

## **Effect van klimaatverandering en vergrijzing op waterkwaliteit en drinkwaterfunctie van Maas en Rijn**

*Rosa Sjerps (KWR Watercycle Research Institute), Thomas ter Laak (KWR Watercycle Research Institute, Wageningen UR), Gertjan Zwolsman (KWR Watercycle Research Institute, thans Dunea)*

**Door de vergrijzing zal de emissie van geneesmiddelen en röntgencontrastmiddelen naar het oppervlaktewater toenemen. De effecten van toenemende emissies op de waterkwaliteit worden versterkt bij lage rivierafvoeren, die naar verwachting steeds vaker en langduriger zullen optreden in een veranderend klimaat. In deze studie zijn prognoses gemaakt van de toekomstige concentraties van een aantal relevante organische microverontreinigingen in de Rijn en Maas in het jaar 2050. De voorspelde concentraties van diverse geneesmiddelen en röntgencontrastmiddelen in de Rijn en de Maas overschrijden de ERM-streefwaarden voor oppervlaktewater als bron van drinkwater. Sporen van enkele organische microverontreinigingen kunnen doordringen in het drinkwater.**

De huidige concentraties van geneesmiddelen, röntgencontrastmiddelen en hormoonverstorende stoffen in de Maas overschrijden sinds 2010 in ruim 10% van de metingen de streefwaarden uit het Europees riviermemorandum (ERM) [1]. Deze streefwaarden vertegenwoordigen het ideaalbeeld van de oppervlaktewaterkwaliteit in de toekomst. Risico's van de genoemde stoffen in oppervlaktewater voor de menselijke gezondheid worden niet waarschijnlijk geacht, aangezien de toxiciteit over het algemeen beperkt is en concentraties tijdens drinkwaterzuivering vaak verlaagd worden. Langdurige overschrijdingen van de streefwaarden zijn echter mogelijk ongewenst vanuit (eco)toxicologisch oogpunt [2] en omdat vermindering van de zuiveringsinspanning door drinkwaterbedrijven gewenst is [3]. Klimaatverandering leidt tot verslechtering van de waterkwaliteit van Rijn en Maas door het frequenter en langduriger optreden van lage afvoeren [4, 5]. Daarnaast wordt de toekomstige waterkwaliteit beïnvloed door maatschappelijke en technologische ontwikkelingen zoals een toename van het medicijngebruik door vergrijzing van de bevolking [6], een veranderd landgebruik, de ontwikkeling van nieuwe stoffen, andere toepassingen van stoffen en de verbetering van de afvalwaterzuivering bij ziekenhuizen en op RWZI's.

### **Doel**

Doel van deze studie is het maken van waterkwaliteitsprognoses voor een aantal gewasbeschermingsmiddelen, geneesmiddelen, röntgencontrastmiddelen, industriële stoffen en een zoetstof in de Rijn en Maas. De kwantitatieve aanpak, gebaseerd op veldmetingen, resulteert in een realistische schatting van de verwachte concentraties op de innamepunten van oppervlaktewater voor de productie van drinkwater. Deze biedt inzicht in de toekomstige waterkwaliteit voor de drinkwatervoorziening en de mate van overschrijding van waterkwaliteitsnormen of streefwaarden. Op basis van de resultaten kunnen overheden of waterbedrijven maatregelen nemen, zoals een aanpak aan de bron of een aanpassing in de zuivering.

## Methode

De voorspellingen van de waterkwaliteit zijn gebaseerd op bestaande afvoer-concentratierelaties in de Rijn en de Maas die zijn geëxtrapoleerd naar toekomstige afvoeren (2050) conform de Deltascenario's [7]. Hierbij is rekening gehouden met de verandering van het gebruik van stoffen vanwege onder andere de vergrijzing. Een hogere afvoer zorgt voor een sterkere verdunning van stoffen die door puntbronnen (bijv. RWZI's) worden geloosd, waardoor de concentraties afnemen. In de afvoer-concentratierelaties is het effect van verdunning beschreven met de relatie tussen de afvoer van het rivierwater ( $Q$ ) en de concentratie van de aandachtstoffen ( $C$ ). Deze relatie is goed op te stellen voor stoffen waarvan de concentratie met name wordt bepaald door de mate van verdunning en in mindere mate door omzetting en sorptie.

