

살충제 Imidacloprid의 논토양 중 흡착 및 용탈 특성

임양빈* · 경기성¹⁾ · 김찬섭 · 이희동 · 류갑희 · 이재구¹⁾

농업과학기술원 농산물안전성부, ¹⁾충북대학교 농화학과
(2005년 11월 16일 접수, 2006년 3월 30일 수리)

Adsorption and Leaching Characteristics of the Insecticide Imidacloprid in Paddy Soils

Yang Bin Ihm*, Kee Sung Kyung¹⁾, Chan Sub Kim, Hee Dong Lee, Gab Hee Ryu, and Jae Koo Lee¹⁾ (Department of Crop Life Safety, National Institute of Agricultural Science and Technology, Suwon, 441-707, Korea, ¹⁾Department of Agricultural Chemistry, College of Agriculture, Life and Environmental Sciences, Chungbuk National University, Cheongju, 361-763, Korea)

ABSTRACT: In order to elucidate the adsorption and leaching characteristics of the insecticide imidacloprid in two types of paddy soils near Suwon, this experiment was carried out with [¹⁴C]imidacloprid as a radiotracer. In an adsorption study conducted using [¹⁴C]imidacloprid in 2 test soils, the adsorption coefficient was higher in soil A (K_f 2.6) than that in soil B (K_f 1.7). As calculated from Freundlich constants, distribution coefficients and half lives in soils, GUS indices showed low leachabilities of imidacloprid treated on the paddy soils into the groundwater. The amount of imidacloprid leached from the soil columns during the 4 weeks of leaching was less than 2% of the originally treated ¹⁴C. In the leaching test, the amounts of ¹⁴C activities distributed in the soil layer of 0-10 cm were more than 80% of the originally treated ¹⁴C and those in rice plants were less than 3% of the originally treated ¹⁴C, suggesting that imidacloprid has very low leachability and bioavailability.

Key Words: pesticide, adsorption, leaching, Groundwater Ubiquity Score (GUS)

서론

토양중 화합물의 흡착특성은 오염물질의 이동과 분해·대사를 결정하는 매우 중요한 인자 중 하나로 인식되며, 토양중에서 이동성이 큰 농약은 토층을 통과하여 이동하므로 지하수를 오염시킬 가능성이 높다고 알려져 있다. 농약에 의한 지하수의 오염은 농약의 토양중 이동성과 지하수의 위치에 의하여 영향을 받는데 토양중 이동성이 크고 지하수면이 토양표면에 가까울수록 농약에 의한 지하수의 오염가능성이 더 커지는 것으로 보고되었다¹⁾.

Imidacloprid [1-(6-chloro-3-pyridylmethyl)-N-nitroimidazolidin-2-ylideneamine]는 전세계 60여 개국에서 사용되고 있는 neonicotinoid계의 침투성 살충제로서 국내에서는 1993년에 imidacloprid 2% 입제(상표명: 코니도)가 등록된 후 현재는 수화제를 비롯한 7종의 제형에 29 작물에 등록되어 사

용되고 있다. 이 중 수도용으로 등록된 현황을 살펴보면 10% 수화제와 4% 액제가 벼 벼멸구와 먹노린재 방제용으로, 2% 입제가 벼(육묘상) 애멸구 방제용으로, 70% 종자처리제가 벼 물바구미, 갈따구류, 애멸구 방제용으로 등록되어 사용되고 있다²⁾.

1997년에서 1998년까지 2년간 Bayer에서 표토로부터 약 550 cm 아래의 지하수를 조사한 결과 사양토 지대의 지하수에서 imidacloprid가 1 µg/L의 매우 낮은 수준으로 검출되었다고 하였다³⁾. 그러나 토양표면에서 증발과 휘산작용에 의한 손실을 억제하는 관수방법(subsurface drip chemigation)을 이용하여 imidacloprid를 관주한 호프재배 포장에서 토양층위별로 imidacloprid가 이동하는 양상을 조사한 결과 관주 토양중 농도는 약제처리시 250 µg/kg에서 60일 후에는 7 µg/kg 수준으로 낮아졌으며, 약제처리 60일에도 90-105 cm 깊이의 토양에서 imidacloprid가 51 µg/kg 검출되었다고 하였다⁴⁾. 또한 토양을 충전한 토양컬럼을 이용하여 용탈시험을 수행한 결과 imidacloprid는 높은 수용해도에도 불구하고 낮은 용탈성을 보였다고 하였다⁵⁾. Imidacloprid가 토양에서 용탈이 적은 이유는 이 화합물과 토양의 흡착·탈착

