



Diergeneesmiddelen & hormonen in het milieu door de toediening van drijfmest

Een verkennende studie in de Provincie Gelderland naar antibiotica, antiparasitaire middelen, coccidiostatica en natuurlijke hormonen in mest, (water)bodem, grondwater en oppervlaktewater

Joost Lahr, Anja Derksen, Louise Wipfler, Milou van de Schans, Bjorn Berendsen, Marco Blokland, Wim Dimmers, Popko Bolhuis & Rob Smidt

Diergeneesmiddelen & hormonen in het milieu door de toediening van drijfmest

Een verkennende studie in de Provincie Gelderland naar antibiotica, antiparasitaire middelen, coccidiostatica en natuurlijke hormonen in mest, (water)bodem, grondwater en oppervlaktewater

Joost Lahr¹, Anja Derksen², Louise Wipfler¹, Milou van de Schans³, Bjorn Berendsen³, Marco Blokland³, Wim Dimmers¹, Popko Bolhuis¹ & Rob Smidt¹

1 Wageningen Environmental Research, Wageningen University & Research, Wageningen

2 AD eco advies, Wageningen

3 RIKILT, Wageningen University & Research, Wageningen

Dit onderzoek is uitgevoerd door Wageningen Environmental Research in opdracht van de Provincie Gelderland met medefinanciering van Waterschap Vallei & Veluwe, Waterschap Rijn & IJssel, het Ministerie van Infrastructuur & Waterstaat en het Ministerie van Landbouw, Natuur en Voedselkwaliteit (in het kader van de Kennisdesk van het LNV Beleidsondersteunend onderzoekthema 'Mest en Milieu', projectnummer BO-20.004-127). Waterbedrijf Vitens verleende een 'in kind'-bijdrage.

Wageningen Environmental Research
Wageningen, juli 2018


Rapport 2898
ISSN 1566-7197

Lahr, J., A. Derksen, L. Wipfler, M. van de Schans, B. Berendsen, M. Blokland, W. Dimmers, P. Bolhuis & R. Smidt, 2018. *Diergeneesmiddelen & hormonen in het milieu door de toediening van drijfmest; Een verkennende studie in de Provincie Gelderland naar antibiotica, antiparasitaire middelen, coccidiostatica en natuurlijke hormonen in mest, (water)bodem, grondwater en oppervlaktewater*. Wageningen, Wageningen Environmental Research, Rapport 2898. 90 blz.; 24 fig.; 36 tab.; 48 ref.

Het voorkomen, de risico's en de mogelijkheden voor emissiereductie van humane geneesmiddelen in water krijgen de afgelopen jaren steeds meer aandacht. Naar diergeneesmiddelen gaat tot op heden minder aandacht uit dan naar humane geneesmiddelen. In 2017 is daarom onderzoek verricht naar de lotgevallen van diergeneesmiddelen in drijfmest uit de intensieve veehouderij die toegediend wordt op het land. Het onderzoek richtte zich op de kalver- en varkenshouderij en met name op het risico van uitspoeling. Voor het onderzoek werden vijf op zandgrond gelegen bedrijven in Gelderland geselecteerd uit iedere sector. Voorafgaand aan de mesttoediening werd een monster van de mest zelf genomen en op diverse tijdstippen voor en na de mestinjectie werden de bodem, het grondwater en het oppervlaktewater en sediment van kavelsloten naast de bemeste percelen bemonsterd. In al deze monsters werden de concentraties van een groot aantal antibiotica, antiparasitaire middelen, coccidiostatica en natuurlijke hormonen bepaald middels chemische analyse.

Trefwoorden: diergeneesmiddelen, hormonen, intensieve veehouderij, drijfmest, bodem, grondwater, oppervlaktewater, sediment

Dit rapport is gratis te downloaden van <https://doi.org/10.18174/455340> of op www.wur.nl/environmental-research (ga naar 'Wageningen Environmental Research' in de grijze balk onderaan). Wageningen Environmental Research verstrekt *geen* gedrukte exemplaren van rapporten.

 2018 Wageningen Environmental Research (instituut binnen de rechtspersoon Stichting Wageningen Research), Postbus 47, 6700 AA Wageningen, T 0317 48 07 00, www.wur.nl/environmental-research. Wageningen Environmental Research is onderdeel van Wageningen University & Research.

- Overname, verveelvoudiging of openbaarmaking van deze uitgave is toegestaan mits met duidelijke bronvermelding.
- Overname, verveelvoudiging of openbaarmaking is niet toegestaan voor commerciële doeleinden en/of geldelijk gewin.
- Overname, verveelvoudiging of openbaarmaking is niet toegestaan voor die gedeelten van deze uitgave waarvan duidelijk is dat de auteursrechten liggen bij derden en/of zijn voorbehouden.

Wageningen Environmental Research aanvaardt geen aansprakelijkheid voor eventuele schade voortvloeiend uit het gebruik van de resultaten van dit onderzoek of de toepassing van de adviezen.

Wageningen Environmental Research Rapport 2898 | ISSN 1566-7197

Foto omslag: Shutterstock

Inhoud

	Dankwoord	5
	Samenvatting	7
1	Inleiding	11
	1.1 Achtergrond	11
	1.2 Doelstelling & afbakening	12
2	Methoden	13
	2.1 Algemene aanpak	13
	2.2 Selectie locaties	14
	2.2.1 Bedrijven & percelen	14
	2.2.2 Beken	16
	2.3 Monstermethoden	17
	2.4 Bodemanalyses	18
	2.5 Selectie stoffen	18
	2.5.1 Antibiotica	19
	2.5.2 Antiparasitaire middelen	19
	2.5.3 Coccidiostatica	19
	2.5.4 Hormonen	19
	2.6 Chemische analyses	20
	2.6.1 Tetracyclines, sulfonamiden, quinolonen & macroliden	20
	2.6.2 Antiparasitaire middelen en toltrazuril(-sulfon)	21
	2.6.3 Hormonen	21
	2.7 Geografische analyses	21
3	Resultaten	23
	3.1 Bodemparameters	23
	3.2 Diergeneesmiddelengebruik	23
	3.3 Antibiotica	24
	3.3.1 Tetracyclines	25
	3.3.2 Sulfonamiden	28
	3.3.3 Quinolonen	29
	3.3.4 Macroliden	31
	3.4 Antiparasitaire middelen & coccidiostatica	32
	3.4.1 Avermectines	32
	3.4.2 Benzimidazolen	33
	3.4.3 Coccidiostatica	36
	3.5 Natuurlijke hormonen	37
	3.5.1 Oestrogenen	38
	3.5.2 Androgenen	40
	3.5.3 Progestagenen	44
	3.6 Beken	48
	3.7 Geografische analyses	49
	3.7.1 Bedrijfsgrootte	50
	3.7.2 Bodemtype	51
	3.7.3 Grondwaterstand	52
	3.7.4 Drainage	52

4	Vergelijking met ander onderzoek	54
4.1	Nederland	54
4.2	Buitenland	57
5	Discussie	58
5.1	Gedrag van de stoffen	58
5.2	Duiding van de concentraties	66
5.2.1	Bodem	66
5.2.2	Water	66
5.3	Representativiteit bedrijven & percelen	67
5.3.1	Bedrijven	67
5.3.2	Percelen	68
5.4	Kanttekeningen bij de aanpak & methoden	69
6	Conclusies	71
7	Aanbevelingen	74
7.1	Verder onderzoek	74
7.2	Handelingsperspectief	75
	Literatuur	77
	Bijlage 1 Analysepakketten & kwantificeringslimieten	80
	Bijlage 2 Vergelijking concentraties met (no) effectconcentraties	86

Dankwoord

Wij willen allereerst de tien anonieme veehouderijen bedanken voor hun toestemming voor het onderzoek op hun bedrijven en percelen, de warme ontvangst op de bedrijven en hun hulp bij het verstrekken van nadere bedrijfsgegevens en monsternamen van de mest.

Als tweede bedanken wij graag de begeleidings- en stakeholdergroep, bestaande uit Suzanne Buil – van den Bos en Britta Verboom (Provincie Gelderland), Marga Limbeek (Waterschap Rijn & IJssel), Richard van Hoorn (Waterschap Vallei & Veluwe), Julian Starink (Ministerie van Infrastructuur & Waterstaat), Heleen van Rootselaar (Ministerie van Landbouw, Natuur en Voedselkwaliteit), Martin de Jonge (Vitens), Janet Bakker (ZLTO) en Yvonne Goos (LTO Nederland).

Diverse mensen hebben geholpen bij het zoeken naar geschikte bedrijven voor het onderzoek. Naast de mensen uit de begeleidingsgroep waren dit op verschillende momenten: Henny van Kempen (Provincie Gelderland), Tjerk Elzinga (LTO Noord), Frits Mandersloot (LTO Nederland), Mark Ormel, (LTO afdeling Oost-Achterhoek), Fije Visscher (LTO Gelderse Vallei), Laurens Gerner (Waterschap Rijn & IJssel), Toon van Kessel (Vitens), Bertus Hesselink (Eibergen), Henk Leever (Stichting Haarloseveld Olden Eibergen e.o.), Paulien Keijzer (O-gen) en Paul Hoeksma (Wageningen Livestock Research, WUR).

Zoals altijd werd het team van WENR bijgestaan door enthousiaste en welwillende collega's. Hans Kros en Harry Massop gaven adviezen over de geografische analyses, René Rietra over bodembemonstering. André van Leeuwen van het Chemisch-Biologisch Laboratorium Bodem (CBLB) adviseerde ons over de bodemanalyses en voerde deze met zijn collega's uit.

Als laatste bedanken wij Paul Römken van Wageningen Environmental Research voor de interne review van de conceptrapportage.

Samenvatting

In 2017 is door Wageningen Environmental Research en AD eco advies in opdracht van de Provincie Gelderland en met medefinanciering van het ministerie van Infrastructuur & Waterstaat, het ministerie van Landbouw, Natuur en Voedselkwaliteit, Waterschap Vallei & Veluwe en Waterschap Rijn & IJssel onderzoek verricht naar de lotgevallen van diergeneesmiddelen in drijfmest uit de intensieve veehouderij die toegediend wordt aan het land. De hoofdvraag van het onderzoek was: 'Kunnen diergeneesmiddelen op locaties met drijfmestbelasting aangetoond worden in bodem, grondwater, oppervlaktewater en/of sediment en geven de resultaten aanleiding tot verdere agendering van de emissie van diergeneesmiddelen naar het milieu?'

Het onderzoek richtte zich op de kalver- en varkenshouderij omdat in deze sectoren de meeste diergeneesmiddelen worden gebruikt. Voor het onderzoek werden vijf bedrijven in Gelderland uit iedere sector geselecteerd. Het onderzoek richtte zich met name op bedrijven en hun percelen op zandgrond, omdat zandgrond kwetsbaar is voor uitspoeling van stoffen naar het grondwater. Voorafgaand aan de mesttoediening in het voorjaar van 2017 werd een monster van de mest zelf genomen en op diverse tijdstippen voor en na de mestinjectie werden de bodem, het grondwater en het oppervlaktewater en sediment van kavelsloten naast de bemeste percelen bemonsterd. In juli 2017 werd eenmalig het oppervlaktewater en sediment van vijf regionale beken bemonsterd. In al deze monsters werden de concentraties van een groot aantal antibiotica, antiparasitaire middelen, coccidiostatica (middelen tegen de ziekte coccidiosis) en natuurlijke hormonen bepaald middels chemische analyse.

Representativiteit

De onderzochte bedrijven zijn representatief voor kalver- en varkenshouderijen op zandgrond. De percelen waren niet gedraineerd. In Gelderland en Nederland als geheel ligt ongeveer 70% van de kalver- en varkensbedrijven op zandgrond.

Gebruikte diergeneesmiddelen

Op zowel de kalver- als de varkensbedrijven werd een scala aan diergeneesmiddelen gebruikt, zowel voor koppelingen (alle dieren tegelijk behandeld) als voor individuele behandelingen. Dit bleek uit de opgaven van de veehouders zelf en de aanwezigheid van de middelen in mest. Een kwantitatieve analyse van het gebruik op alle onderzochte bedrijven is niet uitgevoerd, omdat niet alle verkregen gegevens zich daarvoor leenden. Veel middelen werden zowel op kalverbedrijven als op varkensbedrijven gebruikt (de antibiotica oxytetracycline, doxycycline, trimethoprim, sulfadiazine en tylosine), maar andere middelen werden vooral op kalverbedrijven toegepast (de antibiotica flumequine, tilmicosine en het antiparasitaire middel ivermectine) of op varkensbedrijven (het antiparasiticum flubendazol en het coccidiostaticum toltrazuril).

Stoffen in de bodem vóór bemesting

Enkele stoffen die tijdens het onderzoek in de bodem werden aangetroffen, waren al voor de toediening van mest aanwezig: de antibiotica flumequine en tilmicosine in de bodem van percelen van kalverbedrijven, het antiparasiticum flubendazol (en de metaboliet aminoflubendazol) en het coccidiostaticum toltrazuril (en de metaboliet of ponazuril (totrazuril-sulfon)) in de bodem bij varkensbedrijven (NB De meting van toltrazuril en ponazuril in de bodem was analytisch niet geheel conform de kwaliteitscriteria). De androgene (mannelijke) hormonen androstendion en β -testosteron werden voor de mestinjectie al wel aangetroffen in de bodem van percelen van varkensbedrijven, maar niet of nauwelijks in de bodem bij kalverbedrijven.

Stoffen in de bodem na bemesting

Veel van de reeds aanwezige stoffen in de bodem namen niet of weinig toe na bemesting (flumequine en tilmicosine in de bodem van percelen van kalverbedrijven; toltrazuril(-sulfon), androstendion en β -testosteron in de bodem van percelen van varkensbedrijven). Andere stoffen daarentegen vertoonden een duidelijke toename. Oxytetracycline was afwezig in de bodem van kalverbedrijven vóór bemesting, nam erna zeer duidelijk toe en gedurende de vier volgende maanden weer licht af. Concentraties tilmicosine op percelen met kalvermest en (amino)flubendazol op percelen met varkensmest namen licht toe en deze stoffen werden na mesttoediening ook op meer percelen waargenomen. In de bodems van de percelen van een aantal varkensbedrijven namen de oestrogene (vrouwelijke) hormonen 17β -oestradiol en oestron toe na toediening van varkensdrijfmest en vervolgens weer af. Deze stoffen waren verdwenen uit de bodem na respectievelijk één maand en vier maanden. Androstendion en β -testosteron namen na toediening van kalvermest en varkensmest enigszins toe in de bodems van de betreffende percelen. Androstendion was echter na vier maanden uit alle bodems verdwenen, terwijl β -testosteron nog her en der werd aangetroffen.

Persistentie in de bodem

Naar aanleiding van de resultaten kan worden geconcludeerd dat de volgende diergeneesmiddelen en hormonen waarschijnlijk persistent zijn in de bodem: oxytetracycline, flumequine, tilmicosine, (amino)flubendazol, toltrazuril(-sulfon) (analyse niet geheel conform de kwaliteitscriteria), androstendion en β -testosteron. Dit zijn verbindingen die vrijwel uitsluitend in de mest en de bodem worden aangetroffen (en soms in sediment, waarschijnlijk door afspoeling). Andere diergeneesmiddelen en hormonen werden wel in de mest aangetroffen, maar niet of nauwelijks in de bodem: de antibiotica doxycycline, ciprofloxacin, enrofloxacin en het antiparasiticum ivermectine. Deze zijn mogelijk goed afbreekbaar. In het geval van ivermectine kan ook de hoge kwanticeringslimiet in de bodem meespelen, waardoor de stof minder goed detecteerbaar is.

Uitspoeling naar grond- en oppervlaktewater

Er waren weinig stoffen uit de mest die systematisch werden aangetroffen in het grondwater. Wel werd een aantal stoffen hierin met enige regelmaat gedetecteerd. Dit waren sulfadiazine, sulfadimidine, toltrazuril(-sulfon) en incidenteel oxytetracycline (waarschijnlijk geabsorbeerd aan het zwevende stof), het antibioticum tiamulin, het antiparasiticum emamectine en het vrouwelijke hormoon oestron. Sulfadimidine en tiamulin werden slechts een enkele keer in lage concentraties in mest aangetroffen, emamectine helemaal niet. Over de mate en snelheid van uitspoeling van de hier genoemde stoffen kan door de weinige waarnemingen niets worden geconcludeerd.

In het oppervlaktewater van de sloten en greppels rond de percelen werden incidenteel diergeneesmiddelen (oxytetracycline, sulfadiazine, ivermectine, toltrazuril(-sulfon)), maar geen oestrogene of androgene hormonen aangetroffen. Dit kan duiden op een geringe uitspoeling richting oppervlaktewater, op degradatie, maar ook op de mogelijkheid dat de piekconcentraties werden gemist met het monsterschema (rond de percelen werd tijdens het onderzoek twee keer een watermonster genomen, voor mestinjectie en een maand hierna).

Regionale beken

In het oppervlaktewater van de Moorsterbeek (Gelderse Vallei) werden verschillende mannelijke hormonen en het vrouwelijke hormoon oestron gevonden. Ook in drie andere beken kwam oestron voor: de Veldbeek/Schuitenbeek (Gelderse Vallei), de Hierdensche Beek (Veluwe) (in sediment) en de Beurzerbeek (Achterhoek). In de laatste beek werd oestron ook in het sediment gevonden. In alle beken zat het zwangerschapshormoon progesteron in het water, ook in de Bergerslagbeek (Achterhoek). Naast hormonen werd in de Hierdensche Beek het mobiele antibioticum sulfadiazine aangetroffen. Alle genoemde verbindingen zijn tijdens dit onderzoek ook in mest van de onderzochte bedrijven aangetroffen, maar de oorsprong van de hormonen kan in principe ook nog humaan zijn.

Duiding concentraties

Er zijn geen officiële normen waarmee de concentraties van de bestudeerde 'nieuwe' stoffen kunnen worden vergeleken. De concentraties zijn vergeleken met 'Predicted No Effect Concentrations' (PNEC's; voor zover bekend) die verschillen per stof en met algemeen geldende grenswaarden. Bij één meting van het antiparasitaire middel ivermectine in oppervlaktewater van een kavelsloot werd de

'Predicted No Effect Concentration' overschreden. Hieruit volgt een mogelijk verhoogd risico voor toxische effecten op waterorganismen. Voor tetracycline werd tweemaal en voor doxycycline eenmaal de 'action limit' in de bodem overschreden. Deze 'action limit' wordt gebruikt voor de milieubeoordeling bij de toelating van diergeneesmiddelen. De overschrijding van deze action limit impliceert dat er een meer gedetailleerde milieubeoordeling voor toelating moet worden uitgevoerd. In een kavelsloot bij een varkensbedrijf werd eenmalig een overschrijding van de signaleringswaarde van 0,1 µg/L voor oxytetracycline in oppervlaktewater geconstateerd en in de kavelsloot bij een kalverbedrijf werd eenmalig deze signaleringswaarde overschreden door sulfadimidine. In een van de vijf bemonsterde regionale beken, de Moorsterbeek, werd voor vijf hormonen de signaleringswaarde van 0,01 µg/l overschreden en voor oestron een conceptnorm van 3,6 ng/L. Het is onduidelijk of deze hormonen van menselijke oorsprong zijn of uit de veehouderij afkomstig zijn. Invloed van RWZI's en riooloverstorten kunnen worden uitgesloten. Wat wel zou kunnen, is een illegale lozing of een verkeerde aansluiting waarbij huishoudelijk afvalwater toch in oppervlaktewater terechtkomt.

Opvallende stoffen

In het onderzoek werden drie stoffen gevonden met een onverwachte verspreiding. Chloortetracycline werd slechts in de drijfmest van één kalverhouderij gevonden, maar kwam voor en na toediening van mest voor op alle tien de onderzochte percelen. De veronderstelling is dat deze persistente en immobiele stof in de bodem geproduceerd kan worden door een bodembacterie. Het antibioticum sulfadimidine (synoniem: sulfamethazine) werd in twee mestmonsters in lage concentraties gemeten, maar met enige regelmaat aangetroffen in grondwater en oppervlaktewater. De oorsprong van deze mobiele stof in de milieumonsters is daarom niet geheel duidelijk. De meest opvallende stof uit het onderzoek is het zwangerschapshormoon progesteron. Dit werd niet in de kalver- of varkensmest gevonden, maar bleek in lage concentraties wijdverspreid in alle onderzochte milieucompartmenten, de bodem, het grondwater en het oppervlaktewater en sediment van zowel de onderzochte kavelsloten als regionale beken. Er is voor dit resultaat geen duidelijke verklaring gevonden.

Eindconclusie

Het onderzoek in Gelderland heeft aangetoond dat er in het vroege voorjaar in de drijfmest van intensieve kalver- en varkenshouderijen een dertigtal diergeneesmiddelen, natuurlijke hormonen en metabolieten wordt aangetroffen. Ongeveer de helft van deze stoffen wordt in de zanderige bodems teruggevonden. Sommige hiervan verdwijnen weer na enkele maanden. Andere, waarschijnlijk zeer persistente en weinig mobiele verbindingen daarentegen zijn al voor de toediening van drijfmest in de bodem aanwezig en verdwijnen nauwelijks gedurende de vier maanden erna. Twee stoffen in de mest worden na de toediening van de drijfmest niet meer waargenomen in de milieucompartmenten van de percelen.

Er is met deze verkennende studie aangetoond dat persistente, maar oplosbare diergeneesmiddelen en hormonen incidenteel worden aangetroffen in het grondwater van percelen waar drijfmest wordt verspreid, evenals in het oppervlaktewater van omringende greppels en sloten en in de grotere beken waarop de Gelderse veehouderijgebieden afwateren. De mobiele stoffen waarover het gaat, worden ook in andere studies in (diep) grondwater en oppervlaktewater gevonden. Er is echter niet aannemelijk gemaakt dat er binnen het tijdsbestek van het onderzoek, vier maanden, grootschalige uitspoeling naar het grondwater plaatsvindt vanuit zandbodems na toediening van drijfmest uit de kalver- en varkenshouderij.

Op basis van eerder onderzoek in binnen- en buitenland en op basis van de bekende stofeigenschappen (persistentie in mest en bodem, sorptie en mobiliteit) konden de lotgevallen van de meeste onderzochte diergeneesmiddelen en hormonen goed worden verklaard.

1 Inleiding

1.1 Achtergrond

Het voorkomen, de risico's en de mogelijkheden voor emissiereductie van humane geneesmiddelen in water krijgen de afgelopen jaren steeds meer aandacht. De Ketenaanpak Medicijnresten uit Water, als onderdeel van de Delta-aanpak waterkwaliteit van het Ministerie van I&W, is daar het resultaat van. Naast humane geneesmiddelen kunnen ook diergeneesmiddelen in het grondwater en oppervlaktewater terechtkomen. De verspreidingsroutes van diergeneesmiddelen zijn echter diffuser en complexer van aard dan de route van de humane geneesmiddelen, die voor een groot deel via het effluent van rioolwaterzuiveringsinstallaties in het watermilieu terechtkomen (Derksen & Ter Laak, 2013).

Naar diergeneesmiddelen gaat tot op heden minder aandacht uit dan naar humane geneesmiddelen. Antibiotica krijgen wel aandacht, maar dan vooral in relatie tot antibioticaresistentie. Om resistentievorming tegen te gaan, is het gebruik van antibiotica in de veehouderij de laatste jaren sterk gereduceerd. Ten opzichte van 2009 bedroeg de gemeten afname van de totale verkoop in 2016 64,4% (Veldman e.a., 2017).

We weten echter nog onvoldoende of en in welke mate diergeneesmiddelen (inclusief antibiotica) in de bodem en in het grond- en oppervlaktewater aanwezig zijn en wat de risico's daarvan zijn. Dat heeft verschillende oorzaken:

- Waterbeheerders meten niet specifiek op diergeneesmiddelen. Een deel van de werkzame stoffen is gelijk aan die in humane geneesmiddelen. Daardoor is het voor een aantal stoffen moeilijk onderscheid te maken tussen resten afkomstig van diergeneesmiddelen en humane geneesmiddelen.
- De verspreidingsroutes van diergeneesmiddelen zijn complex. Al dan niet na opslag in de mestkelder komen de diergeneesmiddelen met de mest direct op of in de bodem terecht. Ze kunnen daar uitspoelen naar het grondwater of afspoelen naar het oppervlaktewater.
- Op dit moment wordt er nagenoeg geen empirisch onderzoek gedaan naar de verspreiding en vrachten van diergeneesmiddelen en mogelijke risico's daarvan voor mens en milieu. Er is door onderzoeksbureau CLM weliswaar een bureaustudie gedaan naar het gebruik van diergeneesmiddelen (Rougoo e.a., 2016), maar het bleek tijdens dit onderzoek lastig om goede kwantitatieve gegevens te verkrijgen. Dit was ook een van de conclusies die Lahr e.a. (2017) trokken.

Het blijft dus onduidelijk in welke mate resten van diergeneesmiddelen voorkomen in het milieu. De belangrijkste vraag die uiteindelijk beantwoord dient te worden, is in hoeverre het noodzakelijk is om maatregelen te nemen om belasting met diergeneesmiddelen naar het (grond)water en andere milieucompartimenten te verminderen.

Naar aanleiding van diverse landelijke en regionale signalen over medicijnen in water heeft de Provincie Gelderland in 2015 een quickscan naar geneesmiddelen in grond- en oppervlaktewater uitgevoerd (Vissers e.a., 2014). Als vervolg hierop is een aantal projecten opgestart. Onder andere heeft Gelderland eind 2015 voor het eerst geneesmiddelen in grondwater gemeten, in de bestaande provinciale peilbuizen op 5 en 10 meter diepte (Verhagen & Ottow, 2017; zie ook § 4.1). Daarbij werden op diverse plaatsen diergeneesmiddelen en hormonen aangetroffen, waaronder sulfamethoxazol (één keer, deze stof kan ook van humane oorsprong zijn), sulfadimidine (zes keer, ook tweemaal boven de signaleringswaarde van 0,1 µg/L) en 17β-oestradiol (op veel plaatsten).

In december 2016 heeft de Provincie Gelderland Wageningen University & Research (WUR) en AD eco advies gevraagd om een onderzoek te verrichten naar diergeneesmiddelen in mest uit de intensieve veehouderij en de eventuele verspreiding naar grondwater, bodem, oppervlaktewater en sediment rond percelen waar drijfmest in het voorjaar wordt verspreid. Dit onderzoek is in 2017 uitgevoerd en het voorliggende rapport beschrijft de uitkomsten.

1.2 Doelstelling & afbakening

De hoofdvraag van het onderzoek was: kunnen diergeneesmiddelen op locaties met drijfmestbelasting aangetoond worden in grondwater, oppervlaktewater, bodem en/of sediment en geven de resultaten aanleiding tot verdere agendering van de emissie van diergeneesmiddelen naar het milieu?

In overleg met de stakeholders (Provincie Gelderland, Ministerie van I&W, Ministerie van LNV, Waterschap Vallei & Veluwe, Waterschap Rijn & IJssel, Vitens en LTO) is besloten om voor deze vraag uit te gaan van een scenario van diergeneesmiddelengebruik en verspreiding waardoor de hoogste concentraties in het milieu werden verwacht. Om deze reden is gekozen om het onderzoek te richten op emissies vanuit de drijfmest van de (vlees)kalver- en varkenshouderij die verspreid wordt op percelen met een zandige grond, omdat deze kwetsbaar zijn voor uitspoeling van stoffen naar het grondwater. Van de kalver- en varkenshouderij is bekend dat er diverse antibiotica en antiparasitaire middelen worden gebruikt en dat deze ook in de mest kunnen worden gevonden (Berendsen e.a., 2015; Lahr e.a., 2017). En op zandgrond is de verwachting dat mobiele diergeneesmiddelen door percolatie gemakkelijker uitspoelen naar het grondwater dan op andere gronden, zoals klei, waar meer binding plaatsvindt. Vanuit kleiige gronden kan echter ook snelle afspoeling naar oppervlaktewater plaatsvinden, evenals uitspoeling via macroporiën ('preferential flow') en/of drainage.

Bij kalveren kan onderscheid gemaakt worden tussen witvlees en rosévlees. Witvleeskalveren worden voornamelijk gevoed met melk. De mest van deze kalveren is dun en wordt deels verwerkt in installaties. Rosévleeskalveren worden gevoed met vast voer. Hun mest wordt op het land toegepast. In de varkenshouderij kan sprake zijn van het houden van vleesvarkens, biggen, beren, zeugen voor de fok of verschillende combinaties hiervan. De drijfmest van varkens wordt in toenemende mate verwerkt in speciale mest verwerkende installaties (MVI's). Op dit moment wordt geschat dat 25% van de kalvermest en 10% van de varkensmest in Nederland wordt verwerkt (Lahr e.a., 2017).

Het onderzoek richtte zich vooral op belasting van het grond- en oppervlaktewater door uitspoeling. Van bijvoorbeeld bestrijdingsmiddelen is bekend dat deze ook in oppervlaktewater en sediment terechtkomen door oppervlakkige afspoeling en drainage, soms in hogere concentraties dan door alleen uitspoeling. Hoewel ook oppervlaktewater en sediment werden bemonsterd, werd de rol van afspoeling en drainage niet specifiek onderzocht. Door de focus op zandgrond zijn de geselecteerde locaties in principe niet gedraineerd. Oppervlakkige afspoeling is echter een mogelijke verklaring wanneer er hoge concentraties diergeneesmiddelen en/of hormonen werden aangetroffen in het sediment van kavelsloten.

De focus van het onderzoek was op diergeneesmiddelen, maar daarnaast werden ook de natuurlijke hormonen meegenomen. Van deze laatste stoffen is bekend dat zij dezelfde routes volgen vanuit dierlijke mest naar het milieu. En van met name de oestrogene (vrouwelijke) hormonen is bekend dat zij bijdragen aan ongewenste effecten in oppervlaktewater bij vissen (Vethaak e.a., 2005). Antibioticaresistentie en pathogenen vielen niet onder het onderzoek. Het onderzoek beperkte zich verder tot de Provincie Gelderland, maar met een GIS-exercitie is nagegaan hoe representatief de gekozen bedrijven en percelen waren voor de situatie in de rest van Gelderland en voor heel Nederland. Verder dient te worden vermeld dat er in het rapport slechts oppervlakkig wordt ingegaan op de mogelijke risico's van de onderzochte diergeneesmiddelen en hormonen. Het onderzoek richtte zich primair op de lotgevallen van de onderzochte stoffen in het milieu van de akker of het grasland waar de drijfmest wordt verspreid.

Met de aan het onderzoek deelnemende bedrijven is afgesproken dat deze, inclusief hun percelen, anoniem in de rapportage worden opgenomen, dus ook niet herleidbaar zijn tot de exacte geografische ligging.

2 Methoden

2.1 Algemene aanpak

De studie richtte zich op vijf percelen waar kalverdrijfmest werd verspreid en vijf percelen met varkensdrijfmest. De onderzochte bedrijven hadden eigen percelen bouwland, vaak maisakkers maar ook met gerst en aardappelen, waarin de drijfmest werd geïnjecteerd. Slechts één perceel betrof een grasland. Bouwland wordt doorgaans later in het seizoen bemest dan grasland en de diepte van inwerken is over de bovenste ca. 25 cm-mv tegenover de bovenste 10 cm-mv in grasland.

In Tabel 1 wordt het monsterschema gepresenteerd. Voor de toediening van de drijfmest op het land werd de mest zelf bemonsterd en werden milieumonsters op het perceel genomen voor een nulmeting (T0). Op hetzelfde tijdstip werden van alle onderzochte milieucompartimenten monsters genomen, dus van de bodem, van het ondiepe grondwater en – indien aanwezig – van het oppervlaktewater in een kavelsloot of greppel direct naast het perceel en het sediment daarin.

Na inwerken van de mest werden er monsters genomen op de dag erna (T1), na een week (T2), na een maand (T3) en na ca. vier maanden (T4). Het werd niet zinvol geacht om op alle tijdstippen alle typen monsters te nemen, omdat het enige tijd duurt voordat diergeneesmiddelen vanuit de toplaag van de akker het (ondiepe) grondwater bereiken. Eventuele uitspoeling via grondwater naar oppervlaktewater vindt nog weer later plaats. Of en wanneer er uitspoeling optreedt, is afhankelijk van de eigenschappen van de stof, de eigenschappen van de bodem, het weer (met name de neerslag) en van de hydrologische omstandigheden, zoals de diepte van het grondwater, de stromingsrichting en -snelheid en de afstand van de akker tot de omringende oppervlaktewateren. Door al deze stofspecifieke en locatiespecifieke factoren is het onmogelijk om precies te voorspellen op welk moment welke stof waar in het milieu van een perceel aanwezig is, bijvoorbeeld om het tijdstip uit te kiezen dat het gunstigst is om de uitspoelingspiek naar het oppervlaktewater te treffen (een eenmalige monstername van oppervlaktewater is vanwege stroming sowieso altijd een momentopname).

De bodem werd op alle monsterdagen bemonsterd, omdat de mest met diergeneesmiddelen en hormonen uiteraard al op de eerste dag in de toplaag van het perceel terechtkomt. Hierna treden afbraak en transport op. Om bij benadering te monitoren hoe snel dit gebeurt, werd de bodem ook na een week, een maand en ca. vier maanden bemonsterd. Omdat het normaliter enige tijd duurt voordat zelfs de meest mobiele middelen het grondwater bereiken, werd dit niet na een dag en na een week, maar alleen na een maand en na vier maanden gedaan. Voor het oppervlaktewater werd in de studie een bemonsteringsmoment een maand na mesttoediening aangehouden. Monstername van het sediment vond na vier maanden plaats, omdat in het sediment vooral persistente en goed aan bodemdeeltjes bindende stoffen terechtkomen door oppervlakkige afspoeling. De kans om ze hierin aan te treffen, is het grootst aan het einde van de monstercampagne.

Tabel 1 Schema monstername.

Compartiment	T0	T1 (1 dg)	T2 (1 wk)	T3 (1 mnd)	T4 (4 mnd)
Mest	X				
Bodem	X	X	X	X	X
Grondwater	X			X	X
Sediment	X				X
Oppervlaktewater	X			X	

2.2 Selectie locaties

2.2.1 Bedrijven & percelen

Voor de bedrijven en onderzoekslocaties is op basis van de doelstellingen van het onderzoek een lijst met globale criteria opgesteld waaraan deze bij voorkeur dienden te voldoen:

- Bedrijf gesitueerd in provincie Gelderland en in het beheersgebied van Waterschap Vallei & Veluwe of Waterschap Rijn & IJssel.
- Enige spreiding over de diverse Gelderse regio's (Gelderse Vallei, Veluwe, Achterhoek).
- Toepassing van mest uit de vleeskalverhouderij of varkenshouderij op een eigen bedrijfsperceel, zonder mest van derden.
- Mest van het bedrijf consistent op het perceel afgezet (bij voorkeur ten minste 3 jaar dezelfde soort mest).
- Veehouder wil actief meewerken aan onderzoek (informatie verstrekken, telefoneren wanneer toediening plaats gaat vinden etc.).
- Historie gewassen op perceel bekend (bij voorkeur ten minste 3 jaar terug).
- Bekend welke diergeneesmiddelen gebruikt zijn, ten minste het jaar voorafgaand aan het onderzoek (vanaf vullen van mestkelder), maar bij voorkeur 3 jaar terug.
- Perceel met zandgrond.
- Aanwezigheid van een sloot of greppel naast het perceel (op zandgrond zijn echter niet altijd sloten aanwezig).
- Genoemde kavelsloten wateren af op groter oppervlaktewater.

Deze criteria schetsen een ideaalplaatje. Bij de selectie bleek dat er in de praktijk locaties zijn die niet voor 100% aan alle criteria voldoen, zoals aanwezigheid van een sloot of drie jaar diergeneesmiddelengebruik bekend.

Met de lijst criteria zijn tijdens het opstellen van het meetplan de stakeholders van het project en hun agrarische contacten benaderd: Provincie Gelderland, WS Rijn & IJssel, WS Vallei & Veluwe, Vitens en LTO. Daarnaast is contact opgenomen met Wageningen Livestock Research (WUR). Dankzij hun actieve inspanningen is uiteindelijk een shortlist van geschikte bedrijven opgesteld. Deze zijn alle bezocht in februari/maart 2017.

Na gebleken geschiktheid en toestemming van de veehouders zijn uiteindelijk tien bedrijven geselecteerd. De karakteristieken van deze bedrijven en hun percelen worden gegeven in Tabel 2.

De tabel laat zien dat de bedrijven verspreid zijn over de drie zandige Gelderse regio's met het accent in de Gelderse Vallei (veelal kalverbedrijven) en de Achterhoek (varkensbedrijven). De veehouders hebben allen doorgegeven wanneer het perceel bemest werd en de dag erna vond bemonstering plaats (T1). De toegediende hoeveelheid mest is pas later aan de veehouders gevraagd. Niet allen wisten deze exact, waardoor sommige van de gegevens in Tabel 2 een schatting betreffen. Wat de tabel duidelijk laat zien, is dat de opgebrachte hoeveelheden drijfmest sterk per perceel verschilden. Kort na bemesting is op de meeste bedrijven geploegd (behalve het grasland van VB), de exacte datum is echter niet altijd bekend.