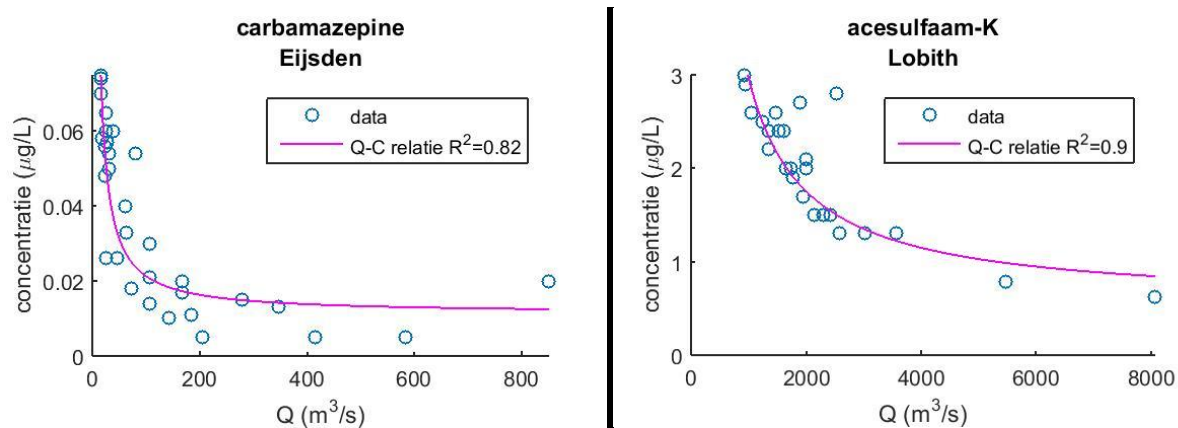
Op basis van bestaande monitoringsdata over de periode 2010-2011 [8] zijn Q-C-relaties opgesteld voor 13 aandachtstoffen in Rijn- en Maaswater op drie locaties, namelijk Lobith (Rijn), Eijsden en Keizersveer (Maas) (tabel 1, afbeelding 1). Op deze locaties wordt zowel de afvoer als de concentratie van de aandachtstoffen gemeten (voor farmaceutische stoffen Luik i.p.v. Eijsden). Hierbij is aangenomen dat de waterkwaliteit bij Eijsden overeenkomt met die op het innamepunt bij Heel (Lateraalkanaal) van Watermaatschappij Limburg (WML); idem Keizersveer voor de innamepunt Gat van de Kerkvloot (Brabantse Biesbosch) van Evides en Lobith voor het innamepunt Nieuwegein (Lekkanaal) van Waternet. Deze aanname is in zijn algemeenheid minder juist voor Heel (varieert per stof).

**Tabel 1.** Mate waarin de relatie tussen de afvoer ( $Q$ ) en de concentratie ( $C$ ) voor de Rijn bij Lobith en voor de Maas bij Eijsden en Keizersveer volgens vergelijking  $C = \frac{a}{Q} + b$  overeenkomt met de werkelijkheid ( $R^2$ ) Indien  $R^2$  een waarde kleiner dan 0,3 heeft is de relatie niet significant (ns), bij een duidelijke relatie is  $R^2 = 1$ . In de vergelijking is aangenomen dat de vracht van de stof in kwestie ( $a$ ) constant is over de beschouwde periode (2010-2011) en er een constante achtergrondconcentratie ( $b$ ) aanwezig is door de uitwisseling tussen het sediment en de waterfase

