

Cocaïne en metabolieten in Belgische afval- en oppervlaktewateren (COWAT)

Cocaïne et ses métabolites dans les eaux de surface et les eaux de stations d'épuration en Belgique (COWAT)



Alexander L.N. van Nuijs¹, Bert Pecceu², Laetitia Theunis³, Adrian Covaci^{1,2}, Lieven Bervoets², Nathalie Dubois³, Philippe G. Jorens⁴, Ronny Blust², Corinne Charlier³, Hugo Neels¹

1. Universiteit Antwerpen, Toxicologisch Centrum, Campus CDE geb S6, Universiteitsplein 1, 2610 Wilrijk, België
2. Universiteit Antwerpen, Labo Ecophysiology, Biochemie en Toxicologie, Groenenborgerlaan 171, 2020 Antwerpen, België
3. Université de Liège, Service de Toxicologie clinique, Médico-légale, Environnementale et en Entreprise, Bloc central, +3, CHU B 35, 4000 Liège
4. Universiteit Antwerpen, Klinische farmacologie, farmacotherapie, klinische toxicologie, Campus CDE, Universiteitsplein 1, 2610 Wilrijk, België

La recherche s'inscrit dans le cadre du « Programme de recherches d'appui à la Note politique fédérale relative à la problématique de la drogue » mis en oeuvre et financé par le SPP Politique scientifique.

De studie kadert binnen het “Onderzoeksprogramma ter ondersteuning van de Federale Beleidsnota Drugs”, in opdracht van en gefinancierd door de POD Wetenschapsbeleid.

The research is part of the "Research programme in support of the federal drugs policy document", commissioned and financed by the Belgian Science Policy Office

Dankwoord en medewerking

De Programma-administrateur: Lieve Van Daele

Begeleidingscomité: Benjamin De Backer, Emmanuel De Smet, Willy Lambert, Bahija Lamkaddem, Alexandre Loppe, Philippe Maassen, Michel Ost, Marc Roelands, Marc Schuman, Jacqueline Scuvee-Moreau, Alain Vandelannoote, Bernard Vandenberghe, Jeroen Vanhooren, Eline Van der Biest, Isabella Van Hoeylandt, Alain Verstraete, Robert Wennig, Michel Willekens

Het Netwerk: Hugo Neels, Lieven Bervoets, Ronny Blust, Corinne Charlier, Adrian Covaci, Philippe Jorens, Bert Pecceu, Laetitia Theunis, Alexander van Nuijs

Dit rapport kon stand komen dankzij de medewerking van heel wat personen en organisaties. Hun bijdrage was essentieel om tot dit resultaat te komen. Volgende personen willen we speciaal bedanken voor hun actieve medewerking:

Lény Barras (AIVE)
Olivier Bourlon (INASEP)
Mr. Braibant (IDEA)
Laurent Cession (IBW)
Emmanuel Cornet (Vlaamse Overheid, Afdeling Waterbouwkundig Laboratorium)
Wim Debbaudt (VMM, Afvalwatermeetnet)
Denis Demotte (IDEA)
Yves Dufromont (IPALLE)
Robert Flahaut (IBW)
Sébastien Gailliez (DGRNE division de l'eau)
Vincent Gooris (IBW)
Olivier Lienard (IGRETEC)
Henk Maeckelberghe (VMM - Afdeling Meetnetten & Onderzoek)
Jean-Francois Mougel (Aquiris)
Bourlon Olivier (INASEP)
Bruno Paermentier (AIDE)
Olivier Parent (IPALLE)
Catherine Ramelot (MET - DGVH - SETHY)
Yves Ronse (VMM - Afdeling Kwaliteitsbeheer)
Dirk Siborgs (HIC)
Jan Tekstra (Rijkswaterstaat Directie Limburg)
Alain Vandelannoote (Aquafin)
Angèle Van Hove (FOD Economie)
Philippe Walhain (AIVE)

Samenvatting

Cocaïne (COC) is een verslavend middel dat wordt gebruikt als illegale drug. Het gebruik van cocaïne heeft ogenblikkelijke fysiologische effecten, zoals stimulatie van het centraal zenuwstelsel en gewijzigde serotoninespiegels. Op lange termijn bestaat een verhoogd levenslang risico op hartaanvallen, longcomplicaties en andere. Het recreatieve gebruik van cocaïne is de laatste 25 jaar sterk toegenomen ten gevolge van de verhoogde beschikbaarheid. De trends in drugsmisbruik worden momenteel indirect afgeleid uit bevolkingsenquêtes, interviews met gebruikers, medische verslagen en misdaadstatistieken. Deze algemene indicatoren geven niet altijd een objectieve inschatting van het werkelijke lokale gebruik. Bij de mens wordt na gebruik slechts een kleine fractie (~ 10 %) van cocaïne als dusdanig uitgescheiden via de urine, terwijl het grootste gedeelte (~ 45 %) wordt geëlimineerd als benzoylecgonine (BE), de belangrijkste metaboliet, die ook kan gebruikt worden als bewijs van cocaïnegebruik. Een nieuwe, meer directe en objectieve benaderingswijze voor het cocaïnegebruik is gebaseerd op de meting van cocaïne en metabolieten (bv. BE) in afval- en oppervlaktewater.

Het COWAT project heeft als doel om cocaïne en zijn metabolieten te meten in een aantal geselecteerde afval- en oppervlaktewaters, om zo een inschatting te maken van het cocaïnegebruik in België. Staalnames gebeurden in 28 waterlopen en het influent van 41 belangrijke rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI's). De selectie van monsterpunten in waterlopen gebeurde op basis van de aanwezigheid van bestaande debietmeters, met het oog op de verdere berekening. Hierbij werden plaatsen aangeduid op het einde van een dichtbevolkte vallei, of stroomop- en stroomafwaarts van belangrijke agglomeraties in België. Bij de RWZI's werden de 41 grootste installaties (bediening van > 10 000 inwoners) geselecteerd om het afvalwater afkomstig van een zo groot mogelijk deel van de Belgische populatie te bemonsteren. Op waterlopen werden twee manieren van staalname vergeleken, de klassieke waterbemonsteringsprocedure op basis van een schepstaal, welke slechts een momentopname geeft, en een procedure die gebruik maakt van passieve bemonstering, die meting van de geïntegreerde contaminatie over enkele weken mogelijk maakt. Bij RWZI's werden stalen genomen met debietsgebonden staalnametoestellen, welke een representatief beeld geven van de totale vracht van een component gedurende een bepaalde tijd (meestal 24 h). De staalname omvat 41 RWZI's en 43 oppervlaktewatersites verspreid over gans België. Omdat de stabiliteit van cocaïne in water temperatuursafhankelijk is, werden de staalnames gespreid over twee seizoenen, namelijk de zomer en najaar van 2007 en de winter van 2007-2008, om eventuele verschillen te kunnen detecteren. Bovendien werden de stalen gecollecteerd op zondag en woensdag, de dagen met de grootste concentratieverschillen. Het type passieve staalnametoestellen werd gekozen op basis van de experimenten voor de optimalisatie van de analyseprocedure. Het was duidelijk dat het type POCIS (Polar Organic Chemical Integrative Passive Sampler), bestaande uit 2 microporeuze membranen met daartussen Oasis HLB® als sorbent, de beste resultaten gaf. Ze werden gedurende 3 weken op 8 plaatsen in het water gebracht, geselecteerd op basis van de resultaten uit de eerste meetcampagne.