Op het perceel van varkensbedrijf VC vond de monsternamen eerst plaats in een greppel naast het terrein. Deze viel als snel droog, daarom is vanaf T3 de bemonstering verlegd van de greppel naar een aanpalende stromende sloot.

Tabel 2 Gegevens geselecteerde bedrijven en percelen.

Code bedrijf	Sector	Soort dieren	Regio	Datum bemesting	Dosis mest (m ³ /ha)	Tijdstip ploegen	Gewas	Type oppervlaktewater	Monsters ¹
KA	Kalveren	Witveeskalveren	Gelderse Vallei	12 april	60	24 april	Mais	Stromende sloot	OW + SE
KB	Kalveren	Witveeskalveren	Gelderse Vallei	30 maart	Niet gerapporteerd	Niet gerapporteerd	Mais	Greppel	OW + SE
KC	Kalveren	Witveeskalveren	Veluwe	29 maart	35	Na 1-2 wkn.	Gerst	Geen water	-
KD	Kalveren	Roseveeskalveren	Gelderse Vallei	12 april	Niet gerapporteerd	Niet gerapporteerd	Mais	Stromende sloot	OW + SE
KE	Kalveren	Witveeskalveren	Gelderse Vallei	26 april	80	Na 1 wk	Mais	Slootje	OW + SE
VA	Varkens	Vleesvarkens	Achterhoek	3 april	15	16 april	Aardappels	Sloot	OW + SE
VB	Varkens	Vleesvarkens & zeugen	Gelderse Vallei	29 maart	²⁾	n.v.t.	Grasland	Slootje	SE
VC	Varkens	Vleesvarkens & zeugen	Achterhoek	19 april	75	Na 1 wk	Mais	Greppel + stromende sloot	OW + SE
VD	Varkens	Vleesvarkens	Achterhoek	19 april	15	21 april	Mais	Sloot	SE
VE	Varkens	Vleesvarkens & zeugen	Achterhoek	12 april	50	Na 5 dgn.	Mais	Droge greppel	SE

1) OW= oppervlaktewater, SE= sediment

2) Niet te geven, meerdere keren gedoseerd in grasland

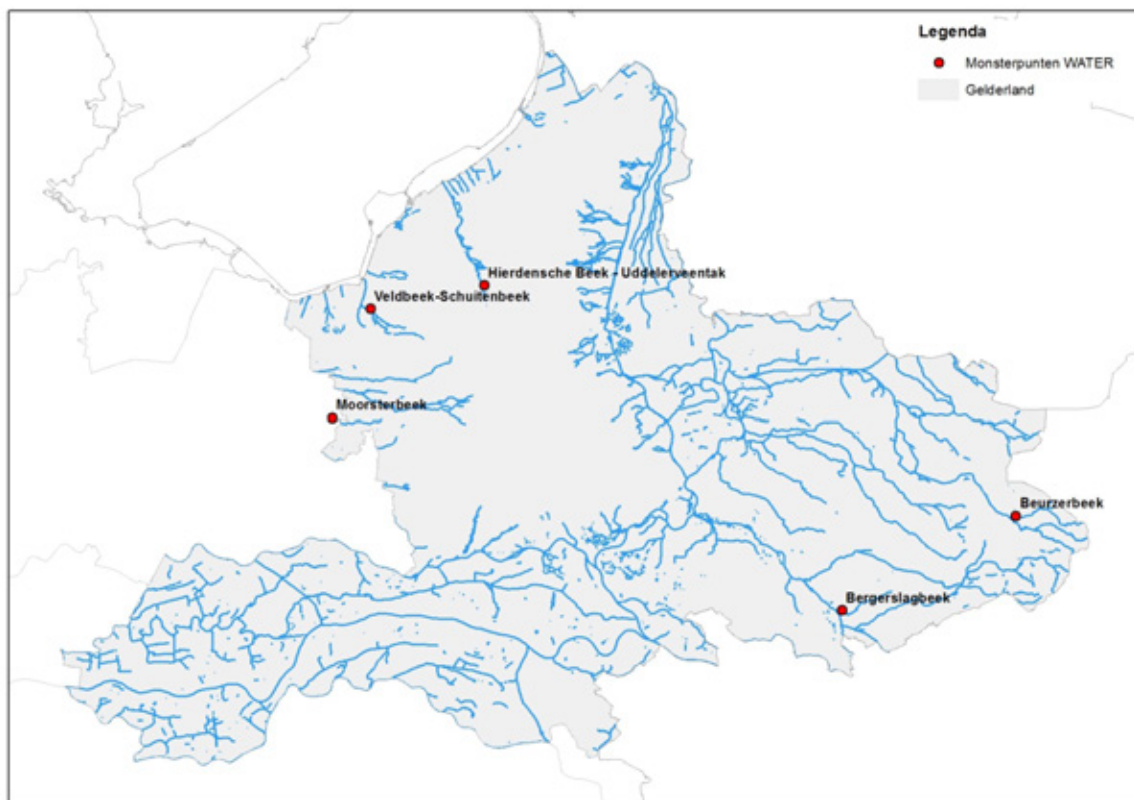
2.2.2 Beken

Naast het onderzoek naar de lotgevallen van diergeneesmiddelen en hormonen uit mest op de tien bedrijfsperven, is eenmalig een aantal grotere beken bemonsterd in dezelfde drie Gelderse regio's als waar de bedrijven en percelen lagen: Gelderse Vallei, Veluwe en Achterhoek. Het doel hiervan was om een eerste indruk te krijgen van de aanwezigheid van de onderzochte stoffen in de afwaterende watergangen van de gebieden waar veel kalver- en/of varkensbedrijven op zandgrond liggen.

In Oost-Nederland is in bepaalde gebieden sprake van een andere hydrologie, omdat een dunne laag zandgrond hier soms op ondoordringbare keileemlagen liggen. Dit speelt met name in het gebied van de Beurzerbeek.

In Tabel 3 worden de karakteristieken en monstergegevens van de geselecteerde vijf beken gepresenteerd. In Figuur 1 wordt hun ligging getoond. Bij het selecteren van de monsterpunten is gepoogd om deze zo te kiezen dat zij water uit een groter veehouderijgebied ontvangen, maar zonder dat er sprake is van menselijke beïnvloeding, met name lozingen van RWZI's. Daardoor liggen zij veelal bovenstrooms in de waterlopen. De selectie van de monsterpunten is afgestemd met Waterschap Vallei & Veluwe en met Waterschap Rijn & IJssel.

De bemonstering vond plaats in juli 2017. Per monsterpunt werden een watermonster en een sedimentmonster genomen. Vooral wat het water betreft is vanwege het eenmalige karakter van de monsternamen sprake van een pure momentopname.



Figuur 1 Ligging van monsterpunten in vijf Gelderse beken.

Tabel 3 Bemonsterde beken.

Naam	Regio	Locatie	XY-coördinaten	Monsters ¹	Monsterdatum
Hierdensche Beek	Veluwe	Uddelerveentak ten noordwesten van Uddel	X: 179,965 Y: 475,024	OW + SE	13 juli 2017
Veldbeek/Schuitenbeek	Gelderse Vallei	Tussen Nijkerk en Putten	X: 165,995 Y: 472,177	OW + SE	13 juli 2017
Moorsterbeek	Gelderse Vallei	Tussen Barneveld en Scherpenzeel	X: 161,292 Y: 458,811	OW + SE	13 juli 2017
Beurzerbeek	Achterhoek	Voor uitmonding in Groenlosche Slinge	X: 245,294 Y: 446,814	OW + SE	17 juli 2017
Bergerslagbeek	Achterhoek	Tussen Gaanderen en Uift/Gendringen	X: 223,955 Y: 435,202	OW + SE	17 juli 2017

1) OW= oppervlaktewater, SE= sediment

2.3 Monstermethoden

Bij de keuze voor de monstermethoden is gebruikgemaakt van de door Wageningen Environmental Research (WENR) en AD eco advies opgedane ervaring in eerdere projecten, met name twee projecten uitgevoerd voor de SKB in 2009 en 2013 (Van Schijndel e.a., 2009; Lahr e.a., 2014).

De monsterhoeveelheden per analyse en de totale hoeveelheden worden gegeven in Tabel 4. Alle monsters werden in tweevoud genomen en bewaard, zodat bij verlies van monster of extract een reservemonster aanwezig zou zijn.

Tabel 4 Hoeveelheden monster per locatie per keer en benodigd monstermateriaal.

Compartiment	Antibiotica	Antiparasitica	Hormonen	Minimale hoeveelheid monster	Soort vat	Aantal monsters	Aantal flessen/potten ¹
Mest	25g	25g	25g	75g	Pot 0,5L	10	20
Bodem	25g	25g	25g	75g	Papieren zak 1L	50	100
Grondwater	100mL	100mL	100mL	300mL	Fles 1L	30	60
Sediment	25g	25g	25g	75g	Pot 0,5L	20	40
Oppervlaktewater	100mL	100mL	100mL	300mL	Fles 1L	20	40

1) Alle monsters werden in duplo genomen

De mest uit de mestkelders werd bemonsterd met een roestvrijstalen cuvet op een stok van carbon. Per bedrijf werd een mengmonster van 5 submonsters van 50 g/50 mL genomen. De submonsters werden gemengd in een plastic emmer en de benodigde hoeveelheid mengmonster werd bewaard in een glazen of plastic pot van 500 mL. Bij twee bedrijven is het mestmonster door de veehouders zelf genomen, KE en VE.

Van de bodem van de percelen werd een mengmonster genomen. Dit werd gedaan met een gutsboor (diameter ca. 2 cm) in een grid van 5x5 steken met een onderlinge afstand tussen de steken van 5 m. De grids zijn dus 20x20 m. De steekdiepte van de guts in het bouwland was ca. 25 cm-mv. Het grid wordt voorafgaand aan de monsternamen uitgemeten en gemarkeerd. De 25 submonsters werden in een emmer grondig gemengd tot één monster en ca. 500 g van het mengsel werd bewaard in een papieren zak van ca. 1 L.

In het midden van het grid voor de bodemonsters werd op drie plekken met een onderlinge afstand van 10 m het ondiepe grondwater bemonsterd met behulp van een Edelmangrondboor van maximaal enkele meters lang en een diameter van 10-15 cm. Na boring tot aan het grondwater werd, indien

nodig om afbrokkeling te voorkomen, een plastic buis in de bovenste 50 cm van het boorgat aangebracht die als wandversteving diende. In het (verstevigde) boorgat werd een HDPE plastic filterbuis gebracht, waarvan de onderste 50 cm was voorzien van een filterkous. Vervolgens werd hieruit met een harde PE plastic slang, bevestigd aan een draagbare elektrische peristaltische pomp, het grondwater bemonsterd. Het grondwater werd tijdens het pompen gefiltreerd over een filter met een poriegrootte van 0,45 µm. Deze monsterwijze is analoog aan de norm van de NEN (1991) en de methode die in het Landelijk Meetnet evaluatie Mestbeleid wordt gebruikt (LMM, zonder datum). Van de drie plekken werd een mengmonster samengesteld met gelijke delen grondwater van iedere monsterplek. Het mengmonster werd in voor de helft gevulde flessen (500 mL) van 1 L overgebracht. Deze werden eenmaal voorgespoeld met water uit het veld.

Bemonstering van het sediment in kleine watergangen (sloten, greppels) werd gedaan met een perspex steekbuis met een diameter van 6 cm. Er werd ca. 500 mL slib tot een diepte van 15-20 cm bemonsterd. Er werden 5 deelmonsters genomen. Deze werden goed gemengd in een schone emmer en hieruit werd ca. 500 mL voor analyse meegenomen. Voor bemonstering van de beken is in enkele gevallen gebruikgemaakt van een kleine van Veenhapper (opening: 15×15 cm).

Bij monsternamen van het oppervlaktewater stond de monsternemer langs de kant. De bemonstering vond plaats midden in de watergang of zo ver mogelijk van de kant. Monsternamen geschiedde door een plastic monsterflesje bevestigd aan een stok onder te dompelen. Op deze wijze werden deelmonsters genomen van ca. vijf deellocaties en deze werden later gemengd. Er werd geprobeerd drijvend materiaal te vermijden. Voor het LMM wordt de bemonstering op eenzelfde wijze uitgevoerd.

Voor alle matrices en monstermethoden gold:

- Vervoer monsters vanuit veld geschiedde in een koelkast of koelbox met ijs.
- Alle monsters werden dezelfde dag ingevroren bij -20 °C. Voor waterige monsters werden de flessen schuin ingevroren om breuk van de glazen flessen te voorkomen.

Invriezen bij -20°C tot aan extractie en analyse is een gebruikelijke procedure bij het RIKILT.

Monsters kunnen zo worden opgespaard en gezamenlijk geanalyseerd worden, hetgeen efficiënter en goedkoper is. Het invriezen heeft geen invloed op de concentratie diergeneesmiddelen en hormonen (persoonlijke mededeling, Tina Zuidema, RIKILT).

2.4 Bodemanalyses

Voorafgaand aan de toediening van de drijfmest (T0) werden op de tien percelen extra bodemmonsters genomen voor standaard fysische analyses t.b.v. de karakterisering van de bodem: korrelgrootteverdeling, gehalte organische stof en pH-CaCl₂. De analyses werden uitgevoerd door het Chemisch-Biologisch Laboratorium Bodem (CBLB) van Wageningen Universiteit & Research.

Ten behoeve van de bepaling van de organische stof zijn de monsters gedroogd bij 40 °C, gezeefd over 2 mm en daarna is in een moffeloven het gloeiverlies bepaald. De pH-CaCl₂ is gemeten na uitschudden van de bodemmonsters met een oplossing van calciumchloride. De granulaire samenstelling is gemeten met behulp van laserdiffractie.

Voor het bepalen van het bodemtextuurtype is gebruikgemaakt van de indeling en benaming volgens Jongmans e.a. (2012).

2.5 Selectie stoffen

De analyses van de diergeneesmiddelen en hormonen werden uitgevoerd door RIKILT in Wageningen (het WUR-instituut op het gebied van voedselveiligheid). RIKILT biedt diverse brede pakketten aan waarin alle belangrijke stofgroepen die in de veehouderij worden gebruikt, zijn vertegenwoordigd (zie Bijlage 1 voor stoffenlijsten en kwantificeringslimieten).

Het onderzoek richtte zich op antibiotica, antiparasitaire middelen, enkele coccidiostatica en hormonen. Deze keuze wordt hieronder toegelicht.

2.5.1 Antibiotica

De antibiotica zijn de meest gebruikte groep diergeneesmiddelen. Vanwege de resistentieproblematiek is het gebruik de laatste jaren actief teruggedrongen (Veldman e.a., 2017). Er zijn diverse groepen antibiotica. De belangrijkste groepen die in mest en dus mogelijk ook in het milieu worden aangetroffen, zijn de tetracyclines, sulfonamiden, quinolonen en macroliden (Berendsen e.a., 2014). Deze vier groepen worden door RIKILT in één analysepakket aangeboden en dit pakket werd voor het huidige onderzoek toegepast. De individuele stoffen in dit pakket worden gegeven in Bijlage 1. Voor twee andere groepen heeft het RIKILT aparte analysepakketten beschikbaar, de aminoglycosiden en de penicillines. Het werd echter niet relevant geacht deze te analyseren, omdat aminoglycosiden niet veel gebruikt worden en penicillines instabiel zijn en zelden in milieumonsters worden gevonden.

2.5.2 Antiparasitaire middelen

Uit diverse studies blijkt dat antiparasitaire middelen, ook wel aangeduid als antiparasitica, parasitociden of ontwormingsmiddelen, ook frequent worden gebruikt in Nederland (zie o.m. Lahr e.a., 2017) en toxisch zijn voor ongewervelde dieren. Er is echter nog nauwelijks onderzoek gedaan naar het voorkomen van antiparasitaire middelen in het Nederlandse milieu. Onlangs bleek uit een analyse door het CLM in opdracht van de STOWA echter dat sommige van deze middelen mogelijk verhoogde risico's in het water geven (Rougge e.a., 2016) en dit werd bevestigd door een recentere studie (Van der Linden e.a., 2017). Om deze reden werd deze stofgroep in dit onderzoek meegenomen. RIKILT biedt twee pakketten antiparasitica aan, de benzimidazolen en de avermectines. Van sommige benzimidazolen, zoals flubendazol, is bekend dat deze in de intensieve veehouderij worden gebruikt. Dit pakket werd daarom ingezet voor het onderzoek. De stoffen in het pakket staan in Bijlage 1. De avermectines staan bekend om hun hoge toxiciteit. Ivermectine bijvoorbeeld wordt ook bij kalveren toegepast. Om deze reden zijn door RIKILT de veelgebruikte avermectines toegevoegd aan het analysepakket benzimidazolen, zodat deze kostenefficiënt geanalyseerd konden worden, echter met een suboptimale kwantificeringsgrens, waardoor deze stoffen pas bij relatief hoge concentraties worden gedetecteerd.

2.5.3 Coccidiostatica

Een derde groep van diergeneesmiddelen betreffen de coccidiostatica. Deze worden veel in de pluimveehouderij toegepast tegen de ziekte coccidiosis (veroorzaakt door de eencellige parasiet *Eimeria*), maar ook wel bij andere dieren. Twee coccidiostatica die uit de analyse door Van der Linden e.a. (2017) kwamen met een verhoogd risico op uitspoeling, waren toltrazuril en de metaboliët hiervan, ponazuril (of toltrazuril-sulfon). Deze twee stoffen zijn om die reden ook in het pakket met antiparasitaire middelen geanalyseerd.

2.5.4 Hormonen

Oestrogenen, natuurlijke vrouwelijke hormonen, kunnen, al dan niet samen met het synthetische oestrogeen uit 'de pil', bijdragen aan hormonale effecten bij vissen. Mannetjesvissen gaan onder invloed van lage concentraties van deze stoffen vrouwelijke eigenschappen vertonen, zoals de productie van vrouwelijk dooierewit (vitellogenine) en het aanmaken van eitjes in het testisweefsel (zie o.a. Vethaak e.a., 2005). Natuurlijke en synthetische hormonen komen in oppervlaktewater terecht via lozingen van RWZI's. De bijdrage vanuit de veehouderijsector is echter nog relatief onbekend. Omdat deze stoffen ook met de mest op het land worden gebracht en dezelfde route volgen als de bovengenoemde diergeneesmiddelen, is besloten om ook deze stoffen te onderzoeken. RIKILT biedt een vrij uitgebreid pakket aan met vrouwelijke hormonen (oestrogenen), mannelijke hormonen (androgenen), zwangerschapshormonen (progestagenen) en metaboliëten van deze stoffen. De complete lijst wordt gegeven in Bijlage 1 en omvat o.m. de belangrijke oestrogenen oestradiol, oestron en het mannelijke testosteron.

2.6 Chemische analyses

Alle monsters voor chemische analyse werden in enkelvoud door WENR aan RIKILT geleverd. De reservemonsters werden in de vriezer bij WENR achtergehouden.

De diergeneesmiddelen en hormonen zijn na een extractieprocedure met behulp van vloeistofchromatografie gescheiden; in het geval van antibiotica, antiparasitaire middelen en coccidiostatica met vloeistofchromatografie en in het geval van hormonen met behulp van gaschromatografie. Daarna zijn alle componenten met behulp van massaspectrometrische technieken geïdentificeerd en gekwantificeerd.

In Bijlage 1 zijn de analysepakketten van de diverse analyses weergegeven. In de bijlage staan ook de ranges van de kwantificeringslimiet (minimum en maximum) en de mediaan, aangezien de kwantificeringslimieten sterk kunnen verschillen per monster. De kwantificeringslimieten zijn afgeleid uit de hoogte van het signaal van eigen, bekende toevoegingen van de werkzame stoffen van de diergeneesmiddelen aan blanco matrices (bodem, water etc.). De waargenomen signalen zijn geëxtrapoleerd naar een signaal overeenkomend met zesmaal de ruis van blanco monsters zonder toevoegingen en teruggerekend naar de laagst kwantificeerbare concentratie. De GC-MS (waar de hormonen op gemeten zijn) heeft minder last van de matrix (het monster) dan LC-MS (waar de diergeneesmiddelen op gemeten zijn). Vandaar dat bij de hormonen geen range als kwantificeringslimiet staat, deze varieert niet.

In de volgende paragrafen worden de methoden samengevat.

2.6.1 Tetracyclines, sulfonamiden, quinolonen & macroliden

Water

Van elk monster water werden twee porties van 10 mL in bewerking genomen. Interne standaarden werden aan beide porties toegevoegd en aan een van de porties werden de antibiotica toegevoegd ter controle van de procedure. EDTA-McIlvain-buffer werd toegevoegd om complexvorming van tetracyclines (met name met divalente metaalionen) te voorkomen en het monster werd 'head-over-head' geschud. Na centrifugeren werd het extract opgeschoond met behulp van 'solid phase extraction' (SPE) en geconcentreerd. Daarna werd het extract geanalyseerd met behulp van vloeistofchromatografie gekoppeld aan tandem-massaspectrometrie (LC-MS/MS).

Mest

Van elk monster mest werden twee porties van 2 g in bewerking genomen. Interne standaarden werden toegevoegd aan beide porties en aan een van de porties werden de antibiotica toegevoegd ter controle van de procedure. EDTA-McIlvain-buffer en acetonitril (ACN) werden toegevoegd en het monster werd 'head-over-head' geschud. Loodacetaat werd toegevoegd en de monsters werden gecentrifugeerd. Hierna werd EDTA toegevoegd aan het supernatant. Dit extract werd opgeschoond met behulp van SPE en geconcentreerd. Het extract werd nogmaals gecentrifugeerd en gefiltreerd. Daarna werd het extract geanalyseerd met behulp van LC-MS/MS.

Grond & sediment

Van elk monster grond of sediment werden twee porties van 2 g in bewerking genomen. Interne standaarden werden toegevoegd aan beide porties en aan een van de porties werden de antibiotica toegevoegd ter controle van de procedure. EDTA-McIlvain-buffer, ACN en trifluorazijnzuur (TFA) werden toegevoegd en het monster werd 'head-over-head' geschud. Loodacetaat werd toegevoegd en de monsters werden gecentrifugeerd. Hierna werd het supernatant ingedampt, waarna EDTA toegevoegd werd. Dit extract werd opgeschoond met behulp van SPE en geconcentreerd. Het extract werd nogmaals gecentrifugeerd en gefiltreerd. Daarna werd het extract geanalyseerd met behulp van LC-MS/MS.

2.6.2 Antiparasitaire middelen en toltrazuril(-sulfon)

Water

Van elk monster water werden twee porties van 40 mL in bewerking genomen. Interne standaarden werden toegevoegd aan beide porties en aan een van de porties werden de antiparasitaire middelen, ponazuril en toltrazuril toegevoegd ter controle van de procedure. EDTA-McIlvain-buffer werd toegevoegd en het monster werd 'head-over-head' geschud. Na centrifugeren werd het extract opgeschoond met behulp van SPE en geconcentreerd. Het extract werd geanalyseerd met behulp van LC-MS/MS.

Mest, grond & sediment

Van elk monster mest, grond of sediment werden twee porties van 2 g in bewerking genomen. Interne standaarden werden toegevoegd aan beide porties en aan een van de porties werden de antiparasitaire middelen, ponazuril en toltrazuril toegevoegd ter controle van de procedure. ACN werd toegevoegd en het monster werd 'head-over-head' geschud. Na centrifugeren werd het supernatant opgeschoond met behulp van 'primary secondary amine' (PSA) en geconcentreerd. Het extract werd geanalyseerd met behulp van LC-MS/MS.

2.6.3 Hormonen

Water

Van elk monster water werd 250 ml in bewerking genomen. Interne standaarden werden toegevoegd. De monsters werden gehydrolyseerd met behulp van β -glucuronidase/sulfatase. TBME werd toegevoegd en het monster werd gesonificeerd en geschud. Na centrifuge en invriezen werd het supernatant afgegoten. Het supernatant werd ingedampt en her-opgelost in methanol (MeOH)/water. Heptaan werd toegevoegd en deze oplossing werd geschud. Na centrifuge werd het heptaan verwijderd en de overgebleven MeOH ingedampt, waarna het extract werd opgeschoond met behulp van SPE. Het eluaat werd droog gedampt en opgelost in TRIS-buffer en vervolgens geëxtraheerd met pentaan. De pentaanfractie werd na centrifugeren en invriezen afgegoten en ingedampt. Derivatisering werd uitgevoerd, waarna het extract werd geanalyseerd met behulp van GC-MS/MS.

Mest, grond & sediment

Van elk monster grond, sediment of mest werd 60 g in bewerking genomen. Interne standaarden en water werden toegevoegd. De monsters werden gehydrolyseerd met behulp van β -glucuronidase/sulfatase. TBME werd toegevoegd en het monster werd gesonificeerd en geschud, waarna de TBME-fractie werd gescheiden en opgevangen met behulp van een scheitrechter. Deze fractie werd ingedampt en her-opgelost in MeOH/water. Heptaan werd toegevoegd en deze oplossing werd geschud. Na centrifuge werd het heptaan verwijderd en de overgebleven MeOH ingedampt, waarna het extract werd opgeschoond met behulp van SPE. Het eluaat werd droog gedampt en opgelost in TRIS-buffer, waarna het geëxtraheerd werd met pentaan. De pentaanfractie werd na centrifugeren en invriezen afgegoten en ingedampt. Derivatisering werd uitgevoerd waarna het extract werd geanalyseerd met behulp van GC-MS/MS.

2.7 Geografische analyses

Om na te gaan hoe representatief de voor het veldonderzoek geselecteerde bedrijven zijn voor Gelderland en voor Nederland in zijn geheel, zijn geografische analyses uitgevoerd. De analyse richtte zich zowel op een aantal karakteristieken van de bedrijven zelf alsook het omringende land en percelen, met name de bodemeigenschappen en enkele hydrologische condities.

De analyse was gebaseerd op gegevens van GIAB 2015 (Gies e.a., 2015), gewaspercelen (RVO, 2016), bodemkaarten (Ten Cate e.a., 1995) en afgeleiden van de bodemkaart (De Vries, 1999) en grondwaterkaarten (Van der Gaast e.a., 2010).

De analyses zijn gedaan voor iedere eigenschap afzonderlijk. Uiteraard zijn er correlaties tussen de bodemtypen, grondwaterstanden en andere omgevingscondities. Een bedrijf met een venige bodem heeft een hoog organische-stofgehalte en over het algemeen ook een hoge grondwaterstand en drainage. Bij een bedrijf op zandige grond geldt het tegenovergestelde.

3 Resultaten

3.1 Bodemparameters

In Tabel 5 staan de gemeten parameters van de bodems van de tien onderzochte bedrijfspercelen. Het gehalte organische stof van de bedrijven in de Gelderse Vallei en de Achterhoek varieert van 2,7% tot 5,7%. Dit zijn normale waarden voor zandgrond. Het monster van het enige perceel op de Veluwe heeft een enigszins hoger organisch-stofgehalte van 9,1%.

De pH-CaCl₂ op de tien percelen loopt uiteen van 4,2 tot 6,9. De bodems zijn dus zuur tot neutraal.

Op basis van de korrelgrootteverdeling worden de bodems van alle tien percelen geclassificeerd als zand. Het uitgangspunt van het onderzoek om bedrijven/percelen op zandgrond te selecteren, is dus gerealiseerd.

Tabel 5 Gemeten bodemparameters op de percelen van de bedrijven.

Sector	Code bedrijf	Regio	Organische stof (%)	pH-CaCl ₂	Bodemtype
Kalveren	KA	Gelderse Vallei	4,6	5,9	Zand
Kalveren	KB	Gelderse Vallei	5,4	5,2	Zand
Kalveren	KC	Veluwe	9,1	4,2	Zand
Kalveren	KD	Gelderse Vallei	3,6	4,6	Zand
Kalveren	KE	Gelderse Vallei	4,2	6,0	Zand
Varkens	VA	Achterhoek	2,7	4,9	Zand
Varkens	VB	Gelderse Vallei	5,7	5,3	Zand
Varkens	VC	Achterhoek	3,3	5,1	Zand*
Varkens	VD	Achterhoek	3,9	6,9	Zand
Varkens	VE	Achterhoek	5,4	5,2	Zand

* Dit perceel ligt op de rand van een keileemgebied

3.2 Diergeneesmiddelengebruik

De wijze waarop de bedrijven t.b.v. het onderzoek het diergeneesmiddelengebruik gedurende de afgelopen drie jaar hebben gerapporteerd, varieerde. Van het ene bedrijf werden vrij uitgebreide gegevens ontvangen inclusief gekocht hoeveelheden en gebruikte dagdoses, van andere bedrijven een lijst met productnamen. Van kalverbedrijf KD is geen informatie ontvangen.

Vanwege deze verschillende wijze van rapporteren, wordt in dit rapport volstaan met een lijst van alle actieve stoffen die in 2016 en 2017 zijn gebruikt (Tabel 6). Dit zijn de stoffen die in potentie in de drijfmest gevonden kunnen worden. De tabel bevat alleen de op de bedrijven gebruikte antibiotica, antiparasitaire middelen en coccidiostatica. Op de bedrijven werden ook pijnstillers, ontstekingsremmers, hormoonpreparaten (voor synchronisatie van cycli, met andere hormonen dan in dit onderzoek zijn gemeten), ontsmettingsmiddelen, vitamines, mineralen en vaccins toegepast (niet alle boeren vaccineren hun dieren overigens). Deze zijn niet in de tabel opgenomen, mede omdat deze stoffen niet zijn geanalyseerd tijdens het onderzoek.

Vanwege de uiteenlopende rapportages is verder geen onderscheid gemaakt tussen koppelkuren (alle dieren op een bedrijf tegelijkertijd behandeld) en individuele behandelingen, tussen jaar van toedienen (2016 of 2017) en bij de varkens tussen zeugen, biggen en vleesvarkens.

Tabel 6 laat zien dat per sector vaak dezelfde middelen worden gebruikt. Bij de kalveren zijn dit actieve stoffen als de antibiotica oxytetracycline, doxycycline, tilmicosine, trimethoprim/sulfadiazine en ampicilline en het antiparasitaire middel ivermectine. Bij de varkens gaat het om de antibiotica oxytetracycline, doxycycline, trimethoprim/sulfadiazine en benzylpenicilline, het antiparasitaire middel flubendazol en het coccidiostaticum toltrazuril. Penicillines zoals ampicilline en benzylpenicilline zijn tijdens het onderzoek niet geanalyseerd, omdat deze doorgaans zeer snel afbreken in mest en milieu.

Tabel 6 Gerapporteerd diergeneesmiddelengebruik (werkzame stoffen) per bedrijf in de periode 2016-2017 (individuele actieve stoffen, alleen antibiotica en antiparasitaire middelen).

Bedrijf	Antibiotica	Antiparasitaire middelen & coccidiostatica
KA	Oxytetracycline, doxycycline, tilmicosine, ampicilline*	
KB	Oxytetracycline, doxycycline, trimethoprim, sulfadiazine, tilmicosine, tylosine, tulathromycine, paromomycine, amoxicilline*, ampicilline*, benzylpenicilline*, florfenicol*	Ivermectine
KC	Oxytetracycline, doxycycline, trimethoprim, sulfadiazine, tilmicosine, tulathromycine, flumequine, gentamicine*, ampicilline*, benzylpenicilline*, florfenicol*	Ivermectine
KD	Niet gerapporteerd	Niet gerapporteerd
KE	Oxytetracycline, doxycycline, trimethoprim, sulfadiazine, tilmicosine, tylosine, ampicilline*, florfenicol*	Ivermectine, diclazuril
VA	Oxytetracycline, benzylpenicilline	Flubendazol
VB	Trimethoprim, sulfadiazine, tiamuline, tylosine, amoxicilline*, ampicilline*, colistine*, benzylpenicilline*, florfenicol*	Levamisol, toltrazuril
VC	Oxytetracycline, doxycycline, benzylpenicilline*, colistine*	Flubendazol, toltrazuril
VD	Oxytetracycline, doxycycline, trimethoprim, sulfadiazine, tylosine, benzylpenicilline*	Flubendazol
VE	Oxytetracycline, trimethoprim, sulfadiazine, benzylpenicilline*	Flubendazol, toltrazuril

* Middelen die niet in de gebruikte analysepakketten zaten

3.3 Antibiotica

In de volgende paragrafen worden de resultaten van de chemische analyses gepresenteerd en waar relevant van commentaar voorzien. De kwantificeringslimieten van de chemische analyses worden gegeven in Bijlage 1.

De gemeten gehalten in mest worden per stofgroep steeds in een tabel gepresenteerd.

Indien een stof meermalen is aangetroffen in een milieucompartiment, wordt het resultaat grafisch weergegeven: allereerst in een grafiek met de gemeten gehalten per bedrijf (Figuur a) en daarna de gemiddelde concentraties op de monstertijdstippen (Figuur b). Concentraties onder de (variabele) kwantificeringslimieten zijn in deze figuren en voor de berekening van het gemiddelde gelijkgesteld aan nul.

Bij het gebruik van het tweede type figuren (Figuren b) dient vermeld te worden dat het gemiddelde gehalte in bijvoorbeeld de bodems van vijf percelen waar varkensmest is verspreid geen berekening op basis van daadwerkelijke replica's betreft met eenzelfde dosis mest en diergeneesmiddelen. Zo kan het gebruik van een bepaald middel per bedrijf hebben verschild (al dan niet gebruikt, verschillende dosis, koppelkuur of individuele behandeling) en verschilden de geïnjecteerde hoeveelheden drijfmest per hectare tussen de bedrijfspercelen (zie Tabel 2). Ook verschilden de percelen onderling qua gewas en qua milieuomstandigheden, bijvoorbeeld de bodemcondities en de neerslag. De gegevens zijn dan ook niet statistisch geanalyseerd, dus er is bijvoorbeeld niet getoetst of er significante verschillen waren tussen gemiddelde concentraties op verschillende monstertijdstippen zoals tussen vóór en na injectie van mest. De gemiddelde concentraties worden enkel getoond om een visuele indicatie van

het verloop in de tijd te verkrijgen. De afgebeelde standaarddeviaties tonen de (vaak grote) spreiding in de gemiddelde concentraties per bedrijf.

Actieve stoffen die slechts in enkele gevallen in milieucompartimenten zijn waargenomen boven de kwantificeringslimiet, worden in een aparte tabel met 'losse' waarnemingen getoond.

3.3.1 Tetracyclines

Mest

De gemeten gehalten antibiotica in mest worden gegeven in Tabel 7. Vier tetracyclines werden gevonden.

In de mest van alle kalverbedrijven werden hoge concentraties oxytetracycline vastgesteld, met concentraties in de range van 0,17-5 mg/kg. De gehalten oxytetracycline in de drijfmest van de varkensbedrijven lagen beduidend lager, 22-71 µg/kg. Op één bedrijf, VB, was de concentratie onder de kwantificeringslimiet van 4 µg/kg en dit was precies het bedrijf dat geen gebruik van oxytetracycline had gerapporteerd (Tabel 6). Alle andere onderzochte bedrijven hadden het gebruik van oxytetracycline gemeld.

Doxycycline laat een vergelijkbaar beeld zien voor de mest van de kalverbedrijven, hoge concentraties variërend van 0,35 tot 2,0 mg/kg. Alle kalverbedrijven hebben gebruik van dit middel gerapporteerd (Tabel 6). Doxycycline werd verder vastgesteld in de mest van twee varkensbedrijven. Van deze bedrijven had alleen VD gebruik van het middel gerapporteerd, voor VB was dit niet het geval.

Tetracycline zelf werd vooral gemeten in kalvermest (vier van de vijf bedrijven, 9-151 µg/kg) en in zijn geheel niet in de mest van de vijf varkensbedrijven. De vondst van het middel in kalvermest is opvallend, omdat geen van de bedrijven het gebruik van tetracycline heeft gerapporteerd. Echter, tetracycline wordt uitsluitend gedetecteerd in combinatie met hoge concentraties oxytetracycline en doxycycline. Daardoor is het zeer wel mogelijk dat tetracycline als kleine verontreiniging (geheel legaal) voorkomt in oxytetracycline- en doxycycline-preparaten.

In een van de tien mestmonsters werd chloortetracycline gemeten boven de kwantificeringslimiet, in de mest van kalverbedrijf KD (29 µg/kg). Geen van de onderzochte bedrijven heeft het gebruik van chloortetracycline als geneesmiddel gerapporteerd (Tabel 6).

Tabel 7 Gemeten concentraties (µg/kg versgewicht) van tetracyclines in mest uit de opslagkelders van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen.