| $R^2$                    | Lobith            | Eijsden   | Keizersveer       |
|--------------------------|-------------------|-----------|-------------------|
| <b>diuron</b>            | 0,37              | 0,66      | 0,32              |
| <b>glyfosaat</b>         | Ns                | 0,58      | 0,36              |
| <b>AMPA</b>              | 0,46              | 0,74      | 0,64              |
| <b>carbamazepine</b>     | 0,88              | 0,82      | 0,75              |
| <b>metoprolol</b>        | Ns                | 0,37      | 0,73              |
| <b>sotalol</b>           | Ns                | 0,59      | ns                |
| <b>sulfamethoxazool</b>  | 0,65 <sup>1</sup> | 0,71      | 0,52              |
| <b>amidotrizoïnezuur</b> | 0,43 <sup>2</sup> | 0,54      | 0,45 <sup>2</sup> |
| <b>jomeprol</b>          | Ns                | 0,58      | ns                |
| <b>jopamidol</b>         | 0,73              | ns        | ns                |
| <b>EDTA</b>              | 0,59              | geen data | 0,32              |
| <b>MTBE</b>              | Ns                | 0,48      | ns                |
| <b>acesulfaam-K</b>      | 0,90              | geen data | geen data         |

<sup>1</sup>data van periode 2013-2014

<sup>2</sup>vergelijking  $c=a/Q$  gebruikt over data uit de periode 2010-2014



Afbeelding 1. Concentratie als functie van de afvoer  $Q$  voor carbamazepine (Eijsden) en acesulfaam-K (Lobith) en de gemiddelde Q-C-relaties (data 2010-2011). Brondata: RIWA database Nieuwegein

Aan de hand van afvoerscenario's van Deltares [7] en de opgestelde Q-C-relaties zijn prognoses gemaakt van de toekomstige waterkwaliteit van de Rijn en de Maas. De afvoerprognoses berusten op de KNMI'06-klimaatscenario's uit het Deltaprogramma. Die bestaan uit de afvoerreeksen van de drie hydrologische referentiejaren (een gemiddeld, een droog, en een zeer droog jaar) onder het huidige klimaat en de afvoerprognoses voor 2050 volgens het G-scenario (matige klimaatverandering) en het  $W^+$ -scenario (snelle klimaatverandering).

De waterkwaliteitsprognoses voor 2050 zijn zowel gebaseerd op een gelijkblijvende belasting (standstillscenario) als op een veranderende belasting (zie tabel 2). De toekomstige emissies zijn deels gebaseerd op de toekomstprognoses voor het gebruik van geneesmiddelen per therapeutische klasse [6]. Voor andere stoffen ontbreken kwantitatieve schattingen van toekomstig gebruik en is een schatting gemaakt op basis van kwalitatieve gegevens en maatschappelijke trends (gekwantificeerd als factor 0,5 of 1,5).

Tabel 2. Emissiefactoren voor de toename van de emissie in het jaar 2050 ten opzichte van de huidige belasting

| Stof                              | Factor toename emissie voor scenario Toekomstige Belasting (TB) |
|-----------------------------------|---|
| diuron                            | 0,5 <sup>1</sup>  |
| glyfosaat                         | 0,5 <sup>1</sup>  |
| AMPA                              | 0,5 <sup>1</sup>  |
| carbamazepine                     | 1,13 <sup>2</sup>   |
| metoprolol                        | 1,36 <sup>2</sup>   |
| sotalol                           | 1,36 <sup>2</sup>   |
| sulfamethoxazool                  | 1,19 <sup>2</sup>   |
| amidotrizoïnezuur                 | 1,5 <sup>1</sup>  |
| jomeprol                          | 1,5 <sup>1</sup>  |
| jopamidol                         | 1,5 <sup>1</sup>  |
| acesulfaam-k                      | 1,5 <sup>1</sup>  |
| methyl-tertiair-butylether (MTBE) | 0,5 <sup>1</sup>  |
| EDTA                              | 1,5   |

<sup>1</sup> Schatting op basis van kwalitatieve gegevens en maatschappelijke trends (gekwantificeerd als factor 0,5 of 1,5).

