

Verwijdering van geneesmiddelen door RWZI's in de provincie Utrecht

Marc Vissers (Sweco), Janco van Gelderen (provincie Utrecht)

De Utrechtse waterkwaliteitsbeheerders hebben de influentconcentraties, effluentconcentraties en verwijderingsrendementen vergeleken van de RWZI's in de provincie. Ook zijn de oorzaken voor de verschillen verkend.

Een deel van de spreiding in de gemeten concentraties blijkt te worden verklaard door verschillen in verdunning van huishoudelijk afvalwater. Het overige deel van de variatie blijkt niet verklaard te kunnen worden door effecten van forensen, leeftijdsopbouw, de aanwezigheid van ziekenhuizen en zorginstellingen en evenmin door laboratoriumnauwkeurigheid. Nader onderzoek naar de oorzaak van deze grote verschillen in de influentvracht wordt daarom aanbevolen. Ook de oorzaken voor de zeer grote verschillen in verwijderingsrendement verdienen nader onderzoek.

De Utrechtse waterkwaliteitsbeheerders (waterschappen, Rijkswaterstaat en de provincie Utrecht) werken samen aan de aanpak van 'nieuwe stoffen' in water, in het bijzonder geneesmiddelen. In september 2017 is een meetronde uitgevoerd bij 26 RWZI's. Deze meetronde helpt de Utrechtse waterkwaliteitsbeheerders met inzichten om de aanpak van geneesmiddelen in het water verder vorm te geven.

Hoofddoel van de meetronde was om inzicht te krijgen in onderlinge verschillen en overeenkomsten tussen RWZI's binnen de provincie voor wat betreft emissie van medicijnresten. De rapportage beoogde inzicht te verkrijgen in:

- De betrouwbaarheid van de meetresultaten, door vergelijking met gegevens uit de landelijke WATSON-database van metingen van verontreinigende stoffen in RWZI-influent [1];
- factoren die de emissie van geneesmiddelen naar RWZI's beïnvloeden (de influentvracht);
- verschillen en overeenkomsten in verwijderingsrendementen voor de gemeten geneesmiddelen en resulterende effluentvrachten;

Dit artikel beschrijft de belangrijkste resultaten van de interpretatie van de meetgegevens. Metingen van influent, effluent, de daaruit berekende verwijderingsrendementen en berekende emissies zijn voor elke RWZI en elke stof onderling vergeleken en vergeleken met kentallen uit de WATSON-database zoals onder meer toegepast in de Landelijke Hotspotanalyse [2].