Sector	Code bedrijf	Tetracycline	Oxytetracycline ¹	Doxycycline ¹	Chloortetracycline
Kalveren	KA	151	ca. 5000	ca. 2000	<20
Kalveren	KB	9	ca. 1100	ca. 350	<10
Kalveren	KC	<5	ca. 700	ca. 800	<10
Kalveren	KD	27	ca. 1300	ca. 1000	29
Kalveren	KE	53	ca. 1900	ca. 1500	<10
Varkens	VA	<5	71	<15	<15
Varkens	VB	<10	<4	ca. 700	<15
Varkens	VC	<3	55	<5	<6
Varkens	VD	<5	22	ca. 600	<10
Varkens	VE	<2	66	<6	<3

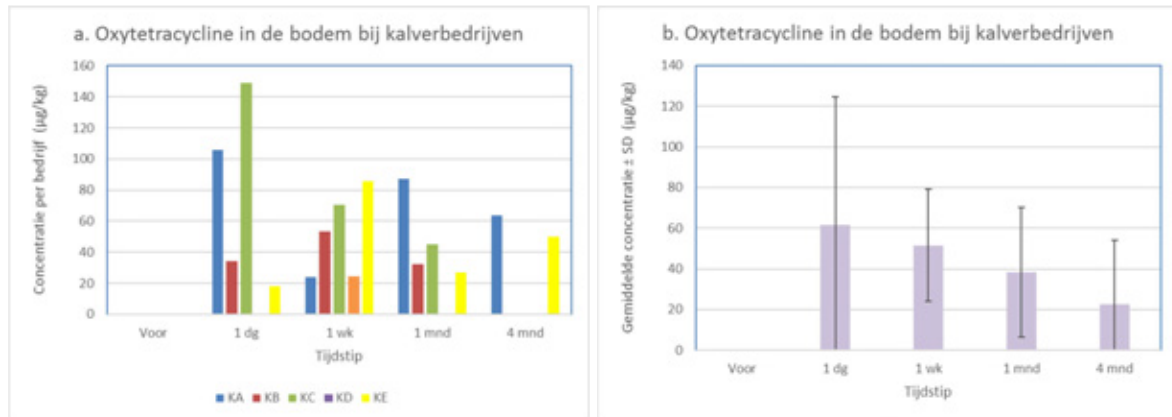
1) Door de grote hoeveelheden zijn de concentraties niet heel precies te geven; ze vallen buiten de ijklijn

Milieu

In de bodems van de percelen waar kalvermest is verspreid, werden twee tetracyclines vaak aangetroffen: oxytetracycline en doxycycline. In Figuur 2 is duidelijk te zien dat oxytetracycline niet wordt gevonden in de bodemonsters voorafgaand aan de injectie van kalverdrijfmest. Na injectie

wordt het middel op alle vijf de percelen met kalvermest vastgesteld (Figuur 2a). Het gemiddelde gehalte vertoont ondanks de hoge variatie tussen de percelen een toename op de dag na injectie en vervolgens een afname in de tijd (Figuur 2b).

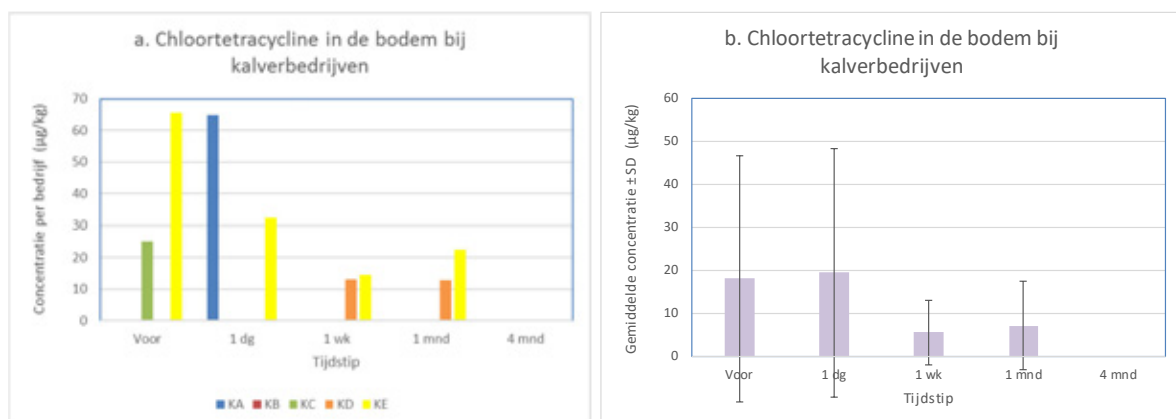
Oxytetracycline is slechts tweemaal waargenomen in bodem van de vijf percelen waar varkensmest werd verspreid, eenmaal voor en eenmaal na injectie (Tabel 8).



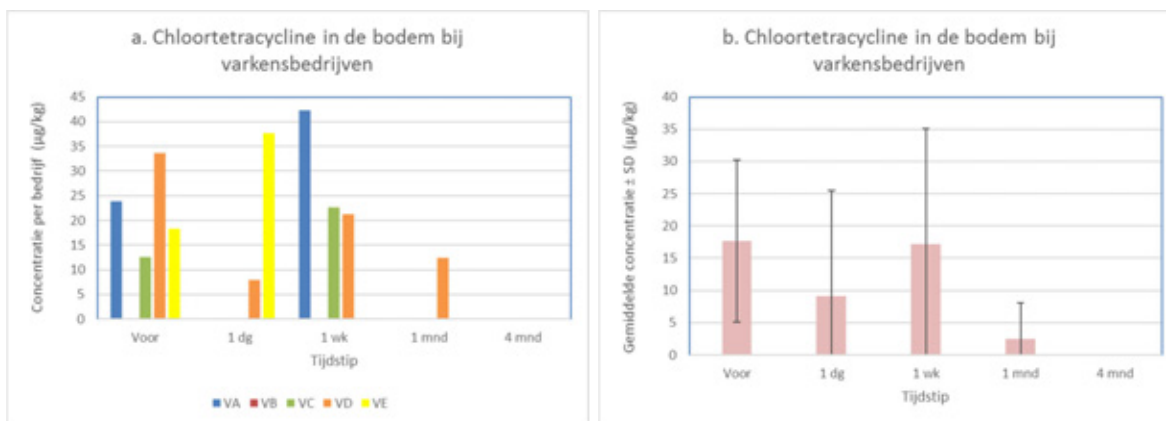
Figuur 2 Concentraties oxytetracycline in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van kalverdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).

Ondanks het feit dat chloortetracycline door geen van de bedrijven als antibioticum is gebruikt in het seizoen voorafgaand aan de verspreiding op het land, en ondanks dat deze stof slechts in één (kalver)mestmonster is vastgesteld, wordt deze stof veelvuldig in de bodem aangetroffen van nagenoeg alle percelen uit de studie (Figuur 3a en Figuur 4a). Opvallend is dat de stof al aanwezig is vóór toediening van de drijfmest en dat er gemiddeld sprake lijkt van een lichte afname tijdens het zomerseizoen (Figuur 3b en Figuur 4b). Vier maanden na injectie wordt de stof op geen van de percelen meer aangetroffen boven de kwantificeringslimiet.

Waar het gemeten chloortetracycline van afkomstig is, valt op basis van onze studie niet exact te zeggen. Van chloortetracycline is echter bekend dat het door bodembacteriën (actinomyceten, *Streptomyces* spp.) op natuurlijke wijze kan worden gevormd (zie § 5.1).



Figuur 3 Concentraties chloortetracycline in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van kalverdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).



Figuur 4 Concentraties chloortetracycline in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van varkensdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).

In de bodems van zowel de percelen waar kalver- als varkensmest is toegediend, werden verder op verschillende monstertijdstippen een enkele maal tetracycline (11-58 $\mu\text{g/kg}$) en doxycycline (35-101 $\mu\text{g/kg}$) aangetroffen, zowel voor als na injectie van drijfmest (Tabel 8).

In Tabel 8 wordt eveneens weergegeven of er tetracyclines zijn waargenomen in de andere milieucompartimenten van de percelen dan de bodem.

Oxytetracycline (16-27 $\mu\text{g/kg}$) en chloortetracycline (11-17 $\mu\text{g/kg}$) zijn ook enkele malen in het sediment van de sloten/greppels vastgesteld van zowel kalver- als varkensmestpercelen. Daarnaast werd doxycycline eenmaal waargenomen in sediment (57 $\mu\text{g/kg}$) en oxytetracycline eenmaal in het oppervlaktewater (144 ng/L) van een sloot naast een perceel met varkensmest in 2017. Dit betrof een monster dat iets troebel was, dus mogelijk met zwevend stof. Alle waarnemingen van deze vier stoffen in sedimenten en oppervlaktewater betroffen het monstertijdstip T0 (vóór mestinjectie). Er zijn geen tetracyclines in het grondwater van de onderzochte percelen gevonden.

Het valt niet uit te sluiten dat het onregelmatige patroon van sommige tetracyclines in de bodem deels te maken heeft met de hoge kwantificeringslimieten voor deze stoffen in deze matrix. Deze limieten varieerden van ca. 5 tot 100 $\mu\text{g/kg}$ versgewicht voor alle stoffen uit deze groep (Bijlage 1) en verschilden per individueel monster. De gemeten bodemconcentraties vallen deels in deze range (Figuur 2, 3, 4). Dit kan dus betekenen dat een concentratie van 50 $\mu\text{g/kg}$ in het ene bodemonster wel wordt gedetecteerd en in het andere niet.

Tabel 8 Gemeten losse concentraties van tetracyclines in de milieucompartimenten van percelen waar de drijfmest van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen is geïnjecteerd.

Sector	Type monster	Code bedrijf	Tijdstip na injectie	Actieve stof	Concentratie	Eenheid
Kalveren	Bodem	KE	Voor	Tetracycline	18	µg/kg
Kalveren	Bodem	KE	1 mnd.	Tetracycline	15	µg/kg
Kalveren	Bodem	KA	1 wk	Doxycycline	101	µg/kg
Kalveren	Bodem	KE	1 wk	Doxycycline	57	µg/kg
Kalveren	Bodem	KE	4 mnd.	Doxycycline	35	µg/kg
Kalveren	Sediment	KD	Voor	Oxytetracycline	16	µg/kg
Kalveren	Sediment	KE	Voor	Chloortetracycline	17	µg/kg
Varkens	Bodem	VA	1 dg	Tetracycline	58	µg/kg
Varkens	Bodem	VD	Voor	Tetracycline	11	µg/kg
Varkens	Bodem	VD	Voor	Oxytetracycline	53	µg/kg
Varkens	Bodem	VE	Voor	Oxytetracycline	77	µg/kg
Varkens	Bodem	VD	Voor	Doxycycline	38	µg/kg
Varkens	Oppervlaktewater	VA	Voor	Oxytetracycline	144	ng/L
Varkens	Sediment	VD	Voor	Oxytetracycline	27	µg/kg
Varkens	Sediment	VD	Voor	Doxycycline	57	µg/kg
Varkens	Sediment	VC	Voor	Chloortetracycline	11	µg/kg
Varkens	Sediment	VD	Voor	Chloortetracycline	14	µg/kg
Varkens	Sediment	VE	Voor	Chloortetracycline	12	µg/kg

3.3.2 Sulfonamiden

Mest

In Tabel 9 staan de gemeten gehalten sulfonamiden in mestmonsters. In de mest werden twee sulfonamiden aangetroffen: sulfadiazine en sulfadimidine. Sulfadiazine komt overeen met de opgegeven behandelingen. Sulfadimidine is echter niet toegepast.

De mest van vier van de vijf onderzochte kalverbedrijven bevatte sulfadiazine, sterk variërend in gehalte van 1 tot ca. 200 µg/kg. De mest van twee van deze bedrijven bevatte daarnaast zeer lage concentraties (1-2 µg/kg) sulfadimidine. Op één varkensbedrijf werd sulfadiazine in de drijfmest gevonden (ca. 100 µg/kg) en nergens sulfadimidine. De aanwezigheid van sulfadiazine in de mest komt enigszins, maar niet 1:1, overeen met het gerapporteerde gebruik (Tabel 6).

Andere sulfonamiden – inclusief trimethoprim, dat uitsluitend in combinatie met sulfonamiden wordt gebruikt – zijn niet in de mest van de bedrijven aangetroffen.

Tabel 9 Gemeten concentraties (µg/kg versgewicht) van sulfonamiden in mest uit de opslagkelders van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen.

Sector	Code bedrijf	Sulfadiazine	Sulfadimidine
Kalveren	KA	1	1
Kalveren	KB	ca. 200	<1
Kalveren	KC	27	<1
Kalveren	KD	40	2
Kalveren	KE	<1	<1
Varkens	VA	<1	<1
Varkens	VB	<1	<1
Varkens	VC	<1	<1
Varkens	VD	1	<1
Varkens	VE	ca. 100	<1

Milieu

In de bodem van de bemeste percelen is twee keer een sulfonamide gevonden. In beide gevallen ging het om sulfadiazine na toediening van kalvermest van bedrijf KB (Tabel 10). De mest van dit bedrijf bevatte tevens de hoogst gevonden concentratie van deze stof (Tabel 9).

In het grondwater van het perceel waar de mest van bedrijf KD is verspreid, werd driemaal sulfadimidine aangetroffen (26-180 ng/L), zowel vóór injectie als één en vier maanden er na (Tabel 10). De drijfmest van dit bedrijf bevatte in 2017 een zeer lage concentratie van dit middel (Tabel 9).

Sulfadimidine werd ook driemaal aangetroffen in het grondwater bij twee percelen waar varkensdrijfmest van bedrijven VA en VC is toegepast (9-180 ng/L) en ook in het oppervlaktewater (12 ng/L) en sediment (3 µg/kg) van het perceel behorende tot bedrijf VA. Het gaat om waarnemingen zowel vóór als na de toediening van de mest.

Tabel 10 Gemeten concentraties van sulfonamiden in de milieucompartimenten van percelen waar de drijfmest van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen is geïnjecteerd.

Sector	Type monster	Code bedrijf	Tijdstip na injectie	Actieve stof	Concentratie	Eenheid
Kalveren	Bodem	KB	1 wk	Sulfadiazine	2	µg/kg
Kalveren	Bodem	KB	1 mnd.	Sulfadiazine	1	µg/kg
Kalveren	Grondwater	KA	4 mnd.	Sulfadiazine	8	µg/kg
Kalveren	Grondwater	KD	Voor	Sulfadimidine	26	ng/L
Kalveren	Grondwater	KD	1 mnd.	Sulfadimidine	26	ng/L
Kalveren	Grondwater	KD	4 mnd.	Sulfadimidine	180	ng/L
Varkens	Grondwater	VA	1 mnd.	Sulfadimidine	9	ng/L
Varkens	Grondwater	VC	Voor	Sulfadimidine	18	ng/L
Varkens	Grondwater	VC	4 mnd.	Sulfadimidine	28	ng/L
Varkens	Oppervlaktewater	VA	1 mnd.	Sulfadimidine	12	ng/L
Varkens	Sediment	VA	Voor	Sulfadimidine	3	µg/kg

3.3.3 Quinolonen

Mest

Drie quinolonen werden gevonden in de mest van kalverbedrijven: enrofloxacin, ciprofloxacin en flumequine (Tabel 11). De eerste twee (ciprofloxacin is een metaboliet van enrofloxacin) werden alleen aangetroffen bij bedrijf KA. Dit bedrijf had het gebruik van deze middelen niet gerapporteerd (Tabel 6). Flumequine werd aangetroffen in de mest van drie kalverbedrijven en in veel hogere concentraties, van ca. 220 tot ca. 1700 µg/kg. Slechts een van deze bedrijven, KC, had het gebruik van dit middel doorgegeven.

In de mest van de vijf varkensbedrijven werden geen quinolonen aangetroffen en het gebruik van deze groep middelen was door de varkensbedrijven ook niet gerapporteerd.

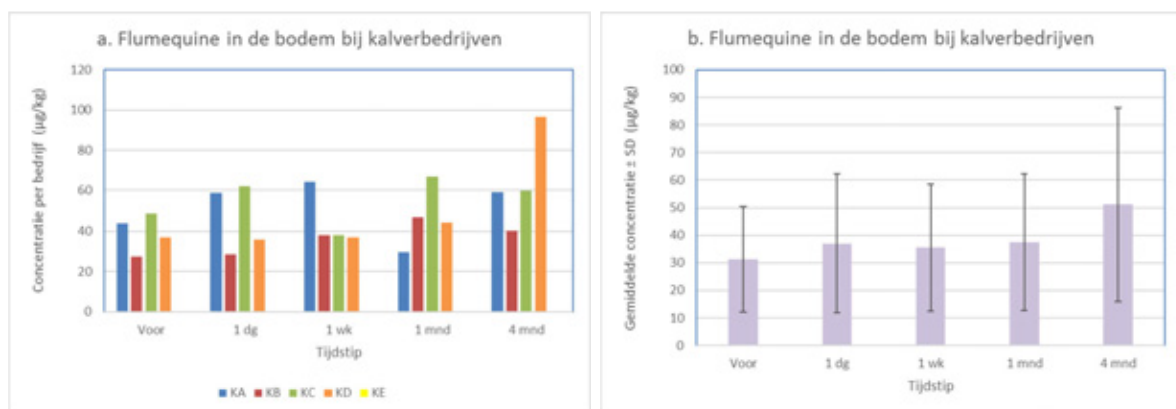
Tabel 11 Gemeten concentraties ($\mu\text{g/kg}$ versgewicht) van quinolonen in mest uit de opslagkelders van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen.

Sector	Code bedrijf	Ciprofloxacin	Enrofloxacin	Flumequine
Kalveren	KA	165	29	ca. 1700
Kalveren	KB	<5	<2	<3
Kalveren	KC	<5	<3	ca. 650
Kalveren	KD	<4	<5	ca. 220
Kalveren	KE	<2	<3	<3
Varkens	VA	<5	<5	<5
Varkens	VB	<10	<10	<7
Varkens	VC	<1	<5	<5
Varkens	VD	<5	<10	<5
Varkens	VE	<1	<5	<5

Milieu

Van alle gemeten quinolonen is in het onderzoek alleen flumequine in milieumonsters aangetroffen. Het kwam voor in de bodem van alle percelen behorende bij kalverbedrijven, behalve bij bedrijf KE. De concentraties worden getoond in Figuur 5. Wat meteen opvalt, is dat het flumequine op de vier bedrijven al in de bodem aanwezig is voorafgaand aan de toediening van de drijfmest. Na toediening neemt de gemiddelde concentratie niet consistent toe.

De eigenaar van bedrijf KE heeft mondeling laten weten nooit flumequine te gebruiken of te hebben gebruikt. Dit wordt bevestigd doordat er op het perceel van dit bedrijf geen flumequine in de bodem wordt aangetroffen. Het feit dat de stof wel in de bodem van de andere bedrijven aanwezig is en al voor toediening van de mest in 2017, wijst erop dat flumequine nog aanwezig is als gevolg van toediening een jaar eerder en bevestigt dat dit diergeneesmiddel zeer persistent is.



Figuur 5 Concentraties flumequine in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van kalverdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).

Flumequine werd ook aangetroffen in een aantal sedimentmonsters, zij het in lagere concentraties dan in de bodemmonsters (Tabel 12). Het ging om sediment uit de sloten/greppels van twee kalverbedrijven en één varkensbedrijf. Deze waarnemingen kunnen het gevolg zijn van afspoeling van deeltjes vanaf de percelen.

Er zijn naast deze sedimenten geen waarnemingen van flumequine of andere quinolonen (bijvoorbeeld enrofloxacin of ciprofloxacin) in milieumonsters gedaan.

Tabel 12 Gemeten losse concentraties van quinolonen in de milieucompartimenten van percelen waar de drijfmest van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen is geïnjecteerd.

Sector	Type monster	Code bedrijf	Tijdstip na injectie	Actieve stof	Concentratie	Eenheid
Kalveren	Sediment	KB	4 mnd	Flumequine	5	µg/kg
Kalveren	Sediment	KD	Voor	Flumequine	10	µg/kg
Kalveren	Sediment	KD	4 mnd	Flumequine	17	µg/kg
Varkens	Sediment	VD	Voor	Flumequine	8	µg/kg
Varkens	Sediment	VD	4 mnd	Flumequine	7	µg/kg

3.3.4 Macroliden

Mest

Van de geanalyseerde macroliden werden drie actieve stoffen aangetroffen in drijfmestmonsters (Tabel 13). Tilmicosine kwam voor in concentraties van 24 tot ca. 300 µg/kg in alleen de kalvermestmonsters. Alle kalverbedrijven rapporteerden het gebruik van dit middel (Tabel 6).

Daarnaast werd in de mest van kalverbedrijf KD tylosine aangetroffen in een lage concentratie (3 µg/kg) en bij bedrijf KE in een iets hogere concentratie (23 µg/kg). Bedrijf KE rapporteerde inderdaad gebruik van dit middel, van bedrijf KD werden geen gebruiksgegevens ontvangen (Tabel 6). Tylosine is ook gebruikt op bedrijf KB (Tabel 6), maar niet in de mest teruggevonden.

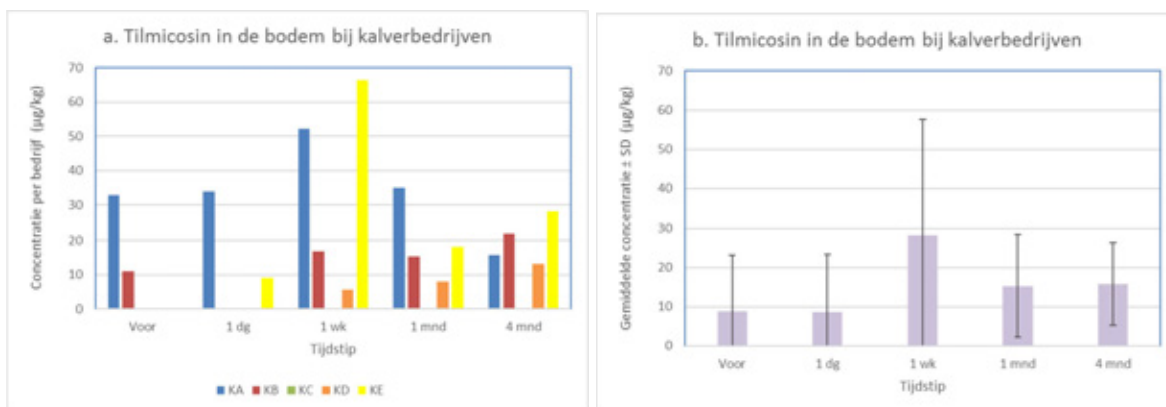
In de mest van varkensbedrijf VB werd tiamulin gevonden in een lage concentratie van 2 µg/kg (Tabel 13). Gebruik hiervan was door dit bedrijf als enige gemeld (Tabel 6). Verder werden er in de varkensmestmonsters van de andere varkensbedrijven geen macroliden gedetecteerd.

Tabel 13 Gemeten concentraties (µg/kg versgewicht) van macroliden in mest uit de opslagkelders van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen.

Sector	Code bedrijf	Tilmicosine	Tylosine	Tiamulin
Kalveren	KA	129	<3	<2
Kalveren	KB	70	<2	<2
Kalveren	KC	78	<3	<2
Kalveren	KD	24	3	<1
Kalveren	KE	ca. 300	23	<1
Varkens	VA	<1	<1	<1
Varkens	VB	<1	<1	2
Varkens	VC	<1	<1	<1
Varkens	VD	<2	<1	<1
Varkens	VE	<1	<1	<1

Milieu

Van de in mest gevonden macroliden werd tilmicosine als enige in de bodem gevonden, het meest op de percelen waar in 2017 kalverdrijfmest werd verspreid (Figuur 6). Tilmicosine bleek na mesttoediening wisselend aanwezig in de bodem van vier van de vijf de kalvermestpercelen (bij KC niet) en in de bodem van twee van deze percelen ook al voor mestinjectie (Figuur 6a).



Figuur 6 Concentraties tilmicosine in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van kalverdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).

Tilmicosine werd tevens aangetroffen in bodem van een van de vijf varkensmestpercelen (Tabel 14). De stof is niet aanwezig vóór mestinjectie (<10 µg/kg), neemt vlak daarna toe tot 9 µg/kg (na 1 dag) en 13 µg/kg (na 1 week) en neemt vervolgens weer af tot 3 µg/kg vier maanden later. Het middel werd niet in de mest van dit bedrijf gedetecteerd (Tabel 13). De oorsprong in de bodem is hierdoor niet geheel duidelijk, ook al lijkt deze samen te hangen met de toediening van de mest.

Op het perceel waar de drijfmest van varkensbedrijf VE is toegediend, werd eenmalig een concentratie van 14 ng/L tiamulin in het grondwater gemeten (Tabel 14). Gebruik hiervan in 2017 was voor dit bedrijf niet genoemd. Verder zijn er in de water- en sedimentmonsters geen macroliden aangetroffen, ook geen tylosine.

Tabel 14 Gemeten losse concentraties van macroliden in de milieucompartimenten van percelen waar de drijfmest van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen is geïnjecteerd.

Sector	Type monster	Code bedrijf	Tijdstip na injectie	Actieve stof	Concentratie	Eenheid
Varkens	Bodem	VC	Voor	Tilmicosin	<10	µg/kg
Varkens	Bodem	VC	1 dg	Tilmicosin	9	µg/kg
Varkens	Bodem	VC	1 wk	Tilmicosin	13	µg/kg
Varkens	Bodem	VC	1 mnd.	Tilmicosin	7	µg/kg
Varkens	Bodem	VC	4 mnd.	Tilmicosin	3	µg/kg
Varkens	Grondwater	VE	4 mnd.	Tiamulin	14	ng/L

3.4 Antiparasitaire middelen & coccidiostatica

3.4.1 Avermectines

Mest

In de mest van vier van de vijf onderzochte kalverbedrijven is het antiparasitaire middel (ontwormingsmiddel) ivermectine gemeten (Tabel 15). De concentraties liepen uiteen van 6 µg/kg bij bedrijven KC en KD tot 46 µg/kg bij bedrijf KA. Bij bedrijven KB, KC en KE was het gebruik van ivermectine gerapporteerd, bij KA echter niet. Van bedrijf KD werden geen gebruiksgegevens ontvangen.

In geen van de varkensmestmonsters werden ivermectine of andere avermectines gevonden. Gebruik hiervan was ook niet gemeld (Tabel 6).

Tabel 15 Gemeten concentraties ($\mu\text{g/kg}$ versgewicht) van avermectines in mest uit de opslagkelders van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen.

Sector	Code bedrijf	Ivermectine
Kalveren	KA	46
Kalveren	KB	<1
Kalveren	KC	6
Kalveren	KD	6
Kalveren	KE	19
Varkens	VA	<5
Varkens	VB	<10
Varkens	VC	<1
Varkens	VD	<10
Varkens	VE	<2

Milieu

Twee keer werden er avermectines aangetroffen in milieumonsters van de onderzochte percelen (Tabel 16). In het grondwater van het perceel behorende bij bedrijf KE werd één maand na mestinjectie een relatief lage concentratie van 8 ng/L van het middel emamectine gemeten. Gebruik van dit middel is niet gerapporteerd.

In het oppervlaktewater van de sloot naast bedrijf KA is eenmalig een concentratie van 24 ng/L ivermectine vastgesteld. Dit is voor zover wij weten de eerste keer dat deze stof in oppervlaktewater in Nederland is gemeten. Het ging om een iets troebel monster, dus het ivermectine was mogelijk gehecht aan zwevend stof. Dit kan bij monsternamen zijn opgewoeld of van elders afkomstig zijn. De sloot bij bedrijf KA stroomt relatief snel.

In alle andere milieumonsters genomen tijdens het onderzoek zijn geen avermectines gevonden in concentraties boven de kwantificeringslimiet. Hierbij dient te worden opgemerkt dat door de extra toevoeging van deze stoffen aan het analysepakket voor de benzimidazolen de kwantificeringslimieten relatief hoog waren (zie § 2.5.2 en Bijlage 1) en deze stoffen dus minder makkelijk detecteerbaar.

Tabel 16 Gemeten losse concentraties van avermectines in de milieucompartimenten van percelen waar de drijfmest van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen is geïnjecteerd.

Sector	Type monster	Code bedrijf	Tijdstip na injectie	Actieve stof	Concentratie	Eenheid
Kalveren	Grondwater	KE	1 mnd	Emamectine	8	ng/L
Kalveren	Oppervlaktewater	KA	1 mnd	Ivermectine	24	ng/L

3.4.2 Benzimidazolen

Mest

In Tabel 17 staan de in mest gemeten concentraties van de diverse geanalyseerde antiparasitaire benzimidazolen en hun metabolieten.

In kalvermest worden enkele malen zeer lage concentraties gemeten van fenbendazol (KD, KE) en mebendazol (KE), maar verder bevat deze mest geen benzimidazolen (Tabel 17). Het gebruik van deze stoffen is ook niet door kalverbedrijven gerapporteerd (Tabel 6).

Tabel 17 Gemeten concentraties ($\mu\text{g/kg}$ versgewicht) van benzimidazolen en metabolieten in mest uit de opslagkelders van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen.

Sector	Code bedrijf	Albendazol	Albendazolsulfoxide	Albendazolaminosulfon	Albendazolsulfon	Fenbendazol	Fenbendazolsulfoxide	Fenbendazolsulfon
Kalveren	KA	<2	<5	<2	<3	<2	<5	<5
Kalveren	KB	<1	<3	<2	<3	<1	<3	<3
Kalveren	KC	<1	<3	<2	<3	<1	<10	<5
Kalveren	KD	<1	<2	<2	<2	1	<2	<2
Kalveren	KE	<1	<2	<2	<2	1	<3	<3
Varkens	VA	3	3	<2	3	3	<5	4
Varkens	VB	<3	<5	<3	<3	<5	<10	<5
Varkens	VC	5	5	1	5	5	4	4
Varkens	VD	<3	<3	<3	<2	<3	<5	<3
Varkens	VE	3	3	<2	3	3	3	4

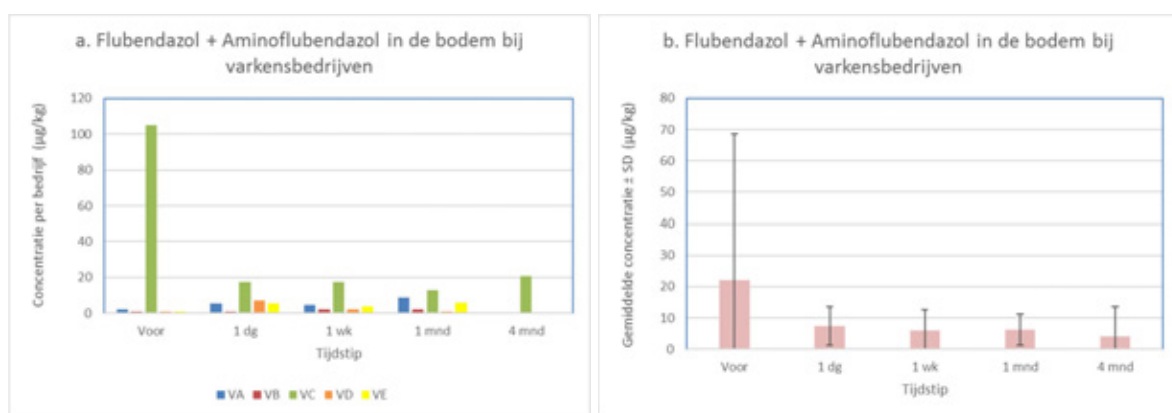
Tabel 17 (vervolg)

Sector	Code bedrijf	Flubendazol	Flubendazol, amino-	Flubendazol, hydroxy-	Mebendazol	Mebendazol, amino-	Mebendazol, hydroxy-
Kalveren	KA	<1	<5	<5	<1	<5	<3
Kalveren	KB	<1	<2	<5	<1	<2	<3
Kalveren	KC	<1	<3	<10	<2	<3	<5
Kalveren	KD	<1	<3	<2	<1	<3	<2
Kalveren	KE	<1	<2	<3	1	<2	<2
Varkens	VA	79	34	3	4	<2	2
Varkens	VB	93	46	<5	<2	<10	<3
Varkens	VC	19	8	<2	5	1	4
Varkens	VD	4	15	<5	<2	<5	<3
Varkens	VE	98	148	<2	3	<2	<2

De meeste varkensbedrijven hebben gebruik van flubendazol gerapporteerd en dit is terug te zien in de mest. De drijfmest van alle vijf varkensbedrijven bevat flubendazol, aminoflubendazol en in één geval ook een lage concentratie hydroxyflubendazol. Beide laatste zijn metabolieten van flubendazol. Naast flubendazol bevat de mest van drie bedrijven (VA, VC, VE) ook geringe concentraties albendazol, fenbendazol, mebendazol en diverse metabolieten van deze drie stoffen (Tabel 17). Het gebruik van deze stoffen is niet gerapporteerd door de bedrijven.

Milieu

Flubendazol en de metaboliet aminoflubendazol werden in de bodem aangetroffen op alle percelen waar varkensmest werd uitgereden in 2017 (Figuur 7). Figuur 7 met daarin de som van flubendazol en de amino-metaboliet wordt gedomineerd door één uitschieter van 105 µg/kg (55 µg/kg flubendazol + 50 µg/kg aminoflubendazol) op bedrijf VC in het bodemonmonster dat is genomen vóór mesttoediening aan het perceel (Figuur 7a). Op het perceel van bedrijf VC is daardoor sprake van een afname van de concentraties na mestinjectie, terwijl op de overige vier percelen met varkensmest een lichte toename wordt waargenomen (Figuur 7a). Behalve in de bodem van het perceel behorende bij bedrijf VC wordt er in de andere bodems na vier maanden geen flubendazol of aminoflubendazol meer gevonden (Figuur 7a).



Figuur 7 Concentraties flubendazol (+ aminoflubendazol) in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van varkensdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (± standaarddeviatie) van deze percelen (b).

In twee bodems van varkensmestpercelen werd naast (amino)flubendazol ook aminomebendazol gevonden (Tabel 18). Op één kalvermestperceel (KB) is in de bodem een benzimidazol (aminoflubendazol) aangetroffen. Het ging in alle drie de gevallen om zeer lage concentraties van 1 µg/kg, net boven de kwantificeringslimiet van deze stoffen.

Hetzelfde geldt voor de detectie van flubendazol en aminoflubendazol in drie sedimentmonsters uit de sloten/greppels van varkensmestpercelen.

Tabel 18 Gemeten losse concentraties van benzimidazolen in de milieucompartimenten van percelen waar de drijfmest van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen is geïnjecteerd.

Sector	Type monster	Code bedrijf	Tijdstip na injectie	Actieve stof	Concentratie	Eenheid
Kalveren	Bodem	KB	1 dg	Aminoflubendazol	1	µg/kg
Varkens	Bodem	VB	1 wk	Aminomebendazol	1	µg/kg
Varkens	Bodem	VC	1 dg	Aminomebendazol	1	µg/kg
Varkens	Sediment	VB	4 mnd	Flubendazol	1	µg/kg
Varkens	Sediment	VC	Voor	Aminoflubendazol	2	µg/kg
Varkens	Sediment	VD	Voor	Aminoflubendazol	1	µg/kg

3.4.3 Coccidiostatica

In de drijfmest van de vijf kalverbedrijven werd geen van de coccidiostatica toltrazuril en ponazuril (toltrazuril-sulfon) aangetroffen boven de kwantificeringslimiet (Tabel 19). Ponazuril is een metaboliet van toltrazuril (toltrazuril wordt toegediend).

Op twee van de vijf varkensbedrijven daarentegen werden in de drijfmest verhoogde gehalten toltrazuril en ponazuril gemeten. Deze bedrijven, VB en VE, rapporteerden beide het gebruik van toltrazuril (Tabel 6). Op een derde varkensbedrijf, VC, werden zeer lage gehalten van beide stoffen in de mest gemeten. Dit bedrijf had het gebruik van toltrazuril niet gerapporteerd.

Tabel 19 Gemeten concentraties ($\mu\text{g/kg}$ versgewicht) van toltrazuril en ponazuril in mest uit de opslagkelders van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen.