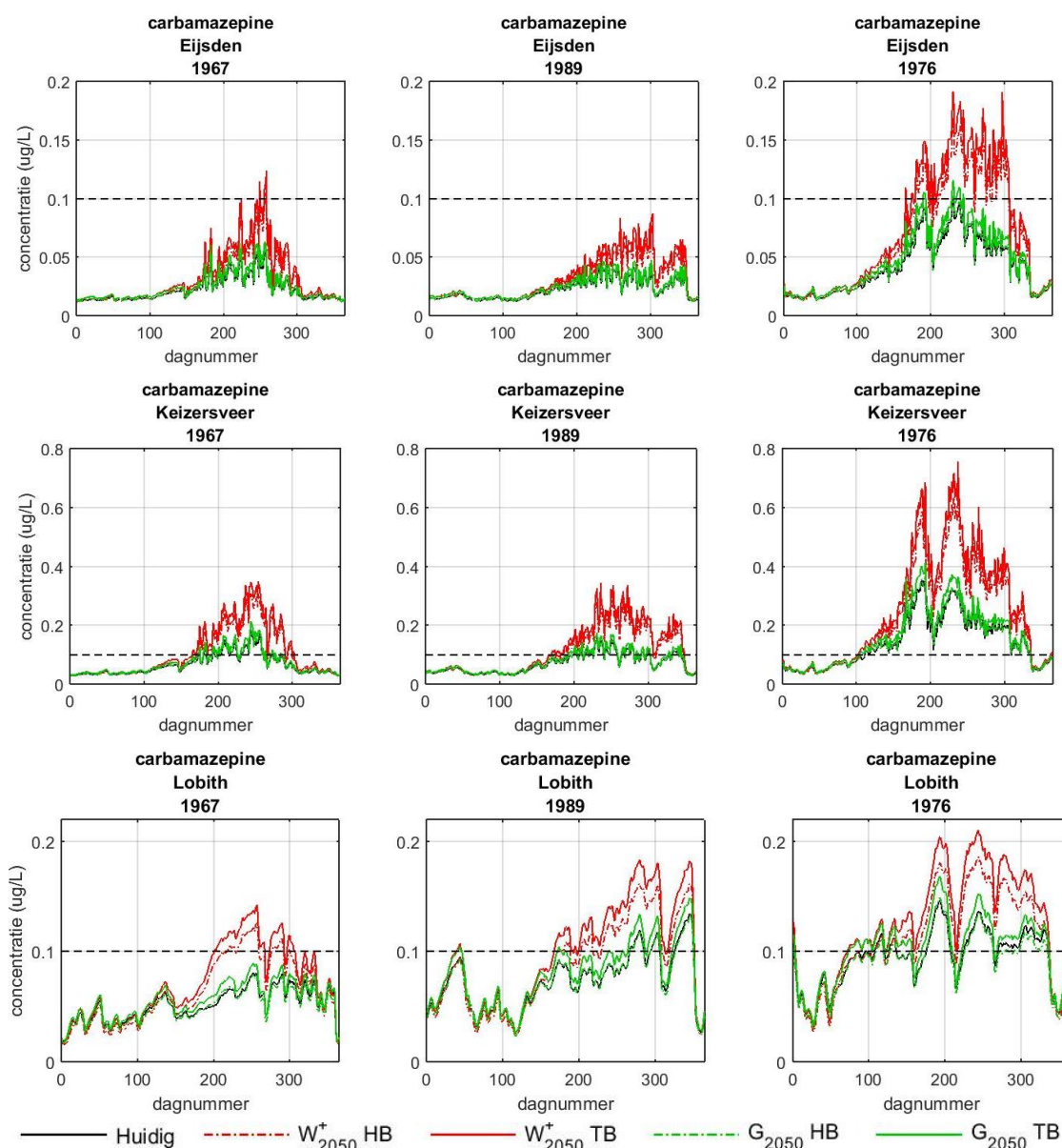
<sup>2</sup> Naar van de Aa et al. [6].

### Waterkwaliteitsprognoses

Door de huidige Q-C-relaties te combineren met de emissie- en afvoerprognoses kan worden voorspeld wat de toekomstige concentraties van de geselecteerde stoffen zullen zijn op de drie genoemde locaties. In totaal zijn er 5 scenario's doorgerekend per stof, per locatie (huidig klimaat met huidige belasting, G-scenario (2050) met huidige of toekomstige belasting, W<sup>+</sup>-scenario (2050) met huidige of toekomstige belasting). Toegepast op drie verschillende hydrologische jaren (van gemiddeld tot zeer droog) levert dit 15 tijdreeksen op per stof, per locatie. Deze tijdreeksen zijn getoetst aan de ERM-streefwaarden voor oppervlaktewater als bron van drinkwater [9]. Tot slot is de vertaling gemaakt naar de toekomstige drinkwaterkwaliteit door de huidige zuiveringsefficiëntie (specifiek voor een productielocatie) toe te passen op de ruwwaterkwaliteit.