Een belangrijk objectief was de optimalisatie en validatie van de analytische procedure, met nadruk op de bruikbaarheid van vaste fase extractie voor de staalvoorbereiding, gekoppeld aan vloeistofchromatografie en tandem massaspectrometrie (LC-MS/MS) voor de eigenlijke analyse. Stalen werden zowel in de Universiteit Antwerpen en Universiteit van Luik geanalyseerd. De preliminaire experimenten toonden aan dat (COC) cocaïne en (BE) benzoylecgonine de best bruikbare verbindingen waren voor de doeleinden van deze studie.

Daarnaast werden andere metabolieten van cocaïne, namelijk ecgonine methylester en ecgonine, onderzocht. COC en BE bleven het best stabiel in de diepvries bij pH 2 en de stalen werden bij deze omstandigheden bewaard. Er was geen adsorptie van COC of BE aan de vaste partikels waardoor het afvalwater kon gefilterd worden voor de analyse. Verschillende sorbenten werden uitgetest voor de optimalisatie van de vaste fase extractie, waarbij Oasis HLB® als beste werd bevonden. COC en BE werden gescheiden met behulp van vloeistofchromatografie, waarna de detectie met tandem massaspectrometrie gebeurde. Een gedetailleerde interlaboratorium analytische validatie gebeurde zowel tijdens de eerste als de tweede meetcampagne om de analytische procedures en de interlaboratorium variatie te evalueren. Van de 20 geanalyseerde stalen op beide labo's, lag slechts 1 staal buiten de aanvaardbare relatieve standaardafwijking van 20 %.

Een geografische schatting van het lokaal cocaïnegebruik was gebaseerd op enerzijds concentraties van COC en BE in water en op anderzijds gegevens over farmacokinetiek, metabolisme en milieubestemming. Het model hield rekening met (a) de metabolisme van cocaïne tot benzoylecgonine, welke in de literatuur 45 % gerapporteerd wordt, (b) het debiet gemeten tijdens de staalnamedag, (c) het aantal mensen dat wordt bediend door de desbetreffende RWZI, en (d) de leeftijdsverdeling van de lokale bevolking. Voor waterlopen werd enkel de hoeveelheid cocaïne bepaald die er per dag aan de staalnameplaats voorbij stroomt. Het was duidelijk dat de hoeveelheid cocaïne sterk fluctueerde tussen de staalnamedagen. Waarschijnlijk was de manier van staalname hiervan de oorzaak. In dun bevolkte gebieden, zoals zuidelijk België, werden geen sporen van COC en BE waargenomen in de waterlopen. Dit was waarschijnlijk te wijten aan de lage bevolkingsdichtheid. In de Zenne, Dijle en Demer was wel een duidelijke trend van COC en BE input waar te nemen naarmate men verder stroomafwaarts stalen collecteerde. De resultaten waren algemeen vergelijkbaar met andere, kleiner opgezette studies in de Europese Unie. Uit de analyses van de passieve staalnametoestellen konden geen besluiten getrokken worden voor COC of BE hoeveelheden in het water. Tot op heden kan deze techniek enkel voor kwalitatieve doeleinden toegepast worden, maar hij heeft potentieel om op termijn een nauwkeurig beeld te geven van contaminanten in een waterloop.

In de influenten van alle bemonsterde RWZI's werden sporen van cocaïne en benzoylecgonine teruggevonden. Uitgaande van de analyses en bijkomende informatie was het mogelijk om tot een schatting van de hoeveelheid gebruikte cocaïne (in g per dag) per 1000 inwoners te komen voor de onderzochte regio's. Zoals verwacht werden de hoogste concentraties gemeten in grote steden zoals Antwerpen, Brussel en Charleroi en vooral in het weekend. De resultaten waren vergelijkbaar met deze van andere studies in Italië, Spanje en het Verenigd Koninkrijk. In de middelgrote steden lagen de gevonden hoeveelheden iets hoger in vergelijking met gelijkaardige steden uit de Italiaanse studie. In Antwerpen werd het hoogste gebruik ooit gemeten (1,83 g per dag per 1000 inwoners). In totaal werden per staalnamecampagne ongeveer 3,7 miljoen inwoners bemonsterd. De resultaten werden geëxtrapoleerd naar de totale Belgische bevolking en de verschillende gewesten. Verder werd berekend wat het cocaïnegebruik was voor een kernpopulatie van gebruikers, personen tussen 15 en 45 jaar. Volgens het toegepaste model wordt in het weekend per dag gemiddeld 1,41 g per 1000 inwoners tussen 15 en 45 jaar gebruikt, en in de week 1,03 g per dag. Dit komt neer op een totaal van 1,75 ton cocaïne gebruikt in België gedurende het onderzoeksjaar. Van de drie gewesten in België werd het hoogste gebruik genoteerd in het Brussels hoofdstedelijk gewest met 1,83 g per dag per 1000 inwoners tussen 15 en 45 jaar in het weekend en 1,29 g per dag in de week. Op twee RWZI's, namelijk Brussel-Noord en Deurne, werden gedurende een bepaalde periode dagelijks stalen

geanalyseerd. Hierbij was een duidelijke trend waar te nemen waarbij het gebruik een piek kende in het weekend. Om de zuiveringsefficiëntie van COC en BE te onderzoeken werden op 7 RWZI's naast het influent ook stalen van het effluent genomen. Slechts op één RWZI werden nog sporen van cocaïne aangetroffen in het effluent. Ook in andere studies werd een goede eliminatie van COC en BE uit het afvalwater gerapporteerd. Andere drugs daarentegen worden niet zo efficiënt verwijderd en kunnen dus wel een probleem vormen. Toch zijn er nog aanzienlijke concentraties COC en BE in oppervlaktewater gemeten, wat ecotoxicologische implicaties kan hebben.

Het is duidelijk dat men met deze methodiek een nauwkeurig beeld kan krijgen van het druggebruik binnen een geografische regio. Men kan hiermee regio's met verhoogd gebruik aanduiden of het gebruik opvolgen in de tijd om eventuele stijgingen snel waar te nemen aangezien resultaten binnen enkele dagen verkregen kunnen worden. Dit kan ook een basis vormen voor aanvullende sociologische en epidemiologische studies of evaluatie van preventiecampagnes. Met deze informatie kunnen beleidsmakers en organisaties meer ondersteuning krijgen bij het aanduiden van probleemregio's en het stellen van prioriteiten voor een goed onderbouwd drugbeleid.

Résumé

La cocaïne est une drogue addictive dont les effets physiologiques sont la stimulation du système nerveux central, la toxicité cardiaque et pulmonaire, mais aussi les déséquilibres de la sécrétion sérotoninergique. Son usage « récréatif » a largement augmenté depuis 25 ans, en raison d'une disponibilité accrue sur le marché des produits toxicomanogènes. Les données chiffrées en matière de consommation sont habituellement tirées des enquêtes épidémiologiques de population, d'interviews de consommateurs, des statistiques policières et des registres médicaux. Il est évident que ces diverses approches sont tronquées et ne permettent pas une évaluation correcte des chiffres de la consommation locale. Une petite partie (~ 10 %) de la cocaïne consommée n'est pas métabolisée par le corps humain et est rejetée telle quelle dans les urines. Le produit majoritairement excrété (~ 45 %) est la benzoylecgonine (BE), métabolite de la cocaïne qui peut également être employé comme indicateur de la consommation de cette drogue. Une nouvelle approche, plus directe et objective, de l'usage de cocaïne est de doser cette drogue et son principal métabolite dans les eaux usées et les eaux de surface des fleuves et rivières.