Code bedrijf	Sector	Toltrazuril	Ponazuril (Toltrazuril-sulfon)
KA	Kalveren	<2	<1
KB	Kalveren	<1	<1
KC	Kalveren	<1	<1
KD	Kalveren	<1	<1
KE	Kalveren	<1	<1
VA	Varkens	<1	<2
VB	Varkens	ca. 400	126
VC	Varkens	2	2
VD	Varkens	<2	<1
VE	Varkens	127	25

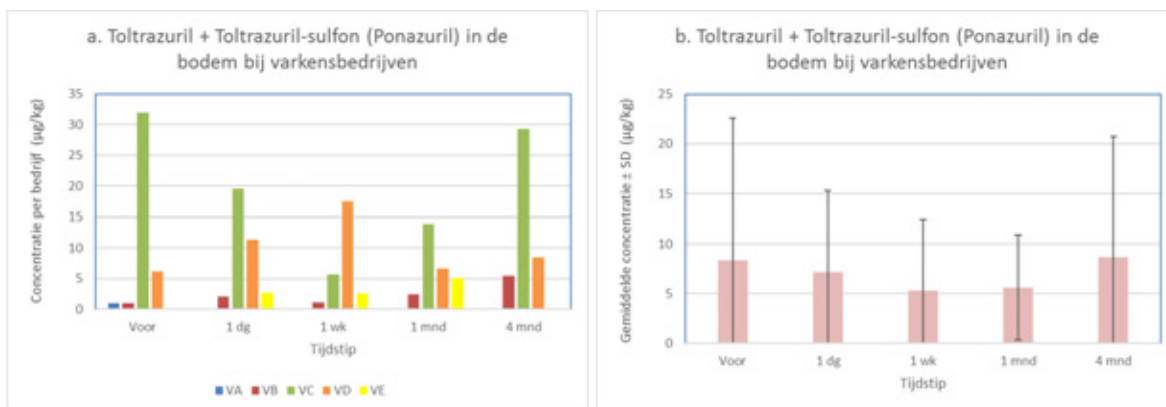
Het antiparasitaire middel levamisol is niet boven de kwantificeringslimiet aangetroffen in mest of in de milieumonsters van de verschillende percelen. Alleen varkensbedrijf VB had het gebruik ervan gerapporteerd.

Milieu

De aanwezigheid van toltrazuril en ponazuril in bodem- en sedimentmonsters kon niet worden bevestigd door 'high resolution mass spectrometry' (HRMS), omdat de concentraties te laag waren. Er kan daarom niet met zekerheid gesteld worden dat de gedetecteerde signalen daadwerkelijk afkomstig zijn van toltrazuril en ponazuril. De hier gerapporteerde concentraties in bodem en sediment zijn daarom onder voorbehoud.

In de bodems van de kalvermestpercelen was de concentratie van beide stoffen op alle monstertijdstippen beneden de kwantificeringslimiet van $1 \mu\text{g/kg}$.

In de meeste bodemmonsters van de varkensmestpercelen werden wel toltrazuril en (vooral) ponazuril gevonden (Figuur 8). Toltrazuril/ponazuril is al voor toediening van de varkensmest aanwezig in de bodem, behalve op het perceel van bedrijf VE. Het verloop in de tijd is echter niet eenduidig. In sommige bodems lijken de stoffen licht toe te nemen na injectie van de varkensdrijfmest (VB, VD, VE), in de bodem van VA verdwijnen ze echter en in de bodem van mestperceel VC lijkt sprake van een afname met na vier maanden weer een toename (Figuur 8a). Het gemiddelde beeld kent daardoor een grote variatie (Figuur 8b).



Figuur 8 Concentratie toltrazuril + ponazuril (toltrazuril-sulfon) in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van varkensdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b). NB De metingen voor beide stoffen in bodemonsters waren niet volledig conform de kwaliteitscriteria (niet bevestigd worden door high resolution mass spectrometry, HRMS).

Toltrazuril en ponazuril werden ook gevonden in andere milieumonsters van de percelen (Tabel 20), waaronder in het grondwater (drie waarnemingen) en oppervlaktewater van twee percelen waar in 2017 kalvermest werd toegediend (KD en KE). De metingen in water zijn wel bevestigd met HRMS.

Verder werd ponazuril gevonden in het oppervlaktewater naast perceel VC en werden op deze locatie ook toltrazuril en ponazuril in zeer lage (en onbevestigde) concentraties gemeten in het sediment (Tabel 20).

Tabel 20 Gemeten concentraties van toltrazuril en ponazuril (toltrazuril-sulfon) in de milieum compartimenten van percelen waar de drijfmest van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen is geïnjecteerd.

Sector	Type monster	Code bedrijf	Tijdstip na injectie	Actieve stof	Concentratie	Eenheid
Kalveren	Grondwater	KD	Voor	Toltrazuril	33	ng/L
Kalveren	Grondwater	KE	Voor	Toltrazuril	44	ng/L
Kalveren	Grondwater	KE	Voor	Ponazuril	34	ng/L
Kalveren	Oppervlaktewater	KD	Voor	Toltrazuril	14	ng/L
Varkens	Oppervlaktewater	VC	1 mnd.	Ponazuril	27	ng/L
Varkens	Sediment	VC	Voor	Toltrazuril	1*	µg/kg
Varkens	Sediment	VC	Voor	Ponazuril	1*	µg/kg
Varkens	Sediment	VC	4 mnd.	Ponazuril	1*	µg/kg

* De metingen voor beide stoffen in bodem- en sediment monsters zijn niet volledig conform de kwaliteitscriteria (identiteit stoffen niet volledig bevestigd door high resolution mass spectrometry, HRMS).

3.5 Natuurlijke hormonen

Geslachtshormonen of steroïdhormonen worden door dieren van nature geproduceerd en uitgescheiden. Er wordt onderscheid gemaakt tussen vrouwelijke steroïdhormonen of oestrogenen, mannelijke steroïdhormonen of androgenen en zwangerschapshormonen, de zogenaamde progestagenen. De productie en uitscheiding zijn sterk afhankelijk van het geslacht van de dieren en de leeftijd. Daarnaast speelt het soort dier een rol. Zo produceren varkens vooral de β -variant van de steroïdhormonen, terwijl runderen zowel de α - als de β -vorm produceren.

3.5.1 Oestrogenen

Mest

Tabel 21 laat de concentraties zien van de in mest gevonden oestrogene hormonen.

In de kalvermest van de meeste bedrijven worden lage concentraties aangetroffen van zowel 17 α - als 17 β -oestradiol (ook wel E2 genoemd) en oestron (ook wel E1). Dat zowel 17 α - als 17 β -oestradiol wordt gevonden is normaal omdat, in tegenstelling tot varkens, beide vormen worden uitgescheiden door runderen.

In de varkensmestmonsters is duidelijk te zien dat bij deze dieren 17 α -oestradiol niet voorkomt, alleen 17 β -oestradiol wordt gemeten in concentraties boven de kwantificeringslimiet. Daarnaast wordt ook in alle varkensmestmonsters oestron gevonden.

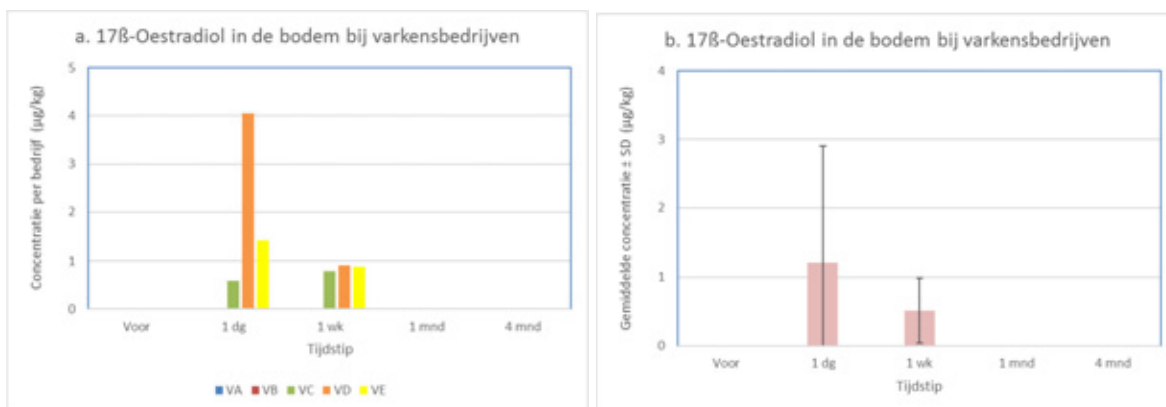
Tabel 21 Gemeten concentraties ($\mu\text{g/kg}$ versgewicht) van natuurlijke oestrogene steroidhormonen (vrouwelijke geslachtshormonen) in mest uit de opslagkelders van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen.

Sector	Code bedrijf	17 α -Oestradiol	17 β -Oestradiol	Oestron
Kalveren	KA	0.9	2.2	5.5
Kalveren	KB	0.6	< 0.5	< 0.5
Kalveren	KC	2.4	< 0.5	1.3
Kalveren	KD	< 0.5	4.1	5.1
Kalveren	KE	1.9	2.0	3.0
Varkens	VA	< 0.5	3.0	7.6
Varkens	VB	< 0.5	13	16
Varkens	VC	< 0.5	0.9	5.7
Varkens	VD	< 0.5	13	15
Varkens	VE	< 0.5	11	14

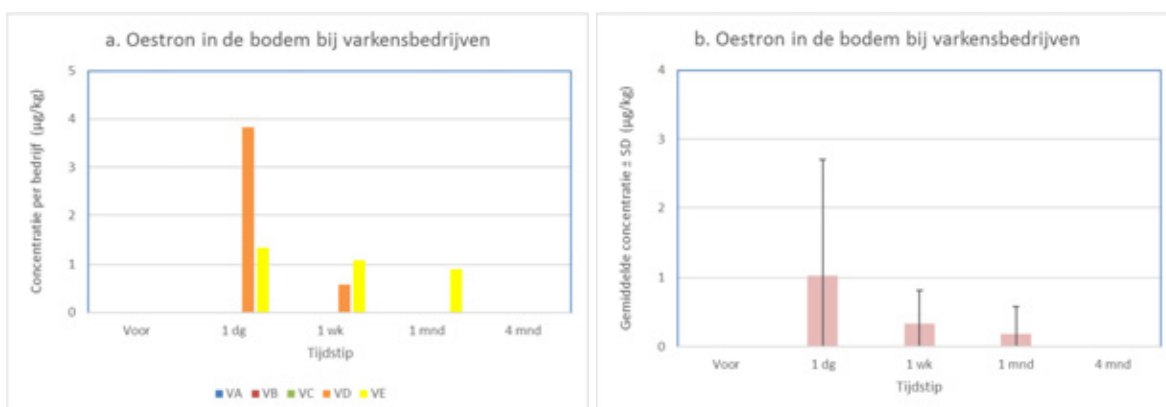
Milieu

In de bodem van percelen waar varkensmest werd verspreid, werden 17 β -oestradiol en oestron aangetroffen (Figuur 9 en Figuur 10). Beide oestrogenen werden niet aangetroffen voorafgaand aan de mestinjectie. Na toediening werd 17 β -oestradiol gevonden bij drie bedrijven (VC, VD en VE) en oestron bij twee (VD en VE). Beide hormonen verdwenen weer uit de bodem, 17 β -oestradiol tussen één week en één maand en oestron tussen één en vier maanden.

In de bodems van de percelen waar kalvermest werd geïnjecteerd werd slechts één keer een vrouwelijk steroidhormoon gemeten boven de kwantificeringslimiet, een zeer lage concentratie 17 β -oestradiol bij bedrijfsp perceel KA op de dag na mestinjectie (Tabel 22).



Figuur 9 Concentratie 17β-oestradiol in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van varkensdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (± standaarddeviatie) van deze percelen (b).



Figuur 10 Concentratie oestron in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van varkensdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (± standaarddeviatie) van deze percelen (b).

In de andere milieucompartimenten van de mestpercelen werden slechts heel sporadisch oestrogene hormonen aangetroffen en in zeer lage concentraties (Tabel 22): 17β-oestradiol in het sediment van de sloot bij perceel KB en oestron in het grondwater en sediment van VC.

Tabel 22 Gemeten concentraties van oestrogene steroïdhormonen (vrouwelijke geslachtshormonen) in de milieucompartimenten van percelen waar de drijfmest van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen is geïnjecteerd.

Sector	Type monster	Code bedrijf	Tijdstip na injectie	Actieve stof	Concentratie	Eenheid
Kalveren	Bodem	KA	1 dg	17β-oestradiol	0,17	µg/kg
Kalveren	Sediment	KB	4 mnd.	17β-oestradiol	1,3	µg/kg
Varkens	Grondwater	VC	Voor	Oestron	1,5	ng/L
Varkens	Sediment	VC	4 mnd.	Oestron	0,6	µg/kg

3.5.2 Androgenen

Mest

De concentraties van de in mest gevonden androgene (mannelijke) geslachtshormonen worden gepresenteerd in Tabel 23.

Het bekendste androgene hormoon is testosteron. In de mest van alle kalverbedrijven komt deze stof voor, bij drie bedrijven zowel de α - als de β -vorm (KA, KB en KC) en bij de andere twee kalverbedrijven (KD en KE) alleen de β -vorm. De concentraties lopen uiteen van 0,8 tot 32 $\mu\text{g/kg}$.

De precursor van testosteron, androstendion, werd in wisselende concentraties aangetroffen in alle mestmonsters en androstadiendion werd waargenomen in de mest van één kalverbedrijf en drie varkensbedrijven. Verder werd norandrostendion gevonden in de mest van varkensbedrijf VD (19 ng/L).

In de mest van de meeste kalver- en varkensbedrijven worden ook metabolieten van testosteron gevonden: 5 α -dihydrotestosteron en/of 5 β -dihydrotestosteron (behalve bij bedrijven VA en VC). De concentraties wisselen en ook in de varkensmest wordt van dit hormoon, net als in de kalvermest, zowel de α - als de β -vorm aangetroffen.

Tabel 23 Gemeten concentraties (µg/kg versgewicht) van androgene steröïdhormonen (mannelijke geslachtshormonen) in mest uit de opslagkelders van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen.

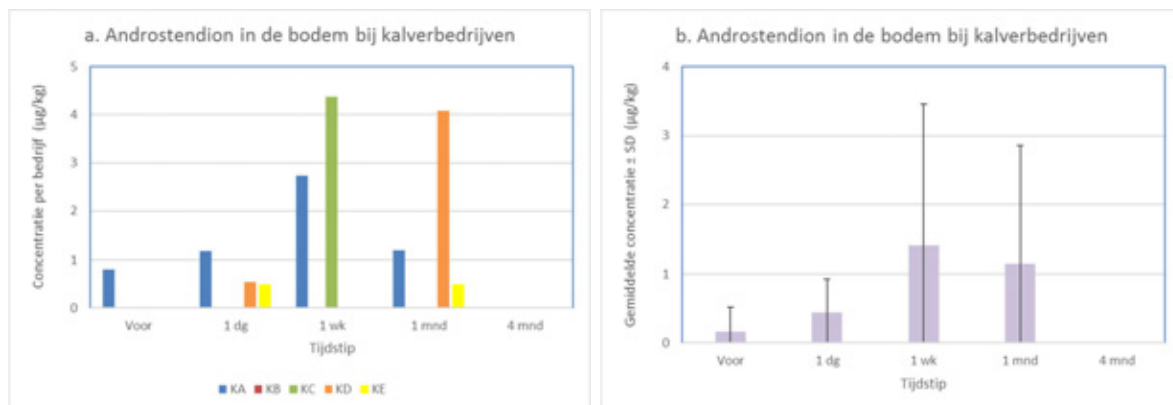
Sector	Code bedrijf	5α-Dihydrotestosteron	5β-Dihydrotestosteron	Androstendion	Norandrostendion	α-Testosteron	β-Testosteron	Androstadiendion
Kalveren	KA	2.7	1.7	2.3	< 0.5	0.8	1.3	< 0.5
Kalveren	KB	< 0.5	3.4	7.8	< 0.5	16	3.7	< 0.5
Kalveren	KC	< 0.5	20	53	< 0.5	32	14	38
Kalveren	KD	22	44	20	< 0.5	< 0.5	8.6	< 0.5
Kalveren	KE	93	90	15	< 0.5	< 0.5	5.7	< 0.5
Varkens	VA	< 0.5	< 0.5	65	< 0.5	< 0.5	< 0.5	41
Varkens	VB	61	49	6	< 0.5	< 0.5	< 0.5	< 0.5
Varkens	VC	< 0.5	< 0.5	34	< 0.5	< 0.5	10	57
Varkens	VD	< 0.5	11	64	19	< 0.5	< 0.5	13
Varkens	VE	40	62	11	< 0.5	< 0.5	< 0.5	< 0.5

Milieu

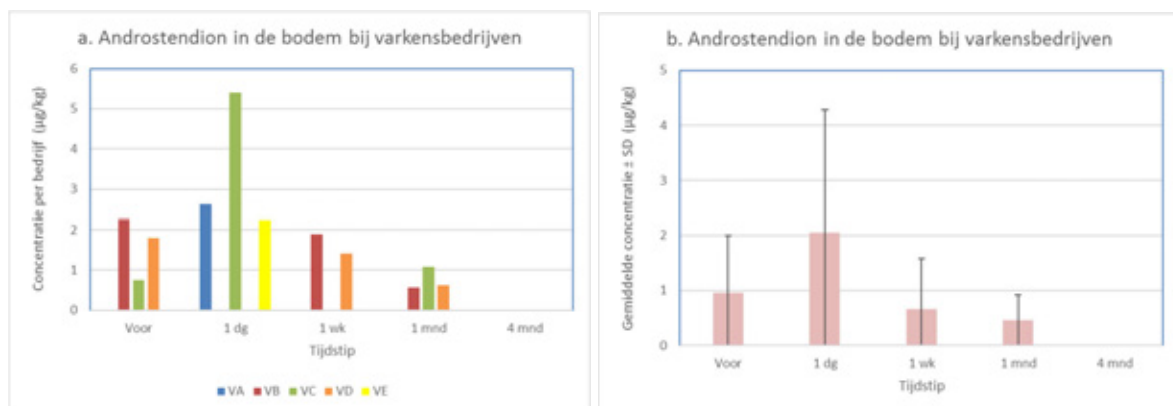
Androstendion werd zowel in de bodem van percelen met kalvermest als varkensmest aangetroffen.

In Figuur 11 is te zien dat androstendion voor injectie met kalvermest maar op één perceel aanwezig was. Na injectie werd de stof op alle vijf de percelen waargenomen, maar de concentratie was zeer variabel tussen de bedrijven en in de tijd (Figuur 11a). Vier maanden na injectie wordt androstendion niet meer aangetroffen boven de kwantificeringsgrens in de bodems van de percelen waar kalvermest is toegediend (Figuur 11a).

Het beeld voor androstendion in de bodems van de percelen waar varkensmest is verspreid, lijkt op het beeld voor de percelen met kalvermest (Figuur 12). Het verschil is dat de stof vóór mesttoediening al aanwezig is in de bodem van drie percelen, maar ook hier wordt de stof op meer percelen en na mestinjectie in hogere concentraties gevonden om na vier maanden eveneens te verdwijnen uit de bodem van alle vijf onderzochte percelen met varkensmest (Figuur 12a).



Figuur 11 Concentratie androstendion in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van kalverdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).

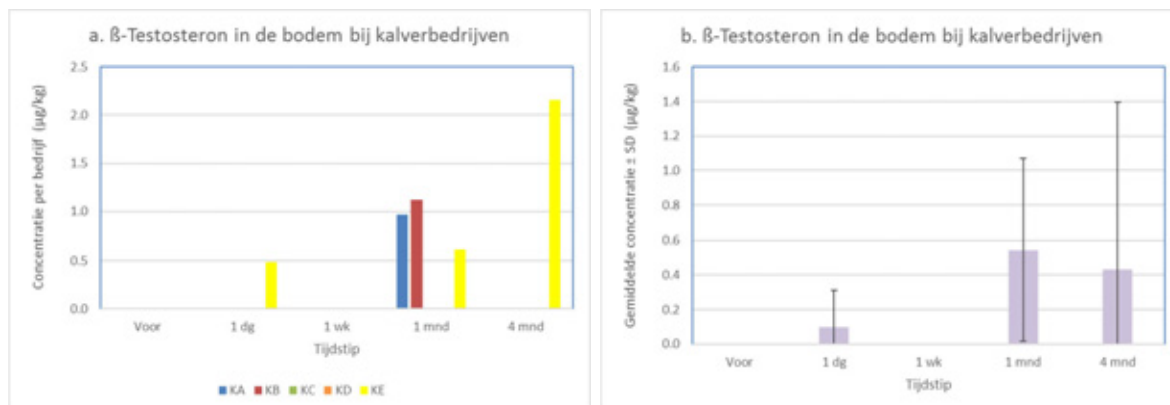


Figuur 12 Concentratie androstendion in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van varkensdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).

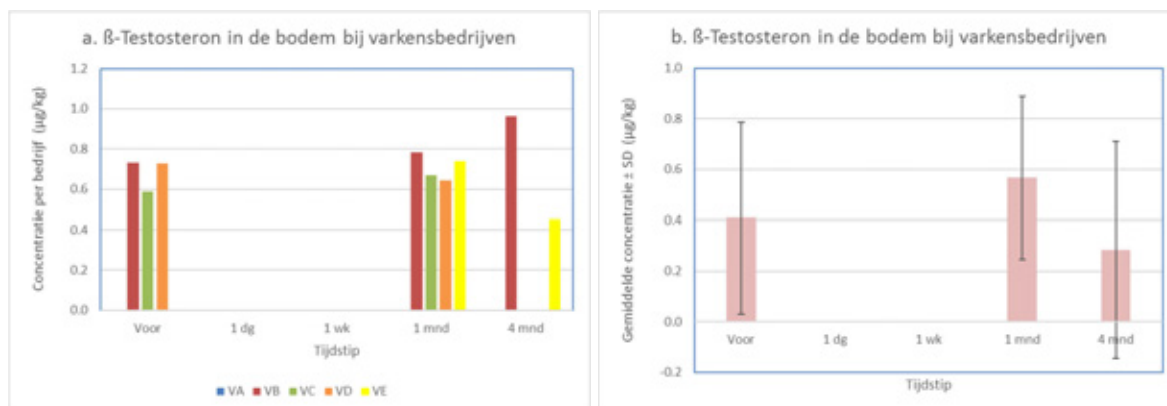
Ook β -testosteron werd zowel aangetroffen in de bodems van percelen waar kalverdrijfmest als waar varkensmest werd verspreid.

Figuur 13a laat zien dat β -testosteron slechts op drie percelen met kalvermest werd gevonden, maar wel alleen na de toediening van de kalvermest.

Het verloop van de concentraties β -testosteron in de bodem na toediening van varkensmest is nogal opvallend (Figuur 14). Vóór mestinjectie komt het hormoon al in lage concentraties voor in de bodem van drie percelen (VB, VC en VD), maar één dag en één week na injectie wordt β -testosteron nergens meer in de bodem aangetroffen boven de kwantificeringslimiet (Figuur 14a), terwijl de stof op dit tijdstip wel in de mest van alle kalverbedrijven aanwezig was (Tabel 23). Eén maand later wordt het hormoon echter weer op alle drie de genoemde bedrijven gemeten plus in de bodem van het perceel van VE. Na vier maanden komt β -testosteron alleen nog voor in de bodems van VB en VE. De gemeten concentraties zijn laag en ontlopen elkaar weinig. Een eenvoudige verklaring voor dit concentratieverloop valt niet te geven. Mogelijk heeft het feit dat de gemeten concentraties maar net boven de kwantificeringslimiet in de bodem van 0,5 $\mu\text{g/kg}$ liggen er iets mee te maken.



Figuur 13 Concentratie β -testosteron in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van kalverdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).



Figuur 14 Concentratie β -testosteron in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van varkensdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).

Naast androstendion en β -testosteron werden nauwelijks andere androgene hormonen in de bodems van de bemonsterde percelen gevonden (Tabel 24), ondanks dat sommige androgenen zoals α -testosteron en androstadiendion wel in mestmonsters voorkwamen. Alleen op de varkenspercelen werden zij sporadisch aangetroffen, zij het in concentraties maar net boven de kwantificeringslimiet (Tabel 24). In het grondwater, oppervlaktewater en sediment van de percelen zijn in het geheel geen androgenen gemeten.

Tabel 24 Gemeten concentraties van androgene steroïdhormonen (mannelijke geslachtshormonen) in de milieucompartimenten van percelen waar de drijfmest van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen is geïnjecteerd.

Sector	Type monster	Code bedrijf	Tijdstip na injectie	Actieve stof	Concentratie	Eenheid
Varkens	Bodem	VC	Voor	5 β -dihydrotestosteron	0,5	$\mu\text{g/kg}$
Varkens	Bodem	VD	Voor	androstadiendion	0,8	$\mu\text{g/kg}$

3.5.3 Progestagenen

Van de twee geanalyseerde progestagene hormonen is alleen progesteron aangetroffen. Pregnaandiol bleef in alle monsters van het onderzoek onder de kwantificeringslimiet. Progesteron speelt een belangrijke rol bij onder meer de zwangerschap, de menstruatiecyclus en de vorming van het embryo in mensen en dieren. Tijdens de zwangerschap wordt het gevormd in de placenta.

Mest

In Tabel 25 is te zien dat slechts in één mestmonster, dat van varkensbedrijf VC, progesteron werd gevonden. Het gaat om een lage concentratie van 2 $\mu\text{g/kg}$. In de mestmonsters van de overige bedrijven kwam de concentratie niet uit boven de kwantificeringslimiet van 0,5 $\mu\text{g/kg}$.

Tabel 25 Gemeten concentraties ($\mu\text{g/kg}$ versgewicht) van het progestagene (zwangerschaps)hormoon progesteron in mest uit de opslagkelders van geselecteerde kalver- en varkenshouderijen.

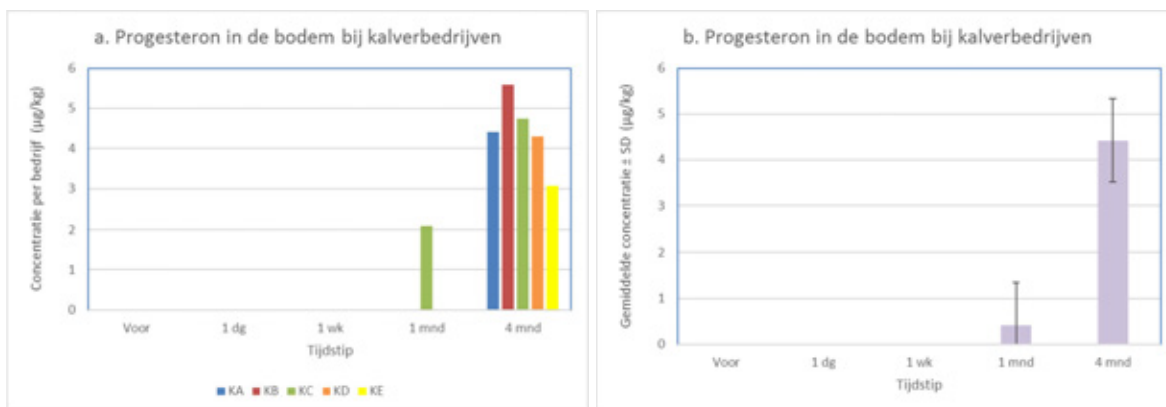
Sector	Code bedrijf	Progesteron
Kalveren	KA	< 0.5
Kalveren	KB	< 0.5
Kalveren	KC	< 0.5
Kalveren	KD	< 0.5
Kalveren	KE	< 0.5
Varkens	VA	< 0.5
Varkens	VB	< 0.5
Varkens	VC	2.0
Varkens	VD	< 0.5
Varkens	VE	< 0.5

Milieu

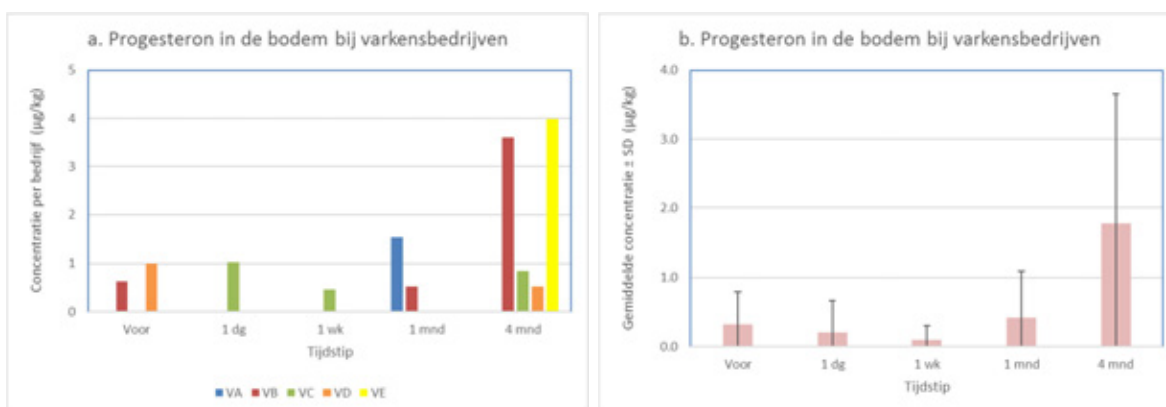
Bij progesteron in het milieu doet zich een opvallend feit voor. Ondanks dat deze stof slechts in de mest van één bedrijf voorkwam, wordt ze veelvuldig en in diverse typen milieumatrices gevonden in lage concentraties.

In Figuur 15 is te zien dat vóór de toediening van kalvermest en een dag en een week erna op geen van de percelen van de kalverbedrijven progesteron in de bodem werd gemeten. Na één maand verschijnt de stof, maar alleen in de bodem van KC (Figuur 15a). Vier maanden na injectie van de drijfmest wordt het hormoon in alle vijf de bodems gevonden in vergelijkbaar lage concentraties (3-6 $\mu\text{g/kg}$).

Ook in de bodem van de percelen waar in 2017 varkensmest is geïnjecteerd, werden lage concentraties progesteron aangetroffen (Figuur 16). In de bodem van twee percelen is het hormoon al aanwezig vóór injectie (Figuur 16a). Na injectie wordt het een enkele keer gemeten. Na vier maanden is de gemiddelde concentratie echter het hoogst (Figuur 16b) en wordt het hormoon in vier van de vijf bodems aangetoond (Figuur 16a).



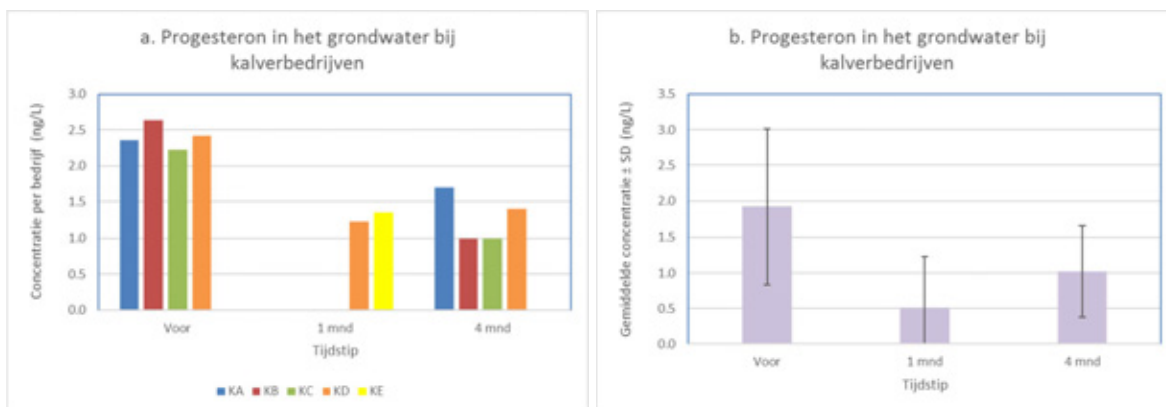
Figuur 15 Concentratie van progesteron in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van kalverdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).



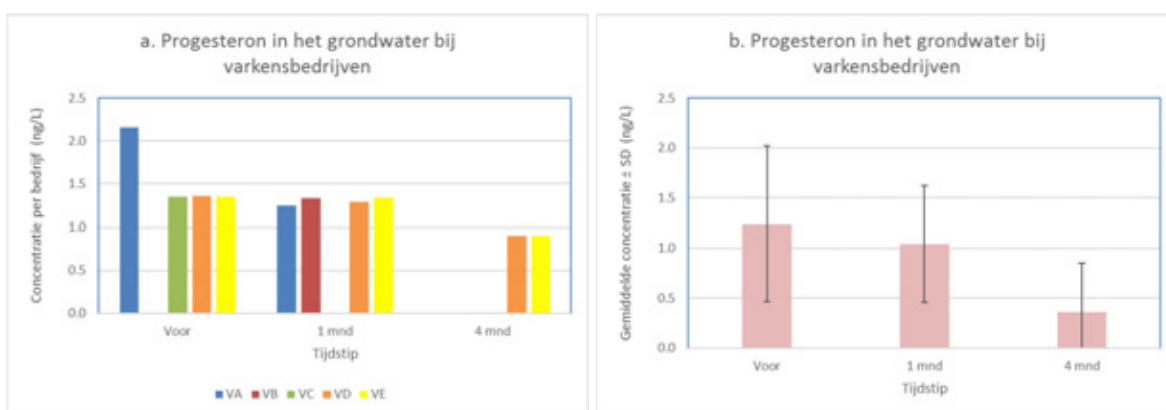
Figuur 16 Concentratie van progesteron in de bodem van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van varkensdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b).

Progesteron is van alle stoffen uit het voorliggende onderzoek de enige stof die consistent is aangetoond in het ondiepe grondwater van de onderzochte percelen en in het oppervlaktewater en sediment van de omringende sloten/greppels. De concentraties waren in alle gevallen laag, in de orde van grootte van enkele ng/L in water of enkele µg/kg in bodem/sediment.

Figuur 17 en Figuur 18 laten het verloop van de concentraties progesteron zien in het ondiepe grondwater van respectievelijk de percelen met kalver- en varkensmest. Op bijna alle percelen wordt het hormoon al vóór de toediening van de mest in het grondwater gevonden. Eén maand na toediening wordt de stof minder vaak aangetroffen, maar na vier maanden is ze weer aanwezig in het grondwater van vier van de vijf kalvermestpercelen (Figuur 17a). Op de varkensmestpercelen wordt progesteron vaker aangetroffen één maand na mestinjectie (op vier van de vijf varkensmestpercelen, Figuur 18a). Op beide typen percelen zijn de gemiddelde concentraties het hoogst op het tijdstip vóór mesttoediening. De gemeten concentraties liggen net boven de kwantificeringslimiet van 0,5 ng/L.



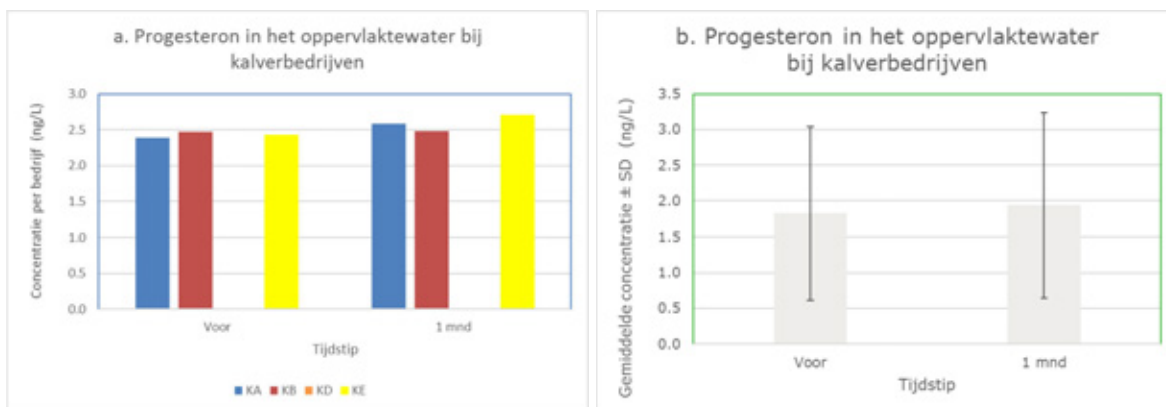
Figuur 17 Concentratie van progesteron in het ondiepe grondwater van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van kalverdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b). NB Grondwater is niet bemonsterd 1 dag en 1 week na mesttoediening.



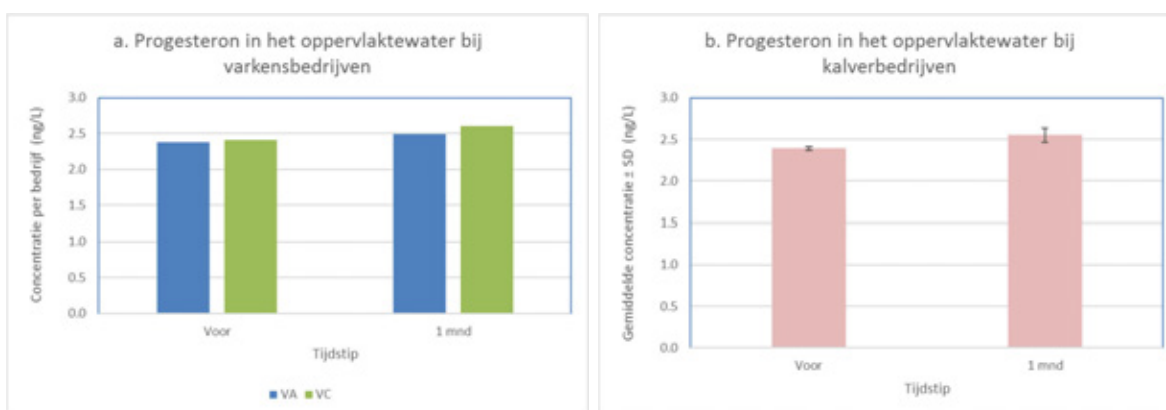
Figuur 18 Concentratie van progesteron in het ondiepe grondwater van percelen op verschillende tijdstippen vóór en na verspreiding van varkenskudrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b). NB Grondwater is niet bemonsterd 1 dag en 1 week na mesttoediening.