*연락처:

Tel: +82-31-290-0580 Fax: +82-31-290-0508

E-mail: ybihm@rda.go.kr

특성에 기인한 것으로 가정하였으며³⁾, 흡착-탈착과정은 토양 중에서 농약의 이동, 잔류 및 분해와 같은 과정을 제어하여 토양/물 환경에서 농약의 행방과 분포를 결정하는 중요한 작용으로 알려져 있다^{6,7)}.

본 연구에서는 논토양을 이용하여 imidacloprid의 토양에 대한 흡착특성과 담수재배 환경중 벼재배 유무에 따른 imidacloprid의 용탈특성을 구명하고자 하였다.

재료 및 방법

시험토양

시험에 사용한 토양은 경기도 안산시 팔곡동 소재 논토양(토양 A)과 경기도 수원시 권선구 당수동 소재 논토양(토양 B)을 사용하였다. 시험토양은 표토를 걷어내고 토심 10 cm 깊이의 토양을 채취하여 풍건한 후 2 mm 체를 통과시켜 사용하였으며, 시험 토양의 물리화학적 특성은 Table 1과 같다.

시험화합물

시험에 사용한 화합물은 [¹⁴C]imidacloprid(비방사능 4.2 MBq/mg, 순도 99.7%)와 비표지 imidacloprid(순도 99.5%)를 독일 Bayer사로부터 분양받아 사용하였다(Fig. 1).

토양흡착시험

Imidacloprid의 토양 흡착실험은 Im⁸⁾이 시험한 방법에 따라 2.286 kBq의 [¹⁴C]imidacloprid와 비표지 화합물을 가하여 전체농도가 0.25, 0.5, 1.0, 2.0 및 4.0 mg/L이 되도록 증류수로 시험용액을 조제한 후 약 2.5 g의 시험토양에 시험용액을 각각 10 mL씩 넣고 상온에서 24시간동안 200 rpm의 속도로 진탕하여 흡착시킨 다음 12,000 g에서 15분간 원심분리하여 취한 상징액 1 mL의 방사능을 계측하여 최초치

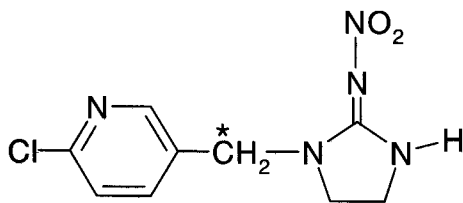


Fig. 1. Structural formula and labeled position(*) of imidacloprid [1-(6-chloro-3-pyridylmethyl)-N-nitroimidazolidin-2-ylideneamine].

리 방사능과의 차이를 역산하여 토양 흡착량을 구하였다. 토양 흡착량을 토양무게로 나눈 토양중 흡착농도와 용액중 평형농도를 Freundlich 흡착등온식을 이용하여 토양별 흡착상수(K_f)와 기울기(1/n)를 구하였다^{9,10)}. 토양중 화합물의 이동성 지표로 사용되는 유기탄소기준흡착계수(K_{oc})는 흡착상수에 100과 상수 1.724를 곱한 다음 시험토양의 유기물 함량(% OM)으로 나누어 구하였다. 토양에서 화합물의 지하수 오염가능성을 예측하는데 사용하는 Groundwater Ubiquity Score Index(GUS index)는 시험약제의 국내 토양중 반감기와 토양 K_{oc}를 사용하여 구하였다.

토양용탈시험

숙성 및 작물재배 유무와 토양 특성에 따른 imidacloprid의 용탈특성을 알아보기 위하여 2종의 논토양을 대상으로 용탈시험 직전에 imidacloprid를 처리한 신생 잔류물(fresh residue) 함유 토양과 4주간의 숙성 잔류물을 함유한 토양을 이용하여 작물재배 유무에 따른 용탈시험을 3반복으로 수행하였다¹¹⁻¹³⁾.

