht dat effecten op zouden treden. Regenwater zou met een factor 340 moeten worden geconcentreerd om 50% acute sterfte te veroorzaken; om chronische effecten zichtbaar te maken (LOEC) zou regenwater met een factor 300 moeten worden geconcentreerd. Gezien de samenstelling van het gebruikte mengsel (gebaseerd op de middelenkeuze bij het meten van de droge depositie: lindaan, DDT en verder vooral herbiciden) droeg DDT het meest bij aan de (zeer lage) toxiciteit van het mengsel. De auteurs concluderen dat een mengsel van gewasbeschermingsmiddelen in de samenstelling die correspondeerde met de gemeten droge depositie verwaarloosbare risico's voor zooplankton op zou leveren (George *et al.*, 2003).

Kuang *et al.* (2003) beschrijven de resultaten van metingen van veertien gbm (en enkele afbraakproducten) in een landbouwgebied aan de oostkust van de V.S. in de loop van 2000. In het gebied worden vooral maïs, soyabonen en granen, maar ook enkele groenten verbouwd. Luchtmonsters en regenwater werden verzameld op een lokatie die de auteurs representatief achten voor regionale achtergrondniveaus. Tevens werden op acht locaties monsters genomen in oppervlaktewater. Vooral chloorthalonil, metolachloor, atrazin, simazin, endosulfan en chlorpyrifos werden vaak aangetroffen in lucht en regenwater. De maximale concentraties traden op gedurende het groeiseizoen. Uit schattingen van het verbruik en berekeningen van de vrachten die jaarlijks via natte depositie op het gebied als geheel neerkomen concluderen de auteurs dat voor chloorthalonil en metolachloor ook gebruik buiten het gebied een niet onaanzienlijke bijdrage levert. De auteurs verwachten dat de natte depositie in de nabijheid van de plek van toepassing mogelijk hoger zal zijn, maar hier zijn geen metingen naar verricht. Op dezelfde lokatie zijn door Goel *et al.* (2005) gedurende het groeiseizoen (april – september) neerslag monsters verzameld over een periode van 2000 – 2003. De meest aangetroffen stoffen waren chloorthalonil (92% van de monsters), metolachloor (66%) en endosulfan (49%). Chloorthalonil was de verbinding met de hoogste jaarvracht, maar als stofgroep domineerden

de herbiciden (46 – 61% van de totale depositie), waarbij de hoogste deposities optraden gedurende de periode van toepassing. De vracht aan insecticide en fungiciden was het hoogst gedurende jaren met de meeste neerslag (2001, 2003). De auteurs schatten dat natte depositie verantwoordelijk is voor 10 – 20% van de jaarvrucht van gbm in de Chesapeake baai.

Waite *et al.* (2004) hebben onderzoek verricht naar de aanwezigheid van een aantal herbiciden (bromoxynil, dicamba, diclofop, MCPA en trifluralin) in de lucht en in droge en natte depositie in de Canadese prairies. Alle vijf de herbiciden werden aangetroffen in lucht en in atmosferische depositie. De grootste hoeveelheden werden aangetroffen tijdens en kort na de periode waarin de middelen in de regio werden gebruikt. Er werd geen duidelijk verband gevonden tussen de gehalten in de atmosfeer en de gemeten deposities. De auteurs geven hiervoor verschillende mogelijke redenen. Zij wijzen er onder meer op dat metingen van luchtconcentratie mogelijk niet representatief zullen zijn voor hogere luchtlagen, die bij transport over grote afstanden een groot deel van het middel zullen bevatten. Hoewel de auteurs onderscheid maken tussen gebruik van gbm 'in de omgeving van' meetpunten en verder verwijderd gebruik 'in de regio' wordt niet duidelijk aangegeven op welke afstanden zij hiermee doelen; wel is duidelijk dat de meetpunten door grasstroken van 25 – 50 m waren gescheiden van landbouwgrond.

Muir *et al.* (2004) beschrijven de resultaten van metingen van gbm in 30 meren in Canada en het noordoosten van de Verenigde Staten van Amerika. Het gaat daarbij om meren die volgens de auteurs niet worden beïnvloed door emissies als gevolg van agrarische activiteiten in hun directe nabijheid (binnen enkele tientallen km). In de meeste meren werd een grote verscheidenheid aan gbm gevonden die in Canada nog in gebruik zijn. Daarnaast zijn veel van de gbm ook aangetroffen in regenwater op verschillende locaties in de Great Lakes regio; het is dan ook waarschijnlijk dat de middelen via atmosferisch transport in de meren terecht zijn gekomen.

Aulagnier *et al.* (2008) beschrijven de resultaten van metingen aan 91 gbm (of hun metabolieten) van Mei – September 2004 in de buurt van een landbouwlocatie in de provincie Quebec in Canada. Meer dan 40 verbindingen werden gevonden, waarbij in de meeste monsters meer dan 10 verbindingen tegelijkertijd werden aangetroffen; in enkele monsters werden 19 verbindingen tegelijk aangetroffen. De meest aangetroffen gbm in de lucht waren trifluralin, metolachloor en captan, die in alle monsters gedurende de vijf maanden durende meetperiode werden aangetroffen. De belangrijkste gbm worden geassocieerd met de teelt van maïs en soya, de twee belangrijkste teelten in de regio. Sommige van de in lucht aangetroffen gbm werden ook in natte depositie gevonden. Daarnaast werden in natte depositie echter ook enkele gbm aangetroffen die in lucht niet detecteerbaar waren. Volgens de auteurs wijst dit op de mogelijke bijdrage van transport over lange afstanden aan de samenstelling van natte depositie.

Gouin *et al.* (2008) beschrijven metingen van luchtconcentraties over een zuid-noord traject van Toronto to circa 700 km noordwaarts. Dit vertegenwoordigt een traject van stedelijk via agrarisch naar bosgebied. De in lucht meest aangetroffen gbm waren chlorpyrifos, dacthal, trifluralin en α -endosulfan. De concentraties in het noordelijk gelegen bosgebied waren voor chlorpyrifos ca. 10 – 300x lager dan in het agrarisch gebied en voor α -endosulfan ca. 10 – 30x lager. In het bosgebied waren de fluctuaties tussen seizoenen geringer dan in het agrarisch gebied. Door meetgegevens in de lucht bemonsterings apparatuur te combineren met gegevens over luchtstroming is het mogelijk om relaties te leggen tussen bron- en receptorgebieden. Deze duiden onder meer op de mogelijkheid van verhoogde depositie op Lake Erie en Lake Ontario.