C'est cette approche qu'exploite le projet COWAT : la teneur en cocaïne et en benzoylecgonine a été évaluée dans des échantillons d'eaux usées provenant de 41 stations d'épuration ainsi que d'eaux de surface de fleuves et de rivières (28 points de prélèvement sélectionnés), en vue d'estimer la consommation réelle de cocaïne en Belgique. Les lieux d'échantillonnage ont été choisis en fonction de la facilité d'accès aux valeurs de débit de ces cours d'eau, ainsi facilement exploitables dans les calculs. Ces prélèvements ont été effectués à l'extrême de vallées de bassins hydrographiques fortement peuplés ainsi qu'en amont et en aval des agglomérations importantes en Belgique. Notre choix s'est aussi porté sur les 41 plus grandes stations de traitement des eaux usées (WWTP) de la population belge, desservant chacune plus de 10000 habitants. En ce qui concerne les cours d'eau, deux techniques de prélèvements ont été exploitées : tout d'abord la façon de faire traditionnelle, basée sur un prélèvement ponctuel, qui ne fournit qu'une image momentanée, ensuite un procédé de prélèvement passif, qui présente la caractéristique de rendre possible la mesure d'une consommation intégrée sur quelques semaines. Au niveau des WWTP, l'échantillonnage a été réalisé à l'aide d'un dispositif automatique donnant une image représentative de l'écoulement durant une journée. Au total, nous avons effectué des prélèvements en 43 points de fleuves et rivières, ainsi que dans 41 stations d'épuration. La stabilité de la cocaïne dans l'environnement étant fortement dépendante de la température, c'est dans l'optique de détecter des variations possibles entre saisons que nous avons effectué deux campagnes de prélèvements : l'une couvrant la période allant de l'été à l'automne 2007, l'autre durant l'hiver 2007-2008. Les prélèvements ayant été effectués le mercredi et le dimanche, les résultats permettent d'apprécier la variation de la consommation au cours de la semaine, entre jours ouvrables et week-end. Le choix des échantilleurs passifs a été basé sur les expériences réalisées en vue d'optimiser le procédé d'analyse. Il a paru évident que le type POCIS (Polar Organic Chemical Integrative Passive Sampler), consistant en 2 membranes microporeuses séparées par le sorbent oasis HLB®, donnait les meilleurs résultats. Ces échantilleurs passifs ont été placés dans l'eau durant trois semaines, et ce à huit endroits déterminés lors de la première campagne.

Un des objectifs du projet COWAT était l'optimisation et la validation du procédé analytique, avec une importance particulière portée sur les techniques d'extraction en phase solide, pour la préparation des échantillons ; de chromatographie liquide et de spectrométrie de masse en

tandem (LC/MS-MS), pour leur analyse. Pour ce faire, des échantillons ont été analysés tant à l'Université d'Anvers qu'à l'Université de Liège. Selon la littérature et des expériences préliminaires, la cocaïne (COC) et la benzoylecgonine (BE) sont les deux molécules les plus intéressantes à doser pour rencontrer les objectifs de cette étude. Toutefois, d'autres métabolites de la cocaïne, à savoir l'ecgonine méthyl ester et l'ecgonine ont été succinctement examinés. Suite à une étude de dégradation chimique, c'est à pH=2 et à température de congélation que la COC et la BE se sont révélées être les plus stables. C'est ainsi que les échantillons d'eaux ont été conservés. En raison de l'absence d'adsorption de COC et de BE à la matière particulaire en suspension dans l'eau, les prélèvements ont pu être filtrés avant analyse. Plusieurs sorbents ont été évalués pour optimiser l'extraction en phase solide : le choix s'est porté ici aussi sur l'oasis HLB®. Après séparation par chromatographie liquide, cocaïne et benzoylecgonine ont été dosées grâce à la spectrométrie de masse en tandem. Des contrôles interlaboratoires ont été réalisés tant durant la première que la seconde campagne de prélèvements, et ce en vue de s'assurer de l'absence de variation entre les procédures analytiques des laboratoires des deux universités. Ainsi, parmi les 20 échantillons analysés conjointement par les deux laboratoires, seul un d'entre eux a montré une concentration excédant le coefficient de variation acceptable, et égal à 20%.

L'évaluation géographique de la consommation locale de cocaïne a été basée, d'une part sur les concentrations en cocaïne et en benzoylecgonine issues des prélèvements d'eau, et d'autre part sur des données relatives à la pharmacocinétique et au métabolisme. Le modèle utilisé a tenu compte (a) de la métabolisation de la cocaïne en benzoylecgonine, qui est évaluée à 45% dans la littérature, (b) du débit du cours d'eau lors du prélèvement, (c) du nombre de personnes dont dépend chaque WWTP, et (d) de la répartition en classe d'âge de la population locale.

Pour les fleuves, seule une mesure ponctuelle de la teneur en cocaïne a été évaluée. Il est évident que la concentration en cocaïne dans le milieu peut présenter une variation élevée en fonction du jour de prélèvement. Dans les régions peu peuplées, comme le Sud de la Belgique, aucune trace, ni de cocaïne ni de benzoylecgonine, n'a pu être mise en évidence dans les cours d'eau. Ceci peut être expliqué par la faible densité de population. Dans la Senne, la Dyle et le Demer, un apport évident en cocaïne a pu être observé en aval. Ces résultats sont semblables à ceux d'études similaires réalisées dans l'Union Européenne. A partir des analyses des prélèvements passifs, aucune conclusion n'a pu être tirée quant à la quantité de COC et de BE présente dans les eaux. Cette technique particulière doit préféablement être utilisée à des fins qualitatives. Toutefois, elle présente un potentiel intéressant qu'il serait utile d'exploiter dans le futur.

Parmi les prélèvements effectués dans les influents des WWTP, tous présentaient des teneurs aussi bien en cocaïne qu'en benzoylecgonine. En utilisant les résultats des analyses ainsi que des informations complémentaires, il a été possible d'estimer pour les régions concernées, la quantité de cocaïne consommée (en g/jour) rapportée à 1000 habitants. Comme on pouvait s'y attendre, les concentrations en drogue les plus élevées ont été mesurées dans les villes de forte densité de population telles que Anvers, Bruxelles et Charleroi, et plus particulièrement durant le week-end. Ces résultats sont similaires à ceux obtenus par d'autres études réalisées en Italie, en Espagne et au Royaume-Uni. Dans les villes belges de taille moyenne, les quantités retrouvées sont légèrement plus élevées que celles des villes italiennes comparables. C'est à Anvers que la concentration en cocaïne est la plus forte (1.8 g/jour pour 1000 habitants). Au total, les deux campagnes ont permis d'évaluer la consommation de cocaïne d'environ 3,7 millions habitants. Les résultats obtenus par le projet COWAT ont été extrapolés à la population belge totale, ainsi qu'à plusieurs districts. Ainsi, durant la semaine,

1,03 g de cocaïne est consommé par jour par 1000 habitants d'âge compris entre 15 et 45 ans, contre 1,41 g en moyenne par jour le week-end. Ceci conduit à estimer la consommation annuelle belge totale: 1,75 tonne de cocaïne sont consommés annuellement en Belgique. L'usage le plus important se situe dans la zone métropolitaine de Bruxelles avec, durant le week-end, 1,83 g de cocaïne consommé par jour par 1000 habitants de 15 à 45 ans, et 1,29 g par jour en semaine. Deux stations d'épuration, à savoir celle du Nord de Bruxelles et celle de Deurne, ont été suivies quotidiennement. Une tendance claire s'est dégagée : la présence de cocaïne dans ces eaux étaient plus forte durant le week-end. Parmi les WWTP analysées, sept ont été utilisées afin de comparer la teneur en cocaïne entre influents et effluents. Des traces de cocaïne n'ont été retrouvées dans les eaux d'effluent que d'une seule station d'épuration. En outre dans d'autres études, la concentration en COC et en BE est très faible voire inexistante dans les effluents. Les autres drogues, quant à elles, ne sont pas retirées aussi efficacement des influents et peuvent donc constituer un problème. Dans les eaux de surface, des teneurs assez élevées en COC et en BE ont été mesurées, lesquelles pourraient avoir des impacts éco-toxicologiques.