용탈시험용 토양컬럼은 Pyrex glass column(내경 5 cm, 높이 34 cm)의 밑 부분을 유리솜으로 막고 토층 밑 부분까지 바다모래로 채운 후 유리컬럼을 진동시키면서 2종의 시험 논토양을 높이가 30 cm가 되도록 약 740 g을 충전하고, 시험약제의 처리를 위하여 상부로부터 약 40 g의 토양을 덜어낸 후 컬럼 끝을 물에 담가 모세관력에 의하여 수분으로 포화시켰다. 논토양 충전 컬럼은 파종 후 35일간 생육시킨 추청벼(*Oryza sativa* cv. Akibare)를 컬럼당 2주 이상하고 담수상태에서 3일간 방치하였다.

또한 토양의 숙성여부에 따른 imidacloprid의 용탈특성을 비교하기 위하여 185 kBq/kg의 [¹⁴C]imidacloprid와 비표지 imidacloprid를 합하여 예비실험을 통하여 구한 분해율을 고려하여 숙성후 토양중 전체농도가 0.2 mg/kg이 되도록 ¹⁴C 표지 화합물과 비표지 화합물을 시험토양에 처리하고 최대 용수량의 90%에 상당하는 증류수를 가한 다음 22±1°C 수조상에서 soda lime으로 CO₂를 제거한 공기를 펌프로 공급하면서 호기적으로 4주간 숙성하여 숙성잔류물 함유 토양(aged soil)을 조제하였다. 신생잔류물 함유토양은 전체농도가 0.2 mg/kg이 되도록 표지 화합물과 비표지 화합물을 소량의 acetone에 녹여 토양에 처리하여 신생 잔류물 함유 토양을 조제하였으며, imidacloprid 신생 잔류물 및 숙성 잔류물을 함유한 각각의 토양을 컬럼 상부에 충전하였

Table 1. Physicochemical properties of the soils used

Soil	pH	Organic matter (%)	C.E.C (cmol ⁺ /kg)	Sand	Silt	Clay	Texture
A (Ansan)	5.3	1.8	9.1	61.3	12.8	25.8	SCL ^{a)}
B (Suwon)	5.6	1.3	8.1	50.3	20.8	28.9	SCL

^{a)}Sandy clay loam

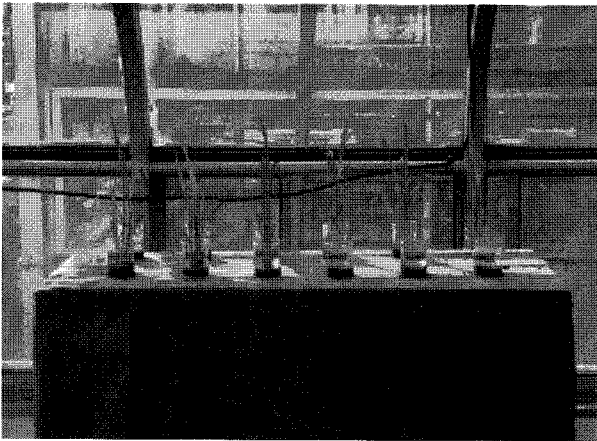


Fig. 2. The leaching experiment system using soil columns to elucidate the leaching characteristics of imidacloprid.

으며, 약제처리후 수심이 2 cm가 되도록 담수하였다.

용탈수는 시험기간중 수원지방의 10년간 평균 강우량으로부터 구한 1일 강우량에 해당하는 18.3 mL를 4주간 용탈시켜 받았으며, 용탈 28일 후 컬럼을 해체하고 벼 시료를 분리한 후 토양시료를 5 cm 깊이로 채취하였다. 한편 대조구로 벼를 재배하지 않은 시험구를 두었으며, 시험기간 중 토양컬럼에 대한 일광과 온도의 영향을 방지하기 위하여 컬럼의 외부를 단열처리하였다(Fig. 2).