Brun *et al.* (2008) geven een samenvatting van de metingen van organochloor gbm, alachlor en metolachlor (herbiciden), captan en chloorthalonil (fungiciden) en permethrin en cypermethrin (insecticiden) in natte depositie op vier locaties in de oostkust van Canada. De organochloor verbindingen zijn gevolgd over een 20-jaar periode van 1980 – 2000, terwijl de nieuwere verbindingen in juni van 1989 aan het meetprogramma zijn toegevoegd. De meest aangetroffen verbindingen waren α -HCH, γ -HCH (lindaan), chloorthalonil, pentachloorphenol, atrazin en endosulfan. Voor de HCH's, chloorthalonil, endosulfan en atrazin werden de hoogste concentraties gedurende het groeiseizoen (lente/zomer) gevonden. Tijdreeksen laten zien dat de depositie van α -HCH op één van de vier locaties met ca. 75% gedaald is gedurende de 20 jaar die de meetperiode besloeg. Op één van de locaties is een zeer lichte daling (circa 20%) te zien, terwijl op beide andere locaties geen verlaging van de depositie is te constateren. Voor chloorthalonil en endosulfan is de depositie in 2000 op alle locaties vergelijkbaar met de depositie die werd gemeten in 1980.

Yao *et al.* (2007) geven een inventarisatie van metingen aan atrazin in de periode van 1996 – 2002 in het Great Lakes basin. In dit gebied is atrazin gebruikt in de teelt van maïs gedurende meer dan 30 jaar. Op de drie meetlocaties bleek het optreden van maximale concentraties in de lucht sterk seizoensgebonden; pieken traden op in de periode van eind april tot begin juli. Op basis van kennis over het verbruik van atrazin in de regio komen de auteurs tot de conclusie dat zowel lokaal als regionaal verbruik bijdragen aan de gemeten luchtconcentraties, waarbij het laatste via atmosferisch transport de meetlocaties moet hebben bereikt. Er worden ook enkele resultaten van depositiemetingen gepresenteerd, waaruit wordt geconcludeerd dat voor Lake Ontario de belasting met atrazin door gasuitwisseling vergelijkbaar is met de belasting door (droge plus natte) depositie.

Van meer recente datum en meer uitgebreid zijn de door Yao *et al.* (2008) beschreven metingen van een uitgebreid scala aan in gebruik zijnde gbm in verschillende regio's in Canada. De auteurs concluderen dat er een duidelijk verband is tussen de in een regio overheersende teelten en het bijbehorende middelengebruik en de in atmosferische depositie en lucht aangetroffen gbm. Voor zure herbiciden is de droge depositie hoger dan de natte depositie, terwijl dit voor organochloor- en organofosfaat-insecticiden en voor neutrale herbiciden omgekeerd is.

Vogel *et al.* (2008) geven de resultaten van een uitgebreide meetcampagne in vier staten van de V.S., waarbij in het groeiseizoen van 2003 en 2004 42 gbm en 40 afbraakproducten in regenwater werden gemeten. Atrazin en metolachlor werden op elke lokatie in veel monsters aangetroffen, terwijl ook andere herbiciden (acetochlor, alachlor, pendimethalin en simazin) op veel locaties werden gevonden. Van de insecticiden werden vooral chlorpyrifos, carbaryl en diazinon vaak aangetroffen, terwijl de andere 18 insecticiden in minder dan 30% van de monsters werden gevonden. Het afbraakproduct van atrazin werd in Maryland, Indiana en Nebraska aangetroffen, maar niet in California. De oxon-derivaten van chlorpyrifos en diazinon werden vooral in California gevonden. California is van de vier staten degene met het meest diverse verbruik aan gbm door de grote verscheidenheid aan teelten. Er lijkt dan ook een sterk verband te bestaan tussen de aangetroffen gbm en gebruik van de gbm in de omgeving van de meetlokatie. Van de geanalyseerde gbm werden de zeven verbindingen met het hoogste (nationale) verbruik allen zeer vaak in regenwater gevonden (alle zeven in de top-11). De depositie van gbm via regen wordt voor de omgeving van landbouwgebied geschat op minder dan 2% van het totale verbruik, terwijl dit op regionale schaal voor de vier beschreven gebieden wordt geschat op maximaal 0.6%.

Donald *et al.* (2007) hebben concentraties van 45 gbm in vijftien drinkwaterreservoirs en in drinkwater in de noordelijke Great Plains (Canada) onderzocht in de periode van mei 2003 tot juli 2005. Er werden in de reservoirs 27 herbiciden en twee insecticiden aangetroffen, waarbij

het veelvuldig terugvinden van een groep van zeven herbiciden er op lijkt te wijzen dat atmosferische depositie (direct of via regen) de belangrijkste route van aanvoer was. De hoogste concentraties en het grootste aantal herbiciden was echter gerelateerd aan een moment waarop oppervlakkige afspoeling van een nabijgelegen veld naar een van de reservoirs plaatsvond. Waterzuivering verwijderde 14 – 86% van de herbiciden. Schattingen van de jaargemiddelde concentraties van de zeven meest aangetroffen herbiciden in drinkwater waren 75 ng/L (2,4-D), 31 ng/L (2-chloor-4-methylphenoxyazijnzuur), 24 ng/L (clopyralid), 11 ng/L (dichlorprop), 4 ng/L (dicamba), 3 ng/L (mecoprop) en 1 ng/L (bromoxynil).