Le projet COWAT montre qu'il est possible d'obtenir une image précise de la consommation de drogue dans une région géographique. Il est de plus tout à fait faisable d'identifier les régions où la consommation est élevée ainsi que d'observer rapidement (dans quelques jours) des fluctuations dans celle-ci. La méthodologie exploitée par ce projet peut constituer une bonne base pour les études sociologiques ou l'évaluation des campagnes de prévention contre la drogue. Les résultats obtenus par ce genre d'analyse peuvent être directement exploitables et utilisés par la police et d'autres organisations afin d'identifier les régions à problèmes et d'établir ainsi des priorités dans la politique de gestion des drogues.

Summary

Cocaine (COC) is an addictive substance that is used as a 'drug of abuse'. The use of cocaine has an immediate physiological impact, such as a stimulation of the central nervous system and modified serotonin levels. In the long term an increased lifelong risk of heart attacks, lung complications and other risks exists. The recreational use of cocaine has strongly increased in the last 25 years as a result of a higher availability. Until now the research on drug abuse is based on population inquiries, interview with users, medical reports and crime statistics. These general indicators do not always give an objective estimation of the real local use. In the human body only a small part (~ 10 %) of the cocaine is excreted in the urine as the parent compound, whereas the largest part (~ 45 %) is eliminated as benzoylecgonine (BE), the most important metabolite, which can also be used as proof of cocaine use. A new, more direct and objective approach for cocaine use has been based on the measurements of cocaine and metabolites (e.g. BE) in waste and surface water.

The COWAT project aims at measuring cocaine and its metabolites in a number of selected waste and surface waters to estimate the use of cocaine in Belgium. Samples were taken in 28 water courses and in the influent of 41 important waste water treatment plants (WWTPs). The selection of sampling sites in water courses was based on the presence of flow meters, for further calculation of the total amount of cocaine or BE. They are mainly present at the end of a densely populated catchment, or upstream and downstream of important agglomerations in Belgium. For the WWTPs the 41 largest installations (> 10 000 inhabitants) were selected to sample wastewater originating from a large part of the Belgian population. Two sampling techniques were applied for the water courses. The traditional grab sampling, which is only momentaneous, was compared with a procedure of passive sampling, which can measure the incorporated contamination over a period of some weeks. WWTPs samples were taken with an automatic sampling device, which makes it possible to calculate loads for certain compounds. The sampling included 41 WWTPs and 43 surface water sites spread all over Belgium. Because the stability of cocaine is dependent on the temperature, sampling was done in two seasons, the summer and autumn of 2007 and the winter of 2007-2008, to detect possible differences. They were also taken on Sunday and Wednesday, the days with the largest differences in concentration. The choice of passive samplers was based on the experiments for the optimization of the analysis procedure. It was obvious that the type POCIS (Polar Organic Chemical Integrative Passive Sampler), which exists of 2 microporous membranes filled with Oasis HLB® as sorbent, gave the best results. They were exposed in the water for 3 weeks at 8 sites, selected on the results from the first campaign.

An important objective of the COWAT project was the optimization and validation of the analytical procedure, with emphasis on the suitability of solid-phase extraction for sample preparation and of liquid chromatography and tandem mass spectrometry (LC/MS-MS) for the analysis. Samples were analyzed both at the University of Antwerp and at the University of Liège. Preliminary experiments showed that COC and BE were the most useful compounds for the aims of this study. Other metabolites of cocaine, namely ecgonine methylester and ecgonine, were also examined. COC and BE remained the most stable in the freezer at pH 2 and thus samples were preserved under these conditions. There was no adsorption of COC or BE to the fixed particles observed thus the effluent could be filtered before analysis. Several sorbents were tested for the optimization of the solid phase extraction, where Oasis HLB® gave the best results. COC and BE were separated with liquid chromatography, whereupon the detection was performed with tandem mass spectrometry. Detailed analytical interlaboratory validation was performed both during the first and the second campaign to

evaluate variation in the analytical procedures. Of the 20 samples analyzed in both laboratories only 1 sample exceeded the acceptable relative standard deviation of 20%.

A geographical estimate of the local cocaine use was based on the one hand on concentrations of cocaine and BE in the water and on the other hand on data concerning pharmacokinetics, metabolism and environmental destination. The model took into account (a) the metabolism of cocaine to benzoylecgonine, which was reported as 45% in the literature, (b) the flow measured during the day of sampling, (c) the number of people which is served by the WWTP, and (d) the age partitioning of the local population. For water courses only the quantity of cocaine that passes the sampling site during a day was calculated. It was clear that the quantity of cocaine strongly fluctuated between the sampling days. This was probably due to the sampling technique. In low populated areas, such as the southern part of Belgium, no traces of COC and BE were observed in the water courses. This was probably caused by the low population density. In the Zenne, Dijle and Demer, however, a clear trend of COC and BE input was observed going downstream. The results of this study were comparable to those found in other, smaller studies in the European Union. From the analyses of the passive sampling no conclusions could be drawn to COC or BE quantities in the water. Until now this technique can be applied only for qualitative aims, but in the long term it has the potential to give a precise picture of contaminants in the water course.

COC and BE was measurable in the influents of all sampled WWTPs. Using the results of the analyses and additional information it was possible to make an estimate of the quantity of cocaine (in g/day) used by 1000 inhabitants for the examined regions. As expected the highest concentrations were measured in the larger cities such as Antwerp, Brussels and Charleroi and especially over the weekend. The results were similar to those of other studies in Italy, Spain and the United Kingdom. In the cities of medium size the quantities found were slightly higher in comparison with similar cities from the Italian study. In Antwerp we found the highest value ever measured (1,8 g/day per 1000 inhabitants). In total an average of approximately 3,7 million inhabitants were sampled during each campaign. These results were extrapolated to the total Belgian population and the several regions. The cocaine abuse for people between 15 and 45 years old was also calculated. According to the applied model an average of 1,41 g per day is consumed per 1000 inhabitants between 15 and 45 year over the weekend, and 1,03 g per day during the week. This brings us to a total of 1,75 tons used in Belgium during the year of research. From the three regions in Belgium, the Brussels capital district showed a usage of 1,83 g per 1000 inhabitants between 15 and 45 year on a day over the weekend and 1,29 g per day during the week. Two WWTPs, namely Brussel-Noord and Deurne, were followed on a daily basis during a week. A clear trend was observed where the usage was highest over the weekend. From 7 WWTPs additional to the influent, effluent samples were taken. Only at one WWTP traces of cocaine were found in the effluent. Also in other studies COC and BE were mainly purified from the effluent. Other drugs are not removed as efficiently and can therefore be a problem. We measured quite high concentrations of COC and BE in surface water, which may have ecotoxicological implications.

It is clear that one can get a precise picture of the drug consumption within a geographical region with the methodology that was used. It is possible to indicate regions with high consumption or to observe possible increases rapidly (within several days). This can form a basis for additional sociological and epidemiological studies or evaluation of prevention campaigns. With this information policy makers and organizations can get more support at indicating problem regions and setting priorities for a good drug policy.