방사능 측정

토양과 식물체중 방사능은 마쇄한 시료 0.3 g(식물체 0.2 g)을 Biological oxidizer(Model 407, Packard, U.S.A.)로 2분간 연소시켜 발생한 $^{14}\text{CO}_2$ 를 7 mL의 Carbo-sorb[®]E(Packard, U.S.A.)에 흡수시킨 후 8 mL의 Permafluor[®]E(Packard, U.S.A.)를 첨가하여 Liquid Scintillation Analyzer(Tri-Carb 1600 TR, Packard, U.S.A.)로 측정하였다. 용탈수 중 방사능은 시료 5 mL에 15 mL의 Aquasol[®](DuPont, NEN Research Products, U.S.A.)을 첨가한 후 4°C의 암소에서 24시간 안정시킨 후 방사능을 측정하였다. 용탈시험이 끝난 토양 컬럼으로부터 물을 제거하고, 지상부의 벼를 베어낸 후 -30°C에서 냉동시킨 컬럼 속의 토양을 표층으로부터 5 cm 간격으로 절단하여 풍건한 후 방사능을 측정하였다.

결과 및 고찰

토양흡착성

시험에 사용된 논토양 2종의 imidacloprid의 농도별 흡착량(Fig. 3)과 토양의 Freundlich 흡착상수(K_f), 분배계수 및 GUS 값 결과(Table 2)를 보면 흡착상수는 토양 A(유기물 함량 : 1.8%)는 2.6으로, 토양 B(유기물함량 : 1.3%)의 1.72 보다 높았다. 토양에서 농약의 흡착가능성을 예측하기 위하여 사용되는 흡착 등온식의 기울기(1/n)를 시험토양에서 구

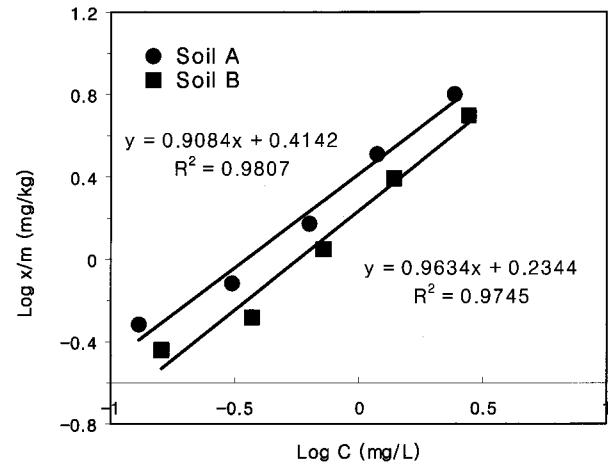


Fig. 3. Freundlich adsorption isotherms of [^{14}C]imidacloprid in soil A and soil B.

Table 2. Freundlich constants, distribution coefficients and GUS indices of the soils used

Soil type (Half-life)	Soil	K_f	1/n	$K_{oc}^a)$	GUS index ^{b)}
Paddy (10~27)	A	2.60	0.91	249	1.61~2.30
	B	1.72	0.96	228	1.64~2.35

a) $K_{oc} = K_f \times 100 \times 1.724 \div \% \text{ OM}$.

b) $\text{GUS} = \log \text{ Half-life(soil)} \times (4 - \log K_{oc})$.

한 결과 기울기가 1에 근접한 0.91~0.96를 나타내므로 시험 약제에 대한 시험토양의 흡착 특성은 낮은 농도에서 흡착 가능성이 더 큰 것으로 조사되었다.

화합물의 토양중 이동성 지표로 사용되는 토양 유기탄소 기준흡착계수(K_{oc})는 유기물 함량(%)을 이용한 Sundaram 등¹⁴⁾의 식을 이용하여 계산하였다. 본 실험에 사용된 토양의 K_{oc} 를 계산한 결과 토양 A는 249, 토양 B는 228이었다.

시험토양의 화합물에 의한 지하수 오염가능성을 예측하기 위하여 국내 농약등록을 위한 토양 잔류성 시험성적¹⁵⁾에서 얻은 반감기(논토양 : 10~27일)를 근거로 GUS index를 계산한 결과 논토양의 경우 1.6~2.4 범위에 해당되어 지하수 오염가능성을 구분한 영역중 중간영역(1.8~2.8)에 해당되었다.