Ackerman *et al.* (2008) hebben concentraties van een groot aantal persistente verbindingen, waaronder een aantal organochloor gbm, bepaald in vis die afkomstig was van veertien meren in acht nationale parken in het westen van de V.S. gedurende 2003 – 2005. De meren waren gesitueerd op afgelegen locaties op relatief grote hoogte (precieze hoogten zijn niet gegeven). De verbindingen met de hoogste concentraties die in meer dan 75% van de vissen werden aangetroffen waren p,p-DDE, dieldrin, de polybroomdifenylethers PBDE 47 en PBDE 99, PCB 153, PCB 138, dacthal, trans-nonachloor, hexachloorbenzeen en endosulfan (als sulfaat). In acht van de veertien meren waren de gehalten aan dieldrin en p,p'-DDE boven de adviesniveaus voor consumptie van vis ('subsistence fishing cancer thresholds'). In een van de meren waren de concentraties in vis van DDT (en metabolieten) en chlordane voldoende hoog om via doorvergiftiging boven de voor visetende vogels, nertsen en otters acceptabele niveaus te komen. Voor de meeste verbindingen waren de concentraties in vis 10 – 10⁶ maal lager dan de 'recreational fishing contaminant health thresholds'.

Studies van Blais *et al.* (2003) voor de kreeftachtige *Gammarus lacustris* en van Demers *et al.* (2007) voor forellen demonstreren dat het verband dat wel wordt gevonden tussen het verhoogde gehalte aan organochloorverbindingen naarmate de hoogte van het onderzochte meer toeneemt, voor een groot deel is te wijten aan een verlaagde 'eliminatie' van deze verbindingen op grotere hoogte door de geringere groei van de organismen als gevolg van lagere omgevingstemperaturen.

Ma *et al.* (2005) beschrijven de simulatie van depositie van toxafeen op de meren in het Great Lake District, als gevolg van vervluchtiging van 'oude' bodemdeposities van toxafeen. Zij komen tot de conclusie dat in de lente en herfst de herkomst van toxafeen vooral bodemresiduen in het Zuiden van de V.S. zijn, terwijl in de zomer vooral bodemdeposities in het Noord-Oosten van de V.S. van belang zijn. Voor de periode van 9 – 13 September 2000 berekenen zij een verhoging van de atmosferische depositie van toxafeen op de Great Lakes met een factor 100 – 1000x ten opzichte van de eerder in die maand berekende depositie, als gevolg van uitzonderlijke meteorologische omstandigheden over een groot deel van de V.S. tot aan het Zuiden van Canada. De berekende waarden worden niet vergeleken met gemeten waarden. Deze gedurende zeer korte tijd (dagen) optredende extreem hoge concentraties zijn volgens de auteurs sterk van invloed op de jaargemiddelde depositie. Zij stellen dat ook voor organochloor gbm de jaargemiddelden mogelijk sterk worden bepaald door korte perioden met zeer hoge deposities.

Sparling *et al.* (2001) hebben in California in de Verenigde Staten van Amerika residuen van enkele organofosfor insecticiden (chlorpyrifos en diazinon) en van enkele persistente gbm (endosulfan, 4,4'-DDT) in juveniele en adulte stadia van de amfibie *Hyla regilla* bepaald. Hierbij bleken de concentraties van chlorpyrifos en diazinon in *Hyla* die benedenwinds van intensief agrarisch gebruikte gebieden waren verzameld hoger dan in dieren die waren verzameld in de buurt van de kust (controle gebied). Maximaal gevonden concentraties waren hoger dan 190 ng/g (nat gewicht). Dit ging gepaard met een verlaging van de cholinesterase activiteit van minder dan 50% in de hoogst belaste dieren. De juveniele stadia van *Hyla regilla* bleken

gevoeliger voor de aanwezigheid van cholinesterase remmende gbm dan de adulte stadia. De auteurs wijzen er op dat andere amfibische soorten die langer in een juveniel stadium doorbrengen en intensiever met water in aanraking komen/blijven, zoals *Rana* spp., wellicht meer risico lopen als gevolg van de aanwezigheid van dergelijke gbm.

Davidson (2004) heeft een statistische analyse uitgevoerd waarbij werd getracht een verband te leggen tussen de aan- of afwezigheid van vijf amfibische soorten (padden en kikkers) in California en het bovenwinds gebruik van gewasbeschermingsmiddelen. Vooral gebruik van organofosfor verbindingen in het verleden vertoonde een sterke correlatie met de afname van benedenwindse populaties van amfibieën. Het betreft een statistische analyse waarbij geen gebruik is gemaakt van chemisch-analytische of toxicologische gegevens. Daarom is een causaal verband tussen eventueel in het verleden opgetreden atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen en het verdwijnen van amfibische soorten niet duidelijk.

Daly *et al.* (2007a) beschrijven metingen aan nog in gebruik zijnde gbm in de lucht en bodem op 23 locaties in de bossen van hoger gelegen gebieden benedenwinds van bananenplantages in Costa Rica. Vooral chloorthalonil, het herbicide dacthal en endosulfansulfaat (een metaboliet van het insecticide endosulfan) werden in de grond van bossen op de hellingen van bergen en vulkanen in hogere concentraties gevonden dan op lager gelegen plekken. De hoogste concentraties in bodem werden aangetroffen op locaties boven 2500 m boven zeeniveau. Het transport van lager gelegen gebruiklocaties naar benedenwinds en hoger gelegen gebieden wordt gemodelleerd, waarbij windrichting en de daling van temperatuur met toenemende hoogte van doorslaggevend belang blijken. Voor individuele stoffen wordt de mate van verdamping en sorptie op hoger gelegen plaatsen sterk bepaald door twee stoffeigenschappen: de lucht-water partitie coëfficiënt (die de mate van invangen van verbindingen door regen) en de octanol-water partitie coëfficiënt (die de binding aan de bodem en de mate van herverdamping bepaalt). Toename van concentraties door verlagen van de temperatuur wordt verklaard door een betere 'scavenging' van de verbindingen bij lagere temperatuur, wat vaak vergezeld gaat van een toename van de hoeveelheid regen bij lagere temperatuur (uitregenen van lucht die uit lagere gebieden wordt aangevoerd).

Daly *et al.* (2007b) beschrijven metingen aan niet langer in gebruik zijnde organochloor gbm in de lucht en bodem van 23 locaties verdeeld over Costa Rica. Zij constateren dat er globaal drie typen verdelingen over Costa Rica zijn waar te nemen: α -HCH en p,p'-DDD zijn relatief uniform verdeeld over het hele land; andere DDT-gerelateerde verbindingen waren sterk verhoogd in een nationaal park aan de Pacifische kust, terwijl dieldrin, lindaan en chlordane-gerelateerde verbindingen vooral in het bewoonde gedeelte (Central Valley) van Costa Rica in hogere concentraties werden gevonden dan in de rest van het land. Voor de meetlocaties die waren gevestigd in Central Valley is duidelijk dat de verhouding tussen de concentraties van lindaan in lucht en grond afneemt bij grotere hoogte, wat waarschijnlijk heeft te maken met afnemende temperatuur en hogere organisch koolstofgehalten van de grond op hogere locaties.