Hieronder wordt de prognose van het geneesmiddel (anti-epilepticum) carbamazepine uitgelicht. Afbeelding 2 toont de gesimuleerde tijdreeksen voor carbamazepine bij Eijsden, Keizersveer (Maas) en Lobith (Rijn) in het jaar 2050, voor een normaal hydrologisch jaar (zoals 1967), een droog hydrologisch jaar (zoals 1989) en een zeer droog hydrologisch jaar (zoals 1976), bij huidig klimaat, G-scenario met huidige en toekomstige belasting (+13%, zie tabel 2) en het W<sup>+</sup>-scenario met huidige en toekomstige belasting. De tijdreeksen voor het huidige klimaat (zwart) laten het effect van de afvoerdynamiek op de concentraties duidelijk zien. De hoogste concentraties worden gesimuleerd in de late zomer en het najaar, wanneer de afvoer van de Rijn en de Maas op zijn laagst is. Het effect van het G-scenario (groen) op de concentraties is gering, het effect van het W<sup>+</sup>-scenario (rood) is duidelijk groter. De piekconcentraties bij het W<sup>+</sup>-scenario zijn ongeveer een factor 1,5 tot 2 hoger

dan de piekconcentraties bij huidig klimaat, een effect dat volledig is toe te schrijven aan verminderde verdunning vanwege de lagere afvoeren bij het  $W^+$ -scenario (in het najaar).



Afbeelding 2. Waterkwaliteitsprognoses voor carbamazepine (zichtjaar 2050) in de verschillende scenario's. Het dagnummer op de x-as geeft de dag van het jaar aan (1-365). Huidig = huidig klimaat,  $G_{2050}$  = scenario matige klimaatverandering,  $W^+_{2050}$  = scenario snelle klimaatverandering, HB = huidige belasting, TB=toekomstige belasting. De ERM-streefwaarde voor carbamazepine is 0,1  $\mu\text{g/L}$  [9]

Overigens dient opgemerkt te worden dat het effect van hydrologische variaties zeker zo groot is als het effect van klimaatverandering (vergelijk de tijdreeksen van 1967 met die van 1989 en 1976). De grootste mate van overschrijding van de ERM-streefwaarde komt voor bij een combinatie van een zeer droog jaar en het  $W^+$ -scenario met toekomstige belasting. De piekconcentraties in het gunstigste scenario (huidig klimaat, gemiddeld hydrologisch jaar) en het ongunstigste scenario ( $W^+$ -scenario, extreem droog jaar) leiden tot een concentratieverschil van maximaal een factor 2 tot 4. Dit komt overeen met de prognoses voor carbamazepine, metoprolol, metformine en amidotrizoïnezuur in een recente modelstudie van het RIVM [10].

### Toetsing aan normen en/of streefwaarden

De resultaten van de waterkwaliteitsprojecties zijn overzichtelijk samengevat in een infographic (afbeelding 3). Aan de linkerzijde zijn de resultaten uitgezet van het aantal overschrijdingen van de ERM-streefwaarde in oppervlaktewater bestemd voor drinkwater. Voor elke gemodelleerde stof is aangegeven hoe vaak de ERM-streefwaarde voor bestrijdingsmiddelen en farmaceutische stoffen (0,1 µg/L; 1 µg/L voor de metabool AMPA) en voor de overige stoffen (1 µg/L) [9] wordt overschreden in de Rijn en de Maas in elk van de gehanteerde scenario's (zie legenda infographic). Aan de rechterzijde is de vertaling gemaakt naar de kwaliteit van het bereide drinkwater. Op basis van de toekomstige kwaliteit van het ingenomen water en de bekende zuiveringsrendementen voor deze stoffen, is berekend welke stoffen na zuivering de gehanteerde streefwaarden overschrijden.