논토양에서 imidacloprid의 용탈

28일간에 걸친 용탈시험 후 토양 A의 경우 신생잔류물 함유한 토양의 용탈량은 신생잔류물 함유 토양이 숙성잔류물 함유 토양보다 약간 높았으나 벼 재배여부에 따른 차이는 거의 없었다(Fig. 4). 숙성잔류물 함유 토양과 신생잔류물 함유 토양의 용탈량은 처리후 2주일까지 비슷하였으나 신생잔류물 함유 토양은 그 후부터 증가하였으나, 숙성잔류물 함유 토양은 용탈속도가 늦어 3주부터 증가하였다.

토양 B의 경우 신생잔류물을 함유한 토양의 용탈량이 숙성잔류물 토양의 용탈량보다 약간 높은 경향이였다. 숙성잔류물

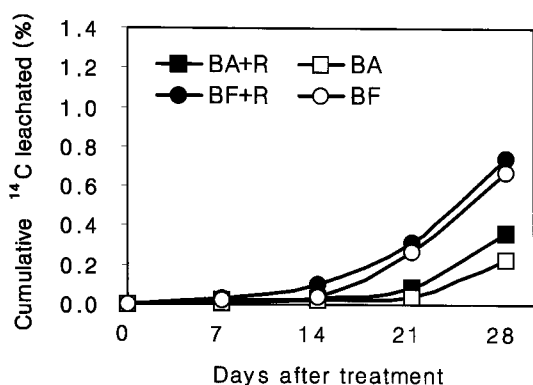


Fig. 4. Cumulative amounts of ¹⁴C leached from soil A containing fresh and aged residues of [¹⁴C]imidacloprid. BF+R : fresh soil A with rice, BF : fresh soil A
BA+R : aged soil A with rice, BA : aged soil A

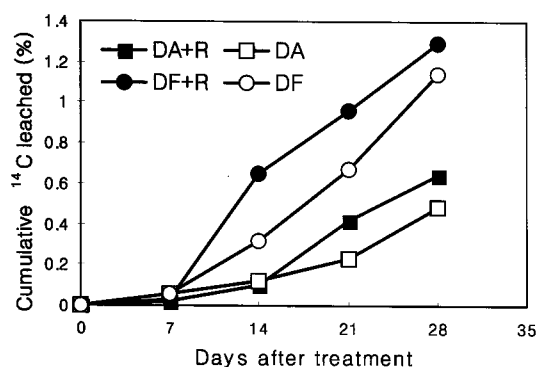


Fig. 5. Cumulative amounts of ¹⁴C leached from soil B containing fresh and aged residues of [¹⁴C]imidacloprid. DF+R : fresh soil B with rice, DF : fresh soil B
DA+R : aged soil B with rice, DA : aged soil B

함유 토양과 신생잔류물 함유 토양의 경우 용탈량은 1주일까지 비슷하였으나 신생잔류물 함유 토양은 1주부터 증가하였으나 숙성잔류물 함유 토양은 용탈속도가 늦어 2주부터 증가하였다(Fig. 5). 토양 B에서 용탈량이 큰 것은 토양중 흡착능에서 토양 A가 토양 B보다 높기 때문에 흡착능이 작은 토양 B가 용탈량이 많은 것으로 여겨진다.

국내에 등록되어 사용되고 있는 imidacloprid 2% 입체가 수심 5 cm인 논토양에 투하될 경우를 가정한 환경추정농도(Predicted Environmental Concentration, PEC)는 1.2 mg/kg으로, 본시험에서 조사된 성적을 이용하여 시험토양의 용탈농도를 계산하면, 토양 A의 용탈율은 0.2~0.8%이므로 용탈농도는 0.003~0.01 mg/L이었으며, 토양 B의 용탈율은 0.5~1.3%이므로 용탈농도는 0.006~0.016 mg/L로 지하수오염 가능성은 낮은 것으로 판단되었다.