IV. Atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen in Aziatische landen

Takase *et al.* (2003) hebben regenwater en lucht bemonsterd op drie locaties in het Niigata gebied in Japan gedurende mei tot november 2001. De locaties waren zeer verschillend; de eerste bevond zich op een bergtop (634 m) ver verwijderd van de stad en landbouwgebied; de tweede locatie bevond zich in een buitenwijk van Niigata city, in de buurt van rijstvelden en groenten en fruitteelt; de derde locatie was in het centrum van de stad Niigata city. De (gewogen) gemiddelde gehalten aan α -HCH, hexachloorbenzeen en p,p'-DDT in regenwater van de drie locaties was niet verschillend (585 – 710 pg/L, 67 – 80 pg/L en 30 – 52 pg/L resp.),

maar er werd wel een verband met de hoeveelheid neerslag vastgesteld: minder neerslag leidde tot hogere concentraties in regenwater voor alle drie de stoffen. De concentraties in lucht waren op de bergtop lager dan op de twee andere locaties.

Sakai (2003) zocht in regenwater dat van augustus 2001 tot juli 2002 was opgevangen op het dak van het Yokohama Environmental Research Institute in Isogo Ward van Yokohama. Hoewel de monsterlocatie zich niet in agrarisch gebied bevond werden dichlorvos (0.05 – 0.33 µg/L), chloorthalonil (0.05 – 0.27 µg/L), fenitrothion (0.05 - µg/L), molinate (0.05 – 0.12 µg/L), diazinon (0.05 – 0.07 µg/L) en malathion (0.05 µg/L) in het regenwater aangetroffen. Dichlorvos en chloorthalonil werden in 65% en 35% van de monsters aangetroffen en waren daarmee de meest gevonden gbm uit de reeks waar naar werd gezocht.

In een studie in Yokohama City heeft Sakai (2006) regenwater opgevangen, waarna met het opgevangen water toetsen werden uitgevoerd met watervlooien. In vijf van de dertien opgevangen watermonsters trad na 48 uur blootstelling meer dan 90% immobiliteit op. Bij voorbehandeling van de watermonsters (extractie met Sep-Pak) die bestond uit het verwijderen van de niet-polaire verbindingen traden nauwelijks nog effecten op de watervlooien op, zodat aannemelijk is dat de effecten werden veroorzaakt door niet-polaire verbindingen die in het regenwater aanwezig waren. Bij chemische analyse van het regenwater werden de organofosfaat verbindingen dichlorvos, fenitrothion, fenitrothion-oxon, malathion (allen insecticiden) en het fungicide chloorthalonil boven de detectielimiet aangetroffen. Met name dichlorvos werd zeer vaak in relatief hoge concentraties aangetroffen en het optreden van effecten was volgens de auteur sterk gerelateerd aan de aanwezigheid van dit organofosfaat insecticide (Sakai, 2006).

Fu *et al.* (2008) onderzochten de gehalten van organochloor verbindingen, waaronder enkele gbm, in zand dat via zandstormen in april van 2006 Beijing bereikte. Alle monsters bleken de acht gezochte verbindingen te bevatten. De gehalten bedroegen 21 – 60 ng/g totaal hexachloorcyclohexaan en 12 – 14 ng/g DDT (inclusief zijn metabolieten). De risico's voor inwoners van Beijing als gevolg van deze deposities worden als verwaarloosbaar beschouwd.

Kumari *et al.* (2007) rapporteren hun resultaten van de metingen aan 26 gbm, waarvan er dertien werden aangetroffen in regenwater in Hisar, India gedurende februari, juli en augustus van 2002. Hisar is een van de best ontwikkelde agrarische gebieden in India, waar vooral Vooral organochloorverbindingen (0.04 – 7.1 µg/L), pyrethroiden (0.1 – 1 µg/L) en organofosfaten (0.05 – 4 µg/L) werden in het regenwater aangetroffen. De verbindingen met de hoogste concentraties waren p,p'-DDT (7.1 µg/L), cypermethrin (1.0 µg/L) en monocrotophos (4 µg/L). Bijna 80% van de monsters bevatten residuen boven de 0.5 µg/L EU multiresidue norm die ook door India is aangenomen. Er is geen beschrijving van de ligging van de meetlocatie ten opzichte van agrarische percelen, zodat ook de afstand tot de plaats van gebruik van de gbm onduidelijk is.

Malik *et al.* (2007) beschrijven metingen aan organochloor verbindingen (waaronder enkele gbm) en PAHs in regenwater dat gedurende de eerste regenbui in het regenseizoen werd opgevangen op 50 locaties in en rond de stad Lucknow in India. Deze plaats is aan haar randen omgeven door land dat voor landbouw wordt gebruikt, maar in de omgeving bevindt zich ook zeer veel (zware) industrie. Van de organochloor verbindingen werden vooral de hexachloorcyclohexanen gevonden, waarbij vooral β-HCH (0 – 93 ng/L) en δ-HCH (0 – 43 ng/L), en in mindere mate γ-HCH (lindaan, 0 – 130 ng/L) in veel monsters werden aangetroffen. DDT en zijn metabolieten werden in geen van de monsters boven de detectielimiet gevonden. Het totaal aan de 21 gemeten organochloorverbindingen in regenwater varieerde van 0 – 450 ng/L over de 50 locaties.