De ERM-streefwaarde geeft een indicatie dat de concentraties mogelijk hoger kunnen worden dan wenselijk is, maar het is wettelijk niet verplicht een lagere concentratie aan te houden. Voor bestrijdingsmiddelen is dit wel het geval; de ERM-streefwaarde voor bestrijdingsmiddelen is gelijk aan de drinkwaternorm uit het drinkwaterbesluit (0,1 µg/L). Daarnaast worden stoffen in drinkwater, geclassificeerd als overige antropogene stoffen, getoetst aan de generieke signaleringswaarde van 1 µg/L uit het drinkwaterbesluit. De overschrijding van de signaleringswaarde betekent niet per definitie dat er een gezondheidskundig risico bestaat, maar houdt in dat er meer onderzoek moet worden gedaan naar het risico van deze stof.

*Grosso modo* laat het linkerpaneel van de infographic zien dat de normen c.q. streefwaarden in de G- en W<sup>+</sup>-scenario's, maar ook reeds in het huidige klimaat, op grote schaal worden overschreden in de Rijn en de Maas. Dit is met name het geval voor EDTA, carbamazepine en de röntgencontrastmiddelen, en in mindere mate voor sulfamethoxazool. Bij Lobith overschrijdt acesulfaam-K in hoge mate de signaleringswaarde. In de Maas is dat naar verwachting ook het geval, maar hier ontbreken veldmetingen. Overige probleemstoffen in de Maas zijn glyfosaat, AMPA, metoprolol en sotalol. Ondanks een toekomstige afnemende belasting van glyfosaat kan in de prognoses voor de Maas de norm tijdens droge jaren overschreden worden. De grootste mate van overschrijding treedt op bij het W<sup>+</sup>-scenario (derde en vijfde kolom) in combinatie met een zeer droog jaar (derde rij).

### Implicaties voor de drinkwaterproductie

Uit de berekeningen blijkt dat de bestaande waterzuivering de meeste stoffen nu en in de toekomst afdoende verwijdert, dat wil zeggen tot onder het niveau van 0,1 of 1 µg/L in drinkwater (afbeelding 3, rechter paneel). Dit geldt echter niet voor de zoetstof acesulfaam-K bij Leiduin (wellicht ook bij Heel en Kralingen, maar hier zijn geen metingen voorhanden), EDTA bij Leiduin en Kralingen, en amidotrizoïnezuur bij Leiduin, Kralingen en (in mindere mate) Heel. Voor deze stoffen zijn geen gezondheidskundige normen opgenomen in het Drinkwaterbesluit.

Amidotrizoïnezuur komt in hoge concentraties voor in de Rijn en de Maas (0,1 - 1 µg/L). De concentraties van deze stof kunnen verdubbelen tot verviervoudigen onder invloed van klimaatverandering en vergrijzing, en het zuiveringsrendement is beperkt bij Leiduin (65%) en zeer beperkt bij Kralingen (17%). Daardoor kunnen toekomstige concentraties in het drinkwater stijgen tot boven de ERM-streefwaarde van 0,1 µg/L. De signaleringswaarde van 1 µg/L uit het

drinkwaterbesluit kan bij Kralingen worden overschreden, al vormen drinkwaterconcentraties in deze orde van grootte volgens de huidige inzichten geen gezondheidsrisico [11].

Acesulfaam-K komt in zeer hoge concentraties voor in het ruwe water (0,5 - 3 µg/L bij Lobith; afbeelding 1). De concentraties kunnen verdubbelen bij klimaatverandering (W<sup>+</sup>) en de stof wordt slecht verwijderd in de zuivering (46% bij productielocatie Leiduin). Om deze redenen is het zeer waarschijnlijk dat acesulfaam-K de signaleringswaarde van 1 µg/L in het drinkwater kan gaan overschrijden, of dat reeds doet. Aan de andere kant is het niet waarschijnlijk dat acesulfaam-K een gezondheidsrisico vormt, omdat concentraties in drinkwater vele malen lager zullen zijn dan de aanvaardbare dagelijkse inname.