토양 층위별 방사능 분포

용탈시험에 이용한 논토양 column의 층위별 방사능 분

Table 3. Distribution (%) of ¹⁴C at different depths of columns packed with soil A after 4 weeks of leaching period under the submerged condition

Soil depth (cm)	With rice plant (%)		Without rice plant (%)	
	Fresh	Aged	Fresh	Aged
0~5	69.5	86.0	73.1	83.2
5~10	10.7	10.6	9.4	10.1
10~15	3.5	3.2	3.5	3.5
15~20	1.8	1.3	2.0	1.4
20~25	0.8	0.8	0.8	0.7
25~30	0.7	0.4	0.8	0.4
Total	87.0	102.3	89.6	99.3

Table 4. Distribution (%) of ¹⁴C at different depths of columns packed with soil B after 4 weeks of leaching period under the submerged condition

Soil depth (cm)	With rice plant (%)		Without rice plant (%)	
	Fresh	Aged	Fresh	Aged
0~5	70.3	72.1	73.3	78.4
5~10	14.4	13.7	8.6	9.3
10~15	3.0	3.6	2.6	4.6
15~20	1.9	1.8	2.0	1.8
20~25	1.4	1.4	0.8	1.0
25~30	0.7	1.2	0.7	0.7
Total	91.7	93.8	88.0	95.8

포는 토양의 종류 및 imidacloprid의 숙성 및 벼 재배유무에 관계없이 총처리 방사능의 80% 이상이 토층 0~10 cm에 분포하였으며, 벼 재배시 토양깊이 5~10 cm에서 분포율이 높았다(Table 3, 4).

Felsot 등⁴⁾은 호프재배 포장에서 imidacloprid를 관주처리한 후 60일에는 토양 90~105 cm 깊이에서 imidacloprid가 51 µg/kg 검출되었다고 하여 imidacloprid의 용탈가능성을 보고하였다. 그러나 Oi⁵⁾는 독일의 사양토와 식양토에 imidacloprid를 처리하여 100일간 숙성시켰을 때 imidacloprid의 흡착상수가 3.2~3.8까지 크게 증가하였으며, 이 토양을 충전한 토양컬럼을 이용한 용탈시험에서 imidacloprid는 높은 수용해도에도 불구하고 용탈성이 낮았다고 보고하였다. Gupta¹⁶⁾는 토양컬럼을 이용하여 imidacloprid를 처리하였을 때 용탈후 토양 중에서 imidacloprid가 20~25 cm 깊이에서 가장 많이 분포하는 것으로 보고하였다. 그러나 본 실험에서 사용한 논토양 중 imidacloprid는 0~10 cm 깊이의 표층에 80% 이상이 분포하고, 용탈율은 0.2~1.3%로 독일 BBA의 토주 용탈성의 평가기준인 용탈율 10%¹⁷⁾에 훨씬 미치지 못하므로 지하수 오염의 가능성은 낮은 것으로 판단되었다.

Table 5. Distribution (%) of ^{14}C in rice plant, leachate and soil after 4 weeks of leaching experiment

Soil	Residue type	Planting	Radioactivity (%)			Recovery (%)
			Leachate	Rice plant	Soil	
A	Fresh	No	0.7	-	89.6	90.3
		Yes	0.8	3.1	87.0	90.9
	Aged	No	0.2	-	99.3	99.5
		Yes	0.4	2.5	102.3	105.2
B	Fresh	No	1.2	-	88.0	89.2
		Yes	1.3	2.6	91.7	95.6
	Aged	No	0.5	-	95.8	96.3
		Yes	0.6	1.6	93.8	96.0

토양 컬럼 중 ^{14}C 의 행적

벼 재배시험구에서 용탈시험기간 중 벼에 흡수이행 시험 결과(Table 5) 논토양에 처리된 방사능은 신생잔류물 함유 토양에서 벼로 흡수율이 높았으나 시험기간중 벼에 흡수 이행된 방사능은 총처리방사능의 약 3% 미만으로 주로 토양에 잔류하였다. 이러한 분포양상을 통하여 시험에 사용된 논토양 중에 처리된 imidacloprid는 벼로 흡수 이행되거나 토양 중에서 수직 용탈되는 정도가 매우 낮고 주로 토양 중에 잔존하는 분포특성을 보였다.