Verschenen documenten in de reeks Werkdocumenten van de Wettelijke Onderzoekstaken Natuur & Milieu vanaf 2007

Werkdocumenten zijn verkrijgbaar bij het secretariaat van Unit Wettelijke Onderzoekstaken Natuur & Milieu, te Wageningen. T 0317 – 48 54 71; F 0317 – 41 90 00; E info.wnm@wur.nl
De werkdocumenten zijn ook te downloaden via de WOt-website www.wotnatuurenmilieu.wur.nl

- 2007**
- 47** *Ten Berge, H.F.M., A.M. van Dam, B.H. Janssen & G.L. Velthof.* Mestbeleid en bodemvruchtbaarheid in de Duin- en Bollenstreek; Advies van de CDM-werkgroep Mestbeleid en Bodemvruchtbaarheid in de Duin- en Bollenstreek
- 48** *Kruit, J. & I.E. Salverda.* Spiegeltje, spiegeltje aan de muur, valt er iets te leren van een andere plannings-cultuur?
- 49** *Rijk, P.J., E.J. Bos & E.S. van Leeuwen.* Nieuwe activiteiten in het landelijk gebied. Een verkennende studie naar natuur en landschap als vestigingsfactor
- 50** *Ligthart, S.S.H.* Natuurbeleid met kwaliteit. Het Milieu- en Natuurplanbureau en natuurbeleidsevaluatie in de periode 1998-2006
- 51** *Kennismarkt 22 maart 2007; van onderbouwend onderzoek Wageningen UR naar producten MNP in 27 posters*
- 52** *Kuindersma, W., R.I. van Dam & J. Vreke.* Sturen op niveau. Perversies tussen nationaal natuurbeleid en besluitvorming op gebiedsniveau.
- 53.1** *Reijnen, M.J.S.M.* Indicators for the 'Convention on Biodiversity 2010'. National Capital Index version 2.0
- 53.3** *Windig, J.J., M.G.P. van Veller & S.J. Hiemstra.* Indicators voor 'Convention on Biodiversity 2010'. Biodiversiteit Nederlandse landbouwhuisdieren en gewassen
- 53.4** *Melman, Th.C.P. & J.P.M. Willemsen.* Indicators for the 'Convention on Biodiversity 2010'. Coverage protected areas.
- 53.6** *Weijden, W.J. van der, R. Lewis & P. Bol.* Indicators voor 'Convention on Biodiversity 2010'. Indicators voor het invasieproces van exotische organismen in Nederland
- 53.7 a** *Nijhof, B.S.J., C.C. Vos & A.J. van Strien.* Indicators for the 'Convention on Biodiversity 2010'. Influence of climate change on biodiversity.
- 53.7 b** *Moraal, L.G.* Indicators voor 'Convention on Biodiversity 2010'. Effecten van klimaatverandering op insectenplagen bij bomen.
- 53.8** *Fey-Hofstede, F.E. & H.W.G. Meesters.* Indicators for the 'Convention on Biodiversity 2010'. Exploration of the usefulness of the Marine Trophic Index (MTI) as an indicator for sustainability of marine fisheries in the Dutch part of the North Sea.
- 53.9** *Reijnen, M.J.S.M.* Indicators for the 'Convention on Biodiversity 2010'. Connectivity/fragmentation of ecosystems: spatial conditions for sustainable biodiversity
- 53.11** *Gaaff, A. & R.W. Verburg.* Indicators for the 'Convention on Biodiversity 2010' Government expenditure on land acquisition and nature development for the National Ecological Network (EHS) and expenditure for international biodiversity projects
- 53.12** *Elands, B.H.M. & C.S.A. van Koppen.* Indicators for the 'Convention on Biodiversity 2010'. Public awareness and participation
- 54** *Broekmeyer, M.E.A. & E.P.A.G. Schouwenberg & M.E. Sanders & R. Pouwels.* Synergie Ecologische Hoofdstructuur en Natura 2000-gebieden. Wat stuurt het beheer?
- 55** *Bosch, F.J.P. van den.* Draagvlak voor het Natura 2000-gebiedenbeleid. Onder relevante betrokkenen op regionaal niveau
- 56** *Jong, J.J. & M.N. van Wijk, I.M. Bouwma.* Beheerskosten van Natura 2000-gebieden
- 57** *Pouwels, R. & M.J.S.M. Reijnen & M. van Adrichem & H. Kuipers.* Ruimtelijke condities voor VHR-soorten
- 58** Niet verschenen/ vervallen
- 59** *Schouwenberg, E.P.A.G.* Huidige en toekomstige stikstofbelasting op Natura 2000-gebieden
- 60** Niet verschenen/ vervallen
- 61** *Jaarrapportage 2006.* WOT-04-001 – ME-AVP
- 62** *Jaarrapportage 2006.* WOT-04-002 – Onderbouwend Onderzoek
- 63** *Jaarrapportage 2006.* WOT-04-003 – Advisering Natuur & Milieu
- 64** *Jaarrapportage 2006.* WOT-04-385 – Milieuplanbureaufunctie
- 65** *Jaarrapportage 2006.* WOT-04-394 – Natuurplanbureaufunctie
- 66** *Brasser E.A., M.F. van de Kerkhof, A.M.E. Groot, L. Bos-Gorter, M.H. Borgstein, H. Leneman* Verslag van de Dialogen over Duurzame Landbouw in 2006
- 67** *Hinssen, P.J.W.* Wettelijke Onderzoekstaken Natuur & Milieu. Werkplan 2007
- 68** *Nieuwenhuizen, W. & J. Roos Klein Lankhorst.* Landschap in Natuurbalans 2006; Landschap in verandering tussen 1990 en 2005; Achtergronddocument bij Natuurbalans 2006.
- 69** *Geelen, J. & H. Leneman.* Belangstelling, motieven en knelpunten van natuuraanleg door grondeigenaren. Uitkomsten van een marktonderzoek.
- 70** *Didderen, K., P.F.M. Verdonschot, M. Bleeker.* Basiskaart Natuur aquatisch. Deel 1: Beleidskaarten en prototype
- 71** *Boesten, J.J.T.I., A. Tiktak & R.C. van Leerdam.* Manual of PEARLNEQ v4
- 72** *Grashof-Bokdam, C.J., J. Frissel, H.A.M. Meeuwssen & M.J.S.M. Reijnen.* Aanpassing graadmeter natuurwaarde voor het agrarisch gebied
- 73** *Bosch, F.J.P. van den.* Functionele agrobiodiversiteit. Inventarisatie van nut, noodzaak en haalbaarheid van het ontwikkelen van een indicator voor het MNP
- 74** *Kistenkas, F.H. en M.E.A. Broekmeyer.* Natuur, landschap en de Wet algemene bepalingen omgevingsrecht
- 75** *Luttik, J., F.R. Veeneklaas, J. Vreke, T.A. de Boer, L.M. van den Berg & P. Luttik.* Investeren in landschapskwaliteit; De toekomstige vraag naar landschappen om in te wonen, te werken en te ontspannen
- 76** *Vreke, J.* Evaluatie van natuurbeleidsprocessen
- 77** *Apeldoorn, R.C. van, Working with biodiversity goals in European directives. A comparison of the*