Zusammenfassung

Kokain (COC) ist ein starkes Stimulans und eine weltweit verbreitete Rauschdroge. Der Gebrauch von Kokain hat sofortige physiologische Auswirkungen, wie die Anregung des zentralen Nervensystems und Veränderungen des Serotoninstoffwechsels. Bei regelmäßIGem, längerem Gebrauch besteht ein erhöhtes Risiko an Herzinfarkten, Lungeninsuffizienz und anderen Herz-Kreislaufkomplikationen zu erkranken. Der private Konsum von Kokain ist innerhalb der letzten 25 Jahre, resultierend aus erhöhter Verfügbarkeit der Droge, drastisch gestiegen. Bis heute basiert die Forschung im Drogenmissbrauch auf Umfragen innerhalb der Bevölkerung, Interviews mit Abhängigen und medizinisch untermauerten Kriminalstatistiken. Diese eher allgemeinen Indikatoren geben nicht immer eine realistische Einschätzung des wirklichen Drogenkonsums. Im menschlichen Körper wird nur ein kleiner Teil (~ 10 %) des Kokains als Reinprodukt über den Urin ausgeschieden. Der Grossteil wird im Urin als Benzoylecgonine (BE), einem Metabolit, das auch als Beweis für Kokaingebrauch herangezogen werden kann, ausgeschieden. Eine neue, direkte und realistische Einschätzung des Kokainkonsums beruht daher auf Messungen des Kokains und seiner Stoffwechselprodukte (z.B. BE), in der Detritus -und der Wasserphase von Oberflächengewässern.

Das COWAT Projekt hat zum Ziel, Kokain und seine Stoffwechselprodukte in Abwässern und Oberflächengewässer zu messen, um den Kokainkonsum in Belgien genauer einschätzen zu können. Für die jeweiligen Messungen wurden Proben in Flüssen und im Influent großer Kläranlagen genommen. Die Auswahl der Probenahmestellen in den Flüssen basierte auf Daten von Strömungsmessern und anderen Berechnungen, wobei vor allem die dichtbevölkerten Gegenden in Belgien ausgewählt wurden. Die 41 größten Kläranlagen (> 10.000 Einwohner), die auch den Grossteil des Abwassers der belgischen Bevölkerung führen, wurden ausgewählt. In den Flüssen wurden zwei Methoden der Probennahme durchgeführt. Dabei wurde die klassische Wasserbeprobung, die einen täglichen Mittelwert der Konzentrationen widerspiegelt, mit einem passiven Beprobungsverfahren verglichen, welches das Messen von Konzentrationen über einige Wochen hinweg ermöglicht. An den Kläranlagen wurden die Proben mit einer automatischen Probenahmeverrichtung genommen, die ein repräsentatives Bild der Konzentrationen im Tagesverlauf wiedergibt. Die gesamte Probenahme schloss 41 Kläranlagen und 43 Oberflächengewässer, verteilt über ganz Belgien ein. Da die Stabilität des Kokains temperaturabhängig ist, fand die Probenahme zu verschiedenen Jahreszeiten (Sommer und Herbst 2007 und Winter 2007/2008) statt. Außerdem wurden jeweils sonntags und mittwochs Proben genommen, da dies die Tage mit den größten Konzentrationsunterschieden sind. Die Wahl der passiven Probenahme basierte auf Ergebnissen von Experimenten für die Optimierung des Analyseverfahrens. Die besten Resultate wurden mit dem passiven Sammler POCIS, bestehend aus zwei mikroporösen Membranen mit Oasis HLB® als Sorptionsmittel, erzielt. Die Beprobung fand, basierend auf den Ergebnissen der vorherigen Kampagne, über drei Wochen an acht unterschiedlichen Stellen statt.

Eine wichtige Zielsetzung des COWAT Projektes war die Optimierung und Validierung des analytischen Verfahrens, mit besonderem Augenmerk auf der Eignung der Festphasenextraktion, der Flüssigchromatographie und der Tandem-massenspektrometrie (LC/MS-MS). Proben wurden gleichermaßen in der Universität von Antwerpen und Universität von Lüttich analysiert. Erste Experimente zeigten, dass COC und BE die nützlichsten Verbindungen für diese Studie waren. Außerdem wurden noch andere Stoffwechselprodukte des Kokains, nämlich Ecgonin Methylester und Ecgonine untersucht.

COC und BE wurden bei pH 2 in der Gefriertruhe aufbewahrt, da die Verbindungen unter diesen Bedingungen am stabilsten blieben. Da keine Adsorption von COC oder BE an Partikel beobachtet wurde, konnte die Probe noch vor der Analyse gefiltert werden. Für die Optimierung der Festphasenextraktion wurden verschiedene Sorptionsmittel getestet, wobei Oasis HLB® die besten Ergebnisse lieferte. Die Trennung von COC und BE wurde mit Hilfe der Flüssigchromatographie vorgenommen, wonach die effektive Konzentration mit Tandemmassenspektrometrie analysiert wurde. Ausführliche analytische laborinterne Validierung wurde sowohl während der ersten als auch während der zweiten Kampagne durchgeführt, um Variabilitäten der analytischen Verfahren auszuwerten. Von den 20 Proben in beiden Labors, überstieg nur eine Probe die die tolerierbare Standardabweichung von 20%.

Eine flächenbezogene Schätzung des lokalen Kokaingebrauches basierte einerseits auf Konzentrationen des Kokains und BE im Wasser und andererseits auf Daten der Pharmakokinese, des Metabolismus und des Klimas. Das Modell zog folgende Variablen in Betracht: (a) die Metabolisierung des Kokains zu Benzoylecgonine, die auf 45% festgelegt wurde, (b) der Fliessgeschwindigkeit des Flusses am Tag der Beprobung, (c) die Bevölkerungsdichte, welche an die Kläranlage angeschlossen ist und (d) die Altersverteilung der lokalen Bevölkerung. Für Flüsse wurde nur die Menge an Kokain pro Tag berechnet, da die Kokainkonzentration der unterschiedlichen Beprobungstage starken Schwankungen unterlag, das eventuell mit der Methode der Probenahme zusammenhängen könnte. In den weniger bevölkerten Gebieten wie im südlichen Belgien, wurden keine Spuren von Kokain gefunden. Dies ist durch die niedrige Bevölkerungsdichte und die starke Verdünnung, bzw. Zerstörung oder Immobilisierung von COC und BE zu erklären. In der Zenne, der Dijle und der Demer wurden jedoch stromabwärts klare Hinweise auf die Einleitung von COC und BE gefunden. Dabei waren die Resultate dieser Studie, denen anderer europäischer Studien ähnlich. Von den Analysen des passiven Probensammlers konnten bis jetzt noch keine Rückschlüsse auf tatsächliche Konzentrationen von COC oder BE gezogen werden, denn momentan kann diese Methode nur qualitative Aussagen geben. In Zukunft sollte es jedoch möglich sein, eine exakte Aussage über Konzentrationen in Oberflächengewässern zu geben.

Bei allen Kläranlagenproben wurden Spuren von Kokain und BE gefunden. Mit den Analyseergebnissen und zusätzlichen Informationen war es möglich, eine Schätzung der Menge an Kokain (in g/Tag) das von 1000 Einwohnern der betreffenden Region konsumiert wurde zu geben. Wie erwartet, wurden die höchsten Konzentrationen in den größeren Städten wie Antwerpen, Brüssel und Charleroi, und dort besonders am Wochenende, gemessen. Die Resultate waren denen anderer Studien in Italien, Spanien und Großbritannien ähnlich. In den mittelgroßen Städten waren die Konzentrationen im Vergleich zu italienischen Städten etwas höher. Die höchste gemessene Konzentration wurden in Antwerpen festgestellt (1,8 g/Tag je 1000 Einwohnern).