요 약

국내에서 광범위하게 사용되고 있는 살충제 imidacloprid의 토양흡착 특성과 벼 재배 환경중 용탈 가능성을 평가하기 위하여 방사성 동위원소로 표지된 [^{14}C]imidacloprid를 이용하여 수원근교 논토양 2종을 대상으로 시험하였다. Freundlich 흡착 등온식으로부터 구한 imidacloprid의 흡착상수(K_f)는 1.7~2.6, 기울기($1/n$)는 1 미만, 토양 유기탄소기준흡착계수(K_{oc})는 228~249, 토양 반감기를 이용한 지하수 오염가능성(GUS index)은 1.6~2.4로 흡착성이 중간 정도로 평가되어 토양중 용탈 가능성은 높지 않았다. 논토양에서 용탈성은 숙성잔류물 함유 토양보다 신생잔류물 함유 토양에서 더 높았다. 논토양의 토층별 ^{14}C 의 분포는 0~10 cm 깊이에 80% 이상이 분포하였으며, 벼 재배구에서 처리된 ^{14}C 의 식물체로의 이동성은 신생잔류물 함유 토양이 숙성잔류물 함유 토양보다 높았으나 식물체로 흡수된 ^{14}C 은 총처리량의 약 3% 미만으로서 imidacloprid의 용탈성과 생물이용도가 매우 낮음을 시사하였다.

참고문헌

- Yen, J. H., Hsiao F. L., and Yang Y. S. (1997) Assessment of the insecticide carbofuran's potential to contaminate groundwater through soils in the subtropics, *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 38, 260-265.
- Korea Crop Protection Association (2005) *Agrochemicals year book*, Korea.
- Miles Inc. (1993) Imidacloprid: Pesticide leaching potential model, Report No. 105008.
- Felsot, A. S., Cone W., Yu J., and Ruppert J. R. (1998) Distribution of imidacloprid in soil following subsurface drip chemigation, *Environ. Contam. Toxicol.* 60, 363-370.
- Oi, M (1999) Time-dependent sorption of imidacloprid in two different soils, *J. Agric. Food Chem.* 47, 327-332.
- Greenland, A. J. and Hayes H. B. (1981) *The chemistry of soil processes*, John Wiley and Sons, New York, U.S.A.
- Kolpin, D. W., Barbash J. E., and Gilliom R. J. (1998) Occurrence of pesticides in shallow groundwater of the United States: Initial results from the National Water-Quality Assessment Program, *Environ. Sci. Technol.* 32, 558-566.
- Im, G. J. (1999) Fate of the fungicide isoprothiolane in the rice paddy, Ph. D. thesis, Dep't. Agric. Chem., Chonnam National University, Korea.
- Kim, C. S. (1999) Mobility of pesticides in soils as affected by adsorption characteristics, Ph. D. thesis, Dept. Agric. Chem., Seoul National University, Korea.
- Kim, K. and Kim, Y. H. (1990) Adsorption of butachlor on soils, *Korean J. Environ. Agric.* 9, 105-111.
- Kyung, K. S., Oh, K. S., An, K. C., Kwon, J. U., and Lee, J. K. (1998) Leachability of the herbicide bentazon in soil column, *Korean J. Pestic. Sci.* 2, 59-64.
- Lee, J. K. and Oh, K. S. (1993) Leaching behavior of the residues of carbofuran, bentazon and TCAB in soil, *Korean J. Environ. Agric.* 12, 9-17.
- Lee, J. K., Kyung, K. S., Jung, I. S., Ahn, K. C.,

-
- and Kwon, J. W. (1998) Leaching behavior of the systemic insecticide carbofuran and the herbicide pretilachlor in soil columns, *Korean J. Pestic. Sci.* 2, 59-67.
14. Sundaram, K. M. S., Sloane L., and Nott R. (1997) Adsorption and desorption kinetics of diflubenzuron and fenitrothion in two different boreal forest soils, *Environ. Toxicol. Chem.* 8, 339-357.
15. National Institute of Agricultural Science and Technology (NIAST) (1998) Pesticide database on registration.
16. Gupta, S., Gajbhiye V. T., Kalpana, and Agnihotri N. P. (2002) Leaching behavior of imidacloprid formulations in soil, *Environ. Contam. and Toxicol.* 68, 502-508.
17. Federal Biological Research Center (BBA) (1998) Data requirements and criteria for decision-making in the European Union and federal Republic of Germany for the authorisation procedure of plant protection products, 61, Germany.
-