- implementation of the Birds and Habitats Directives and the Water Framework Directive in the Netherlands, Belgium, France and Germany
- 78** *Hinssen, P.J.W.* Werkprogramma 2008; Unit Wettelijke Onderzoekstaken Natuur & Milieu (WOT-04). Onderdeel Planbureau functies Natuur en Milieu.
- 79** *Custers, M.H.G.* Betekenissen van Landschap in onderzoek voor het Milieu- en Natuurplanbureau; een bibliografisch overzicht
- 80** *Vreke, J., J.L.M. Donders, B.H.M. Elands, C.M. Goossen, F. Langers, R. de Niet & S. de Vries.* Natuur en landschap voor mensen Achtergronddocument bij Natuurbalans 2007
- 81** *Bakel, P.J.T. van, T. Kroon, J.G. Kroes, J. Hoogewoud, R. Pastoors, H.Th.L. Massop, D.J.J. Walvoort.* Reparatie Hydrologie voor STONE 2.1. Beschrijving reparatie-acties, analyse resultaten en beoordeling plausibiliteit.
- 2008**
- 82** *Kistenkas, F.H. & W. Kuindersma.* Jurisprudentie-monitor natuur 2005-2007; Rechtsontwikkelingen Natura 2000 en Ecologische Hoofdstructuur
- 83** *Berg, F. van den, P.I. Adriaanse, J. A. te Roller, V.C. Vulto & J.G. Groenwold.* SWASH Manual 2.1; User's Guide version 2
- 84** *Smits, M.J., M.J. Bogaardt, D. Eaton, P. Roza & T. Selnes.* Tussen de bomen het geld zien. Programma Beheer en vergelijkbare regelingen in het buitenland (een quick-scan)
- 85** *Dijk, T.A. van, J.J.M. Driessen, P.A.I. Ehlert, P.H. Hotsma, M.H.M.M. Montforts, S.F. Plessius & O. Oenema.* Protocol beoordeling stoffen Meststoffenwet; versie 1.0
- 86** *Goossen, C.M., H.A.M. Meeuwse, G.J. Franke & M.C. Kuiper.* Verkenning Europese versie van de website www.daarmoetikzijn.nl.
- 87** *Helming, J.F.M. & R.A.M. Schrijver.* Economische effecten van inzet van landbouwsubsidies voor milieu, natuur en landschap in Nederland; Achtergrond bij het MNP-rapport 'Opties voor Europese landbouwsubsidies
- 88** *Hinssen, P.J.W.* Werkprogramma 2008; Unit Wettelijke Onderzoekstaken Natuur & Milieu (WOT-04). Programma 001/003/005
- 90** *Kramer, H.* Geografisch Informatiesysteem Bestaande Natuur; Beschrijving IBN1990t en pilot ontwikkeling BN2004
- 92** *Jaarrapportage 2007.* WOT-04-001 – Koepel
- 93** *Jaarrapportage 2007.* WOT-04-002 – Onderbouwend Onderzoek
- 94** *Jaarrapportage 2007.* WOT-04-003 – Advisering Natuur & Milieu
- 95** *Jaarrapportage 2007.* WOT-04-005 – M-AVP
- 96** *Jaarrapportage 2007.* WOT-04-006 – Natuurplanbureau functie
- 97** *Jaarrapportage 2007.* WOT-04-007 – Milieuplanbureau functie
- 98** *Wamelink, G.W.W.* Gevoeligheids- en onzekerheids-analyse van SUMO
- 99** *Hoogeveen, M.W., H.H. Luesink, L.J. Mokveld & J.H. Wisman.* Ammoniakemissies uit de landbouw in Milieubalans 2006: uitgangspunten en berekeningen
- 100** *Kennismarkt 3 april 2008; Van onderbouwend onderzoek Wageningen UR naar producten MNP*
- 101** *Mansfeld, M.J.M. van & J.A. Klijn.* "Balansen op de weegschaal". Terugblik op acht jaar Natuurbalansen (1996-2005)
- 102** *Sollart, K.M. & J. Vreke.* Het faciliteren van natuur- en milieueducatie in het basisonderwijs; NME-ondersteuning in de provincies
- 103** *Berg, F. van den, A. Tiktak, J.G. Groenwold, D.W.G. van Kraalingen, A.M.A. van der Linden & J.J.T.I. Boesten.* Documentation update for GeoPEARL 3.3.3
- 104** *Wijk, M.N., van (redactie).* Aansturing en kosten van het natuurbeheer. Ecologische effectiviteit regelingen natuurbeheer
- 105** *Selnes, T. & P. van der Wielen.* Tot elkaar veroordeeld? Het belang van gebiedsprocessen voor de natuur
- 106** *Annual reports for 2007; Programme WOT-04*
- 107** *Pouwels, R. J.G.M. van der Gref, M.H.C. van Adrichem, H. Kuiper, R. Jochem & M.J.S.M. Reijnen.* LARCH Status A
- 108** *Wamelink, G.W.W.* Technical Documentation for SUMO2 v. 3.2.1,
- 109** *Wamelink, G.W.W., J.P. Mol-Dijkstra & G.J. Reinds.* Herprogrammeren van SUMO2. Verbetering in het kader van de modelkwaliteitslag
- 110** *Salm, C. van der, T. Hoogland & D.J.J. Walvoort.* Verkenning van de mogelijkheden voor de ontwikkeling van een metamodel voor de uitspoeling van stikstof uit landbouwgronden
- 111** *Dobben H.F. van & R.M.A. Wegman.* Relatie tussen bodem, atmosfeer en vegetatie in het Landelijk Meetnet Flora (LMF)
- 112** *Smits, M.J.W. & M.J. Bogaardt.* Kennis over de effecten van EU-beleid op natuur en landschap
- 113** *Maas, G.J. & H. van Reuler.* Boomkwekerij en aardkunde in Nederland,
- 114** *Lindeboom, H.J., R. Witbaard, O.G. Bos & H.W.G. Meesters.* Gebiedsbescherming Noordzee, habitattypen, instandhoudingdoelen en beheermaatregelen
- 115** *Leneman, H., J. Vader, L.H.G. Slangen, K.H.M. Bommel, N.B.P. Polman, M.W.M. van der Elst & C. Mijnders.* Groene diensten in Nationale Landschappen- Potenties bij een veranderende landbouw,
- 116** *Groeneveld, R.A. & D.P. Rudrum.* Habitat Allocation to Maximize Biodiversity, A technical description of the HAMBO model
- 117** *Kruit, J., M. Brinkhuijzen & H. van Blerck.* Ontwikkelen met kwaliteit. Indicatoren voor culturele vernieuwing en architectonische vormgeving
- 118** *Roos-Klein Lankhorst, J.* Beheers- en Ontwikkelingsplan 2007: Kennismodel Effecten Landschap Kwaliteit; Monitoring Schaal; BelevingsGIS
- 119** *Henkens, R.J.H.G.* Kwalitatieve analyse van knelpunten tussen Natura 2000-gebieden en waterrecreatie
- 120** *Verburg, R.W., I.M. Jorritsma & G.H.P. Dirkx.* Quick scan naar de processen bij het opstellen van beheerplannen van Natura 2000-gebieden. Een eerste verkenning bij provincies, Rijkswaterstaat en Dienst Landelijk Gebied
- 121** *Daamen, W.P.* Kaart van de oudste bossen in Nederland; Kansen op hot spots voor biodiversiteit