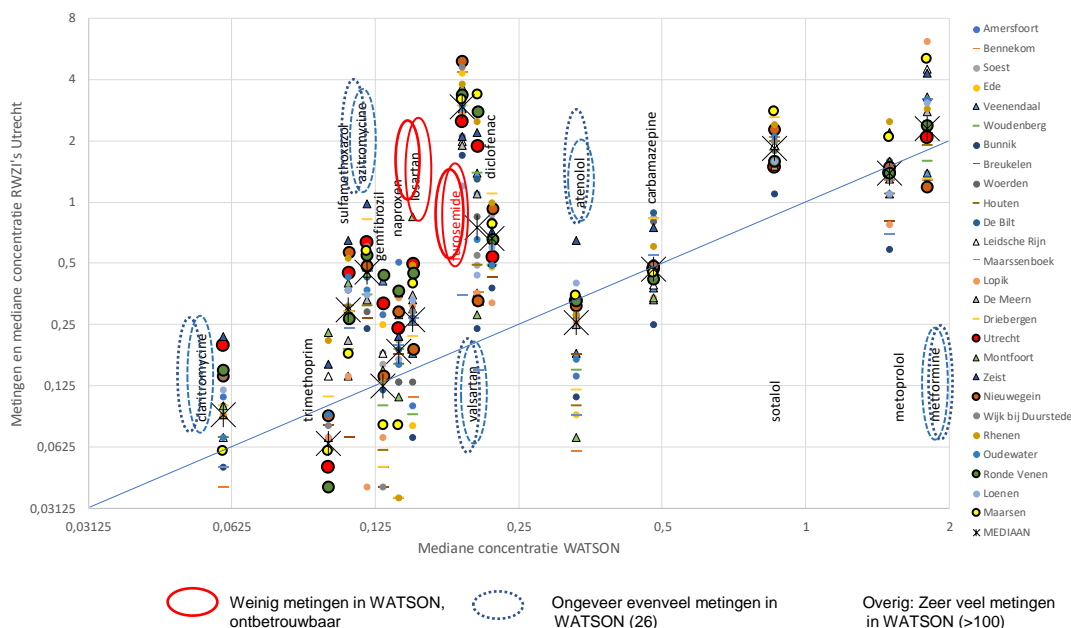
Methode bemonstering

Van 27 tot 28 september 2017 zijn bij elke RWZI 24-uursmonsters verzameld van zowel het influent als het effluent. Door in- en effluent debietproportioneel te bemonsteren - en dus rekening te houden met de dagfluctuaties in het debiet - kon de emissie per dag nauwkeurig worden afgeleid uit één monster. Er was in de week ervoor geen neerslag gevallen en daarom was sprake van droogweerafvoer (DWA)-omstandigheden. De monsters zijn geanalyseerd op de aanwezigheid van geneesmiddelen.

In aanvulling op de monsternamen en analyse zijn voor het berekenen van de vracht dagdebieten en enkele andere eigenschappen van de RWZI's (bijvoorbeeld in- en effluentconcentraties van nutriënten en zuiveringstechnieken) aangeleverd.

Resultaat meetronde in vergelijking met WATSON-gegevens

In Afbeelding 1 zijn de meetresultaten en de mediaan van de metingen van effluent uitgezet tegen mediane waarden uit de WATSON-database. Dit is een landelijke database waarin metingen van verontreinigende stoffen in RWZI-influent en RWZI-effluent staan voor onder andere geneesmiddelen. De medianen van de gemeten waarden van de stoffen hebben een grote overeenkomst met bestaande WATSON-gegevens, echter wel met een forse spreiding, tot meer dan een factor 10, tussen individuele RWZI's en in individuele stoffen.



Afbeelding 1. Vergelijking mediane concentratie individuele geneesmiddelen in WATSON met de mediane concentraties en individuele metingen voor EFFLUENT ($\mu\text{g/l}$) in Utrecht. Omcirkeld zijn stoffen die op basis van het aantal metingen als 'ongeveer even betrouwbaar in WATSON' en als minder betrouwbaar in WATSON' kunnen worden aangemerkt. Let op de logaritmische schaal

Een deel van de gemeten geneesmiddelen in Utrecht lijkt consistent hogere effluentconcentraties te hebben dan in de WATSON-database. Het betreft de stoffen azitromycine, valsartan, sulfamethoxazol, sotalol, losartan en diclofenac.

Wanneer de verhoging in concentraties van deze stoffen in zowel influent als effluent zichtbaar is en wanneer er voldoende betrouwbare metingen in de WATSON-database staan, dan is toename van het gebruik een waarschijnlijke verklaring voor de afwijking. Tevens kan een consistente laboratoriumafwijking in de huidige meetronde dit patroon verklaren.