In jeder Kampagne wurde ein Einzugsgebiet von insgesamt 3.706.883 Einwohnern beprobt. Diese Resultate wurden auf die belgische Gesamtbevölkerung und deren Bezirke extrapoliert. Dementsprechend wurde ein Durchschnitt von 1,41 g Kokain pro Tag und 1000 Einwohner zwischen 15 und 45 Jahren am Wochenende berechnet. Innerhalb der Woche beliefen sich die Konzentrationen auf 1,03 g pro Tag und 1000 Einwohnern. Dies führt zu einer Gesamtmenge von 1,75 Tonnen Kokain, das während eines Jahres in Belgien konsumiert wird. Der höchste Verbrauch wurde in Brüssel berechnet. Hier lag der Konsum am Wochenende bei 1,83 g pro 1000 Einwohnern zwischen 15 und 45 Jahren und 1,29 g unter der Woche. Bei zwei Kläranlagen, nämlich Brüssel Nord und Deurne wurden innerhalb einer Periode täglich Proben genommen. Auch hier war eine deutliche Tendenz zu erkennen, mit erhöhten Kokainkonzentrationen am Wochenende erreicht. Für sieben Kläranlagen wurde außer dem

Influent auch der Effluent beprobt. Dabei wurde für eine Kläranlage auch im Effluent Spuren von Kokain gefunden. Auch anderen Studien zeigten bereits, dass COC und BE in der Kläranlage effektiv entfernt werden und somit kein ökotoxikologisches Risiko besteht. Andere Drogen werden hingegen nicht so effektiv entfernt und können folglich ein Problem in der Umwelt darstellen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass es mit dieser Methode möglich ist eine äußerst genaue und zuverlässige Abschätzung des flächenmäßigen Drogenkonsums zu treffen. Des weiteren ist es möglich, bestimmte Regionen in denen ein erhöhter Drogenkonsum herrscht zu identifizieren und bezüglich ihrer Entwicklung zu beobachten. Dies kann als Grundlage für soziologische Studien oder Präventionskampagnen dienen und politische Entscheidungen bezüglich tiefergehender, kostenintensiver Drogenpolitik in bestimmten Brennpunkten könnten durch diese Studien unterstützende Argumente erhalten.

Inhoudstafel

<u>1. INTRODUCTION</u>	1
1.1. INFORMATIONS GÉNÉRALES	1
1.1.1. HISTORIQUE	1
1.1.2. PRODUCTION	2
1.1.3. PHARMACOLOGIE	3
1.1.4. COMPOSITION CHIMIQUE	4
1.2. CONSOMMATION	5
1.2.1. UTILISATION TRADITIONNELLE DE LA FEUILLE DE COCA	5
1.2.2. USAGE DÉTOURNÉ ET RÉCRÉATIF	5
1.2.3. HABITUDES DE CONSOMMATION	5
1.2.4. EFFETS	6
1.2.5. CONSOMMATION DE COCAÏNE DANS LE MONDE	7
1.2.6. CONSOMMATION DE COCAÏNE EN EUROPE	9
1.2.7. SAISIES EN EUROPE ET EN BELGIQUE	12
1.2.8. PRIX ET PURETÉ DE LA COCAÏNE SUR LE MARCHÉ BELGE	14
1.3. DIFFICULTÉS LIÉES À L'ÉVALUATION DES TENDANCES DE CONSOMMATION	15
1.4. DESCRIPTION DU PROJET COWAT	16
<u>2. MATERIAAL EN METHODE</u>	18
2.1. STAALNAME	18
2.1.1. STAALNAME IN WATERLOOPEN	18
2.1.2. STAALNAME MET PASSIEVE STAALNAMETOESTELLEN	20
2.1.3. STAALNAME VAN INFLUENTEN VAN RWZI'S	21
2.2. BEPALING VAN COCAÏNE EN METABOLieten IN AFVAL- EN OPPERVLAKTEWATER	23
2.2.1. OPTIMALISATIE VAN DE ANALYSEPROCEDURE	23
2.3. INTERLABORATORIUM CONTROLE	36
2.4. BEREKENINGEN	38
<u>3. RESULTATEN EN DISCUSSIE</u>	41
3.1. COCAÏNE EN METABOLieten IN WATERLOOPEN	41
3.1.1. SCHEPSTALEN IN WATERLOOPEN	41
3.1.2. PASSIEVE STAALNAMETOESTELLEN IN WATERLOOPEN	47
3.2. COCAÏNE EN METABOLieten IN RWZI'S	49
3.2.1. CONSUMPTIE IN 41 BELGISCHE REGIO'S	49
3.2.2. COCAÏNEGEBRUIK IN BELGIË EN DE GEWESTEN	57
3.2.3. DAGELIJKE COCAÏNECONSUMPTIE IN BRUSSEL EN ANTWERPEN	58
3.2.4. VERWIJDERING VAN COCAÏNE EN METABOLieten IN RWZI'S	61
3.2.5. ECOTOXICOLOGIE	62
3.2.6. ANDERE ILLEGALE DRUGS	63
<u>4. CONCLUSIE</u>	64
<u>5. REFERENTIES</u>	66

Appendix I : Interlaboratorium controle eerste staalnamecampagne	72
Appendix II : Interlaboratorium controle tweede staalnamecampagne	75
Appendix III : Resultaten oppervlaktewater 1ste staalnamecampagne	78
Appendix IV : Resultaten oppervlaktewater 2de staalnamecampagne	80
Appendix V : Resultaten RWZI's van 1ste weekend	81
Appendix VI : Resultaten van RWZI's van 2de weekend	83
Appendix VII : Resultaten van RWZI's van 1ste week	85
Appendix VIII : Resultaten van RWZI's van 2de week	87

1. Introduction

1.1. *Informations générales*

1.1.1. Historique

L'usage de la feuille de coca est profondément intégré à la civilisation des Amérindiens. Cette feuille fait partie de la vie quotidienne des indigènes sud-américains depuis la plus haute antiquité. L'usage de la coca, initialement réservée aux prêtres et aux castes Incas élevées pour les rituels sacrés, a progressivement gagné toutes les couches de la population. La coca est employée par les vivants, les mineurs notamment, mais est également utilisée pour les morts auxquels on place des feuilles de coca dans la bouche. La toxicomanie cocaïnique est très importante en Amérique du Sud. Les « coqueros » introduisent dans leur bouche, lors de la mastication des feuilles de coca, une substance alcaline composée de cendre et de chaux, laquelle libère la cocaïne présente dans la feuille et en facilite l'absorption intestinale. La coca est un excitant, mais sa démocratisation a ajouté la déchéance physique à la misère morale des « coqueros » (Carter, 1990).