- 122 *Lange de, H.J., G.H.P. Arts & W.C.E.P. Verberk.* Verkenning CBD 2010-indicatoren zoetwater. Inventarisatie en uitwerking relevante indicatoren voor Nederland
- 123 *Vreke, J., N.Y. van der Wulp, J.L.M. Donders, C.M. Goossen, T.A. de Boer & R. Henkens.* Recreatief gebruik van water. Achtergronddocument Natuurbalans 2008
- 124 *Oenema, O. & J.W.H. van der Kolk.* Moet het eenvoudiger? Een essay over de complexiteit van het milieubeleid
- 125 *Oenema, O. & A. Tiktak.* Niets is zonder grond; Een essay over de manier waarop samenlevingen met hun grond omgaan
- 2009**
- 126 *Kamphorst, D.A.* Keuzes in het internationale biodiversiteitsbeleid; Verkenning van de beleids-theorie achter de internationale aspecten van het Beleidsprogramma Biodiversiteit (2008-2011)
- 127 *Dirkx, G.H.P. & F.J.P. van den Bosch.* Quick scan gebruik Catalogus groenblauwe diensten
- 128 *Loeb, R. & P.F.M. Verdonschot.* Complexiteit van nutriëntenlimitaties in oppervlaktewateren
- 129 *Kruit, J. & P.M. Veer.* Herfotografie van landschappen; Landschapsfoto's van de 'Collectie de Boer' als uitgangspunt voor het in beeld brengen van ontwikkelingen in het landschap in de periode 1976-2008
- 130 *Oenema, O., A. Smit & J.W.H. van der Kolk.* Indicatoren Landelijk Gebied; werkwijze en eerste resultaten
- 131 *Agricola, H.J.A.J. van Strien, J.A. Boone, M.A. Dolman, C.M. Goossen, S. de Vries, N.Y. van der Wulp, L.M.G. Groenemeijer, W.F. Lukey & R.J. van Til.* Achtergrond-document Nulmeting Effectindicatoren Monitor Agenda Vitaal Platteland
- 132 *Jaarrapportage 2008.* WOT-04-001 – Koepel
- 133 *Jaarrapportage 2008.* WOT-04-002 – Onderbouwend Onderzoek
- 134 *Jaarrapportage 2008.* WOT-04-003 – Advisering Natuur & Milieu
- 135 *Jaarrapportage 2008.* WOT-04-005 – M-AVP
- 136 *Jaarrapportage 2008.* WOT-04-006 – NPB-functie
- 137 *Jaarrapportage 2008.* WOT-04-007 – MPB-functie
- 138 *Jong de, J.J., J. van Os & R.A. Smidt.* Inventarisatie en beheerskosten van landschapselementen
- 139 *Dirkx, G.H.P., R.W. Verburg & P. van der Wielen.* Tegenkrachten Natuur. Korte verkenning van de weerstand tegen aankopen van landbouwgrond voor natuur
- 140 *Annual reports for 2008; Programme WOT-04*
- 141 *Vullings, L.A.E., C. Blok, G. Vonk, M. van Heusden, A. Huisman, J.M. van Linge, S. Keijzer, J. Oldengarm & J.D. Bulens.* Omgaan met digitale nationale beleidskaarten
- 142 *Vreke, J., A.L. Gerritsen, R.P. Kranendonk, M. Pleijte, P.H. Kersten & F.J.P. van den Bosch.* Maatlat Government – Governance
- 143 *Gerritsen, A.L., R.P. Kranendonk, J. Vreke, F.J.P. van den Bosch & M. Pleijte.* Verdrogingsbestrijding in het tijdperk van het Investeringsbudget Landelijk Gebied. Een verslag van casuonderzoek in de provincies Drenthe, Noord-Brabant en Noord-Holland.
- 144 *Luesink, H.H., P.W. Blokland, M.W. Hoogeveen & J.H. Wisman.* Ammoniakemissie uit de landbouw in 2006 en 2007
- 145 *Bakker de, H.C.M. & C.S.A. van Koppen.* Draagvlakonderzoek in de steigers. Een voorstudie naar indicatoren om maatschappelijk draagvlak voor natuur en landschap te meten
- 146 *Goossen, C.M.,* Monitoring recreatiegedrag van Nederlanders in landelijke gebieden. Jaar 2006/2007
- 147 *Hoefs, R.M.A., J. van Os & T.J.A. Gies.* Kavelruil en Landschap. Een korte verkenning naar ruimtelijke effecten van kavelruil.
- 148 *Klok, T.L., R. Hille Ris Lambers, P. de Vries, J.E. Tamis & J.W.M. Wijsman.* Quick scan model instruments for marine biodiversity policy.
- 149 *Spruijt, J., P. Spoorenberg & R. Schreuder.* Milieueffectiviteit en kosten van maatregelen gewasbescherming.
- 150 *Ehlert, P.A.I. (rapporteur).* Advies Bemonstering bodem voor differentiatie van fosfaatgebruiksnormen.
- 151 *Wulp van der, N.Y.* Storende elementen in het landschap: welke, waar en voor wie? Bijlage bij WOT-paper 1 – Krassen op het landschap
- 152 *Oltmer, K., K.H.M. van Bommel, J. Clement, J.J. de Jong, D.P. Rudrum & E.P.A.G. Schouwenberg.* Kosten voor habitattypen in Natura 2000-gebieden. Toepassing van de methode Kosteneffectiviteit natuurbesluit.
- 153 *Adrichem van, M.H.C., F.G. Wortelboer & G.W.W. Wamelink.* MOVE. Model for terrestrial Vegetation. Version 4.0
- 154 *Wamelink, G.W.W., R.M. Winkler & F.G. Wortelboer.* User documentation MOVE4 v 1.0
- 155 *Gies de, T.J.A., L.J.J. Jeurissen, I. Staritsky & A. Bleeker.* Leefomgevingsindicatoren Landelijk gebied. Inventarisatie naar stand van zaken over geurhinder, lichthinder en fijn stof.
- 156 *Tamminga, S., A.W. Jongbloed, P. Bikker, L. Sebek, C. van Bruggen & O. Oenema.* Actualisatie excretiecijfers landbouwhuisdieren voor forfaits regeling Meststoffenwet
- 157 *Van der Salm, C., L. M. Boumans, G.B.M. Heuvelink & T.C. van Leeuwen.* Protocol voor validatie van het nutriëntenemissiemodel STONE op meetgegevens uit het Landelijk Meetnet effecten Mestbeleid
- 158 *Bouwma, I.M.* Quickscan Natura 2000 en Programma Beheer. Een vergelijking van Programma Beheer met de soorten en habitats van Natura 2000
- 159 *Gerritsen, A.L., D.A. Kamphorst, T.A. Selnes, M. van Veen, F.J.P. van den Bosch, L. van den Broek, M.E.A. Broekmeyer, J.L.M. Donders, R.J. Fonteijn, S. van Tol, G.W.W. Wamelink & P. van der Wielen.* Dilemma's en barrières in de praktijk van het natuur- en landschapsbeleid; Achtergrond-document bij Natuurbalans 2009.
- 160 *Fonteijn R.J., T.A. de Boer, B. Berman, C.M. Goossen, R.J.H.G. Henkens, J. Luttkik & S. de Vries.* Relatie recreatie en natuur; Achtergronddocument bij Natuurbalans 2009
- 161 *Deneer, J.W. & R. Kruijine. (2010).* Atmosferische depositie van gewasbeschermingsmiddelen. Een verkenning van de literatuur verschenen na 2003.
- 162 *Verburg, R.W., M.E. Sanders, G.H.P. Dirkx, B. de Knecht & J.W. Kuhlman.* Natuur, landschap en landelijk gebied. Achtergronddocument bij Natuurbalans 2009.
- 163 *Doorn van, A.M. & M.P.C.P. Paulissen.* Natuurgericht milieubeleid voor Natura 2000-gebieden in