EDTA komt momenteel in hoge concentraties voor in de Rijn (1 tot 11 µg/L) en in de Maas (1 tot 55 µg/L). Onder invloed van klimaatverandering kunnen de concentraties oplopen tot 18 µg/L in de Rijn en tot bijna 100 µg/L in de Maas. In drinkwater geproduceerd uit zowel Maas- als Rijnwater zal EDTA in de toekomst de signaleringswaarde van 1 µg/L overschrijden; in drinkwater geproduceerd uit Maaswater is dat nu al het geval. Hoewel uit het voorzorgprincipe hoge concentraties van EDTA niet gewenst zijn in oppervlaktewater voor de productie van drinkwater, liggen voorspelde drinkwaterconcentraties ver beneden de richtwaarde voor drinkwater van 600 µg/L voor EDTA van de WHO (Wereldgezondheidsorganisatie).

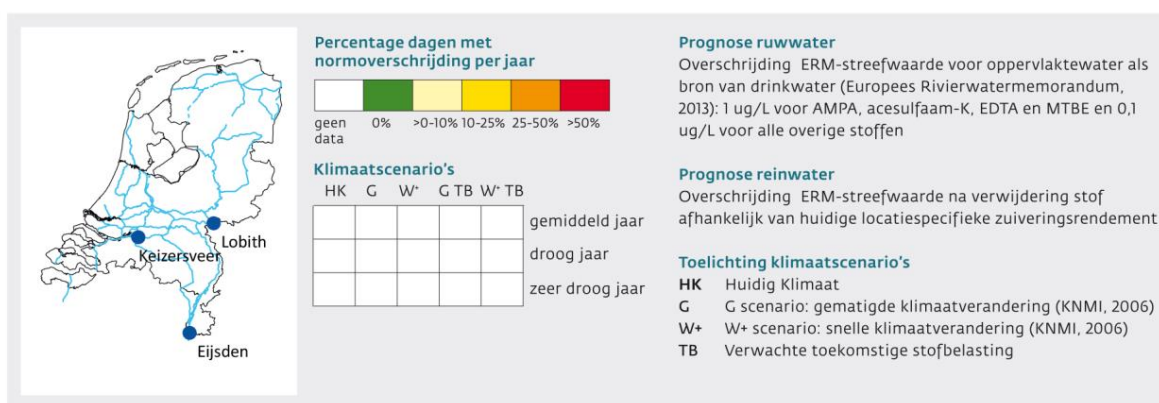
De vierde stof die nadrukkelijk de aandacht verdient, is metformine en zijn afbraakproduct guanylurea. De opgestelde afvoer-concentratierelatie is helaas niet significant genoeg voor het beschrijven van de meetgegevens. De concentraties van dit geneesmiddel in oppervlaktewater zijn echter een orde van grootte hoger dan die van de andere geneesmiddelen en de stof wordt matig verwijderd als bodempassage geen deel uitmaakt van het zuiveringsproces. In het bij Kralingen geproduceerde drinkwater wordt dan ook gemiddeld 0,31 µg/L metformine aangetroffen. Gezondheidskundig is deze concentratie niet relevant; de door het RIVM afgeleide richtwaarde voor levenslange blootstelling bedraagt 196 µg/L [11]. Desalniettemin is de toename in oppervlaktewater een ongewenste ontwikkeling.

In zeer droge jaren worden daarnaast de geneesmiddelen sotalol (Heel), carbamazepine, metoprolol, en sulfamethoxazool (Kralingen) niet verwijderd tot onder 0,1 µg/L. Als de zuiveringsrendementen niet verbeteren, zullen deze stoffen steeds meer in het drinkwater worden aangetroffen.