Introduite en Europe au XVIII^{ème} siècle, peu après la conquête du Pérou, par Jussieu, la feuille de coca est employée par les médecins en infusion ou en décoction. En 1855, le chimiste allemand Friedrich Gaedcke obtient des cristaux en distillant des feuilles de coca, il donna à cette substance le nom de erythroxyline (Richard & Senon, 2004). En 1857, l'italien Rizzi, pharmacien des hôpitaux de Bolivie, extrait l'alcaloïde actif qu'il nomme la cocaïne, mais sa découverte resta ignorée. En 1859, Carl Scherzer rapporte à Vienne des feuilles de coca prélevées lors de ses voyages, à la demande du chimiste Friedrich Wöhler, lequel en confie l'étude à un de ses étudiants, Albert Niemann. C'est en 1859 que ce chimiste autrichien isole le principe actif des feuilles de coca, la cocaïne, la fait enfin connaître au monde scientifique et en décrit l'action anesthésique (Salmandjee, 2003). Il faut attendre 1879 pour que le physiologiste Wassili von Anrep établisse les propriétés psychotropes de la cocaïne sur un modèle animal. La cocaïne est l'un des anesthésiques locaux parmi les plus puissants. Cette propriété a fait de l'usage de la cocaïne un phénomène de mode vers la fin du XIX^{ème} siècle et le début du XX^{ème} siècle (Salmandjee, 2003). L'ophtalmologue Carl Koller et le physiologiste Leopold Königstein pratiquèrent alors avec succès une anesthésie locale en chirurgie humaine. Ils présentent leurs travaux à la société des médecins de Vienne, le 17 octobre 1884. Dans un contexte où l'anesthésie locale est inconnue, la cocaïne est présentée comme « miraculeuse » (Richard & Senon, 2004). Sigmund Freud fit quelques expériences sur ses effets et en conseilla l'utilisation, notamment comme aphrodisiaque, comme traitement des troubles gastriques, du mal de mer, de la neurasthénie ou comme traitement des addictions à l'opium, à la morphine et à l'alcool. Bref, une véritable poudre miracle! Il vanta les mérites de l'usage de la cocaine dans deux articles scientifiques en juillet 1884 et mars 1885, avant d'en devenir un adversaire acharné, suite à la déchéance d'un de ses amis, Ernst von Fleischl, due à la prescription de cocaïne par Freud comme remède à sa morphinomanie (Israëls & Busse, 1999).

A la fin du XIX^{ème} siècle, la cocaïne devient populaire. Elle s'incorpore dans les cigares, les cigarettes et dans les boissons (Salmandjee, 2003). Ainsi, le pharmacien Angelo Mariani eut l'idée de commercialiser un vin, « le vin Mariani », dans lequel étaient infusées préalablement des feuilles de coca. Ce vin n'est qu'une des nombreuses productions de Mariani puisqu'il proposa également des pastilles à la cocaïne, des infusions de cocaïne, des elixirs, des toniques

et ce, en vantant la coca et ses applications thérapeutiques. De nombreuses personnalités des arts, de la littérature et de la politique tels que Thomas Edison, Jules Verne, Emile Zola, le Prince de Galles, Monseigneur Duchesne et même le pape Léon XIII apportèrent leur appui au vin Mariani. Quant au Coca-Cola, il fut créé fin du XIX^{ème} siècle pour satisfaire à la demande du marché américain pour une boisson populaire à base de cocaïne. Début du XX^{ème} siècle, la quantité de cocaïne fut considérablement réduite, mais elle persista dans la composition de la boisson jusqu'en 1924 (Pendergrast, 2000).

La multiplication des cas d'abus de cocaïne commença alors à être dénoncée. En 1914, l'essentiel des états américains réglementèrent l'usage et la distribution de cocaïne dans le but de réduire la criminalité, pour en interdire peu à peu l'usage non-médical. Au milieu du XX^{ème} siècle, la cocaïne n'est plus considérée comme un problème de santé publique car son usage s'est amoindri, mais dès le début des années 1960, la consommation redevenait préoccupante (Salmandjee, 2003). Elle atteint son apogée à la fin des années 1970 sous l'impulsion des cartels qui cherchent à écouter leur production en cassant les prix (Richard & Senon, 2004). Plusieurs conventions ont été organisées sous l'égide de l'ONU afin de combattre le succès de la cocaïne. La convention unique sur les stupéfiants de 1961 porte principalement sur la coca, l'opium, le cannabis et leurs dérivés. C'est depuis lors que la cocaïne est reconnue comme stupéfiant et que sa production, son commerce, sa détention et son usage (excepté à des fins médicales) ont été progressivement interdits dans la plupart des pays.

Fin du XX^{ème} siècle dans certains pays occidentaux, la cocaïne est associée aux classes aisées, notamment aux milieux de la politique, du cinéma et de la chanson. Faisant fi des campagnes mondiales de lutte contre la cocaïne, la production augmente de façon exponentielle et contribue à faire chuter les prix de revente à la dose et à populariser la cocaïne dans tous les milieux sociaux.

Il faut également noter qu'une nouvelle habitude de consommation est née en Amérique du Sud dans les années 80. Il s'agit de fumer de la « pâte de coca », nouvelle forme de consommation de drogue, aux effets beaucoup plus violents que ceux de la cocaïne. Cette substance plus dangereuse que la cocaïne et son chlorhydrate, et d'un coût moindre, est en fait la base libre de la cocaïne, aussi appelée crack. Il s'agit du produit de deux extractions en milieu alcalin alternées par un passage en milieu chlorhydrique à l'aide de Kérosène ou assimilé, carbonate de soude, ammoniaque, acide chlorhydrique, soude et autres solvants. Le crack est produit par les laboratoires clandestins et vendu prêt à la consommation pour un prix près de 10 fois inférieur à celui de la cocaïne. Ce type nouveau de toxicomanie pourrait bien prendre de l'ampleur dans les années à venir.

1.1.2. Production

Bolivie, Colombie et Pérou sont les trois principaux pays producteurs de cocaïne. En 2006, les superficies plantées en cocaïers dans ces trois pays atteignaient 156900 ha. Cette superficie serait restée fondamentalement stable depuis 2003, selon les estimations. La Colombie demeure le pays où l'on trouve les plus vastes cultures de coca. La culture de la coca en Colombie représentait 78000 ha, en 2006. Au Pérou, la culture de la coca occupe 51 400 ha, valeur inférieure aux superficies des années 1990 où le Pérou était le plus grand cultivateur mondial. Le Pérou occupe aujourd'hui le second rang – derrière la Colombie – et a compté pour un tiers du total des cultures en 2006. La Bolivie, troisième producteur de

feuilles de coca, vient toujours largement derrière la Colombie, et les 27500 ha de culture n'ont représenté que 18% des cultures mondiales de coca en 2006. On estime généralement que la culture de la coca est restée marginale dans les pays voisins, comme l'Équateur et le Venezuela (Nations Unies, 2007).

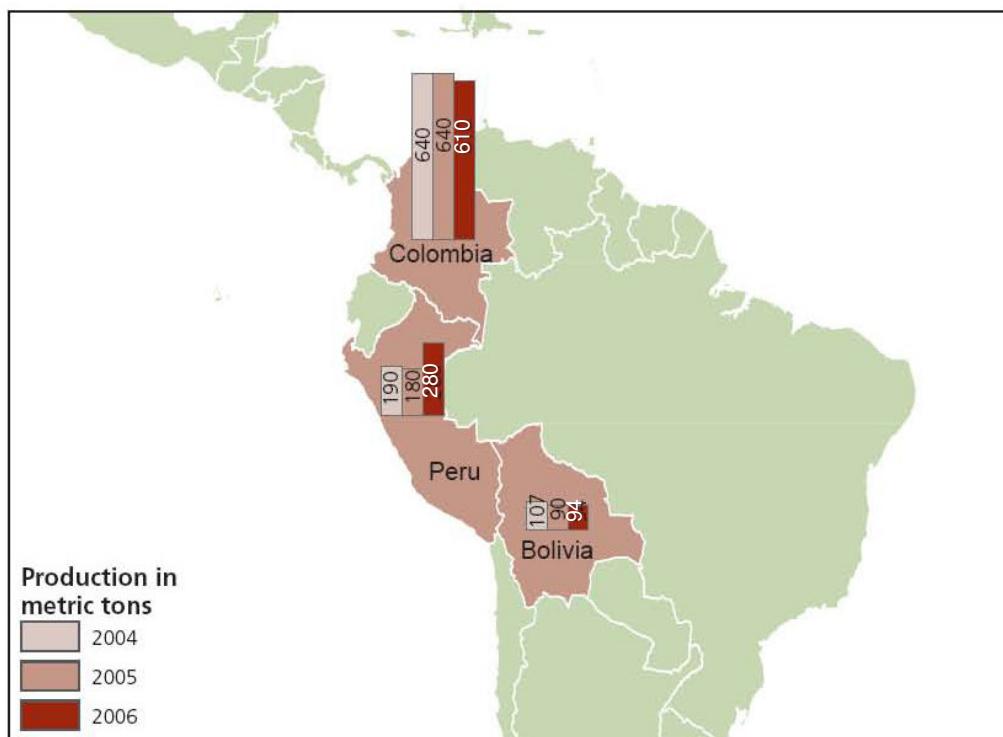


Figure 1: Production potentielle annuelle de cocaïne en 2004, 2005 et 2006, dans les trois principaux pays producteurs: Colombie, Pérou, Bolivie (Nations Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007).