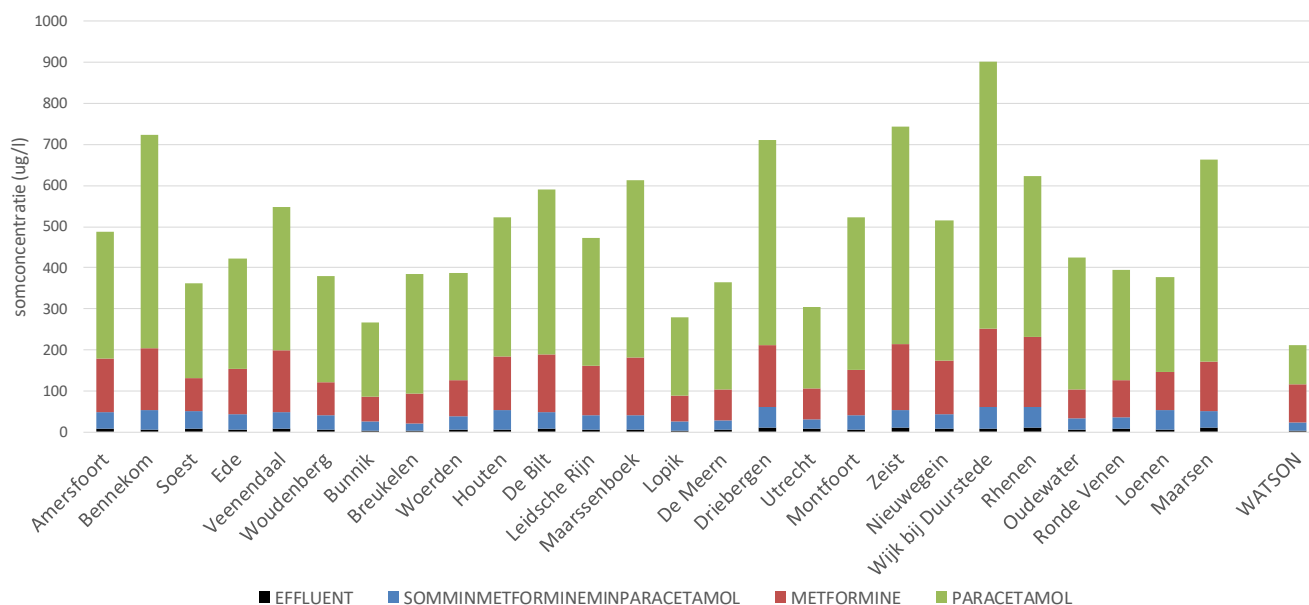
Voor de geneesmiddelen diclofenac en sotalol is de vergelijking voldoende betrouwbaar om de verhoging toe te schrijven aan een toename van het gebruik in recente jaren. Voor de overige geneesmiddelen kan deze conclusie niet getrokken worden, omdat het aantal gegevens in de WATSON-database nog te beperkt is.

Karakterisatie somconcentratie

Het grootste deel van de geneesmiddelenvracht wordt in de RWZI's verwijderd. Dit komt doordat dat de twee middelen die ruim 90 procent van de totale vracht veroorzaken, bijna volledig worden verwijderd: paracetamol nagenoeg 100 en metformine 95 tot 99 procent. In Afbeelding 2 zijn deze twee stoffen als aparte

categorie weergegeven van de overige stoffen in influent en daarnaast de effluentvracht per RWZI. De restvracht / -concentratie is meestal minder dan 3 procent van de influentvracht.

De somconcentratie in effluent is 8,6 µg/l en daarmee ongeveer de helft van de totaalconcentratie berekend met metingen in de WATSON-database [2]. De voornaamste oorzaak van dit verschil is dat vijf stoffen uit de WATSON-top-10 (gabapentine, irbesartan, anhydro-erythromycine, hydrochloorthiazide en fexofenadine, samen verantwoordelijk voor 6 µg/l in effluent) niet in het meetpakket van deze meetronde waren opgenomen.



Afbeelding 2. Totaalconcentratie in influent en effluent, uitgesplitst naar de influentconcentratie metformine (rood), influentconcentratie paracetamol (groen) en de somconcentratie van de overige geanalyseerde geneesmiddelen in influent (blauw). Onderaan in zwart is de somconcentratie van alle geanalyseerde geneesmiddelen in het effluent weergegeven

Karakterisatie in gram per persoon per jaar

De emissie per persoon per jaar is berekend door eerst de concentraties te vermenigvuldigen met het dagdebiet (voor de berekening van een vracht per dag), deze dagvracht vervolgens te delen door het aantal aangesloten inwoners en daarna te vermenigvuldigen met 365 om zo de vracht in gram per persoon per jaar (g/ppj) te berekenen voor influent en effluent.