### Prognose ruwwater

### Prognose reinwater



Afbeelding 3. Grafische weergave van de mate van overschrijding van de ERM-streefwaarde van het oppervlaktewater bestemd voor de productie van drinkwater (linker paneel) en de vertaling hiervan naar de drinkwaterkwaliteit (op een aantal productielocaties met specifieke zuiveringsrendementen, rechter paneel), zie uitleg in de legenda



## Conclusie

De waterkwaliteit van de Rijn en de Maas wordt beïnvloed door klimaatverandering en maatschappelijke ontwikkelingen. De waterkwaliteit komt in de toekomst onder druk te staan door het frequent voorkomen van langdurige droge periodes, waarbij de verdunning van puntlozingen relatief beperkt is. Voor de onderzochte stoffen zijn nog geen gezondheidskundige drinkwaterrichtlijnen vastgesteld en daarom zijn ze getoetst aan de streefwaarden uit het Europees Rivierwater Memorandum (ERM). *Grosso modo* worden de ERM-streefwaarden reeds in het huidige klimaat op grote schaal overschreden in de Rijn en de Maas, met name voor röntgencontrastmiddelen. Voor weinig reactieve stoffen (bijv. carbamazepine) geldt: hoe lager de afvoer, hoe vaker de ERM-streefwaarde wordt overschreden.

Door de hoge zuiveringsrendementen van de drinkwaterbedrijven worden de meeste stoffen afdoende verwijderd uit het ruwe water, nu en in de toekomst. Uitzonderingen hierop zijn acesulfaam-K bij Leiduin (niet gemeten op de andere locaties), EDTA bij Leiduin en Kralingen, amidotrizoïnezuur bij Leiduin, Kralingen en (in mindere mate) Heel. In zeer droge jaren kunnen ook de concentraties van de geneesmiddelen sotalol (Heel) en carbamazepine, metoprolol en sulfamethoxazool (Kralingen) stijgen tot boven de ERM-streefwaarden. Als de zuiveringsrendementen niet verbeteren, zullen deze stoffen in toenemende mate in het drinkwater worden aangetroffen. Voor sommige stoffen is dat nu al het geval, al worden er, met uitzondering van acesulfaam-K en EDTA, nog geen signaleringswaarden overschreden. De stofconcentraties blijven onder indicatieve gezondheidskundige richtwaarden.

*Dit werk is gefinancierd vanuit het bedrijfstakonderzoek (BTO) van de waterbedrijven en Rijkswaterstaat. RIWA leverde de waterkwaliteitsgegevens.*

## Referenties

1. RIWA, *De kwaliteit van het Maaswater in 2014*; RIWA - Vereniging van Rivierwaterbedrijven, 2015.
2. STOWA, *Microvereenigingen in het water. Een overzicht.*; STOWA, Stichting voor Toegepast Onderzoek Waterbeheer, 2014; p. 35.
3. Europees Parlement en de Raad van Europese Unie, Kaderrichtlijn Water, 2000; p. 72.
4. Bokhoven, A. J. van, Zwolsman, J. J. G., *Klimaatverandering en de waterkwaliteit van de Rijn (2007)*. *H2O* 40, (9), 34-37.
5. Vliet, M. T. H. van, Zwolsman, J. J. G., *Klimaatverandering en de waterkwaliteit van de Maas (2007)*. *H2O* 40, (9), 29-33.
6. Aa, N. G. F. M. van, Kommer, G. J., Montfoort, J. E. van, Versteegh, J. F. M., (2011). Demographic projections of future pharmaceutical consumption in the Netherlands. *Water Science and Technology* 63, (4), 825-831.
7. Deltares *Deltascenario's. Verkenning van mogelijk fysieke en sociaaleconomische ontwikkelingen in de 21ste eeuw op basis van KNMI'06 en WLO-scenario's, voor gebruik in het Deltaprogramma 2011-2012*; Deltares, Planbureau voor de Leefomgeving, 2011; p. 150.
8. RIWA, RIWA database. Nieuwegein, 2015.
9. IAWR *Memorandum regarding the protection of European rivers and watercourses in order to protect the provision of drinking water*; IAWR, RIWA, IAWD, AWE, AWWR: 2013; p. 28.

10. Aa, M. van der, Meijers, E., (2016) Waar komen de geneesmiddelen bij innamepunten voor drinkwaterbereiding vandaan? En wat zijn effecten van klimaatverandering? *H2O-Online*, 10 maart 2016.
11. Moermond, C. T. A., *Environmental risk limits for pharmaceuticals: Derivation of WFD water quality standards for carbamazepine, metoprolol, metformin and amidotrizoic acid*; RIVM: Utrecht, 2014; p. 56.