In Figuur 19 en Figuur 20 worden de gemeten concentraties progesteron in het oppervlaktewater rond de percelen van respectievelijk de kalver- en varkensbedrijven getoond. Door de afwezigheid van oppervlaktewater kon niet bij alle percelen worden bemonsterd en monsters werden alleen vóór en één maand na de mesttoediening genomen.

De metingen op beide typen percelen zijn zeer constant. De concentraties per bedrijf liggen alle rond de 2,5 ng/L, behalve op kalverbedrijf KD, waar ze beneden de kwantificeringslimiet van 0,5 ng/L is (Figuur 19a en Figuur 20a). Er zijn geen verschillen tussen de concentraties vóór en na de toediening van de mest.

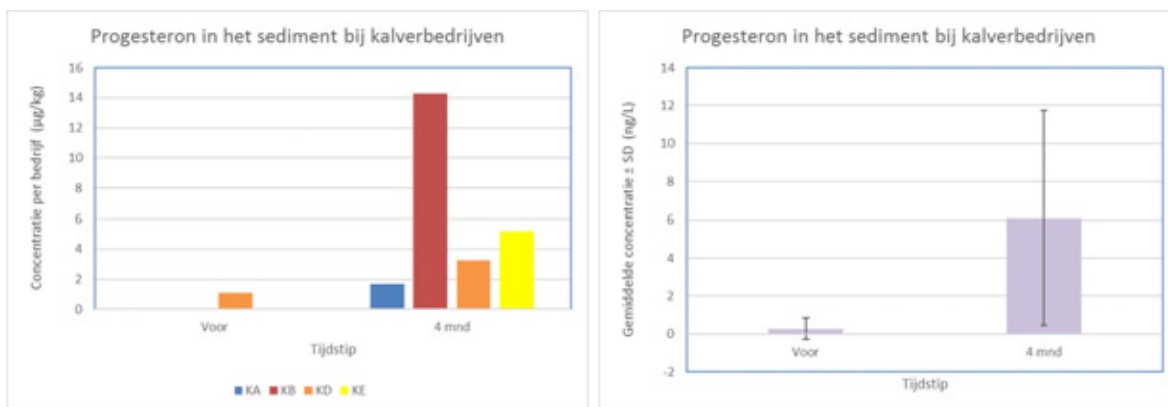


Figuur 19 Concentratie van progesteron in het oppervlaktewater van sloten/greppels naast percelen vóór en 1 maand na verspreiding van kalverdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b). NB Oppervlaktewater is niet bemonsterd 1 dag, 1 week en 4 maanden na mesttoediening en bij het perceel van bedrijf KC was geen sloot of greppel aanwezig.

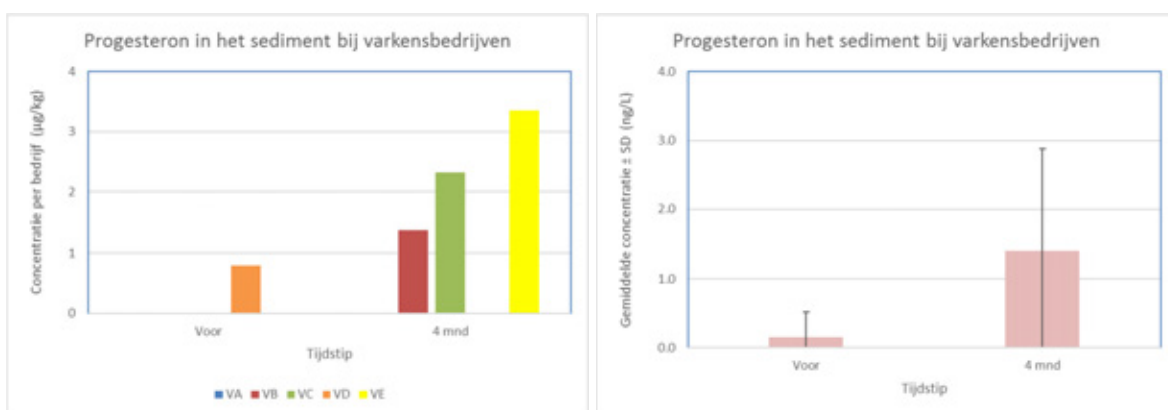


Figuur 20 Concentratie van progesteron in het oppervlaktewater van sloten/greppels naast percelen op verschillende tijdstippen vóór en 1 maand na verspreiding van varkensdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b). NB Oppervlaktewater is niet bemonsterd 1 dag, 1 week en 4 maanden na mesttoediening en bij de percelen van bedrijven VB, VD en VE vielen de sloten en/of greppels droog in de zomer.

De gemeten concentraties progesteron in het sediment van de percelen waar kalver- en varkensmest zijn toegediend, worden weergegeven in respectievelijk Figuur 21 en Figuur 22. Van het sediment werden alleen voorafgaand aan en vier maanden na de toediening van mest monsters genomen, behalve op perceel KC waar geen sloot of greppel aanwezig was. Voor beide typen mest werd vóór de toediening van mest slechts op een perceel progesteron gevonden (Figuur 21a en Figuur 22a). Vier maanden na toediening nam de frequentie van de waarnemingen toe (Figuur 21a en Figuur 22a), evenals de (gemiddelde) concentratie, met uitzondering van perceel VD (Figuur 21b en Figuur 22b).



Figuur 21 Concentratie van progesteron in het sediment van sloten/greppels naast percelen op verschillende tijdstippen vóór en 4 maanden na verspreiding van kalverdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b). NB Sediment is niet bemonsterd 1 dag, 1 week en 1 maand na mesttoediening en bij het perceel van bedrijf KC was geen sloot of greppel aanwezig.



Figuur 22 Concentratie van progesteron in het sediment van sloten/greppels naast percelen op verschillende tijdstippen vóór en 4 maanden na verspreiding van varkensdrijfmest, per bedrijfsperceel (a) en het gemiddelde (\pm standaarddeviatie) van deze percelen (b). NB Sediment is niet bemonsterd 1 dag, 1 week en 1 maand na mesttoediening.

3.6 Beken

De resultaten van de metingen van diergeneesmiddelen en hormonen in vijf regionale Gelderse beken worden samengevat in Tabel 26.

Er werden in het oppervlaktewater van de vijf beken geen tetracyclines, quinolonen, macroliden, avermectines, benzimidazolen of toltrazuril aangetroffen. Slechts in één geval werd een diergeneesmiddel gemeten. Dit betrof het sulfonamide antibioticum sulfadiazine in het oppervlaktewater van de Hierdensche Beek (Uddelerveentak) in een concentratie van 17 ng/L.

De overige waarnemingen in de beken betroffen natuurlijke hormonen. In het oppervlaktewater van de Moorsterbeek werden oestron, β -testosteron, androstendion, norandrostendion en androstadiendion gemeten in concentraties tussen 10 en 30 ng/L. In de andere beken werden ook hormonen aangetroffen, zij het in veel lagere concentraties van 1,0 tot 1,6 ng/L. Progesteron werd in vier van de vijf beken in het oppervlaktewater aangetroffen in een concentratie van 1 ng/L. In het oppervlaktewater van de Veldbeek/Schuitenbeek en Hierdensche Beek (Uddelerveentak) kwam net als

in de Moosterbeek, oestron voor (1,6-1,7 ng/L). In het sediment van de Beurzerbeek werd een lage concentratie oestron (0,6 µg/kg) gedetecteerd.

Tabel 26 Diergeneesmiddelen en natuurlijke hormonen in oppervlaktewater en sediment van vijf Gelderse beken.

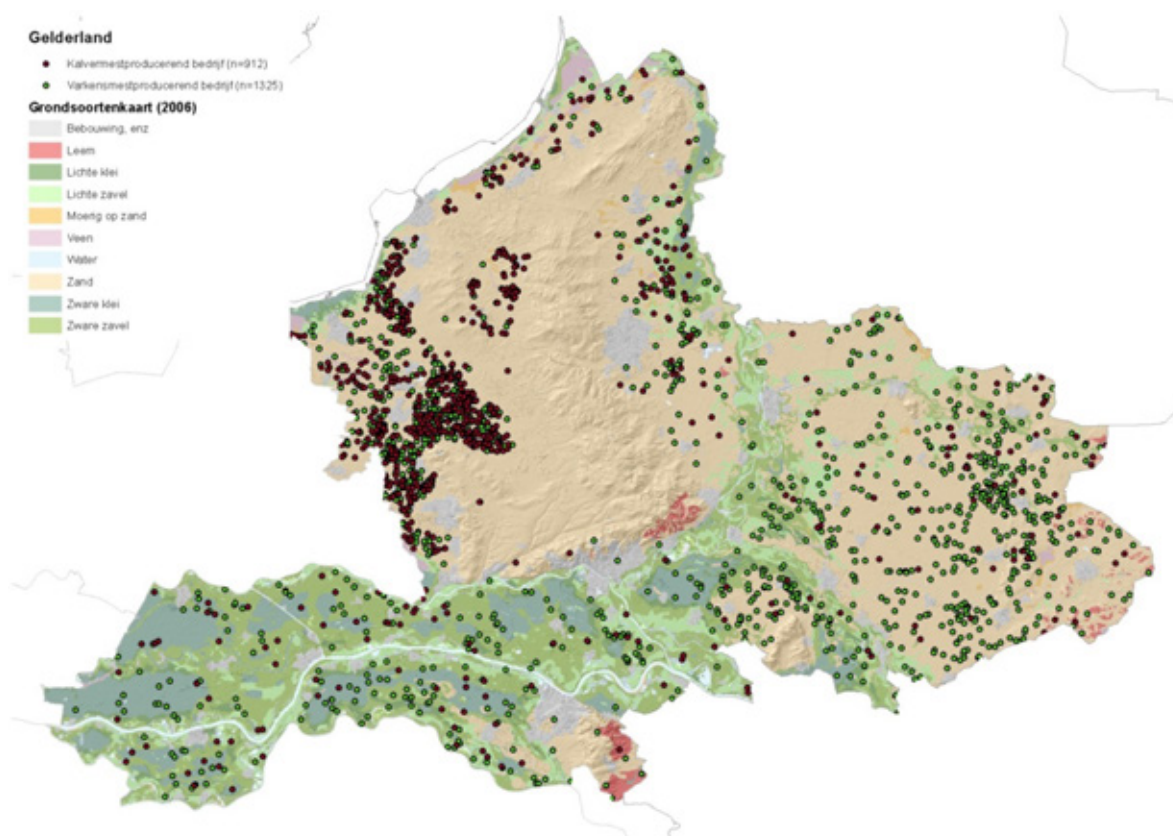
Naam water	Regio	Milieucompartiment	Stof	Concentratie	Eenheid
Moosterbeek	Gelderse Vallei	Oppervlaktewater	Oestron	11	ng/L
		Oppervlaktewater	B-Testosteron	17	ng/L
		Oppervlaktewater	Androstendion	28	ng/L
		Oppervlaktewater	Norandrostendion	23	ng/L
		Oppervlaktewater	Androstadiendion	22	ng/L
Veldbeek/Schuitenbeek	Gelderse Vallei	Oppervlaktewater	Oestron	1,7	ng/L
		Oppervlaktewater	Progesteron	1,0	ng/L
Hierdensche Beek	Veluwe	Oppervlaktewater	Sulfadiazine	17	ng/L
		Oppervlaktewater	Oestron	1,6	ng/L
		Oppervlaktewater	Progesteron	1,0	ng/L
Bergerslagbeek	Achterhoek	Oppervlaktewater	Progesteron	1,0	ng/L
Beurzerbeek	Achterhoek	Oppervlaktewater	Progesteron	1,0	ng/L
		Sediment	Oestron	0,6	µg/kg

3.7 Geografische analyses

Volgens het Geografisch Informatiesysteem Agrarische Bedrijven, GIAB 2015 (Gies e.a., 2015; Naeff e.a., 2015) zijn er in Gelderland 581 vleeskalverenbedrijven, 457 vleesvarkensbedrijven en 138 overige varkensbedrijven¹. Een grote dichtheid van bedrijven is te vinden in de Gelderse vallei, Oost-Veluwe en de Achterhoek (zie Figuur 23). Het totale areaal van vleeskalverenbedrijven in Gelderland is 6.150 ha en het totale areaal van (vlees-)varkensbedrijven is 6.860 ha; voor Nederland is dit 19.500 ha resp. 33.400 ha.

Er zijn in Gelderland in totaal tien bedrijven bereid gevonden om deel te nemen aan dit onderzoek, waarvan vijf vleeskalverenbedrijven en vijf (vlees)varkensbedrijven. In de volgende paragrafen wordt middels geografische analyses dieper ingegaan op de bedrijven zelf, hun ligging en de karakteristieken van de percelen.

¹ Onder overige varkensbedrijven worden bedrijven verstaan die zowel vleesvarkens hebben als zeugen, beren en biggen.



Figuur 23 Grondsoortenkaart van Gelderland met kalver- en varkensbedrijven (GIAB 2015). Als een bedrijf zowel kalveren als varkens houdt, is het bedrijf weergegeven als kalverenbedrijf.

3.7.1 Bedrijfsgrootte

De vleeskalverenbedrijven waar monsters zijn genomen, varieerden in grootte van ca. 700 vleeskalveren tot 1.200 vleeskalveren, met een gemiddelde van 960 kalveren (Tabel 27). Voor alle vleeskalverenbedrijven in Gelderland is het gemiddelde aantal kalveren 670, met een maximum van 3.880 kalveren. In Nederland is het gemiddeld aantal kalveren 660 per bedrijf met een maximum van 5.190. De geselecteerde kalverenbedrijven hebben dus gemiddeld meer kalveren dan de bedrijven in heel Gelderland en Nederland.

Het totale aantal vleesvarkens voor alle vijf bemonsterde bedrijven varieerde van 1.360-3.630 vleesvarkens, met een gemiddelde van ca. 2.150 (Tabel 27). Twee van de bemonsterde varkensbedrijven houden alleen vleesvarkens, terwijl de drie andere bedrijven zowel vleesvarkens als zeugen, beren en biggen houden. De drie bedrijven met ook zeugen en biggen, hadden in 2015 tussen de 520 en 1.540 zeugen en 900-2.100 biggen. In Gelderland is het gemiddeld aantal vleesvarkens 1.330 met een maximum van 13.800 en in Nederland 2.070, met een maximum van 26.000 vleesvarkens. Het gemiddelde aantal zeugen is in Gelderland 230 met een maximum van 6.670 en het gemiddelde aantal biggen is 306 met een maximum van 8.120. Voor Nederland is dit respectievelijk 400 en 564, met maxima van 15.125 zeugen en 21.450 biggen. De bemonsterde varkensbedrijven zijn derhalve relatief groot t.o.v. het gemiddelde van Gelderland, maar gemiddeld van ongeveer dezelfde grootte als het landelijke gemiddelde wat betreft de vleesvarkens. Wat betreft de zeugen en de biggen zijn de bemonsterde bedrijven groter dan het landelijke gemiddelde en het Gelderse gemiddelde.

Tabel 27 Aantallen bedrijven en aantallen dieren bij de bemonsterde bedrijven, in Gelderland en landelijk (GIAB 2015).

Sector		Bemonsterde bedrijven	Gelderland	Nederland
Kalverenbedrijven	Aantal bedrijven	5	581	1242
	Aantal vleeskalveren, gemiddeld (maximum)	960 (1200)	672 (3880)	657 (5190)
Varkensbedrijven	Aantal bedrijven	5	595	2463
	Aantal vleesvarkens, gemiddeld (maximum)	2145 (3632)	1330 (13800)	2070 (26000)
	Aantal zeugen, gemiddeld (maximum)	700 (1540)	230 (6670)	400 (15125)
	Aantal biggen, gemiddeld (maximum)	940 (2100)	306 (8120)	564 (21450)

3.7.2 Bodemtype

Het soort bodem waarop de kalver- en varkensbedrijven in Gelderland gelegen zijn, wordt getoond in Figuur 23. In de kaart is duidelijk waarneembaar dat er clustering is van kalverenbedrijven op de zandgronden van de Gelderse Vallei en op en langs de randen van de Veluwe. Daarnaast komen kalverenbedrijven verspreid voor in de andere delen van Gelderland, zoals de Achterhoek en de Betuwe. De mate van clustering is minder voor de varkensbedrijven. Deze komen min of meer in gelijke dichtheden voor in alle regio's van de provincie, behalve in natuurgebied.

De velden die zijn bemonsterd van elk van de deelnemende bedrijven zijn volgens de geografische analyses gelegen op zandgrond (negen bedrijven) en op lichte zavel (één varkensbedrijf) (Tabel 28). Dit bevestigt de analyseresultaten van de bodem (§ 3.1, Tabel 5: alle percelen 'zand'). Van het totale areaal van de kalverenbedrijven in Gelderland is 72% zandgrond, terwijl 15% bestaat uit lichte en zware zavelgronden en 6% uit zware kleigronden. Varkensbedrijven zijn ook veelal gelegen op zandgronden, het percentage in Gelderland ligt echter iets lager dan voor de kalverenbedrijven. Deze bedrijven zijn daarnaast relatief vaker gelegen op zware zavelgronden dan de vleeskalverenbedrijven (zie Tabel 28). Voor Nederland liggen de percentages bedrijven op zandgrond en zware zavel ongeveer gelijk voor vleeskalverenbedrijven en varkensbedrijven. Nederlandse vleeskalverenbedrijven liggen wel relatief vaker op veen t.o.v. de Gelderse bedrijven. Dit is logisch, omdat in Gelderland minder veengrond voorkomt dan in het westen en noorden van het land.

Op het Oost-Nederlands plateau komt plaatselijk keileem voor. Een aanvullende analyse van de bodemkaart wees uit dat van de vier bemonsterde percelen van varkensbedrijven in de Achterhoek er één op de rand van zo'n keileemgebied lag (bedrijf VC).

Tabel 28 Percentage van bedrijfsareaal per bodemtype in Gelderland en Nederland (GIAB 2015). De bodemtypen zijn geordend naar percentage vleeskalverenbedrijven in Gelderland met het hoogste percentage bovenaan.

	Vleeskalverenbedrijven		Vleesvarkensbedrijven		Overige varkensbedrijven	
	Gelderland	Nederland	Gelderland	Nederland	Gelderland	Nederland
Zand	72%	72%	67%	73%	55%	76%
Zware zavel	8%	5%	13%	6%	19%	7%
Lichte zavel	7%	6%	9%	7%	9%	6%
Zware klei	6%	4%	6%	5%	7%	3%
Veen	3%	6%	0%	2%	2%	2%
Moerig op zand	2%	3%	0%	2%	1%	1%
Lichte klei	1%	2%	2%	3%	5%	3%
Leem	0%	1%	0%	1%	1%	1%
Bebouwing etc.	0%	1%	1%	0%	2%	1%
Totaal	100%	100%	100%	100%	100%	100%

3.7.3 Grondwaterstand

Voor deze analyse is gebruikgemaakt van de Gemiddelde VoorjaarsGrondwaterstand (GVG)² behorende bij de coördinaten van de monsterpunten in de percelen van de bedrijven.

De bemonsterde vleeskalverenbedrijven hadden een gemiddelde GVG tussen de 45 en 188 cm-mv, met een mediaan van 80 cm-mv (Tabel 29). De bemonsterde varkensbedrijven hadden een gemiddelde GVG tussen de 71,5 en 162 cm-mv met een mediaan van 67 cm-mv. De mediaan van de GVG van alle vleeskalverenbedrijven in Gelderland is 105 cm-mv en van alle varkensbedrijven 107 cm-mv (Tabel 29). De bemonsterde bedrijven hebben dus een relatief hoge grondwaterstand t.o.v. de mediaan in Gelderland. Ten opzichte van de mediaan in Nederland, 105 cm-mv voor kalverenbedrijven en 107 cm-mv voor vleesvarkens, is dit ook het geval. Er is overigens een aanzienlijke spreiding in grondwaterstanden in Nederland, variërend tussen de 26 cm-mv en de 306 cm-mv.

Tabel 29 Gemiddelde VoorjaarsGrondwaterstand (GVG) behorende bij de bemonsterde percelen van de 10 bedrijven, alle bedrijven in Gelderland en alle bedrijven in Nederland (GIAB 2015; BRP 2015).

	Gemiddelde Voorjaarsgrondwaterstand	Bemonsterde bedrijven	Gelderland	Nederland
Kalverenbedrijven	minimum	45 cm-mv	42 cm-mv	32 cm-mv
	mediaan	80 cm-mv	100 cm-mv	105 cm-mv
	maximum	188 cm-mv	306 cm-mv	310 cm-mv
Varkensbedrijven	minimum	71,5 cm-mv	37 cm-mv	26 cm-mv
	mediaan	67 cm-mv	104 cm-mv	107 cm-mv
	maximum	162 cm-mv	306 cm-mv	298 cm-mv

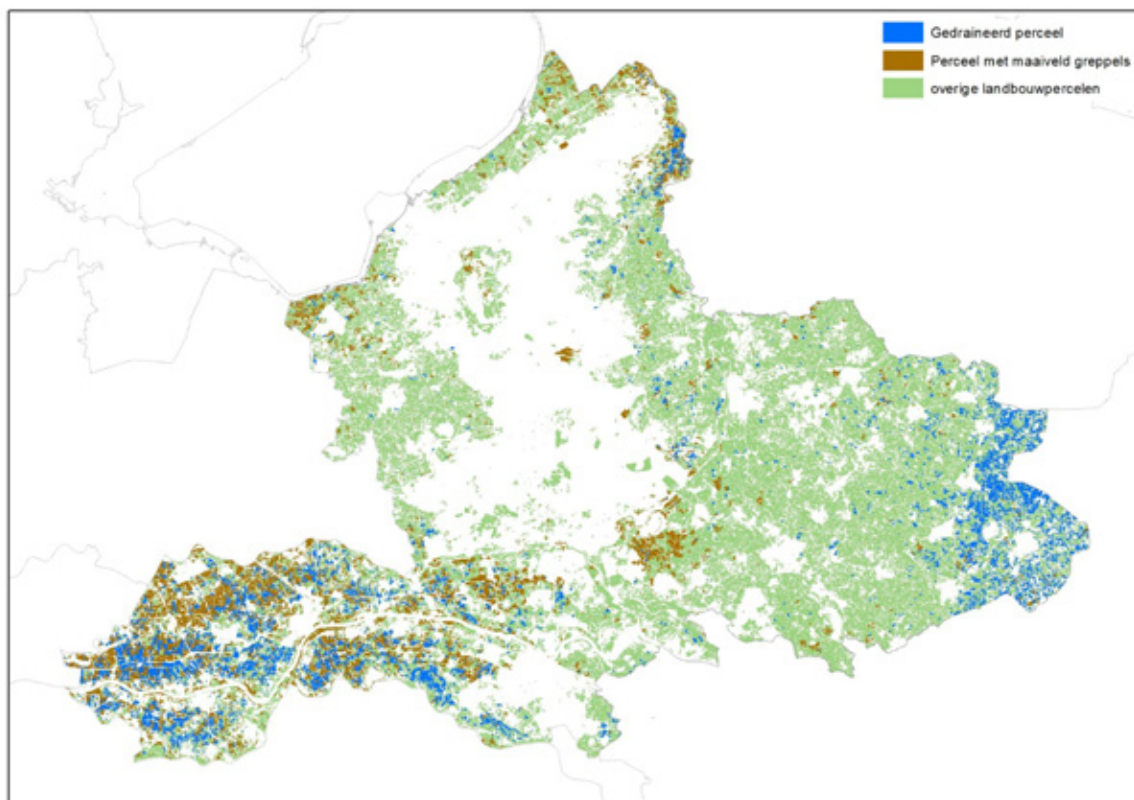
3.7.4 Drainage

Voor de onderstaande analyse is gebruikgemaakt van GIAB 2015 en van de buisdrainagekaart (Massop & Schuiling, 2016).

Van de bemonsterde locaties was volgens de geografische analyse één locatie gedraineerd (VC) en één locatie had greppels (KB). De eigenaar van VC had echter voorafgaand aan het onderzoek te kennen gegeven dat de drainage oud en defect was. Het bemonsterde perceel van VC ligt op de rand van een keileemgebied waar onder de dunne zandlaag de ondoordringbare keileem ligt, hetgeen verklaart dat er op dit zandige perceel ooit drainage is aangelegd. Het perceel van bedrijf KB was het enige perceel uit het onderzoek zonder kavelsloot.

Van de vleeskalverenbedrijven in Gelderland is 3% van het areaal gedraineerd, terwijl 8% van het areaal van de (vlees)varkensbedrijven is gedraineerd. Greppels zijn te vinden bij 10% van het areaal van alle Gelderse vleeskalverenbedrijven, bij 7% van het areaal van alle Gelderse vleesvarkensbedrijven en bij 15% van het areaal van de overige Gelderse varkensbedrijven (zie ook Figuur 24). Een landelijk beeld van het areaal gedraineerde percelen van vleeskalveren- en varkensbedrijven hebben wij op dit moment niet.

² GVG is gedefinieerd als het langjarig gemiddelde van de grondwaterstand ten opzichte van het maaiveld op 1 april, welke doorgaans wordt berekend op basis van het gemiddelde van de VG3 over een aaneengesloten periode van ten minste acht hydrologische jaren waarin geen waterhuishoudkundige ingrepen hebben plaatsgevonden. VG3 is de gemiddelde grondwaterstand van de meetdata 14 maart, 28 maart en 14 april in een bepaald kalenderjaar (Grondwaterregime op basis van karteerbare kenmerken; Van der Gaast e.a., 2010).



Figuur 24 Gedraineerde percelen in de Provincie Gelderland.

4 Vergelijking met ander onderzoek

Begin 2019 zal een synthesesrapport verschijnen van diergeneesmiddelen in het (water)milieu. Vooruitlopend op deze publicatie wordt in deze paragraaf vast in algemene termen samengevat wat er bekend is uit vergelijkbaar onderzoek in het binnen- en buitenland.

4.1 Nederland

Diergeneesmiddelen

Het aantal metingen van diergeneesmiddelen in Nederland is beperkt (zie Tabel 30 voor een korte omschrijving van de relevante onderzoeken). Naast gerichte monitoring van antibiotica en/of antiparasitaire middelen (Montforts e.a., 2007; Schilt & van de Lagemaat, 2009; Lahr e.a., 2014; Berendsen e.a., 2015; Kivit e.a., 2017; Oudendijk, in voorbereiding) betreft het ook twee referenties waarin monitoringsdata van geneesmiddelen in oppervlaktewater en grondwater zijn verzameld en uitgewerkt (Ter Laak e.a., 2017; Sjerps e.a., 2017). In dit geval betreffen het metingen van een breed pakket geneesmiddelen, waarvan enkele ook als diergeneesmiddel worden gebruikt.

Uit al deze onderzoeken komt het volgende beeld naar voren.

In mest worden diergeneesmiddelen uit alle onderzochte groepen met grote regelmaat aangetroffen. Concentraties lopen uiteen van <0,5 tot bijna 5000 µg/kg versgewicht (Berendsen e.a., 2015; Lahr e.a., 2014; Oudendijk, in voorbereiding). Net als in het huidige onderzoek werden met name tetracyclines in hoge concentraties aangetroffen. Een kanttekening hierbij is dat de metingen door Berendsen e.a. (2015) verse mest van de slachterij betroffen en de overige metingen drijfmest uit de mestkelder. Diergeneesmiddelen en hormonen hebben in de mestkelder tot enkele maanden de tijd om af te breken ten opzichte van verse mest.

In de Nederlandse bodem zijn diergeneesmiddelen nog nauwelijks onderzocht. Door Schilt & Van de Lagemaat (2009) werden weliswaar spoortjes antibiotica boven de detectielimiet aangetroffen na bemesting met varkensmest, maar alle concentraties waren onder de kwantificeringslimiet van 2,5 µg/kg versgewicht. Het gaat om oxytetracycline, doxycycline, sulfaguanidine, sulfadoxine, sulfaquinoxaline, difloxacin en flumequine. Het huidige onderzoek levert duidelijk hogere concentraties antibiotica op in de bodem. In een onderzoek naar antiparasitaire middelen uit paardenmest werd eenmalig een spoortje moxidectine aangetroffen in de bodem, echter onder de kwantificeringslimiet (Lahr e.a., 2014). Het in de paardenhouderij veel toegepaste ivermectine werd tijdens dit onderzoek niet in de bodem gedetecteerd.

In grondwater werden diergeneesmiddelen slechts af en toe aangetroffen, te weten sulfadimidine, sulfadiazine, sulfapyridine, sulfamethoxazol, sulfamerazine, lincomycine, chlooramfenicol, ciprofloxacin, oxytetracycline, tylosine, trimethoprim, amoxicilline, lidocaïne en mebendazol, waarbij bij oxytetracycline en tylosine is opgemerkt dat het mogelijk om een uitbijter gaat (Sjerps e.a., 2017; Ter Laak e.a., 2017; Kivit e.a., 2017; Ter Laak & Kools, 2016). Een deel van deze middelen (sulfamethoxazol, ciprofloxacin, trimethoprim, amoxicilline, lidocaïne en mebendazol) wordt ook bij mensen gebruikt. De concentraties zijn meestal laag, dat wil zeggen tot enkele ng/L, maar sporadisch worden hogere concentraties, tot 18 ng/L gevonden (Montforts e.a., 2007; Kivit e.a., 2017; Ter Laak e.a., 2017). Sulfadimidine wordt het vaakst aangetroffen, sulfamethoxazol in de hoogste concentratie. In Sjerps e.a. (2017) worden ook hogere waarden gemeld, maar de concentraties worden niet gerapporteerd: in een klein deel van de monsters (afhankelijk van de stof maximaal 0,8%) wordt de signaleringswaarde van 0,1 µg/l overschreden. Het gaat om sulfadimidine, sulfapyridine, sulfamerazine, lidocaïne, oxytetracycline en tylosine, waarbij de laatste twee mogelijk uitbijters zijn en lidocaïne ook door de mens wordt gebruikt.

Diergeneesmiddelen worden aangetroffen in zowel jong (ondiep) grondwater als ouder (diep) grondwater (Kivit e.a., 2017; Sjerps e.a., 2017). Sulfadimidine werd ook in het huidige onderzoek in grondwater gevonden, evenals een enkele keer sulfadiazine.

De metingen in grondwater die in 2015 door provincie Gelderland zijn uitgevoerd zijn opgenomen in de landelijke rapportage van Sjerps e.a. (2017), maar worden hier uitgelicht. In Gelderland werd in de totaal 113 grondwatermonsters zesmaal het antibioticum sulfadimidine aangetroffen, waarvan tweemaal boven de 0,1 µg/l (Verhagen & Ottow, 2017). De stof is drie keer redelijk dicht bij elkaar aangetoond in de Gelderse Vallei. Hier is ook de hoogste concentratie gevonden: 0,96 µg/l in de buurt van Wekerom (homogeen gebiedstype kwel). Daarnaast werd 0,23 µg/l aangetoond in een peilbuis bij Angeren (ten zuiden van Arnhem) met homogeen gebiedstype bouwland. Eenmalig is sulfamethoxazol aangetroffen (0,03 µg/l). Deze stof wordt ook humaan toegepast. Het natuurlijke vrouwelijke hormoon 17β-oestradiol werd zestienmaal aangetroffen, met een maximumconcentratie van 0,04 µg/l (Verhagen & Ottow, 2017). Deze maximumconcentratie komt overigens neer op overschrijding van de specifieke signaleringwaarde voor hormonen van 0,01 µg/L (zie § 5.2), maar de auteurs van het rapport vergelijken deze concentratie met de algemene signaleringswaarde van 0,1 µg/L.

In door landbouw beïnvloed oppervlaktewater zijn in totaal 17 diergeneesmiddelen aangetroffen. Een aantal daarvan, te weten de antibiotica sulfamethoxazol, trimethoprim en erythromycine en het antiparasitaire middel thiabendazol, wordt zowel humaan als veterinair gebruikt, en de aanwezigheid in het oppervlaktewater was waarschijnlijk van humane oorsprong (Ter Laak e.a., 2017). Trimethoprim wordt, in tegenstelling tot in het huidige onderzoek, echter incidenteel ook aangetroffen in gebieden met veeteelt (Montforts e.a., 2007; Ter Laak e.a., 2017). Andere diergeneesmiddelen die werden aangetroffen, zijn chloortetracycline, oxytetracycline (en het afbraakproduct β-apo-oxytetracycline), sulfadiazine, sulfadimidine, sulfadimethoxine, sulfamethoxazol, sulfapyridine, sulfaquinoxaline, tylosine, flumequine en tiamuline. De concentraties waren meestal enkele tientallen ng/L. Oxytetracycline is ook in het huidige onderzoek eenmalig in een relatief hoge concentratie (144 ng/l) in het oppervlaktewater aangetroffen. Het incidenteel aantreffen van relatief hoge concentraties (8-20 ng/L) van de genoemde tetracyclines is opmerkelijk, omdat dit op basis van stoffeigenschappen onwaarschijnlijk is. Tetracyclines binden namelijk sterk aan de bodem. Mogelijk dat hier transport gebonden aan deeltjes een rol heeft gespeeld. Daarnaast werden door Ter Laak e.a. (2017) in monsters die waarschijnlijk veterinair werden beïnvloed, opvallend hoge maximumconcentraties gevonden voor sulfadimidine (0,23 µg/l), sulfaquinoxaline (77 ng/l) en tiamuline (1,2 µg/l). Mogelijk is hier toch sprake geweest van een andere bron. Voor zover kan worden nagegaan (in Ter Laak e.a., 2017, het is niet duidelijk om hoeveel metingen het in totaal gaat), worden de diergeneesmiddelen niet frequent aangetroffen in oppervlaktewater.

Metingen in sediment werden uitgevoerd door Montforts e.a. (2007). Aangetroffen werden amoxicilline, flumequine (net als in het huidige onderzoek), sulfadiazine en sulfamethoxazol (maximaal 6 µg/kg droge stof). Hierbij moet opgemerkt worden dat de analysemethode in sediment niet optimaal was, de recovery's waren erg laag. Lahr e.a. (2014) vonden eenmalig zowel ivermectine als moxidectine in sediment rond paardenhouderijen (tot 2 µg/kg droge stof); echter, boven de detectielimiet maar onder de kwantificeringslimiet.

Samenvattend kan gesteld worden dat gericht onderzoek naar diergeneesmiddelen in mest, bodem, grondwater, oppervlaktewater en sediment in Nederland slechts beperkt is uitgevoerd. De onderzochte stoffen werden frequent en in concentraties tot bijna 5000 µg/kg aangetroffen in mest. In de bodem werden slechts spoortjes aangetroffen tussen de detectie- en kwantificeringslimiet. In zowel ondiep als diep grondwater werden met name sulfonamiden, maar ook enkele andere diergeneesmiddelen aangetroffen, zij het niet zeer frequent en in concentraties van maximaal enkele tientallen ng/L. Hetzelfde geldt voor oppervlaktewater. In sediment zijn enkele diergeneesmiddelen aangetroffen in µg/kg, maar de analysemethoden waren nog niet optimaal.

Hormonen

Onderzoek naar hormonen uit de Nederlandse veehouderij is uitgevoerd door Lahr e.a. (2010, 2014) en Montforts e.a. (2007). In mest worden lage concentraties androgenen en iets hogere concentraties oestrogenen en progestagenen aangetroffen (minder dan 10 µg/kg versgewicht; Lahr e.a., 2010; Lahr

e.a., 2014). Alle stoffen in de mest, behalve het afbraakproduct NAED van nortesteron, werden ook in de bodem gevonden tot enkele µg/kg natgewicht. De meeste waren echter al voor de bemesting aanwezig (Lahr e.a., 2010). Dezelfde stoffen werden ook in grondwater aangetroffen, meestal in concentraties <1 ng/L, en oestron rond de 2 ng/L. In alle matrices was er echter een grote variatie in de concentraties (Lahr e.a., 2010).

Door Montforts e.a., (2007) is een pakket natuurlijke en synthetische vrouwelijke hormonen onderzocht die behalve door de mens ook door dieren worden uitgescheiden. Deze zijn bepaald in oppervlaktewater en sediment. Hormonen konden slechts op drie van de elf onderzochte locaties in het oppervlaktewater worden aangetoond en bij alle vijf onderzochte locaties in het sediment. Bij één locatie werd oestron aangetroffen in een concentratie van 21,8 ng/L. Bij de twee andere locaties (beide in de Vlietpolder) waren de concentraties zodanig hoog dat deze onwaarschijnlijk waren³. Bij heranalyse van het reservemonster werden geen hormonen aangetoond. De Vlietpolder is vervolgens uitgebreider bemonsterd. In deze vijf monsters konden geen hormonen worden aangetoond. In sediment is oestron op alle locaties aangetoond (0,3-7,8 µg/kg droge stof). Daarnaast werden op twee van de vijf locaties ook 17α- en 17β-oestradiol aangetoond (tot 0,5 µg/kg droge stof).