Zoals verwacht worden verschillen tussen RWZI's kleiner omdat verschillen in verdunning met rioolvreemd water niet meer doorwerken. Op RWZI Bunnik is bijvoorbeeld veel verdunning met industrieel afvalwater, waardoor de concentratie geneesmiddelen in het effluent relatief laag is. Hoewel kleiner, blijven de verschillen tussen RWZI's echter groot.

Voor influentvracht kunnen ook andere factoren verschillen tussen RWZI's veroorzaken, namelijk: (1) forensen, waardoor sterke verschillen tussen dag en nacht in het inwonertal van gemeenten optreden, (2) verschillen in leeftijdsopbouw van bewoners, omdat het geneesmiddelengebruik van ouderen fors hoger is en (3) verschillende dichtheden in ziekenhuizen en zorginstellingen, zoals die in de gebiedsstudie geneesmiddelen

zijn onderzocht [4]. Deze factoren blijken te weinig invloed te kunnen hebben om de gevonden verschillen in influentvracht per inwoner te verklaren [3].

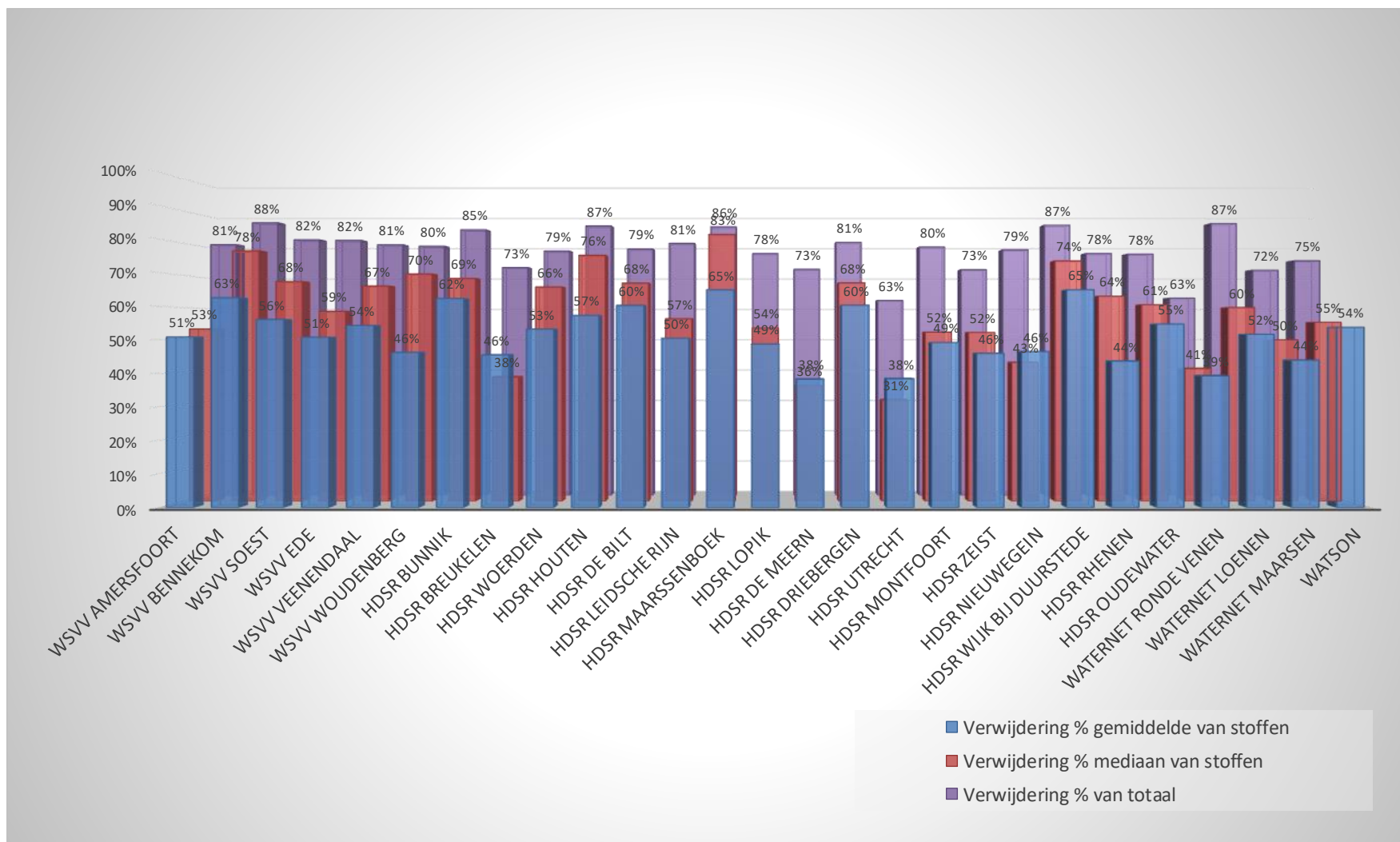
Verwijderingsrendement RWZI's

Een berekening van verwijderingsrendementen kan op verschillende manieren worden uitgevoerd. In dit onderzoek zijn drie manieren gepresenteerd in afbeelding 3: als totaalrendement (somconcentratie) (paars), als mediaan (rood) en als gemiddelde rendement van de individuele stoffen (blauw). Rendementen zijn berekend exclusief metformine en paracetamol (anders zou voor alle RWZI's een totaalrendement van rond de 97% worden berekend).

Uit Afbeelding 3 blijkt dat het berekende verwijderingsrendement vergelijkbaar is met het rendement berekend met de WATSON-database (rechts in de figuur). Het rendement voor WATSON is daarbij berekend op basis van dezelfde stoffen als die gebruikt in de berekening voor de onderhavige meetronde. Het op basis van somconcentraties berekende totaalrendement is 80 procent. Dat hoge rendement ten opzichte van het rendement dat in de