Europees perspectief: een verkenning.

- 164 *Smidt, R.A., J. van Os & I. Staritsky.* Samenstellen van landelijke kaarten met landschapselementen, grondeigendom en beheer. Technisch achtergronddocument bij de opgeleverde bestanden.
- 165 *Pouwels, R., R.P.B. Foppen, M.F. Wallis de Vries, R. Jochem, M.J.S.M. Reijnen & A. van Kleunen,* Verkenning LARCH: omgaan met kwaliteit binnen ecologische netwerken.
- 166 *Born van den, G.J., H.H. Luesink, H.A.C. Verkerk, H.J. Mulder, J.N. Bosma, M.J.C. de Bode & O. Oenema,* Protocol voor monitoring landelijke mestmarkt onder een stelsel van gebruiksnormen, versie 2009.
- 167 *Dijk, T.A. van, J.J.M. Driessen, P.A.I. Ehlert, P.H. Hotsma, M.H.M.M. Montforts, S.F. Plessius & O. Oenema.* Protocol beoordeling stoffen Meststoffenwet- Versie 2.1
- 168 *Smits, M.J., M.J. Bogaardt, D. Eaton, A. Karbauskas & P. Roza.* De vermaatschappelijking van het Gemeenschappelijk Landbouwbeleid. Een inventarisatie van visies in Brussel en diverse EU-lidstaten.
- 169 *Vreke, J. & I.E. Salverda.* Kwaliteit leefomgeving en stedelijk groen.
- 170 *Hengsdijk, H. & J.W.A. Langeveld.* Yield trends and yield gap analysis of major crops in the World.
- 171 *Horst, M.M.S. ter & J.G. Groenwold,* Tool to determine the coefficient of variation of DegT50 values of plant protection products in water-sediment systems for different values of the sorption coefficient
- 172 *Boons-Prins, E., P. Leffelaar, L. Bouman & E. Stehfest.* Grassland simulation with the LPJmL model
- 173 *Smit, A., O. Oenema & J.W.H. van der Kolk.* Indicatoren Kwaliteit Landelijk Gebied
- 174 *Boer de, S., M.J. Bogaardt, P.H. Kersten, F.H. Kistenkas, M.G.G. Neven & M. van der Zouwen.* Zoektocht naar nationale beleidsruimte in de EU-richtlijnen voor het milieu- en natuurbeleid. Een vergelijking van de implementatie van de Vogel- en Habitatrichtlijn, de Kaderrichtlijn Water en de Nitraatrichtlijn in Nederland, Engeland en Noordrijn-Westfalen
- 175 *Jaarrapportage 2009.* WOT-04-001 – Koepel
- 176 *Jaarrapportage 2009.* WOT-04-002 – Onderbouwend Onderzoek
- 177 *Jaarrapportage 2009.* WOT-04-003 – Advisering Natuur & Milieu
- 178 *Jaarrapportage 2009.* WOT-04-005 – M-AVP
- 179 *Jaarrapportage 2009.* WOT-04-006 – Natuurplanbureauafunctie
- 180 *Jaarrapportage 2009.* WOT-04-007 – Milieuplanbureauafunctie
- 181 *Annual reports for 2009; Programme WOT-04*