Tabel 30 Onderzoeken in Nederland waarin diergeneesmiddelen en/of hormonen zijn gemeten in mest, bodem, grondwater en oppervlaktewater.

Studie	Beschrijving
Berendsen e.a. (2015)	Meting van antibiotica in verse varkens- en rundmest bij individuele dieren.
Kivit e.a. (2017)	Meting van antibiotica in grondwater onder intensieve veehouderijgebieden. In putten uit provinciale en landelijke meetnetten grondwaterkwaliteit en minifilterputten, in gebieden met neerwaartse grondwaterstroming waarbij de leeftijd van het grondwater bekend is. Tussen 3 en 25 m-mv.
Lahr e.a. (2014)	Twee relevante casussen: Meting van ivermectine en moxidectine in paardenmest, bodem, grondwater en oppervlaktewater Meting van antibiotica en hormonen in varkensmest bij behandeling in mestverwerkingsinstallaties
Lahr e.a. (2010)	Meting van natuurlijke hormonen in mest, bodem en grondwater na injectie van varkensmest in akkerland. Zelfde percelen als Schilt & van de Lagemaat (2009).
Montforts e.a. (2007)	Meting antibiotica, antiparasitaire middelen en hormonen in oppervlaktewater en sediment in gebieden met intensieve veehouderij.
Oudendijk, M. (in voorbereiding)	Meting van antibiotica en antiparasitaire middelen in varkensmest en rundmest en oppervlaktewater in een geïsoleerd gebied. Monsternamepunt oppervlaktewater ligt bij gemaal naar boezem.
Schilt & van de Lagemaat (2009)	Metingen van antibiotica in varkensmest, bodem en grondwater zowel voor als na bemesten. Op zandgrond. Zelfde percelen als Lahr e.a. (2010).
Sjerps e.a. (2017)	Samenvattende rapportage van de meting van o.a. geneesmiddelen in grondwater door de provincies in 2015/2016.
Ter Laak & Kools (2016)	Evaluatie van het voorkomen van diergeneesmiddelen in bronnen van drinkwater. Kwalitatieve analyse van de beschikbare meetgegevens van Vitens uit de periode 2011 – 2013 en indicatie van de herkomst van de stoffen.
Ter Laak e.a. (2017)	Verzameling van monitoringsgegevens van geneesmiddelen in grondwater, oppervlaktewater en drinkwater uit diverse databases en literatuur in Nederland en buitenland. Nadere beschouwing van de gegevens van diergeneesmiddelen in Nederland.

³ Zo werd het synthetische vrouwelijke hormoon 17β ethinyloestradiol in een concentratie tot 49 ng/l aangetroffen.

4.2 Buitenland

Er is geen uitgebreide review van de literatuur uit het buitenland gemaakt. In Duitsland is echter een aantal zeer relevante onderzoeken uitgevoerd die hier kort besproken worden.

Hannappel e.a. (2014) analyseerden 23 diergeneesmiddelen in ondiep grondwater op 48 locaties met intensieve veehouderij in vier verschillende deelstaten in Duitsland. Voor de selectie van te analyseren stoffen werd een uitgebreide literatuurstudie uitgevoerd, wat leidde tot een selectie van sulfonamiden, fluoroquinolonen, tetracyclines, macroliden en enkele andere diergeneesmiddelen plus carbamazepine (als tracer voor humane geneesmiddelen). Er werden 'worstcase'-locaties uitgekozen: hoge veedichtheid, intensieve bemesting, lichte gronden, hoge grondwaterstand en korte verblijftijden van het uitspoelingswater. Op 39 locaties kon geen enkele actieve stof in het grondwater worden aangetoond. In zeven locaties in Niedersachsen en Nordrhein Westfalen werd een enkele stof uit de groep van de sulfonamiden aangetroffen in lage concentraties, en op twee locaties in hoge concentraties ($>0,1 \mu\text{g/L}$). Als verklaring wordt de zeer geringe bindingscapaciteit van de bodem op deze twee locaties gegeven.

Hembrock-Heger e.a. (2011) onderzochten op 21 locaties in Nordrhein Westfalen het voorkomen van diergeneesmiddelen in bemeste bodem en het ondiepe grondwater. Sulfonamiden en fluoroquinolonen konden in de bodem niet aangetoond worden, tetracyclines wel, met een maximale concentratie van $44 \mu\text{g/kg}$ voor chloortetracycline. In het grondwater werd op één locatie sulfamethoxazol aangetroffen.

Hannappel e.a. (2016) hebben verder onderzoek gedaan naar de oorzaak van het aantreffen van sulfonamiden in ondiep grondwater. Hiervoor is op 11 locaties een uitgebreide monitoringscampagne van het ondiepe grondwater uitgevoerd in intensieve samenwerking met de boeren, met frequente bemonstering zowel in tijd als in ruimte. De resultaten lieten lokaal een grote ruimtelijke variatie zien. Bij 9 van de 11 locaties waren de concentraties drie jaar constant. De diergeneesmiddelen sulfadiazine en sulfadimidine werden op alle 11 locaties gevonden. Op 2 locaties werden ook hoge concentraties sulfamethoxazol aangetroffen ($100\text{-}300 \text{ ng/L}$), waarvan het gebruik bij mensen hoger is dan bij dieren. Uit analyses van tracers kon worden afgeleid dat op deze locaties behalve door bemesting ook sprake was van belasting met afvalwater.

Weiß (2008) onderzocht van vijf diergeneesmiddelen in de mest van behandelde varkens de uitspoeling vanuit akkers en grasland via drains en naar het oppervlakkige grondwater. In grasland blijkt het water zich snel via macroporiën in de bodem te bewegen. In bewerkt akkerland ontbreken deze macroporiën volgens de auteur en is de uitspoeling minder. In beregeningsproeven werd tot 16% van de met de mest opgebracht hoeveelheid diergeneesmiddelen afgevoerd. Tylosine had de hoogste uitspoeling, gevolgd door sulfadimidine, enrofloxacin en flubendazol. Enrofloxacin spoelde alleen in grasland uit. Chloortetracycline spoelde niet uit. Sulfadimidine bereikte van alle onderzochte stoffen met $16 \mu\text{g/L}$ de hoogste concentratie. Omgerekend naar een hectare grasland zijn tot $2,5 \text{ g}$ sulfadimidine, $0,5 \text{ g}$ tylosine en $0,1 \text{ g}$ flubendazol (en hun metabolieten) via de drain afgevoerd. De totale uitspoeling ligt nog hoger, omdat maar een deel van het water via de drain wordt afgevoerd (grasland 50-65%, akkerland 1-30%).

De Duitse onderzoeken bevestigen het beeld dat tetracyclines vooral in de bodem worden aangetroffen en sulfonamiden af en toe in het ondiepe grondwater. Gerichte onderzoeken naar diergeneesmiddelen in mest, oppervlaktewater en sediment hebben voor zover bekend niet plaatsgevonden. Daarnaast wordt gewezen op het belang van macroporiën bij de uitspoeling en afspoeling, vooral in grasland.

5 Discussie

5.1 Gedrag van de stoffen

In Tabel 31 t/m Tabel 34 wordt een overzicht gepresenteerd van de diergeneesmiddelen en hormonen die het meest zijn aangetroffen in de mest en de verschillende milieucompartimenten van de percelen waarop respectievelijk kalvermest en varkensmest werden toegediend. In het overzicht worden de concentratieranges per milieucompartiment en frequentie van waarnemen samengevat, waarna een kwalitatief oordeel geveld wordt over het gedrag van de stoffen. Stoffen die zeer weinig zijn aangetroffen bij of kalverbedrijven of varkensbedrijven zijn niet in deze tabellen opgenomen.

In de rest van deze paragraaf worden de belangrijkste stoffen besproken.

Tetracyclines (antibiotica)

Zowel de kalver- als varkensbedrijven meldden het gebruik van oxytetracycline. Doxycycline werd op alle kalverbedrijven en sommige varkensbedrijven gemeld. Oxytetracycline en doxycycline werden in hoge concentraties aangetroffen in kalverdrijfmest. De mest van de varkensbedrijven bevatte veel lagere concentraties oxytetracycline dan de mest van de kalverbedrijven. Op twee van de vijf varkensbedrijven werden hoge concentraties doxycycline in de mest gevonden.

Het algemene beeld van oxytetracycline uit dit onderzoek is dat deze stof zich sterk hecht aan bodemdeeltjes. Oxytetracycline komt niet in het grondwater, maar in de bodem van de percelen terecht en is daar persistent. Voor doxycycline is het beeld minder eenduidig. Ook wanneer er hoge concentraties in de mest zitten, wordt het middel weinig teruggevonden in de bodem na mesttoediening. Van doxycycline is bekend dat het afbreekt door fotolyse, dus onder invloed van licht (Lahr e.a., 2017, achterliggende literatuurgegevens WENR).

Beide stoffen worden af en toe in sedimenten rond de percelen gevonden. Het gedrag en de lotgevallen van de stoffen, en zeker dat van tetracycline, voldoen aan de verwachtingen op basis van de openbaar gepubliceerde stoffeigenschappen (Lahr e.a. 2017). Voor tetracycline werd tweemaal en voor doxycycline eenmaal de 'action limit' in de bodem overschreden.

In de kavelsloot bij een varkensbedrijf werd eenmalig oxytetracycline in het oppervlaktewater gevonden, de concentratie overschreed de signaleringswaarde van 0,1 µg/L. Gezien de stoffeigenschappen is het onwaarschijnlijk dat de stof in het oppervlaktewater voorkomt. Omdat de oppervlaktewatermonsters niet gefiltreerd zijn, is het niet uit te sluiten dat de stof in dit geval gebonden is aan zwevend stof.

Chloortetracycline is geen stof die als diergeneesmiddel op de bedrijven werd gebruikt. Het is dan ook niet of nauwelijks in de mest aangetroffen. Toch komt deze stof voor in de bodems van zowel de kalvermest- als varkensmestpercelen. De stof was echter al in de bodems aanwezig vóór toediening van de drijfmest en het concentratieverloop leek geen verband met de toediening te houden. In sedimenten rond de percelen werd chloortetracycline ook enkele malen vastgesteld. Het vermoeden is dat de stof wordt gevormd uit andere tetracyclines of zelfs op natuurlijke wijze. Hiervoor bestaan aanwijzingen in de literatuur (Darken e.a., 1960; Emerson de Lima Procópio e.a., 2012).

Het onregelmatige patroon van sommige tetracyclines in de bodem heeft mogelijk te maken met de hoge kwantificeringslimieten voor deze stoffen in deze matrix.

Sulfonamiden (antibiotica)

Verscheidene kalverbedrijven en een enkel varkensbedrijf meldden het gebruik van sulfadiazine en trimethoprim (vaak in combinatie toegediend). In de drijfmest van met name de kalverbedrijven werd sulfadiazine gevonden, de concentraties verschilden sterk. Trimethoprim werd echter niet

gedetecteerd. Mogelijk breekt deze stof af in de mestkelders of is de concentratie te laag voor detectie.

De sulfonamiden staan bekend als goed oplosbaar en mobiel. Sulfadiazine werd na mesttoediening teruggevonden in de bodem van het perceel waar de kalvermest met de hoogste concentratie van dit middel werd geïnjecteerd. Het werd ook een keer in grondwater van een ander kalvermestperceel gemeten en in het oppervlaktewater van de Hierdensche Beek.

Sulfadimidine (synoniem: sulfamethazine), een andere sulfa-verbinding daarentegen, die nauwelijks in de mest voorkwam (twee keer in kalvermest in een lage concentratie), werd regelmatig waargenomen in het grondwater van zowel kalvermest- als varkensmestpercelen en daarnaast incidenteel in oppervlaktewater en sediment. Deze waarnemingen laten zich moeilijk verklaren. Sulfadimidine wordt voor zover bekend slechts weinig gebruikt in Nederland. Het is onwaarschijnlijk dat de waarnemingen spootjes van vroeger gebruik betreffen. Dan zou het naar verwachting niet meer in het ondiepe grondwater zitten, maar al uitgespoeld zijn naar dieper grondwater.

De vermeende lotgevallen van sulfadiazine (zie Lahr e.a., 2017) werden dus deels bevestigd door het onderzoek, maar de afwezigheid van trimethoprim in het grond- en oppervlaktewater is onverwacht. Sulfadimidine is een curieuze stof waarnaar meer onderzoek vereist is, zeker ook gezien het feit dat de stof regelmatig in drinkwaterputten wordt aangetroffen en ook elders veel wordt gedetecteerd (zie § 4.1).

Quinolonen (antibiotica)

Flumequine werd in vrij hoge concentraties gevonden in de mest van drie van de vijf onderzochte kalverbedrijven. Enrofloxacin en ciprofloxacin kwamen voor in de mest van slechts één kalverbedrijf. Het gebruik van flumequine was slechts door één kalverbedrijf doorgegeven en het gebruik van enrofloxacin en ciprofloxacin in zijn geheel niet. De varkensbedrijven meldden geen gebruik van quinolonen en deze werden ook niet in varkensmest aangetroffen tijdens het onderzoek.

Flumequine werd in de bodem van vier van de vijf percelen aangetroffen waar kalvermest werd toegediend. De stof was echter al aanwezig vóór de mestinjectie en de concentraties namen niet of weinig toe na toediening van de mest. In de bodem van één bedrijf werd flumequine helemaal niet aangetroffen, ook niet voorafgaand aan de mestinjectie. Dit bedrijf meldde mondeling flumequine nooit te gebruiken. Door deze waarnemingen rijst het vermoeden dat flumequine een heel persistent middel is dat door regelmatige toediening van mest aan het land permanent in de bodem aanwezig blijft. Flumequine werd ook in een aantal sedimenten van kavelsloten gevonden, mogelijk als gevolg van afspoeling. De persistentie en sterke sorptie van flumequine waren voorspeld op basis van de literatuur (Lahr e.a., 2017).

Enrofloxacin en ciprofloxacin werden ondanks de aanwezigheid in de drijfmest van één kalverbedrijf niet in het milieu teruggevonden na mestverspreiding.

Macroliden (antibiotica)

Het gebruik van tilmicosine werd door alle kalverbedrijven gerapporteerd en door sommige varkensbedrijven. Tylosine werd door een tweetal kalverbedrijven en één varkensbedrijf gerapporteerd, tulathromycine door twee kalverbedrijven en tiamulin door één varkensbedrijf.

De mest van alle onderzochte kalverbedrijven bevatte redelijk hoge concentraties tilmicosine. Daarnaast werd bij twee kalverbedrijven tylosine in de mest gemeten en bij één varkensbedrijf tiamulin (het bedrijf dat het gebruik rapporteerde). Tulathromycine is niet aangetroffen.

Tilmicosine werd op vier van de vijf kalvermestpercelen in de bodem aangetroffen, vaker na dan vóór mesttoediening. In de bodem van een varkensmestperceel werd tilmicosine ook gevonden, alleen na mestinjectie, hetgeen doet vermoeden dat de stof in de toegediende mest van dit bedrijf heeft gezeten (niet analytisch aangetoond). Verder is de stof niet gevonden in grondwater, oppervlaktewater of sediment. De sorptie aan de bodem en de persistentie van tilmicosine kwamen overeen met literatuurwaarden, i.e. de stof is sorptief en persistent in de bodem (Lahr e.a., 2017).

Tylosine is niet gevonden in de milieumonsters en tiamulin eenmaal in het grondwater van een varkensmestperceel (vier maanden na mesttoediening).

Avermectines (antiparasitica)

Ivermectine werd aangetroffen in de mest van kalveren (vier van de vijf bedrijven) en niet in de mest van varkens. Gebruik werd alleen gemeld door de kalverbedrijven.

Slechts tweemaal werd een avermectine in een milieumonster gevonden. Dit betrof een waarneming van het middel emamectine in grondwater van een kalvermestperceel een maand na mesttoediening (gebruik van dit middel is niet gemeld) en een concentratie van 24 ng/L ivermectine in een kavelsloot van een perceel een maand nadat daarop kalvermest werd verspreid. Deze concentratie is boven de PNEC voor ivermectine en vormt dus mogelijk een risico voor waterorganismen. Het vermoeden is dat de ivermectine zich bevond op het zwevende stof in het monster. Bij de waarneming moet nog worden vermeld dat het gaat om een snelstromende sloot. En ofschoon de kavel langgerekt was en aan zowel een lange als een korte zijde langs het bemeste perceel stroomde, kan daarom ook niet met volledige zekerheid worden uitgesloten dat het gevonden ivermectine van stroomopwaarts afkomstig was.

Ondanks de voorspelling door Lahr e.a. (2017) dat ivermectine door zijn hechting aan deeltjes en persistentie in de bodem van bemeste percelen gevonden zou kunnen worden, bleven de concentraties in dit onderzoek beneden de kwantificeringslimiet. Mogelijk waren de gehalten in de kalvermest te laag om de stof in de bodem terug te meten (de kwantificeringslimiet was relatief hoog, zie § 2.5.2, § 3.4.1 en Bijlage 1), maar het kan ook zijn dat het ivermectine afbreekt. Ivermectine is bijvoorbeeld niet stabiel in zonlicht en het breekt snel af in water (Lahr e.a., 2017, achterliggende literatuurgegevens WENR).

Benzimidazolen (antiparasitica)

Een groot aantal verschillende benzimidazolen en hun metabolieten kwam in de onderzochte mest van kalveren en varkens voor. Maar het zijn vooral flubendazol en de metaboliet aminoflubendazol in varkensmest die in hogere concentraties werden gevonden. Dit stemt overeen met het gerapporteerde gebruik op deze bedrijven.

Flubendazol werd in de bodem van alle varkensmestpercelen aangetroffen, maar een relatie met de toediening van de mest (toename concentratie) was niet echt waarneembaar. Flubendazol en aminoflubendazol werden niet in grondwater of oppervlaktewater aangetroffen, maar wel enkele keren in het sediment van de kavelsloten rond percelen waar varkensmest verspreid werd, ook vóór toediening.

Lahr e.a. (2017) vonden geen stofgegevens om het milieugedrag en de persistentie van flubendazol uit af te leiden. De onderzoeksresultaten duiden echter op persistentie van zowel flubendazol als de amino-metaboliet in bodem en sediment.

Toltrazuril & ponazuril (coccidiostatica)

Toltrazuril en ponazuril werden alleen gevonden in varkensmest en niet in kalvermest. Ponazuril kan uit toltrazuril worden gevormd, maar het is ook apart op de markt, echter niet in Nederland. Het gebruik van toltrazuril was alleen gemeld door varkensbedrijven (drie uit vijf).

In de bodem van de percelen met varkensmest werden beide stoffen voor en na mestinjectie waargenomen. Deze identiteit van de stoffen kon echter niet volledig analytisch worden bevestigd. In de bodems van de kalvermestpercelen werden de stoffen echter niet waargenomen, hetgeen desondanks duidt op een verband met de toediening van varkensmest op de percelen van de varkensbedrijven. De twee stoffen werden verder enkele malen gemeten in grondwater, oppervlaktewater en sediment (inclusief diverse malen bij hetzelfde varkensmestperceel).

Ofschoon de lotgevallen van toltrazuril en ponazuril in deze studie niet helemaal duidelijk zijn, is er mogelijk sprake van persistente verbindingen die zich door verschillende milieucompartimenten verspreiden. Van der Linden e.a. (2017) leidden uit verbruiks- en stofgegevens af dat toltrazuril in

grondwater mogelijk de signaleringswaarde van 0,1 µg/L zou kunnen overschrijden, maar dat er ook aanwijzingen zijn voor meer afbraak dan voorspeld.

Hormonen

De mest van zowel de kalverbedrijven als de varkensbedrijven bevatte uiteenlopende hoeveelheden oestrogene (vrouwelijke) en androgene (mannelijke) steroïdhormonen, maar nauwelijks progestagene steroïden (zwangerschapshormonen). De concentraties in de varkensmest waren iets hoger dan in de kalvermest.

De oestrogene hormonen 17β-oestradiol en oestron namen waarneembaar toe op de dag na injectie van varkensmest. Deze redelijk goed oplosbare stoffen (Vethaak e.a., 2002) werden ook een enkele maal in het grondwater en sediment van de bemonsterde percelen gemeten. Van oestrogene hormonen is bekend dat zij in hogere concentraties in oppervlaktewateren vervrouwelijking van mannelijke vissen kunnen veroorzaken (o.a. Vethaak e.a., 2002, 2005).

Naast deze oestrogene hormonen werden ook de androgene hormonen androstendion en β-testosteron in de bodem aangetroffen, zowel op de kalvermest- als de varkensmestpercelen. Het verloop van de concentraties van deze twee stoffen in de tijd was echter uitermate grillig. De androgene hormonen werden niet in grondwater, oppervlaktewater en sediment van de bedrijfspcelen aangetroffen. Over de effecten van androgene hormonen in het milieu is weinig bekend.

Opvallend is het voorkomen van diverse oestrogene en androgene hormonen in het watermonster van de Moorsterbeek. Het is onbekend of deze stoffen afkomstig zijn uit de veehouderij of misschien toch van een lozing van menselijke oorsprong. Invloed van RWZI's en riooloverstorten kunnen worden uitgesloten. Wat wel zou kunnen, is een illegale lozing of een verkeerde aansluiting waarbij huishoudelijk afvalwater toch in oppervlaktewater terechtkomt.

Een opvallend resultaat van de hormoonanalyses is dat het zwangerschapshormoon progesteron in alle bemonsterde milieucompartimenten (bodem, grondwater, oppervlaktewater en sediment) in lage concentraties wordt gemeten, maar niet in kalver- en varkensmest. Dit hormoon wordt zelfs aangetroffen in het oppervlaktewater van vier van de vijf bemonsterde beken. Het feit dat de stof niet in mest wordt gevonden kan niet verklaard worden doordat progesteron in geconjugeerde (aan eiwitten gebonden) vorm aanwezig is, zoals gebruikelijk voor hormonen in de urine. Aan het begin van de chemische analyses worden de hormonen namelijk door toevoeging van enzymen gedeconjugeerd (§ 2.5.4). Hoe de verspreiding van progesteron in het milieu wel verklaard kan worden, is onduidelijk.

Tabel 31 Samenvatting van concentraties diergeneesmiddelen in kalvermest en hun gedrag na injectie van mest in de bodem van zandige percelen. Tussen haakjes het aantal keer dat een stof is aangetroffen t.o.v. het aantal monsters. k.l. = kwantificeringslimiet. Stoffen die zeer weinig zijn aangetroffen (<3x), zijn niet in de tabel opgenomen.

Stof	Soort middel	In mest (µg/kg)	In bodem vóór mest-injectie (µg/kg)	In bodem na mestinjectie (µg/kg)	Indicatie concentratie-verloop bodem (1 wk-4 mnd.)	In grondwater (ng/L)	In oppervlaktewater (ng/L)	In sediment (µg/kg)	Kwalificatie op basis van dit onderzoek
Tetracycline	Antibiotica	9-151 (4/5)	18 (1/5)	<k.l. (0/5)	Incidenteel waargenomen (1/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
Oxytetracycline	Antibiotica	700-5000 (5/5)	<k.l. (0/5)	18-149 (4/5)	Afname (11/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	16 (1/8)	Matig persistente stof die voornamelijk in de bodem wordt aangetroffen
Doxycycline	Antibiotica	350-2000 (5/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Af en toe waargenomen (3/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
Chloortetracycline	Antibiotica	29 (1/5)	25-65 (2/5)	32-65 (2/5)	Regelmatig waargenomen (4/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	17 (1/8)	Persistente stof in bodem van onbekende oorsprong
Flumequine	Antibiotica	220-1700 (3/5)	27-48 (5/5)	29-62 (4/5)	Blijft nagenoeg gelijk (15/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	5-17 (3/8)	Zeer persistente stof die alleen in bodem en sediment wordt aangetroffen
Sulfadiazine	Antibiotica	1-200 (4/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Incidenteel waargenomen (2/15)	8 (1/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Stof in mest en incidenteel in (water)milieu
Sulfadimidine	Antibiotica	1-2 (2/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	26-180 (3/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Stof in lage concentraties in mest en af en toe in grondwater
Enrofloxacin/ciprofloxacin	Antibiotica	29/165 (1/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
Tilmicosine	Antibiotica	24-300 (5/5)	11-33 (2/5)	9-34 (2/5)	Regelmatig waargenomen (12/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Zeer persistente stof die alleen in bodem wordt aangetroffen
Tylosine	Antibiotica	3-23 (2/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
Ivermectine	Antiparasitica	6-46 (4/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	24 (1/8)	<k.l. (0/8)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen*

* Voor ivermectine valt niet uit te sluiten dat deze stof wel persistent is, maar vanwege de relatief hoge kwantificeringslimiet niet in de bodem wordt gevonden na mestinjectie

Tabel 32 Samenvatting van concentraties diergeneesmiddelen in varkensmest en hun gedrag na injectie van mest in de bodem van zandige percelen. Tussen haakjes het aantal keer dat een stof is aangetroffen t.o.v. het aantal monsters. k.l. = kwantificeringslimiet. Stoffen die zeer weinig zijn aangetroffen (<3x), zijn niet in de tabel opgenomen.

Stof	Soort middel	In mest (µg/kg)	In bodem vóór mest- injectie (µg/kg)	In bodem na mestinjectie (µg/kg)	Indicatie concentratie- verloop bodem (1 wk-4 mnd.)	In grondwater (ng/L)	In oppervlakte- water (ng/L)	In sediment (µg/kg)	Kwalificatie op basis van dit onderzoek
Oxytetracycline	Antibiotica	22-71 (4/5)	53-77 (2/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	144 (1/8)	27 (1/10)	Lage concentraties in varkensmest en daardoor mogelijk weinig aangetroffen
Doxycycline	Antibiotica	600-700 (2/5)	38 (1/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	57 (1/10)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
Chloortetracycline	Antibiotica	<k.l. (0/5)	13-34 (4/5)	8-38 (2/5)	Regelmatig waargenomen (4/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	11-14 (3/10)	Persistente stof in bodem van onbekende oorsprong
Sulfadiazine	Antibiotica	1-100 (2/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/10)	Stof in mest maar niet in (water)milieu
Sulfadimidine	Antibiotica	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	9-28 (3/15)	12 (1/4)	3 (1/10)	Stof niet in mest maar af en toe in grondwater, oppervlaktewater en sediment
Tilmicosine	Antibiotica	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	9 (1/5)	Waargenomen op 1 bedrijf (3/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/10)	Persistente stof die alleen in bodem van 1 perceel met varkensmest wordt aangetroffen
Flubendazol (+aminoflubendazol)	Antiparasitica	19-246 (5/5)	1-105* (5/5)	1-18 (5/5)	Afname (11/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	1-2* (3/10)	Matig persistente stof die alleen in bodem en sediment wordt aangetroffen
Albendazol (+metabolieten)	Antiparasitica	9-16 (3/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/10)	Stof in lage concentratie in mest en niet teruggevonden in milieu
Fenbendazol (+metabolieten)	Antiparasitica	7-13 (3/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/10)	Stof in lage concentratie in mest en niet teruggevonden in milieu
Mebendazol (+metabolieten)	Antiparasitica	3-10 (3/5)	<k.l. (0/5)	1 (1/5)	Incidenteel waargenomen (1/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/10)	Stof in lage concentratie in mest en incidenteel teruggevonden in milieu
Toltrazuril (+ponazuril)*	Coccidiostatica	4-526 (3/5)	1-34 (4/5)	2-20 (4/5)	Concentraties schommelen, geen afname (11/15)	<k.l. (0/15)	27 (1/8)	1 (2/10)	Persistente stof in bodem die af en toe in sloten wordt aangetroffen

* De metingen voor beide stoffen in bodem- en sedimentmonsters zijn niet volledig conform de kwaliteitscriteria (identiteit stoffen niet volledig bevestigd door high resolution mass spectrometry, HRMS).

Tabel 33 Samenvatting van concentraties natuurlijke hormonen in kalvermest en hun gedrag na injectie van mest in de bodem van zandige percelen. Tussen haakjes het aantal keer dat een stof is aangetroffen t.o.v. het aantal monsters. k.l. = kwantificeringslimiet. Stoffen die zeer weinig zijn aangetroffen (<3x), zijn niet in de tabel opgenomen.

Stof	Soort hormoon	In mest (µg/kg)	In bodem vóór mest-injectie (µg/kg)	In bodem na mestinjectie (µg/kg)	Indicatie concentratie-verloop bodem (1 wk-4 mnd.)	In grondwater (ng/L)	In oppervlaktewater (ng/L)	In sediment (µg/kg)	Kwalificatie op basis van dit onderzoek
17α-Oestradiol	Oestrogeen	0,6-2,4 (4/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Lage concentraties in kalvermest en daardoor mogelijk weinig aangetroffen
17β-Oestradiol	Oestrogeen	2,0-4,1 (3/5)	<k.l. (0/5)	0,7 (1/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	1,3 (1/8)	Lage concentraties in kalvermest en daardoor mogelijk weinig aangetroffen
Oestron	Oestrogeen	1,3-5,5 (4/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Lage concentraties in kalvermest en daardoor mogelijk weinig aangetroffen
α-Testosteron	Androgeen	0,8-32 (3/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Lage concentraties in kalvermest en daardoor mogelijk weinig aangetroffen
β-Testosteron	Androgeen	1,3-14 (5/5)	<k.l. (0/5)	0,5 (1/5)	Regelmatig waargenomen (4/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Persistente stof in de bodem
5α-Dihydrotestosteron	Androgeen	2,7-93 (3/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
5β-Dihydrotestosteron	Androgeen	1,7-90 (5/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
Androstendion	Androgeen	2,3-53 (5/5)	0,8 (1/5)	0,5-1,2 (3/5)	Regelmatig waargenomen (5/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Persistente stof in de bodem
Androstadiendion	Androgeen	38 (1/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/8)	<k.l. (0/8)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
Progesteron	Progestageen	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Regelmatig waargenomen (6/15)	1,0-2,6 (10/15)	2,4-2,7 (6/8)	1,1-14 (5/8)	Persistente stof van onduidelijke oorsprong die in alle milieucompartmenten wordt aangetroffen

Tabel 34 Samenvatting van concentraties natuurlijke hormonen in varkensmest en hun gedrag na injectie van mest in de bodem van zandige percelen. Tussen haakjes het aantal keer dat een stof is aangetroffen t.o.v. het aantal monsters. k.l. = kwantificeringslimiet. Stoffen die zeer weinig zijn aangetroffen (<3x), zijn niet in de tabel opgenomen.

Stof	Soort hormoon	In mest (µg/kg)	In bodem vóór mest-injectie (µg/kg)	In bodem na mestinjectie (µg/kg)	Indicatie concentratie-verloop bodem (1 wk-4 mnd.)	In grondwater (ng/L)	In oppervlaktewater (ng/L)	In sediment (µg/kg)	Kwalificatie op basis van dit onderzoek
17β-Oestradiol	Oestrogeen	0,9-13 (5/5)	<k.l. (0/5)	0,6-4,0 (3/5)	Afname (3/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/4)	<k.l. (0/10)	Matig persistente stof die voornamelijk in de bodem wordt aangetroffen
Oestron	Oestrogeen	5,7-16 (5/5)	<k.l. (0/5)	1,3-3,8 (2/5)	Afname (3/15)	1,5 (1/15)	<k.l. (0/4)	0,6 (1/10)	Matig persistente stof die voornamelijk in de bodem en incidenteel in sloten wordt aangetroffen
β-Testosteron	Androgeen	10 (1/5)	0,6-0,7 (3/5)	<k.l. (0/5)	Regelmatig waargenomen (6/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/4)	<k.l. (0/10)	Persistente stof in de bodem
5α-Dihydrotestosteron	Androgeen	40-61 (2/5)	<k.l. (0/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/4)	<k.l. (0/10)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
5β-Dihydrotestosteron	Androgeen	11-62 (3/5)	0,5 (1/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/4)	<k.l. (0/10)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
Androstendion	Androgeen	6-65 (5/5)	0,7-2,3 (3/5)	2,2-5,4 (3/5)	Regelmatig waargenomen (5/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/4)	<k.l. (0/10)	Persistente stof in de bodem
Androstadiendion	Androgeen	13-57 (3/5)	0,8 (1/5)	<k.l. (0/5)	Niet waargenomen (0/15)	<k.l. (0/15)	<k.l. (0/4)	<k.l. (0/10)	Weinig persistente stof die direct na mesttoediening is verdwenen
Progesteron	Progestageen	2,0 (1/5)	0,6-1,0 (2/5)	1,0 (1/5)	Regelmatig waargenomen (7/10)	0,9-2,2 (10/15)	2,4-2,6 (4/4)	0,8-3,4 (4/10)	Persistente stof van onduidelijke oorsprong die in alle milieucompartmenten wordt aangetroffen

5.2 Duiding van de concentraties

Voor de stoffen die zijn aangetroffen tijdens het onderzoek (zie Bijlage 2, Tabel B2.1) zijn diverse normen, Predicted No Effect Concentrations (PNEC's) en effectconcentraties verzameld (zie Bijlage 2, Tabel B2.2). Effectconcentraties vormen de basis voor normen en PNEC-waarden. Beide worden op dezelfde wijze afgeleid, maar normen zijn beleidsmatig vastgesteld. Uit de bijlage blijkt dat de waarden per stof sterk uiteen kunnen lopen en dat lang niet voor alle aangetroffen stoffen effectdata bekend zijn. Vergelijking met de aangetroffen concentraties is dus voor lang niet alle in het huidige onderzoek gemeten stoffen mogelijk.

De aangetroffen concentraties zijn daarom ook vergeleken met algemeen geldende, niet stofspecifieke streefwaarden, signaleringswaarden en 'action limits' (zie Bijlage 2, Tabel B2.3). De streefwaarden en signaleringswaarden voor water hebben geen toxicologische achtergrond en, met uitzondering van de waarde uit het Protocol Monitoring en Toetsing Drinkwaterbronnen KRW (Helpdesk Water), ook geen wettelijke status: "Het zijn waarden om naartoe te werken, die verder gaan dan de wet" (Derksen & Ter Laak, 2013). Ligt de concentratie beneden de signaleringswaarde van de drinkwatersector, dan is er geen reden tot zorg. Ligt die boven de signaleringswaarde, dan zijn volgens de drinkwatersector nader onderzoek en actie aangewezen.

De 'action limit' voor bodem is afkomstig uit de milieubeoordeling die moet worden gemaakt bij toelating van diergeneesmiddelen. Bij overschrijding moet voor toelating een meer gedetailleerde milieubeoordeling (Fase 2) plaatsvinden.

5.2.1 Bodem

De concentraties diergeneesmiddelen in bodem zijn alleen vergeleken met de action limits. In Tabel 35 zijn de in het onderzoek gevonden concentraties in bodem die deze overschrijden, samengevat. Het gaat om twee tetracycline antibiotica, oxytetracycline en doxycycline. De action limits worden overschreden met een factor 1,1 tot 1,5.

Tetracyclines binden sterk aan de bodem en zijn persistent (Lahr e.a., 2017). De aanwezigheid van hoge concentraties in bodem is daarom volgens verwachting. De overschrijding van de action limits indiceert dat er een meer gedetailleerde milieubeoordeling voor deze stoffen bij de toelating zou moeten komen.

Het percentage overschrijdingen van de action limits bedroeg 6%, oftewel driemaal op een totaal van 50 bodemonsters genomen tijdens het onderzoek.

Tabel 35 Overschrijdingen action limits in bodem.

Stof	Groep stoffen	Sector	Bedrijf	Tijdstip	Concentratie	Action limit	Eenheid
Oxytetracycline	Tetracyclines	Kalveren	KA	1 dg	106	100	µg/kg
Oxytetracycline	Tetracyclines	Kalveren	KC	1 dg	149	100	µg/kg
Doxycycline	Tetracyclines	Kalveren	KA	1 wk	101	100	µg/kg

5.2.2 Water

Voor die stoffen waarvoor het mogelijk is deze te vergelijken met effectconcentraties, blijkt dat alleen voor ivermectine de PNEC-waarde wordt overschreden. Het gaat om één meting in het oppervlaktewater bij kalverbedrijf KA met een concentratie van 24 ng/L (zie Tabel 16). Dit is tevens het enige bedrijfsterrein waar ivermectine is aangetroffen in het water. De PNEC voor ivermectine is zodanig laag dat bij aantreffen boven de kwantificeringslimiet (10 ng/L of hoger) meteen sprake is van een overschrijding. De PNEC geldt echter voor het opgeloste gehalte, terwijl hier mogelijk sprake is van aan zwevend stof gebonden ivermectine.