landelijke hotspotanalyse [2] is gehanteerd (66%) is te verklaren doordat een aantal matig of nauwelijks afbreekbare stoffen (gabapentine 50%, irbesartan 0%, anhydro-erythromycine 0%, hydrochloorthiazide 50%) niet zijn gemeten in de meetronde Utrecht. Deze stoffen vertegenwoordigen een groot deel van de effluentvracht en zouden het rendement dus omlaag hebben gehaald.

In Afbeelding 3 is ook goed te zien dat het totale verwijderingsrendement een redelijk stabiel beeld geeft van ongeveer 80 procent (73-88%) verwijdering. Dat hoge rendement wordt verklaard door ibuprofen, valsartan en naproxen, die samen ruim de helft van de vracht vertegenwoordigen en voor meer dan 95 procent verwijderd worden. Het totaalrendement is door de sterke invloed van enkele veelvoorkomende stoffen minder robuust, zeker wanneer juist die stoffen onnauwkeurig zijn gemeten.

De mediaan van de verwijderingsrendementen van individuele stoffen per RWZI is lager, rond de 55 procent. RWZI's met een laag totaalrendement blijken voor alle stoffen een lager rendement te hebben, namelijk Breukelen, Lopik, De Meern, Utrecht, De Ronde Venen en Maarsse.



Afbeelding 3. Verwijderingsrendementen per RWZI (gemiddelde en mediaan van de rendementen van individuele stoffen) en verwijderingsrendement van de totale concentratie in vergelijking met de rendementen berekend voor het overeenkomstige pakket in WATSON, exclusief paracetamol en metformine

Relatie verwijdering individuele middelen met type zuivering

In een korte analyse is het verband tussen verwijderingsrendementen en de kenmerken van de zuivering verkend. Er is geen verband met de dosering van ijzer of aluminium, noch met de aanwezigheid van zandfilters gevonden. Wel is een verband met stikstofverwijdering zichtbaar: bij goede verwijdering van stikstof is ook altijd een goede verwijdering van geneesmiddelen waarneembaar.