In Tabel 36 zijn metingen die de streefwaarde van 0,1 µg/l (diergeneesmiddelen) of 0,01 µg/l (hormonen) in water overschrijden, getoond. In oppervlaktewater gaat het om één meting van oxytetracycline in de perceelsloten (ca. 1,4× de streefwaarde van 0,1 µg/L) en diverse hormonen in de onderzochte beek (1,1× tot 2,8× streefwaarde van 0,01 µg/L). In grondwater gaat het om sulfadimidine (1,8× streefwaarde van 0,1 µg/L).

De hoge concentratie oxytetracycline in oppervlaktewater (144 ng/L) is vanwege de sterke sorptie opmerkelijk, maar al eerder zijn vergelijkbare concentraties aangetroffen (zie § 3.3.1). De oppervlaktewatermonsters zijn niet gefiltreerd en het water in dit monster was iets troebel, dus binding aan zwevend stof kan niet worden uitgesloten.

Sulfadimidine wordt in ander onderzoek vaker in hoge concentraties in het grondwater aangetroffen, en net als hier soms ook boven de streefwaarde van 0,1 µg/L (zie § 4.1).

De concentraties hormonen in oppervlaktewater in het huidige onderzoek die de streefwaarde voor hormonen van 0,01 µg/L overschrijden, zijn allemaal in de Moosterbeek (MBSS) gevonden. In de Moosterbeek overschreed de concentratie van het vrouwelijke steroïdhormoon oestron tevens de conceptnorm van 3,6 ng/L (Bijlage 2, Tabel B2.2) in oppervlaktewater met een factor 3. Ecologische effecten kunnen in dat geval niet uitgesloten worden.

Tabel 36 Overschrijdingen streefwaarde (oppervlaktewater) en signaleringswaarde (grondwater) in water.

Stof	Groep stoffen	Sector	Milieucompartiment	Bedrijf/beek	Tijdstip	Concentratie	Eenheid
Oxytetracycline	Tetracyclines	Varkens	oppervlaktewater	VA	Voor	144	ng/l
Sulfadimidine	Sulfonamiden	Kalveren	grondwater	KD	4 mnd	180	ng/l
Androstendion	Hormonen	beek	oppervlaktewater	MBSS	Juli 2017	28	ng/l
Norandrostendion	Hormonen	beek	oppervlaktewater	MBSS	Juli 2017	23	ng/l
Oestron	Hormonen	beek	oppervlaktewater	MBSS	Juli 2017	11	ng/l
β-testosteron	Hormonen	beek	oppervlaktewater	MBSS	Juli 2017	17	ng/l
Androstadiendion	Hormonen	beek	oppervlaktewater	MBSS	Juli 2017	22	ng/l

5.3 Representativiteit bedrijven & percelen

5.3.1 Bedrijven

Bedrijfsomvang

In het onderzoek is gebruikgemaakt van vijf onderzoekslocaties voor de kalverhouderij en vijf voor de varkenshouderij. In § 3.7.1 werd het aantal dieren van de voor het onderzoek geselecteerde bedrijven vergeleken met die in Gelderland en Nederland. Over het algemeen waren zowel de onderzochte kalverbedrijven (zonder onderscheid tussen witvlees- en rosé vleeskalveren) als de varkensbedrijven (vleesvarkens, zeugen en biggen) iets groter van omvang dan het gemiddelde in heel Gelderland en heel Nederland, maar nog steeds van een vergelijkbare orde van grootte.

Diergeneesmiddelengebruik

Het onderzoek richtte zich op de kalver- en varkenshouderijen vanwege het veronderstelde hoge diergeneesmiddelengebruik (zie o.a. Lahr e.a., 2017). Er werden op de meeste onderzochte bedrijven inderdaad diverse middelen toegepast, onder meer als koppelkuurbehandeling. De gebruikte middelen kwamen redelijk goed overeen tussen de vijf onderzochte bedrijven per sector en voor de antibiotica, ook met de aanbevolen middelen uit het formularium voor vleeskalveren en vleesvee (D'Hoe e.a., 2015) en het formularium voor het varken (Van Duijkeren e.a., 2012).

Het diergeneesmiddelengebruik op een bedrijf is uiteraard afhankelijk van optredende ziektes en de inzichten van de dierenarts en veehouder.

Of het diergeneesmiddelengebruik op de onderzochte bedrijven hoog of laag was, valt op basis van het onderzoek niet te zeggen. De totale hoeveelheden werden niet geanalyseerd.

5.3.2 Percelen

Bodentype

In § 3.1 en § 3.7.2 is aangetoond dat alle onderzochte bedrijfsperven op zandgrond lagen. Dit was het doel van het onderzoek.

Bij deze constatering past nog enige nuancering. In het oostelijk deel van de Achterhoek ligt onder de dunne zandlaag ondoordringbare keileem in de bodem (Oost-Nederlands plateau). Dit maakt het gebied geologisch heel anders dan de gebieden met een dikke laag dekzand, zoals elders in de Achterhoek en op de Veluwe. Omdat water hier niet goed dieper kan infiltreren, is dit gebied uit- en afspoelingsgevoeliger dan andere zandgronden. In dit gebied lag bedrijf VC en het is ook het stroomgebied van de Beurzerbeek. De keileemgebieden zijn niet als representatief te beschouwen voor alle zandgronden in Nederland. In het oosten van de Achterhoek zijn ook veel meer percelen gedraineerd (zie Figuur 24).

Organische stof

Afhankelijk van het adsorberende vermogen van organische contaminanten binden deze stoffen zich meer of minder aan organisch materiaal in de bodem. Adsorptie vermindert de mobiliteit van de stoffen. Bij een hoog adsorberend vermogen van stoffen, zoals bij tetracyclines, flumequine, tilmicosine of ivermectine (Lahr e.a., 2017) en een hoog organische-stofgehalte, leidt dit tot vastlegging aan de bodemmatrix en relatief weinig uitspoeling naar het grondwater. Laag adsorberende stoffen, zoals sulfonamiden en sommige hormonen, zijn mobieler en worden minder snel vastgelegd aan de bodemmatrix. Sterk adsorberende stoffen kunnen ook worden aangetroffen in het sediment van nabijgelegen watergangen als gevolg van oppervlakkige afspoeling van zwevend (bodem)materiaal. Afspoeling van regenwater met zwevende deeltjes kan ook via drains of greppels plaatsvinden.

De bemonsterde bedrijfsperven hadden veelal een gemeten organische-stofgehalte in de bodem tussen 2,5% en 9% (zie § 3.1). Deze lage gehalten zijn normaal voor zandbodems. De opgebrachte mest heeft echter ook een hoog organische-stofgehalte. Dit kan leiden tot additionele vastlegging van middelen aan mest of aan het mengsel van bodem en mest na de bodeminjectie. Het gemiddelde percentage organische stof in de bodems van de bemonsterde percelen was van dezelfde orde van grootte als in heel Gelderland en heel Nederland, waarschijnlijk omdat dit soort bedrijven elders ook veel op zandgronden gevestigd is.

Zuurgraad

Voor middelen die zich gedragen als zwakke zuren, bijvoorbeeld sulfonamiden zoals sulfadimidine en sulfadiazine, beïnvloedt de pH van een bodem met name de adsorptie (mobiliteit) van de stof. Bij een lage pH (hoge zuurgraad) is de adsorptie sterker dan bij hoge pH (lage zuurgraad). Het omslagpunt van sterk adsorberend naar zwak adsorberend is stofafhankelijk.

De pH-CaCl₂ op de tien percelen varieerde van ca. 4,5 tot 6,9. De bodems zijn dus zuur tot neutraal. Het bedrijf met het hoogste gehalte organische stof in het bodemonster had ook de hoogste zuurgraad (pH 4,61). Het is niet eenvoudig om aan te geven in welke mate de zuurgraad een rol heeft gespeeld bij de resultaten van het onderzoek. De gemeten (bodem)concentraties zijn van vele andere factoren afhankelijk, zoals het gehalte van een diergeneesmiddel of hormoon in de drijfmest en de hoeveelheid geïnjecteerde mest. Voor dit soort factoren was de variatie tussen de bedrijven en percelen groot.

De gemiddelde zuurgraad in de bodem van de bemonsterde percelen was van dezelfde orde van grootte als in de rest van Gelderland en Nederland.

Grondwaterstand

Uitspoelende stoffen worden eerder aangetroffen in het ondiepe grondwater wanneer de grondwaterstand hoger is. Er is echter geen eenduidige relatie tussen grondwaterstand en concentraties in het diepe grondwater, omdat hier veel (meer) processen een rol spelen.

De bemonsterde bedrijfsterreinen hebben volgens de geografische analyse een relatief hoge grondwaterstand t.o.v. de mediaan in Gelderland en de mediaan in Nederland. Dus de bemonsterde terreinen passen bij de aanpak van deze studie, waarin een zo groot mogelijke kans op uitspoeling naar het grondwater werd nagestreefd.

Drainage & greppels

Drainage en greppels zorgen voor versnelde afvoer naar nabijgelegen waterlopen. Dit kan leiden tot relatief hogere risico's voor het aquatisch ecosysteem.

Van de bemonsterde locaties was volgens de geografische analyse één locatie gedraineerd (VC), maar de veehouder had al bij de intake laten weten dat deze defect was. Een locatie had greppels (KB, het perceel zonder kavelsloten). Het kan niet geheel uitgesloten worden dat deze oude drains en/of de greppels afspoeling hebben bevorderd, maar de overige acht locaties voldeden aan het streven naar een zo hoog mogelijke kans op uitspoeling naar het grondwater.

5.4 Kanttekeningen bij de aanpak & methoden

Monsterfrequentie

De onderzochte bedrijfsterreinen zijn vijfmaal bezocht in een periode van vier maanden. Alleen de bodem is op alle vijf de tijdstippen bemonsterd, het grondwater werd driemaal bemonsterd en het oppervlaktewater en sediment beide tweemaal. De korte duur en de lage monsterfrequentie in het onderzoek zijn niet voldoende om een compleet beeld van het concentratieverloop van iedere individuele gemeten stof te verkrijgen en waarschijnlijk ook niet van de piekconcentraties.

De mest is eenmalig bemonsterd. De aangetroffen diergeneesmiddelen in de mestmonsters geven echter een redelijk goed beeld als deze met het gemelde diergeneesmiddelengebruik worden vergeleken.

Monstermethoden

De monsternamen van de bodem met gatsboren vond op alle terreinen plaats over een diepte van ca. 25 cm. Hiervoor is gekozen, omdat de mestinjectie op akkers meestal ook over zo'n 25 cm plaatsvindt (en in grasland over 10 cm). Een grotere boordiepte kan leiden tot 'verdunding'. De akkers werden kort na de injectie van mest geploegd, wat het concentratieprofiel in de bodem danig zal hebben veranderd (het grasland van bedrijf VB werd niet geploegd).

De monsternamen van het grondwater en oppervlaktewater werd uitgevoerd met methoden die veel overeenkomst vertoonden met de norm van de NEN (1991) voor grondwater en de methoden die in het Landelijk Meetnet evaluatie Mestbeleid (LMM) worden gebruikt. Het grondwater werd tijdens monsternamen gefiltreerd over een filter met een poriëgrootte 0,45 µm en bevat daarom in principe geen zwevende stof. Het oppervlaktewater daarentegen werd niet gefiltreerd en kan dus wel zwevende stof bevatten.

Chemische analyses

De meeste diergeneesmiddelen waarvan het gebruik gemeld is door de veehouders zaten in de toegepaste chemische analysepakketten van het RIKILT (behalve de aminoglycosiden en β -lactams; de laatste groep bevat de penicillines). Enkele andere gebruikte stoffen zijn nog wel speciaal aan de pakketten toegevoegd: avermectines, toltrazuril en ponazuril. De enige middelen die wel gebruikt zijn op de bedrijven en waarvan een snelle afbraak niet op voorhand kon worden aangenomen, waren het antibioticum florfenicol (gebruikt op vier bedrijven in 2016-2017)), de aminoglycosiden paromomycine en gentamicine (ieder gemeld door één bedrijf) en het coccidiostaticum diclazuril (gemeld door één bedrijf). Van deze vier stoffen bevat het onderzoek echter geen concentratiemetingen.

Een andere vraag m.b.t. de chemische analyses is of de kwantificeringslimieten van de methoden voldoende waren om de onderzochte verbindingen aan te treffen. In de mest gedetecteerde persistente diergeneesmiddelen werden in de meeste gevallen ook in de bodem aangetroffen kort na mestinjectie. Voorbeelden hiervan zijn oxytetracycline, flumequine, tilmicosine, flubendazol en toltrazuril (voor de laatste stof betreft het onbevestigde concentraties). Andere in mest gevonden verbindingen werden niet of nauwelijks aangetroffen in de bodem direct na mesttoediening. Dit kan duiden op afbraak van stoffen als deze in de mest wel in hoge concentraties werden gevonden (mogelijk voor doxycycline en misschien ciprofloxacin) of op een te hoge kwantificeringslimiet voor verbindingen die in lagere concentraties in de mest werden gevonden (mogelijk voor ivermectine en sulfadiazine en misschien voor tylosine en enrofloxacin).

Of de kwantificeringslimieten ook voldoende waren om de diergeneesmiddelen in de andere drie milieucompartimenten terug te vinden is lastiger vast te stellen, omdat niet bekend is welke concentraties van iedere stof werden verwacht. De kwantificeringslimieten voor het sediment waren meestal vergelijkbaar met die voor de bodem. De kwantificeringslimieten in water voor sommige middelen in onze studie waren soms iets hoger dan in andere studies, bijvoorbeeld voor tetracyclines en sulfonamiden (zie Schilt & Van de Lagemaat, 2009; Kivit e.a., 2017) en in andere gevallen vergelijkbaar (Verhagen & Ottow, 2017). Voor deze studie zijn vanwege het verkennende karakter zeer brede pakketten van middelen geanalyseerd. Dit kan soms iets hogere kwantificeringsgrenzen tot gevolg hebben dan wanneer men op minder stoffen focust.

De kwantificeringsgrenzen voor hormonen waren in het algemeen zeer laag (0,5-3 ng/L in water, 0,5-2 µg/kg in vaste monsters) doordat deze met een gaschromatograaf (GC) gemeten kunnen worden in plaats van een vloeistofchromatograaf (LC).

De tweede meetserie (T4) voor de benzimidazolen had last van zogenaamde stoorpieken. Dit zijn andere componenten in het apparaat of in de matrix die in de weg zitten bij de analyse, waardoor de kwantificeringslimieten hoger liggen in deze specifieke serie (zie Bijlage 1). Kennelijk waren deze monsters 'viezer' of heeft de apparatuur niet optimaal (maar wel binnen de geteste functionele criteria) gewerkt.

6 Conclusies

Het onderzoek in dit rapport werd uitgevoerd met als doel om na te gaan in hoeverre diergeneesmiddelen en natuurlijke hormonen die via drijfmest op het land komen worden teruggevonden in het milieu van de bemeste percelen. Vanwege de veronderstelling dat in de kalver- en varkenshouderij veel diergeneesmiddelen worden gebruikt, werden in Gelderland vijf bedrijven uit iedere sector onderzocht. Het onderzoek richtte zich op de mest, de bodem en het risico van uitspoeling naar grond- en oppervlaktewater. De geselecteerde bedrijven en hun percelen lagen daarom op zandgrond. Voorafgaand aan de mesttoediening werd een monster van de mest zelf genomen en op diverse tijdstippen voor en na de mestinjectie werden de bodem, het grondwater en het oppervlaktewater en sediment van kavelsloten naast de bemeste percelen bemonsterd. In al deze monsters werden de concentraties van een groot aantal antibiotica, antiparasitaire middelen, coccidiostatica en natuurlijke hormonen bepaald.

De conclusies van het onderzoek worden hieronder per milieucompartiment samengevat. Daarna wordt een samenvattende conclusie getrokken.

Bodem

De drijfmest van kalveren en varkens bevatte aanzienlijke concentraties van diverse antibiotica. Na injectie van kalvermest werden in de bodems van veel percelen antibiotica aangetroffen. Oxytetracycline (een tetracycline) nam duidelijk toe als gevolg van de mesttoediening en in de vier maanden na bemesting langzaam af. Twee andere veelgebruikte antibiotica, flumequine (een quinolone) en tilmicosine (een macrolide), bleken al aanwezig vóór mestinjectie en werden eveneens in de bodem gevonden tot vier maanden na bemesting. Van beide stoffen is bekend dat deze persistent en sterk sorptief zijn (Lahr e.a., 2017).

In de bodems van zowel percelen met kalvermest als varkensmest werd veelvuldig chloortetracycline aangetroffen. Ofschoon chloortetracycline ook wordt toegepast als antibioticum, is het niet gebruikt op de onderzochte bedrijven en werd het ook niet in de drijfmest gevonden. De veronderstelling is dat chloortetracycline in de bodem uit andere tetracyclines of op natuurlijke wijze wordt gevormd, mogelijk door de actinomyceten van het geslacht *Streptomyces*.

In de bodems van de percelen waar varkensmest werd toegediend werden, behalve chloortetracycline, veel minder antibiotica gevonden. Daarentegen bevatten deze bodems wel resten van het antiparasitaire middel flubendazol (en de metaboliet aminoflubendazol) en mogelijk (onbevestigde concentraties) van het coccidiostaticum toltrazuril (en het omzettingsproduct ponazuril).

Oestrogene (vrouwelijke) natuurlijke hormonen werden vooral gevonden in de bodems van de percelen waar varkensmest was verspreid. De concentraties 17 β -oestradiol en oestron namen duidelijk toe na mesttoediening, maar beide stoffen verdwenen vrijwel volledig in de vier maanden erna. Androgene (mannelijke) natuurlijke hormonen werden vastgesteld in zowel de bodems van de percelen waar kalver- als varkensmest werd verspreid, met name androstendion en β -testosteron.

Het zwangerschapshormoon progesteron werd in bijna alle bodemmonsters uit het onderzoek in lage concentraties gevonden. Het zat echter niet in kalver- of varkensmest. De oorsprong van de stof is onduidelijk.

Grondwater

In het grondwater van de bemeste percelen werden minder vaak diergeneesmiddelen en hormonen uit drijfmest teruggevonden dan in de bodem. Desondanks werden er regelmatig enkele stoffen waargenomen. Dit betrof de meer mobiele antibiotica, zoals sulfadiazine en sulfadimidine (sulfonamiden), het coccidiostaticum toltrazuril(-sulfon) en het zwangerschapshormoon progesteron. Sulfadiazine kwam voor in de drijfmest. De oorsprong van sulfadimidine is echter onduidelijk.

Incidenteel werden andere stoffen in het grondwater gevonden, zoals het antibioticum tiamulin, het antiparasiticum emamectine en het vrouwelijke hormoon oestron (één uit dertig monsters).

Oppervlaktewater

De enige stof die veelvuldig boven de kwantificatielimiët in het oppervlaktewater van de sloten en greppels naast de bemonsterde percelen werd gevonden, is het zwangerschapshormoon progesteron. Net als in de bodems en het grondwater van de bemonsterde percelen betrof het lage concentraties.

Incidenteel werden in de sloten rondom de percelen andere stoffen aangetroffen, zoals oxytetracycline, sulfadimidine, het antiparasiticum ivermectine en toltrazuril(-sulfon). Oxytetracycline en ivermectine staan niet te boek als mobiele stoffen, sulfadimidine en toltrazuril(-sulfon) wel. Doordat de oppervlaktewatermonsters niet werden gefiltreerd, is het aannemelijk dat de gedetecteerde oxytetracycline en ivermectine aan in de watermonsters aanwezige zwevende stof was gehecht.

Sediment

Het bemonsterde sediment van de sloten en greppels naast de bemeste percelen bevatte met enige regelmaat diergeneesmiddelen die zich goed aan deeltjes hechten, met name flumequine (bij zowel percelen met kalver- als varkensmest) en daarnaast chloortetracycline en (amino)flubendazol (alleen bij percelen met varkensmest). Incidenteel werden oxytetracycline, doxycycline, sulfadimidine en oestron waargenomen. Progesteron kwam in de meeste sedimentmonsters in lage concentraties voor.

Beken

In het oppervlaktewater en sediment van een vijftal Gelderse beken in veehouderijgebieden die eenmalig werden bemonsterd (juli 2017) werd slechts in één geval een diergeneesmiddel gevonden, sulfadiazine in de Hierdensche Beek. Daarnaast werden in alle beken een of meerdere natuurlijke hormonen gemeten. De Moorsterbeek bevatte diverse vrouwelijke en mannelijke steroidhormonen. Of deze van een menselijke bron of uit de veehouderij afkomstig waren, valt niet met zekerheid te zeggen. Lozing vanuit een RWZI of riooloverstort kan worden uitgesloten. Daarnaast werden ook in het water van vier van de vijf beken lage concentraties progesteron gedetecteerd. In het sediment werd slechts bij één beek iets gemeten, een lage concentratie oestron (Beurzerbeek).

Overschrijdingen grenswaarden

Voor de stoffen uit het onderzoek bestaan nog geen normen in het milieu. De concentraties werden daarom vergeleken met een aantal Predicted No Effect Concentrations (oppervlaktewater), signaleringswaarden (grondwater) of 'action limits' (bodem).

In drie gevallen werd een overschrijding van de action limit in de bodem geconstateerd, tweemaal voor oxytetracycline en eenmaal voor doxycycline. De action limits werden overschreden met een factor 1,06 tot 1,5. In alle drie gevallen betrof het percelen na toediening van kalverdrijfmest. Overschrijding van de action limits indiceert dat er een meer gedetailleerde milieubeoordeling voor deze stoffen zou moeten komen in het kader van de toelating.

In het grondwater van één perceel werd éénmalig de signaleringswaarde van 0,1 µg/L overschreden voor het antibioticum sulfadimidine (0,18 µg/L) vier maanden na de toediening van kalvermest. De andere gemeten concentraties diergeneesmiddelen en hormonen in grondwater waren lager dan de signaleringswaarde. De overschrijding van de signaleringswaarde door sulfadimidine is opvallend, omdat de herkomst van dit antibioticum onduidelijk is. Het werd tijdens het onderzoek niet of nauwelijks in de mest gevonden.

In het oppervlaktewater van een sloot naast één perceel werd voor de verspreiding van varkensmest de signaleringswaarde overschreden door oxytetracycline in een iets troebel monster (0,144 µg/L). Verder werden er in het oppervlaktewater en het sediment van de sloten en greppels rond de percelen geen overschrijdingen geconstateerd.

Samenvattende conclusie

Gericht onderzoek naar diergeneesmiddelen in mest en na verspreiding op het land in bodem, grondwater, oppervlaktewater en sediment in Nederland is tot op heden slechts beperkt uitgevoerd. Het huidige onderzoek vormt een belangrijke uitbreiding en bevestigt in grote lijnen de resultaten van eerdere onderzoeken naar diergeneesmiddelen en hormonen in binnen- en buitenland.

De onderzochte stoffen werden frequent en in concentraties tot bijna 5000 µg/kg aangetroffen in mest. In de bodem zijn de concentraties lager, tot rond de 100 µg/kg. Het betreft met name tetracyclines, maar ook flumequine, tilmicosine, flubendazol en toltruzaril (onbevestigde metingen in bodem) werden veelvuldig aangetroffen.

In zowel ondiep (dit onderzoek) als diep grondwater (onderzoek elders) werden met name sulfonamiden, maar ook enkele andere diergeneesmiddelen en natuurlijke hormonen aangetroffen, zij het niet zeer frequent en meestal in concentraties tot maximaal enkele tientallen ng/L. In het huidige onderzoek en ook elders in Gelderland worden uitschieters van sulfadimidine tot boven de signaleringswaarde van 0,1 µg/L gevonden.

Ook in oppervlaktewater van perceelstoppen en Gelderse beken worden enkele diergeneesmiddelen aangetroffen, zij het ook niet frequent, en meestal in concentraties tot enkele tientallen ng/L. Incidenteel worden in oppervlaktewater relatief hoge concentraties aangetroffen van stoffen die op basis van stoffeigenschappen niet mobiel zijn (het antiparasiticum ivermectine en tetracyclines). Het is waarschijnlijk dat deze stoffen aan in het water aanwezig zwevend stof zijn gebonden. In sediment zijn enkele diergeneesmiddelen aangetroffen tot enkele tientallen µg/kg.

7 Aanbevelingen

7.1 Verder onderzoek

Het in dit rapport beschreven onderzoek betreft een verkennende studie. Ofschoon het onderzoek veel kennis heeft opgeleverd, blijven sommige waarnemingen moeilijk verklaarbaar of roepen deze nieuwe vragen op. Daarnaast zijn de auteurs van mening dat sommige zaken beter moeten worden uitgezocht. Hieronder volgt een korte opsomming.

Andere veehouderijsectoren

Het onderzoek richtte zich op twee veehouderijsectoren, de intensieve kalverhouderij en varkenshouderij. Dit zijn ook de twee sectoren waarvan de gebruikte diergeneesmiddelen al eerder onder de loep werden genomen (Lahr e.a., 2017). Naast de kalver- en varkenshouderij zouden ook andere, al dan niet intensieve sectoren kunnen worden onderzocht met een ander diergeneesmiddelengebruik en andere afzetpatroon van de mest: de pluimveehouderij (hoog gebruik coccidiostatica, mest bijna niet op het land verspreid), de melkveehouderij (waarschijnlijk een lager diergeneesmiddelengebruik, maar klopt dit?), de geitenhouderij, schapenhouderij, paardenhouderij etc.

Nader onderzoek naar uitspoeling & afspoeling

Het huidige onderzoek richtte zich met name op het scenario van uitspoeling via zandige bodems. Andere veehouderijbedrijven zetten hun mest af op kleibodems. Deze zijn vaak gedraineerd, waardoor stoffen het oppervlaktewater sneller bereiken. Onderzoek uit Duitsland laat zien dat dit zeker een belangrijke rol kan spelen. Ook kan er bij hevige regenval oppervlakkige afspoeling plaatsvinden en vindt er in kleibodems uitspoeling plaats via preferente stroming door scheuren. De lotgevallen van diergeneesmiddelen in dit soort situaties zijn nog onvoldoende bekend.

Binnen de vier maanden dat het onderzoek duurde, bleek dat diergeneesmiddelen uit drijfmest niet op grote schaal uitspoelden naar het grond- en oppervlaktewater. Wel bevestigden de waarnemingen dat dit soms gebeurt. Uitspoeling verschilt sterk per diergeneesmiddel en is verder afhankelijk van lokale factoren, zoals bodemgesteldheid en de lokale neerslag. Het is niet duidelijk of de duur en de monsterfrequentie van het grondwater en oppervlaktewater afdoende waren om de uitspoeling goed te meten, met name de pieken ervan. Daarom wordt aanbevolen om op een beperkt aantal percelen een langduriger onderzoek uit te voeren naar de lotgevallen van diergeneesmiddelen uit dierlijke mest waarbij het grondwater (ondiep en diep) en het oppervlaktewater regelmatig bemonsterd worden, bijvoorbeeld een onderzoek van één à twee jaar met een jaarlijkse toediening van drijfmest, waarbij iedere week wordt bemonsterd.

Monitoring regionale wateren

In alle vijf onderzochte beken werden diergeneesmiddelen en hormonen aangetroffen. Dit vraagt om een grootschaliger onderzoek of om monitoring om de aanwezigheid en verspreiding nader in kaart te brengen. Te denken valt aan regelmatige metingen in verscheidene wateren die onder invloed staan van veehouderijgebieden maar geen lozing kennen vanuit RWZI's, riooloverstorten e.d., bijvoorbeeld locaties uit het Meetnet Nutriënten Landbouw Specifiek Oppervlaktewater (MNLISO). Een geschikte 'passive sampling' methode voor diergeneesmiddelen zou voor dit soort onderzoek en monitoring van grote waarde kunnen zijn.

Opvallende stoffen

'Extraordinary claims need extraordinary proof.' Aan de hand van het onderzoek wordt geconcludeerd dat een aantal gebruikte diergeneesmiddelen uiterst persistent is, o.a. flumequine, tilmicosine en toltrazuril (en mogelijk ook tetracycline, flubendazol en enkele mannelijke hormonen), mede omdat zij al voor de toediening van de mest in de bodem van de onderzochte percelen werden aangetroffen. Deze conclusies dienen nader onderbouwd te worden met literatuur of empirisch onderzoek, waarbij

ook de historie van gebruik van de middelen en de bemesting over de voorgaande jaren moet worden geëvalueerd.

Van een aantal onderzochte stoffen bleek de verspreiding verder onverwacht:

- *Chloortetracycline* – Werd nauwelijks in de mestmonsters gevonden, maar wel overal in bodems en ook in sediment. Mogelijk op natuurlijke wijze geproduceerd.
- *Sulfadimidine* – Werd nauwelijks in mest, maar wel regelmatig in grond- en oppervlaktewatermonsters aangetroffen en is tevens bekend uit diepe drinkwaterputten. Oorsprong onduidelijk, maar misschien zeer persistent.
- *Ivermectine* – Veelgebruikt in de kalverhouderij. Wel in mest aangetroffen, maar bijna niet in het milieu (de ene waarneming in oppervlaktewater overschreed de ecologische effectdrempel). Toch is bekend dat deze toxische stof zeer persistent kan zijn.
- *Progesteron* – Dit zwangerschapshormoon werd ook nauwelijks in de mest gemeten, maar kwam in lage concentraties voor in alle milieucompartimenten uit het huidige onderzoek, inclusief de vijf Gelderse beken.

Naar de oorsprong en lotgevallen van deze stoffen wordt daarom verder onderzoek aanbevolen.

Modelleren

Uitgebreid veldonderzoek naar lotgevallen van diergeneesmiddelen kost tijd en geld. Vanwege de vele stoffen en lange tijdsschaal zou een alternatief zijn om te modelleren. Met modellen kunnen voorspellingen worden gedaan over de lotgevallen van stoffen in de verschillende milieucompartimenten. Lahr e.a. (2017) toonden aan dat voor veel van de actieve stoffen in diergeneesmiddelen die in de kalver- en varkenshouderij worden toegepast gegevens in de openbare literatuur te vinden zijn over hun fysische en chemische eigenschappen. Daarnaast is de verwachting dat dit soort gegevens in de toekomst eenvoudiger beschikbaar komt uit de toelatingsdossiers. Bestaande lotgevallenmodellen voor bestrijdingsmiddelen, zoals PEARL en GeoPEARL, kunnen eenvoudig geschikt worden gemaakt voor diergeneesmiddelen (Lahr & Van den Berg, 2009).

Effecten & risico's

Als laatste wordt hier geconstateerd dat, nu er steeds meer bekend wordt over de aanwezigheid en lotgevallen van diergeneesmiddelen in het milieu, er behoefte ontstaat om de gevonden concentraties beter te duiden in termen van risico's voor de gezondheid van mens (drinkwater, opname vanuit de bodem in voedselgewassen) en het ecosysteem. Er zijn echter van veel diergeneesmiddelen maar weinig effectgegevens bekend en/of openbaar. Daarnaast worden diergeneesmiddelen vaak getest met standaard ecologische toxiciteitstesten die ooit zijn ontworpen om effecten te detecteren van gewasbeschermingsmiddelen, metalen etc. Voor het bepalen van de toxiciteit van veelgebruikte diergeneesmiddelen als antibiotica en antiparasitica zouden bijvoorbeeld toetsen voor effecten op respectievelijk bacteriën en op nematoden ontwikkeld kunnen worden.

7.2 Handelingsperspectief

De Provincie Gelderland en de andere stakeholders hebben bij aanvang van het onderzoek aangegeven de resultaten, mocht daar aanleiding voor zijn, na uitvoering van het meetplan te willen gebruiken voor:

- Agenderen van het onderwerp diergeneesmiddelen bij het Rijk.
- Inzicht krijgen in het handelingsperspectief van de regionale partners.

Hier wordt kort ingegaan op het handelingsperspectief door enkele mogelijkheden te schetsen. Dit betreft echter geen uitputtende inventarisatie. Daarnaast betreffen het geen harde aanbevelingen, maar een overzicht van mogelijke oplossingsrichtingen.

Reductie medicijngebruik

Een aantal opties in de veehouderij zelf zou verkend kunnen worden. Weerbaar en gezond vee leidt tot een verminderd diergeneesmiddelenverbruik. Wat zijn de mogelijkheden om bijvoorbeeld meer weerbare rassen van dieren te houden of om door middel van de voeding de gezondheid te

versterken? Is het bijvoorbeeld mogelijk en economisch haalbaar om door meer medische analyses op bedrijven het aantal (koppel)kuren te verminderen? En zijn er alternatieve, minder persistente middelen beschikbaar met eenzelfde werking? Het antibioticagebruik is in de veehouderij de afgelopen jaren natuurlijk al drastisch verminderd, dus het is de vraag of alle opties niet al zijn uitgeput. Maar op het gebied van het gebruik van antiparasitaire middelen zijn er wellicht nog mogelijkheden.

Processturing tijdens mestopslag

De drijfmest van dieren uit de intensieve veehouderij verblijft de hele winter in de mestkelder. De veronderstelling is dat het diepere gedeelte van de mestkelder anaeroob is. Het is bekend dat onder dit soort omstandigheden organische verbindingen als diergeneesmiddelen langzamer afbreken. Zijn er misschien mogelijkheden de afbraak te bevorderen zonder dat de dieren in de stal hier last van hebben? Of zijn er andere mogelijkheden tot (voor)behandeling op het bedrijf zelf?

Mesttoediening

De injectie van drijfmest is in het leven geroepen om ammoniakemissies naar de lucht te reduceren. De vraag is of er omstandigheden mogelijk kunnen zijn waaronder de mest toch op een verantwoorde wijze op het oppervlak van akkers en graslanden mag worden verspreid. De aerobe omstandigheden leiden in dat geval waarschijnlijk tot een betere afbraak van sommige, niet-persistente diergeneesmiddelen voordat zij in de bodem en het grondwater terechtkomen.

Mestverwerking

Mestverwerking is uiteraard een end-of-pipe-oplossing. Toch wordt de drijfmest van kalveren en varkens uit de Nederlandse intensieve veehouderij al in toenemende mate verwerkt. De lotgevallen van diergeneesmiddelen in deze processen zijn tot op heden weinig onderzocht (zie Lahr e.a., 2014), maar zulk onderzoek wordt thans wel gepland. Afhankelijk van het proces en de afzet van de producten hiervan, komen diergeneesmiddelen al dan niet alsnog in het milieu terecht. Indien dit zo is, zou onderzoek moeten worden of de gebruikte processen verder te optimaliseren of aan te vullen zijn om een verdere afbraak van diergeneesmiddelen te bevorderen.

Literatuur

- Berendsen, B.J.A., R.S. Wegh, J. Memelink, T. Zuidema & L.A.M. Stolker, 2015. The analysis of animal faeces as a tool to monitor antibiotic usage. *Talanta* 132: 258–268.
- Boxall, A.B.A., L. Fogg, P.A. Blackwell, P. Kay & E.J. Pemberton, 2003. Review of veterinary medicines in the environment. R&D Technical Report P6-012/8/TR, Environmental Agency, Bristol, UK.
- Darken, M.A., H. Berenson, R.J. Shirk & N.O. Sjolander, 1960. Production of tetracycline by *Streptomyces aureofaciens* in synthetic media. *Applied Microbiology* 8: 46–51.
- De Vries, F., 1999. Karakterisering van Nederlandse gronden naar fysisch-chemische kenmerken. Rapport 654, DLO-Staring Centrum, Wageningen.
- Derksen, J.G.M. & T.L. ter Laak, 2013. Humane geneesmiddelen in de waterketen. STOWA-rapport nr. 2013-06/KWR-rapport nr. 2013-006., STOWA, Amersfoort.
- D'Hoe, K., W.J. Last, P. Mölder & J.C. Vendrig, 2017. Formularium voor vleeskalveren en vleesvee. Koninklijke Nederlandse Maatschappij voor Diergeneeskunde, Werkgroep Veterinair Antibioticum Beleid, 41 pp.
- Drinkwaterbesluit, 2015. <http://wetten.overheid.nl/BWBR0030111/2015-11-28>.
- EMA, 2008. Revised guideline on environmental impact assessment for veterinary medicinal products in support of the VICH guidelines GL6 and GL38. Report no. EMA/CVMP/ERA/418282/2005-Rev.1. European Medicines Agency, London, UK.
- Emerson de Lima Procópio, R., I. Reis da Silva, M. Kassawara Martinsa, J. Lúcio de Azevedoa & J. Magali de Araújo, 2012. Antibiotics produced by *Streptomyces*. *Brazilian Journal of Infectious Diseases* 16: 466–471.
- Gies, T.J.A., J. van Os, R.A. Smidt, H.S.D. Naef & E.C. Vos, 2015. Geografisch Informatiesysteem Agrarische Bedrijven (GIAB). Gebruikershandleiding 2010. WOt-technical report no. 40, Wot, Wageningen.
- Grung, M., E. Heimstad, M. Moe, M. Schlabach, A. Svenson, K. Thomas & A. Woldegiorgis, 2007. Human and veterinary pharmaceuticals, narcotics, and personal care products in the environment. Current state of knowledge and monitoring requirements. Report no. 2325/2007, IVL (Sweden), NILU (Norway) & NIVA (Norway).
- Hannappel, S., J. Groeneweg & S. Zühlke, 2014. Antibiotika und Antiparasitika im Grundwasser unter Standorten mit hoher Viehbesatzdichte. UBA-texte 27/2014, Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, Duitsland.
- Hannappel, S. & S. Zühlke, 2016. Aufklärung der Ursachen von Tierarzneimittel- funden im Grundwasser – Untersuchung eintragsgefährdeter Standorte in Norddeutschland. UBA-texte 54/2016, Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, Duitsland.
- Helpdesk Water.
<https://www.helpdeskwater.nl/onderwerpen/gebruiksfuncties/drinkwater/@178632/protocol-monitoring/>
- Hembrock-Heger, A., M. Nießner & R. Reupert, 2011. Tierarzneimittel in landwirtschaftlich genutzten Böden und oberflächennahem Grundwasser in Nordrhein-Westfalen. *Bodenschutz* 4 (2011): 109–113.
- IAWR, 2013. Memorandum regarding the protection of European rivers and watercourses in order to protect the provision of drinking water. Internationale Arbeitsgemeinschaft der Wasserwerke im Rheineinzugsgebiet, Düsseldorf, Duitsland.
- Jongmans, A.G., M.W. van den Berg, M.P.W. Sonneveld, G. Peek & R. van den Berg van Saparoea, 2012. De landschappen van Nederland; geologie, bodem, landgebruik. Wageningen Academic Publishers, Wageningen.
- Kivit, T., H.P. Broers, H. Beeltje, J. Griffioen & M. van Vliet, 2017. Antibiotics in the groundwater beneath areas with intensive livestock farming. *H2O Water Matters*, edition 1/2017.
<http://www.h2o-watermatters.com/?ed=201706>
- Lahr, J. & F. van den Berg, 2009. Uitspoelconcentraties en persistentie van antibiotica in de bodem berekend met het GeoPEARL 3.3.3 model. Rapport nr. 1922, Alterra, Wageningen UR, 62p.

- Lahr, J., W.J. Dimmers, R. Schilt, P. Boshuis, H. Schmitt & J. van Schijndel, 2010. Natural hormones in soil and ground water after the injection of pig slurry into the soil of arable fields. Poster presentation. In: SETAC Europe 20th annual meeting, Sevilla, Spain, 23 - 27 May, 2010.
- Lahr, J., T.L. ter Laak & A. Derksen, 2014. Screening van hot spots van nieuwe verontreinigingen. Een pilot studie in bodem, grondwater en oppervlaktewater. Rapport nr. 2538, Alterra, Wageningen UR, 87p.
- Lahr, J., L. Wipfler, N. Bondt, T. de Koeijer, B. Berendsen, P. Hoeksma, L. van Overbeek & D. Mevius, 2017. Aanzet tot een milieuprioritering van diergeneesmiddelen uit dierlijke mest. H₂O Water Matters, december 2017: 8-11.
- LMM, zonder datum. http://www.rivm.nl/Onderwerpen/L/Landelijk_Meetnet_effecten_Mestbeleid/Metingen_wat_en_hoe/Monsternemingsmethoden.
- Massop, H.Th.L. & C. Schuiling, 2016. Buisdrainagekaart 2015. Update landelijke buisdrainagekaart op basis van de landbouwmetingen van 2012. Alterra-rapport nr. 2700, Alterra, Wageningen.
- Montforts, M.H.M.M., G.B.J. Rijs, J.A. Staeb & H. Schmitt, 2007. Diergeneesmiddelen en natuurlijke hormonen in oppervlaktewater van gebieden met intensieve veehouderij. Rapport nr. 601500004/2007, RIVM, Bilthoven, 70p.
- Naeff, H.S.D., 2016. Geactualiseerd GIAB-bestand 2015 voor Nederland. Bijlagen bij de bestanden op de GIAB\$ schijf/ GIAB / 2015 (intern document Wageningen Environmental Research, Wageningen)
- NEN, 1991. Soil - Sampling of groundwater for the determination of metals, inorganic compounds, moderate volatile organic compounds and physico-chemical properties. Dutch Institute for Normalisation the Netherlands, 4p.
- NORMAN Ecotox database: www.norman-network.net.
- Oudendijk, M. (in prep). Diergeneesmiddelen-onderzoek gebied Piet Oberman. Waterschap Zuiderzeeland, Lelystad.
- Rougoor, C.W., A.B. Allema, P.C. Leendertse & J. van Vliet, 2016. Diergeneesmiddelen en waterkwaliteit. Een verkenning van stoffen, gebruik en effecten op waterkwaliteit. Rapport nr. 2016/26, STOWA, Amersfoort, 59p.
- RVO, 2016. Basisregistratie Gewaspercelen 2015. (GIS-bestand, Rijksdienst voor Ondernemend Nederland, via NationaalGeoregister.nl)
- Schilt, R. & D. van de Lagemaat, 2009. Rapportage deelresultaten project Antibiotica in de bodem. Deelrapport D: Antibiotica in de bodem: Onderzoek van grondwater, bodem en mest. Projectnummer PP8348, SKB, Gouda.
- Sjerps, R., M. Maessen, B. Raterman, T. ter Laak & P. Stuyfzand, 2017. Grondwaterkwaliteit Nederland 2015-2016. Chemie grondwatermeetnetten en nulmeting nieuwe stoffen. KWR-rapport nr. 2017.024, KWR Water Cycle Research, Nieuwegein.
- Ten Cate, J.A.M., A.F. van Holst, H. Kleijer & J. Stolp, 1995. Handleiding bodemgeografisch onderzoek; richtlijnen en voorschriften. Deel A: Bodem. Technisch Document 19A, DLO-Staring Centrum, Wageningen.
- Ter Laak, T. & S. Kools, 2016. Evaluatie diergeneesmiddelen in bronnen van Vitens. KWR-rapport nr. 2016.003, KWR Water Cycle Research, Nieuwegein, 16p.
- Ter Laak, T., R. Sjerps & S. Kools, 2017. Quick-scan diergeneesmiddelen in de waterketen. KWR-rapport nr. 2017.037, KWR Water Cycle Research, Nieuwegein, 49p.
- Van der Gaast, J.W.J., H.R.J. Vroon & H.Th.L. Massop, 2010. Grondwaterregime op basis van karteerbare kenmerken, STOWA-rapport nr. 2010-41, STOWA, Amersfoort.
- Van der Kooij, D., J. van Genderen, M.B. Heringa, A.C. Hogenboom, C. de Hoogh, M.N. Mons, L. Puijker, N. Slaats, J. Vreeburg & A.P. van Wezel, 2010. Drinkwaterkwaliteit Q21. KWR Water Cycle Research Institute, Nieuwegein, 155p.
- Van der Linden, A.M.A., J. Lahr, P. van Beelen & E.L. Wipfler, 2017. Inventarisatie mogelijke risico's van antiparasitaire diergeneesmiddelen voor grondwater en oppervlaktewater. RIVM Briefrapport 2017-0009, Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu, Bilthoven, 50p.
- Van Duijkeren, E., A.S.J.P.A.M. van Miert, A. van Nes & J.H.A. van der Wielen, 2012. Formularium varken. Koninklijke Nederlandse Maatschappij voor Diergeneeskunde, Werkgroep Veterinair Antibioticum Beleid, 14 pp.
- Van Schijndel, J., J. Oosterwegel, R. Liefers, H. Schmitt, R. Schilt & J. Lahr, 2009. Antibiotica in de bodem: een pilotstudie. Rapport nr. PP8348, Stichting Kennisontwikkeling en kennisoverdracht Bodem (SKB), Gouda, 25p.

-
- Veldman, K.T., D.J. Mevius, B. Wit, D. van Pelt & D. Heederik, 2017. MARAN 2017. Monitoring of Antimicrobial Resistance and Antibiotic Usage in Animals in the Netherlands in 2016. Report, Wageningen Bioveterinary Research (WBVR) in collaboration with the Food and Consumer Product Safety Authority (NVWA), the National Institute for Public Health and the Environment (RIVM) and the Netherlands Veterinary Medicines Authority (SDa), Lelystad.
- Verhagen, F. & B.P. Ottow, 2017. Rapportage meetronde grondwaterkwaliteit provincie Gelderland 2015. Referentie nr. WATBE6478101100R002WM, Royal Haskoning DHV, Amersfoort, 63p.
- Vethaak, A.D., G.B.J. Rijs, S.M. Schrap, H. Ruiters, A. Gerritsen & J. Lahr, 2002. Estrogens and xenoestrogens in the aquatic environment of the Netherlands. Occurrence, potency and biological effects. Report 2002.001, RIZA/RIKZ, Directorate-General for Public Works and Water Management, The Hague, 293p.
- Vethaak, A.D., J. Lahr, S.M. Schrap, A.C. Belfroid, G.B.J. Rijs, A. Gerritsen, J. de Boer, A.S. Bulder, G.C.M. Grinwis, R.V. Kuiper, J. Legler, T.A.J. Murk, W. Peijnenburg, H.J.M. Verhaar & P. de Voogt, 2005. An integrated assessment of estrogenic contamination and biological effects in the aquatic environment in The Netherlands. *Chemosphere* 59: 511-524.
- Vissers, M., L. Vergouwen & S. Hoegen, 2014. Quicksan geneesmiddelen Provincie Gelderland. Grond- en oppervlaktewaterkwaliteit geneesmiddelen. Referentie nr. GM-0141870, Grontmij, De Bilt, 60p.
- Weiß, K., 2008. Austrag von Tierarzneimitteln aus Wirtschaftsdünger in Sickerwasser, Grundwasser und oberirdische Gewässer. Bayerisches Landesamt für Umwelt, Augsburg.
- Wenkai Zhao, 2015. A pre-study on the potential risk of veterinary pharmaceuticals in Province of Flevoland. M.Sc. Internship, Wageningen University and Research centre. Commissioned by Waterschap Zuiderzeeland, Lelystad.

Bijlage 1 Analysepakketten & kwantificeringslimieten

Serie 1: monsters T0, T1, T2 & T3

Serie 2: monsters T4

NTB: niet te bepalen

Antibiotica

Stoffen-stofgroepen	Kwantificeringslimiet mest (µg/kg versgewicht)			Kwantificeringslimiet grond- & oppervlaktewater (ng/L)			Kwantificeringslimiet bodem & sediment (µg/kg versgewicht)					
	Min-Max	Mediaan		Min-Max	Mediaan		Min-Max	Mediaan	Serie 1	Serie 2	Serie 1	Serie 2
Tetracyclines												
Oxytetracycline	4	4		10-80	20	40	2-80	5-50	5	15		
Chloortetracycline	3-20	10		10-100	28	50	5-100	10-40	10	25		
Tetracycline	2-10	5		5-25	10	40	5-100	5-40	10	12,5		
Doxycycline	5-15	6		10-100	26	100	10-100	10-40	20	30		
Minocycline	5-50	25		100	100-NTB	100-NTB	NTB	NTB	NTB	NTB		
Methacycline	NTB	NTB		15-100	40	70	NTB	15-NTB	NTB	40		
Sulfonamiden												
Sulfadiazine	1	1		10-15	10	5	1-10	1-2	2	1		
Sulfathiazol	1-2	1		3-20	5	10	1-10	2-5	2	3		
Sulfapyridine	1	1		5-10	10	10	1-10	3-10	2	5		
Sulfamerazine	1	1		5-40	13	5	1-5	1	2	1		
Sulfamoxol	1-2	1		2-5	2	15	1-10	1	1	1		
Sulfadimidine	1	1		5-15	10	10	1-10	1	2	1		
Sulfamethizol	2-5	2		5-60	23	20	1-10	1-2	2	1		
Sulfamethoxypyridazine	1-2	2		15-50	20	25	3-10	1-2	10	2		
Sulfamonomethoxine	1-3	2		20-150	40	25	3-10	5-10	5	5		
Sulfachloorpyridazine	1	1		10-25	15	25	5-10	1-2	10	2		
Sulfadoxine	1-2	1		5-15	7,5	15	2-10	1	3	1		
Sulfamethoxazol	1-2	1		3-15	5	25	1-10	1	2	1		
Sulfisoxazol	1-3	2		15-80	30	15	1-10	1-2	2	2		
Sulfadimethoxine	1-5	2		15-40	15	10	1-10	2	1	2		
Sulfaquinoxaline	1-2	1		10-20	10	10	1-10	1	2	1		
Sulfacetamide	1	1		2-5	2	10	1-3	1	1	1		
Sulfaphenazol	3-15	5		20-70	25	NTB	5-10	5-10	10	10		
Trimethoprim	1	1		5-10	10	25	1-10	1	2	1		
Dapson	1	1		5-20	10	10	1-40	1-2	2	1		
Macroliden												
Erythromycine	1-20	8		15-200	60	15	1-10	2-20	2	5		

Stoffen-stofgroepen	Kwantificeringslimiet mest (µg/kg versgewicht)			Kwantificeringslimiet grond- & oppervlaktewater (ng/L)			Kwantificeringslimiet bodem & sediment (µg/kg versgewicht)					
	Min-Max	Mediaan	Serie 1	Serie 2	Min-Max	Mediaan	Mediaan		Min-Max		Mediaan	
							Serie 1	Serie 2	Serie 1	Serie 2	Serie 1	Serie 2
Tylosine	1-3	1	15-50	100-NTB	100-NTB	25	100-NTB	25	100-NTB	100-NTB	1-5	1-5
Josamycine	1-2	1	10-40	10-90	10-90	20	100	20	2-30	2-15	5	5
Spiramycine	2-25	15	100	100	100	100	100	100	2-25	20-40	5	40
Neospiramycine 1	1-15	4	50-NTB	100	100	50-NTB	100	100	10	10-50	10	15
Lincomycine	2-10	5	20-25	10-60	10-60	20	20	20	1-10	10-15	10	15
Tiamulin	1-2	1	5-25	2-25	2-25	10	5	5	1-5	2-15	3	3
Tulathromycine	NTB	NTB	100-NTB	100-NTB	100-NTB	100	NTB	NTB	10-NTB	NTB	40-NTB	NTB
Pirlimycine	1-2	2	5-20	5-60	5-60	10	15	15	1-40	3-25	1	10
Tilmicosine	1-2	1	20-60	15-100	15-100	30	40	40	1-40	1-5	12	2
Valnemulin	1-10	3	15-50	15-100	15-100	25	40	40	1-10	1-3	2	1
Yivalosine	1-3	2	100-NTB	10-70	10-70	100	15	15	1-5	2-20	5	5
Natamycin	NTB	NTB	NTB	100	100	NTB	100	100	5-10	5-40	10	10
Gamithromycine	1-3	1	30-150	25-100	25-100	50	45	45	2-40	5-30	10	10
Tildipirosine	NTB	NTB	3-200	100-NTB	100-NTB	25	100-NTB	2-NTB	NTB	NTB	10-NTB	NTB
Vancomycine	1-5	2	100	30-100	30-100	100	55	55	1-10	1-5	5	1
Azithromycine	1-5	2	30-150	10	10	50	10	10	1-5	2-20	5	5
Clarithromycine	1-2	1	10-25	2-20	2-20	15	5	5	1-5	1-5	5	1
Quinolonen												
Marbofloxacin	2-10	4	15-30	10-80	10-80	20	25	25	3-25	5-40	10	7,5
Norfloxacin	1-5	2	15-100	25-100	25-100	45	70	70	2-40	5-40	10	15
Ciprofloxacin	1-10	5	20-150	15-80	15-80	28	25	25	2-40	5-40	10	15
Danofloxacin	1-10	4	30-100	10-100	10-100	50	40	40	2-40	5-40	15	15
Enrofloxacin	2-10	5	30-100	15-100	15-100	50	50	50	1-25	3-40	10	15
Sarafloxacin	3-15	8	30-100	20-50	20-50	80	30	30	2-30	10-50	10	15
Difloxacin	3-25	13	30-100	20-60	20-60	80	50	50	2-30	5-40	10	15
Oxolinezuur	1-15	5	15-40	25-100	25-100	25	50	50	2-15	2-10	5	3
Nalidixinezuur	1-2	2	10-15	25-100	25-100	15	40	40	2-10	5-10	3	10
Flumequine	3-7	5	10-15	5-40	5-40	10	15	15	2-10	3-15	5	5
Levofloxacin-ofloxacin	1-15	5	15-40	20-100	20-100	25	40	40	2-10	2-10	2	2
Trovaflaxacin	2-15	8	40-100	10-25	10-25	90	15	15	2-40	10-40	10	15

Antiparasitaire middelen + Totrazuril (-sulfon)

Stoffen/stofgroepen	Kwantificeringslimiet mest (µg/kg versgewicht)			Kwantificeringslimiet grond- en oppervlaktewater (ng/L)			Kwantificeringslimiet bodem/sediment (µg/kg versgewicht)						
	Min-Max	Mediaan		Min-Max	Mediaan		Min-Max		Mediaan		Serie 1	Serie 2	
					Serie 1	Serie 2	Serie 1	Serie 2	Serie 1	Serie 2			
Benzimidazolen & metabolieten													
Albendazol	1-3	1	20-250	60-250	30	100	1	1	1	1	1	1	1
Albendazolsulfoxide	2-5	3	15-60	50-250	25	150	1	1	1	1	1	1	1
Albendazolsulfon	2-3	2	3-10	50-250	5	150	1-2	1	1	1	1	1	1
Albendazolaminosulfon	2-3	3	20-90	80-250	30	200	1	1	1	1	1	1	1
Fenbendazol	1-5	2	20-60	25-150	30	40	1	1	1	1	1	1	1
Fenbendazolsulfoxide (=Oxfendazol)	2-10	5	10-30	60-250	15	100	1	1	1	1	1	1	1
Fenbendazolsulfon	2-5	3	20-60	50-250	25	90	1	1	1	1	1	1	1
Flubendazol	2-5	3	15-30	50-250	20	80	1	1	1	1	1	1	1
Aminoflubendazol	2-5	3	5-15	70-250	10	100	1	5	1	5	1	5	5
Hydroxyflubendazol	2-10	5	5-10	60-250	5	100	1	1	1	1	1	1	1
Levamisol	1-3	1	20-80	150-250	40	250	1	1	1	1	1	1	1
Mebendazol	1-2	1	15-40	15-60	20	25	1	1	1	1	1	1	1
Aminomebendazol	2-10	3	40-150	40-150	70	60	1	1	1	1	1	1	1
Hydroxymebendazol	2-5	3	10-40	70-250	15	100	1	5	1	5	1	5	5
Oxibendazol	1	1	15-30	15-30	20	15	1	1	1	1	1	1	1
Thiabendazol	1	1	20-200	15-70	90	50	1	1	1	1	1	1	1
5-Hydroxythiabendazol	1-2	1	30-90	70-250	40	150	1	1	1	1	1	1	1
Triclabendazol	1-5	1	15-50	50-250	20	80	1-5	1-2	1	1-2	1	1	1
Triclabendazolsulfoxide	1-5	1	10-20	40-250	13	70	1	1	1	1	1	1	1
Triclabendazolsulfon	1-3	1	15-30	40-250	20	80	1-3	1	1	1	1	1	1
Ketotriclabendazol	1-20	3	2-10	10-60	5	20	1	1	1	1	1	1	1
Andere antiparasitica													
Bithionol	20	20	2-15	10-50	10	15	1-NTB	2-60	NTB	NTB	10	10	10
Bromoxynil	3-10	5	10-25	20-200	15	40	1-2	1-2	1	1	1	1	1
Clorsulon	1-3	2	5-15	10-70	10	15	1	1	1	1	1	1	1
Closantel	20-100	60	5-60	10-90	18	25	1-NTB	1-10	5	5	1	1	1
Haloxon	1-10	2	15-200	25-150	25	40	1	1-2	1	1-2	1	1	1
Ioxynil	1	1	1-3	1-5	1	2	1	1	1	1	1	1	1

Stoffen/stofgroepen	Kwantificeringslimiet mest (µg/kg versgewicht)		Kwantificeringslimiet grond- en oppervlaktewater (ng/L)		Kwantificeringslimiet bodem/sediment (µg/kg versgewicht)			
	Min-Max	Mediaan	Min-Max	Mediaan	Min-Max		Mediaan	
					Serie 1	Serie 2	Serie 1	Serie 2
Morantel	2-5	3	20-60	30	70-250	150	1	1
Niclosamide	1-2	1	10	10	2-15	10	1	1
Nitroxinil	1-2	1	1-2	2	2-10	3	1	1
Oxantel	2-5	3	40-150	50	150-250	250	1	1
Oxyclozanide	1-3	1	1-5	1,5	1-5	1	1-NTB	NTB
Praziquantel	1-10	2	15-40	20	40-200	60	1	1
Pyrantel	2-5	3	30-100	40	150-250	250	1	1
Rafoxanide	100-NTB	100	10-100	23	10-250	30	1-NTB	2
Salicylanilide	1-3	2	10-30	10	15-100	40	1	1
Nitro-3-(trifluoromethyl)phenol	1	1	1-10	3	1-10	2	1	1
Avermectines								
Moxidectine	3-60	23	15-60	25	40-200	60	1-2	1
Emamectine	1-3	1	1-15	3	10-40	10	1	1
Abamectine	1-10	4	5-20	10	20-90	40	1	1
Ivermectine	1-10	4	10-25	10	25-150	40	1	1
Eprinomectine	2-10	5	1-25	3	10-90	25	1-2	1
Doramectine	1-15	4	10-30	15	30-150	50	1	1
Coccidiostatica								
Ponazuril (Toltrazuril-sulfon)	1-2	1	3-15	5	5-30	10	1	1
Toltrazuril	1-2	1	5-20	10	5-50	10	1	1

Hormonen

Stoffen/ stofgroepen	Kwantificeringslimiet mest (µg/kg versgewicht)		Kwantificeringslimiet grond- en oppervlaktewater (ng/L)		Kwantificeringslimiet bodem/sediment (µg/kg versgewicht)	
	Mediaan	Serie 1	Mediaan	Serie 2	Serie 1	Serie 2
17α-nortestosteron	1	1		1	1	1
17β-nortestosteron	1	1		1	1	1
Nor-4-androstenedion	0.5	1		1	0.5	0.5
17α-testosteron	0.5	0.5		0.5	0.5	0.5
17β-testosteron	0.5	0.5		0.5	0.5	0.5
Andros-4-ene-3,17-dion (AED)	0.5	0.5		0.5	0.5	0.5
5α-dihydrotestosteron	0.5	1		1	0.5	0.5
5β-dihydrotestosteron	0.5	1		1	0.5	0.5
17α-boldenon	1	1		1	1	1
17β-boldenon	1	1		1	1	1
Andros-1,4-diene-3,17-dion (ADD)	0.5	2		2	0.5	0.5
17α-oestradiol	0.5	0.5		0.5	0.5	0.5
17β-oestradiol	0.5	0.5		0.5	0.5	0.5
Oestron	0.5	1		1	0.5	0.5
Progesteron	0.5	0.5		0.5	0.5	0.5
Pregnanediol	2	3		3	2	2

Bijlage 2 Vergelijking concentraties met (no) effectconcentraties

Tabel B2.1 Range van aangetroffen concentraties diergeneesmiddelen en hormonen in milieucompartimenten. De kleurcode geeft uitdrukking aan het percentage van de monsters boven de kwantificeringslimiet. Rode cijfers: overschrijding van streefwaarde of trigger value (Tabel B2.3).

Stof	Groep	Aangetroffen kalf				Aangetroffen varken				Aangetroffen beek			
		Mest	Bodem	Sediment	Opp. water	Grondwater	Mest	Bodem	Sediment	Opp. water	Grondwater	Opp. water	Sediment
		µg/kg fw	µg/kg fw	µg/kg fw	ng/l	ng/l	µg/kg fw	µg/kg fw	µg/kg fw	ng/l	ng/l	ng/l	ng/l
Tetracycline	Tetracyclines	<5 - 151	<5 - 18 (<100)	<2 - 16 (<80)	-	-	-	<10 - 58	-	-	-	-	-
Oxytetracycline	Tetracyclines	700 - 5000	<5 - 149	<2 - 16 (<80)	-	-	<4 - 71	<5 - 77	<5 - 27	<10 - 144	-	-	-
Doxycycline	Tetracyclines	350 - 2000	<10 - 101	-	-	-	<5 - 700	<15 - 38 (<100)	<10 - 57	-	-	-	-
Chloortetracycline	Tetracyclines	<10 - 29	<5 - 65	<6 - 17 (<40)	-	-	-	8 (<10) - 42 (<100)	<10 - 14 (<40)	-	-	-	-
Sulfadiazine	Sulfonamiden	<1 - 200	<1 - 2	-	-	<5 - 8 (<25)	<1 - 100	-	-	<3 - 17	-	-	-
Sulfadimidine	Sulfonamiden	<1 - 2	-	-	-	<10 - 180	-	-	<1 - 3	<10 - 12	9 (<10) - 28	-	-
Ciprofloxacin	Quinolonen	<2 - 165	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Enrofloxacin	Quinolonen	<2 - 29	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Flumequin	Quinolonen	<3 - 1700	<5 - 97	<3 - 17	-	-	-	<2 - 13 (<40)	<5 - 8	-	-	-	-
Tilmicosin	Macroliden	24 - 300	<1 - 66	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Tylosine	Macroliden	<2 - 23	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Tiamulin	Macroliden	-	-	-	-	-	<1 - 2	-	-	<3 - 14 (<20)	-	-	-
Ivermectine	Avermectines	<1 - 46	-	-	<10 - 24	-	-	-	-	-	-	-	-
Emamectine	Avermectines	-	-	-	-	<2 - 8 (<40)	-	-	-	-	-	-	-
Albendazool	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	<3 - 5	-	-	-	-	-	-
Albendazoolsulfoxide	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	<3 - 5	-	-	-	-	-	-
Albendazoolaminosulfon	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	<2 - 1 (<3)	-	-	-	-	-	-
Albendazoolsulfon	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	<2 - 5	-	-	-	-	-	-
Fenbendazool	Benzimidazolen	<1 - 1 (<2)	-	-	-	-	<3 - 5	-	-	-	-	-	-
Fenbendazoolsulfoxide	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	3 (<5) - 4 (<10)	-	-	-	-	-	-
Fenbendazoolsulfon	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	<3 - 4 (<5)	-	-	-	-	-	-
Flubendazool	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	4 - 88	<1 - 55	<1 - 1	-	-	-	-
Flubendazool, amino-	Benzimidazolen	-	<1 - 1 (<5)	-	-	-	8 - 148	1 (<5) - 50	<1 - 2 (<5)	-	-	-	-
Flubendazool, hydroxy-	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	<2 - 3 (<5)	-	-	-	-	-	-
Mebendazool	Benzimidazolen	<1 - 1 (<2)	-	-	-	-	1 (<2) - 5	-	-	-	-	-	-
Mebendazool, amino-	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	<2 - 1 (<10)	<1 - 1	-	-	-	-	-
Mebendazool, hydroxy-	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	<2 - 4	-	-	-	-	-	-
Toltrazuril	Toltrazuril(-sulfon)	-	-	-	<5 - 14	<10 - 44 (<50)	<1 - 400	<1 - 3	<1 - 1	-	-	-	-
Ponazuril (Toltrazuril(-sulfon))	Toltrazuril(-sulfon)	-	-	-	<5 - 34	<5 - 34	<1 - 126	<1 - 29	<1 - 1	<3 - 27	-	-	-
5α-Dihydrotestosteron	Hormonen	<0,5 - 93	-	-	-	-	<0,5 - 61	-	-	-	-	-	-
5β-Dihydrotestosteron	Hormonen	1,7 - 90	-	-	-	-	<0,5 - 62	<0,5 - 0,5	-	-	-	-	-
Androstendion	Hormonen	2 - 53	<0,5 - 4,4	-	-	-	6 - 65	<0,5 - 5,4	-	<0,5 - 28	-	-	-
α-Estradiol	Hormonen	<0,5 - 2,4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
β-Estradiol	Hormonen	<0,5 - 4,1	<0,5 - 0,7	<0,5 - 1,3	-	-	0,9 - 13	<0,5 - 4,0	-	-	-	-	-
Norandrostendion	Hormonen	-	-	-	-	-	<0,5 - 19	-	-	<1 - 23	-	-	-
Estrone	Hormonen	<0,5 - 5,5	-	-	-	-	5,7 - 16	<0,5 - 3,8	<0,5 - 0,6	<1 - 11	<1 - 1,5	<0,5 - 0,6	<0,5 - 0,6
α-Testosterone	Hormonen	<0,5 - 32	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
β-Testosterone	Hormonen	1,3 - 14	<0,5 - 2,2	-	-	-	<0,5 - 10	<0,5 - 1,0	-	<0,5 - 17	-	-	-
Progesterone	Hormonen	-	<0,5 - 5,6	<0,5 - 14	<0,5 - 2,7	<0,5 - 2,6	<0,5 - 2,0	<0,5 - 4,0	<0,5 - 2,3	2,4 - 2,6	<0,5 - 2,2	<0,5 - 1,0	<0,5 - 1,0
Androstadiendion	Hormonen	<0,5 - 38	-	-	-	-	<0,5 - 5,7	<0,5 - 0,8	-	<2 - 22	-	-	-
% aangetroffen > LoD													
0 tot 25%													
25 tot 50%													
50 tot 75%													
75 t/m 100%													

Tabel B2.2 Predicted No Effect Concentrations (PNEC's) en effectconcentraties. *Cursief = op basis van QSAR voorspelde PNEC (niet erg betrouwbaar); andere PNEC's zijn gebaseerd op experimentele data. Verschil PNEC en effectconcentratie: bij de PNEC wordt er een assessmentfactor (variërend van 10 tot 1000) toegepast, afhankelijk van de hoeveelheid en aard van de toxiciteitsgegevens.*

Stof	Groep	NORMAN Ecotox database		Grung et al., 2007		Lahr et al., 2014	Boxall et al., 2003	Rougooret al. 2016	Lahr et al 2014	Boxall et al., 2003
		PNEC water µg/l		PNEC water µg/l		PNEC water µg/l	Effectconcentratie water mg/l	Effectconcentratie water mg/l	PNEC bodem en sediment mg/kg	Effectconcentratie bodem mg/kg
Tetracycline	Tetracyclines	0.09	Oekotoxentrum (proposed EQS)	-	-	-	0.0251 - 579	1 - 2,2	-	-
Oxytetracycline	Tetracyclines	102	footprint	0.2	-	0.31	0.0611 - <200	0.183 - 116	-	>2000 - >5620
Doxycycline	Tetracyclines	1162	Selenastrum QSAR (for anhydrous form) (for monohydrous form Daphnia QSAR 24741)	15.2	-	-	-	0.088 - 130	-	-
Chlortetracycline	Tetracyclines	3.1	footprint	-	-	-	0.05 - 3.1	0.89 - 3.1	-	>0.6
Sulfadiazine	Sulfonamiden	4.6	DK EQS	0.03	-	-	0.135 - 403	0.135 - 7.8	-	100
Sulfadimidine	Sulfonamiden	30	Oekotoxentrum (proposed EQS)	-	-	-	-	-	-	-
Ciprofloxacin	Quinolonen	0.089	Oekotoxentrum (proposed EQS)	-	-	-	0.005 - 0.08	-	-	-
Enrofloxacin	Quinolonen	2.6	footprint	10	-	-	-	-	-	-
Flumequin	Quinolonen	5	footprint	-	-	-	0.019 - 477	-	-	-
Trimicosin	Macroliden	13089	Daphnia QSAR	-	-	-	-	0.35 - 851	-	-
Tylosine	Macroliden	1.38	footprint	300	-	-	0.034 - 680	1.38 - 45	-	2520 - >5000
Tiamulin	Macroliden	27.05	Pimephales QSAR	0.06	PNEC ECOSAR	-	0.003 - 67	0.165 - 5.2	-	-
Ivermectine	Avermectines	0.000025	Landoppervlaktewateren Indicatief MITR (opgelost)	0.000025	-	0.00000003	0.025 - >10000	0.000025 - 3	-	0.0005 - 100
Emamectine	Avermectines	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Albendazool	Benzimidazolen	-	-	0.024	-	-	-	-	-	-
Albendazoolsulfoxide	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Albendazoolaminosulfon	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Albendazoolsulfon	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Fenbendazool	Benzimidazolen	-	-	0.01	-	-	1-10	0.04	-	-
Fenbendazoolsulfoxide	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Fenbendazoolsulfon	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Flubendazool	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Flubendazool, amino-	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Flubendazool, hydroxy-	Benzimidazolen	-	-	1.3	PNEC ECOSAR	-	-	0.00665 - >1	-	-
Mebendazool	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Mebendazool, amino-	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Mebendazool, hydroxy-	Benzimidazolen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Toltrazuril	Toltrazuril(-sulfon)	-	-	0.09	PNEC ECOSAR	-	-	-	-	-
Ponazuril (Toltrazuril-sulfon)	Toltrazuril(-sulfon)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
5β-Dihydrotestosteron	Hormonen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Androstendion	Hormonen	-	(androsteneone 18.57 Pimephales QSAR)	-	-	-	-	-	-	-
α-Estradiol	Hormonen	22.9	Daphnia QSAR	-	-	-	-	-	-	-
β-Estradiol	Hormonen	0.0004	COM_2011_876 (WFD priority substances)	-	0.0004	-	-	-	9.01	-
Norandrostendion	Hormonen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Estrone	Hormonen	0.0036	Oekotoxentrum (proposed EQS)	-	0.00322	-	-	-	-	-
α-Testosterone	Hormonen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
β-Testosterone	Hormonen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Progesterone	Hormonen	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Androstadiendion	Hormonen	-	-	-	-	-	-	-	-	-

Tabel B2.3 Streefwaarden, signaleringswaarden en action limits voor diverse groepen van stoffen.
Referenties: zie literatuurlijst.

Matrix	Waarde	Geldig voor	Status	Referentie
Drinkwaterbronnen	0,1 µg/l	Milieuvreemde stoffen	Signaleringswaarde	Protocol monitoring en toetsing drinkwaterbronnen KRW (Helpdesk Water)
Oppervlaktewater	0,1 µg/l	Antropogene stoffen die inwerken op biologische systemen	Streefwaarde	IAWR (2013)
Drinkwater	1 µg/l	Milieuvreemde stoffen	Signaleringswaarde	Drinkwaterbesluit (2015)
Drinkwater	0,1 µg/l	Milieuvreemde organische stoffen	Streefwaarde	Van der Kooij e.a. (2010)
Drinkwater	1 µg/l	Som milieuvreemde organische stoffen	Streefwaarde	Van der Kooij e.a. (2010)
Drinkwater	10 ng/l	Steroïdhormoon	Streefwaarde	Van der Kooij e.a. (2010)
Drinkwater	50 ng/l	Som steroïdhormonen	Streefwaarde	Van der Kooij e.a. (2010)
Bodem	100 µg/kg	Diergeneesmiddelen	Action limit in de milieubeoordeling	EMEA (2008)

Wageningen Environmental Research
Postbus 47
6700 AA Wageningen
T 0317 48 07 00
www.wur.nl/environmental-research

Wageningen Environmental Research
Rapport 2898
ISSN 1566-7197

De missie van Wageningen University & Research is 'To explore the potential of nature to improve the quality of life'. Binnen Wageningen University & Research bundelen Wageningen University en gespecialiseerde onderzoeksinstituten van Stichting Wageningen Research hun krachten om bij te dragen aan de oplossing van belangrijke vragen in het domein van gezonde voeding en leefomgeving. Met ongeveer 30 vestigingen, 5.000 medewerkers en 10.000 studenten behoort Wageningen University & Research wereldwijd tot de aansprekende kennisinstellingen binnen haar domein. De integrale benadering van de vraagstukken en de samenwerking tussen verschillende disciplines vormen het hart van de unieke Wageningen aanpak.



To explore
the potential
of nature to
improve the
quality of life



Wageningen Environmental Research
Postbus 47
6700 AB Wageningen
T 317 48 07 00
www.wur.nl/environmental-research

Rapport 2898
ISSN 1566-7197

De missie van Wageningen University & Research is 'To explore the potential of nature to improve the quality of life'. Binnen Wageningen University & Research bundelen Wageningen University en gespecialiseerde onderzoeksinstituten van Stichting Wageningen Research hun krachten om bij te dragen aan de oplossing van belangrijke vragen in het domein van gezonde voeding en leefomgeving. Met ongeveer 30 vestigingen, 5.000 medewerkers en 10.000 studenten behoort Wageningen University & Research wereldwijd tot de aansprekende kennisinstellingen binnen haar domein. De integrale benadering van de vraagstukken en de samenwerking tussen verschillende disciplines vormen het hart van de unieke Wageningen aanpak.