Discussie laboratoriumonzekerheid

Laboratoriumonzekerheid is een belangrijke factor die ervoor kan zorgen dat metingen moeilijker te interpreteren zijn en waardoor statistieken zoals de totaalconcentratie en het verwijderingsrendement sterker van elkaar lijken te verschillen dan in werkelijkheid het geval is. Daarom is in de dataset nagegaan welke geneesmiddelen in de RWZI's 'onderling consistent gedrag' vertonen. De vracht geneesmiddelen in influent hoort voor veelgebruikte geneesmiddelen immers nagenoeg lineair afhankelijk te zijn van het aantal inwoners en dus ook onderling afhankelijk. Ook is de consistentie van verwijderingsrendementen nagegaan. RWZI's die het goed doen worden verondersteld voor meerdere stoffen goed te presteren.

Het alleen beschouwen van stoffen die consistent gedrag voor afbraak en/of influentvracht per inwoner vertonen levert hetzelfde beeld op voor goed als voor slechter presterende RWZI's. De per RWZI berekende afwijking van het gemiddelde rendement verschilt nauwelijks wanneer alleen 'consistent gemeten stoffen' worden meegeteld in de berekening. Hieruit is geconcludeerd dat de waargenomen verschillen in emissie werkelijke verschillen zijn, niet veroorzaakt door meetfouten.

Conclusie Utrechtse meetronde RWZI's

De uitgevoerde meetronde geeft voor het eerst in Nederland een consistent beeld van verschillen tussen RWZI's in influentconcentraties, effluentconcentraties en verwijderingsrendementen van geneesmiddelen, voor zover de metingen die op één dag zijn gedaan representatief zijn te noemen om het 'normale functioneren van de zuivering' te beschrijven.

De vracht geneesmiddelen in het influent wordt gedomineerd door paracetamol en metformine, die beiden door RWZI's vrijwel volledig worden verwijderd. De concentraties van individuele geneesmiddelen en ook de totaalconcentratie blijken per RWZI sterk te verschillen. Een deel van de spreiding in de gemeten concentraties blijkt te worden verklaard door verschillen in verdunning van huishoudelijk afvalwater. De spreiding in gemeten influentvracht per inwoner is echter nog altijd groot. Deze kan evenmin worden verklaard door effecten van forensen, leeftijdsopbouw en de aanwezigheid van ziekenhuizen en zorginstellingen, zo is gebleken uit een nadere verkenning [3]. Nader onderzoek naar de oorzaak hiervan is daarom aanbevolen.

Ook de mate waarin geneesmiddelen worden verwijderd verschilt sterk tussen RWZI's. De uitgaande vracht kan bij eenzelfde input tot wel een factor 3 verschillen. Dit is een groot verschil, dat de noodzaak voor nader onderzoek naar de oorzaak ervan onderstreept. Het verschil is immers nog groter dan het beoogde effect van een gemiddelde, specifiek op verwijdering van geneesmiddelen gerichte, aanvullende zuiveringsstap.

Voor achtergronden verwijzen wij naar het rapport "Interpretatie metingen influent en effluent RWZI's; Meetronde geneesmiddelen RWZI's en regionaal water provincie Utrecht 2017 [3].

Referenties

1. <http://www.emissieregistratie.nl/erpubliek/erpub/wsn/default.aspx> geraadpleegd juni 2018
2. STOWA (2017), Landelijke hotspotanalyse geneesmiddelen RWZI's, 2017-42
3. Sweco (2018), Interpretatie metingen influent en effluent RWZI's; Meetronde geneesmiddelen RWZI'S en regionaal water provincie Utrecht 2017, PN356608
4. STOWA (2011). Gebiedsstudie geneesmiddelen provincie Utrecht; rapport 2011-09.