La plupart des laboratoires clandestins qui fabriquent du chlorhydrate de cocaïne sont situés en Amérique du Sud, en Colombie, Bolivie et Pérou.

1.1.3. Pharmacologie

Anesthésique local et de surface, la cocaïne bloque les échanges ioniques au travers de la membrane neuronale. Ceci interrompt la propagation des potentiels d'action correspondant au message sensitif (Bruneton, 1999). La cocaïne a des effets analeptiques majeurs similaires à ceux des amphétamines, notamment de la méthamphétamine. Il s'agit d'une substance analeptique qui augmente les performances cérébrales d'idéation, de formation et d'enchaînement des idées (Bruneton, 1999).

La cocaïne est un stimulant qui agit sur le système nerveux central, en bloquant la recapture des monoamines dans l'espace synaptique. En effet, il s'agit d'un agent sympathomimétique, c'est à dire qu'elle provoque une stimulation adrénalique en bloquant, par fixation sur leurs transporteurs, le recaptage de la dopamine et de la noradrénaline par le neurone présynaptique

(Bruneton, 1999). La recapture de la dopamine entraîne une augmentation de la concentration du neurotransmetteur dans diverses régions du cerveau, notamment le nucleus accumbens (Richard & Senon, 1999), tandis que la recapture de la noradrénaline, ainsi que de la sérotonine n'est pas considérée comme participant aux effets psychostimulants (Richard & Senon, 1999).

1.1.4. Composition chimique

La cocaïne consommée contient, outre des produits de coupe, une quantité variable d'huiles essentielles à salicylate de méthyle, des flavoïdes et des tanins (Bruneton, 1999). La teneur en huiles essentielles varie entre cultivar, et elle n'est peut-être pas étrangère à la préférence que marquent certains consommateurs pour telle ou telle variété de cocaïne.

L'espèce de cocaïer, sa variété, son origine géographique font partie des facteurs qui influent sur la teneur en alcaloïdes dans la drogue. Celle-ci varie entre 0,5 et 1,5%. Le constituant principal est la méthyl-benzoyl-ecgonine, alcaloïde ester, volatil à l'état de base. Il existe d'autres dérivés de l'ecgonine : E- et Z-cinnamylcocaïnes (méthyl-cinnamyl-ecgonines), tropacaïnes et truxillines (esters isomères d'un acide dicinnamique) ainsi que plusieurs pyrrolidines (hygrine, cuscohygrine) (Bruneton, 1999).

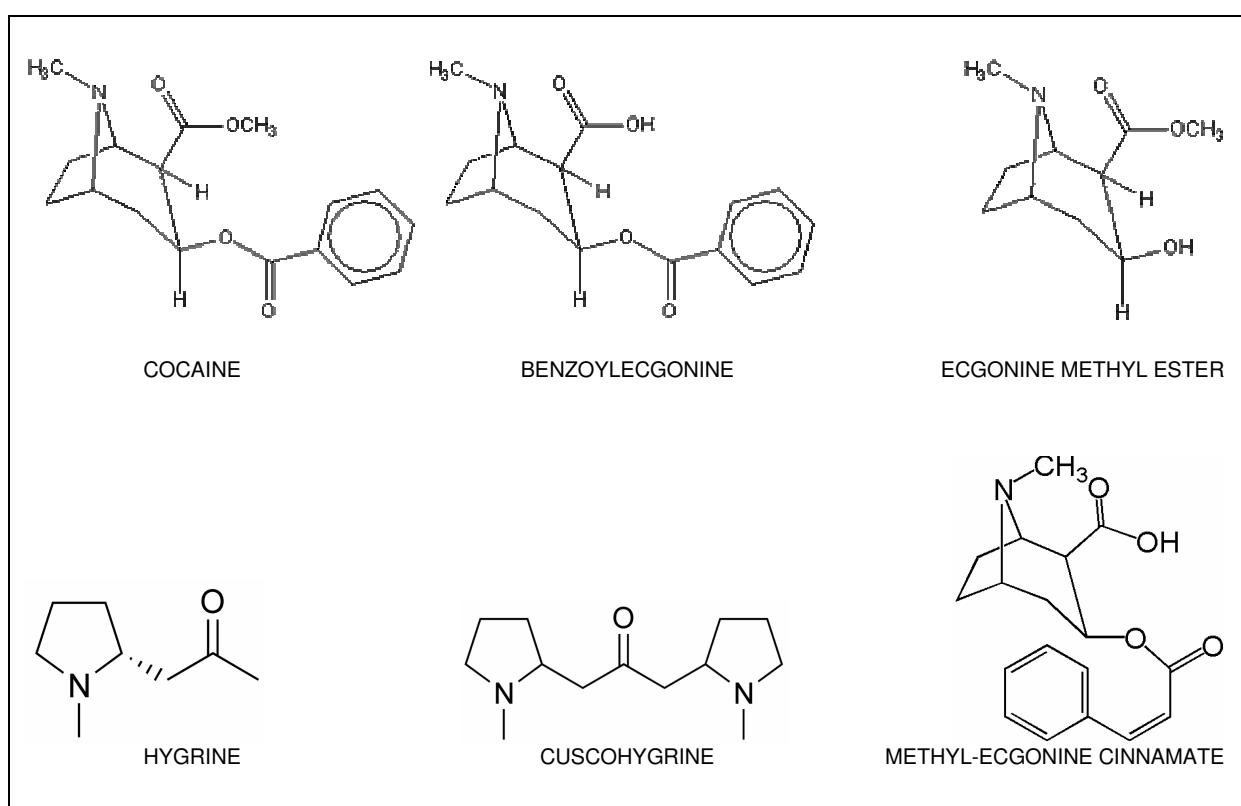


Figure 2: Représentation chimique de la cocaïne, benzoylecgonine, ecgonine méthyl ester, hygrine, cuscohygrine et méthyl-ecgonine cinnamate.

1.2. Consommation

1.2.1. Utilisation traditionnelle de la feuille de coca

Additionnée d'agents alcalins, facilitant la libération de cocaïne, la feuille de coca est traditionnellement mâchée. Cet usage est ancestral. Dans certains pays, comme la Bolivie, la feuille de coca se consomme soit en infusion, laquelle est caractéristique par son caractère aromatique fort et marqué, soit comme le thé ou le café, via la mate de coca (Bruneton, 1999).

1.2.2. Usage détourné et récréatif



Figure 3: Blocs de cocaïne et lignes de cocaïne sniffées à l'aide d'une paille.

La cocaïne se présente le plus souvent sous la forme d'une poudre blanche et floconneuse , plus rarement sous forme de cristaux. La cocaïne, ou chlorhydrate de cocaïne, qui alimente le trafic clandestin est la plupart du temps coupée avec des substances visant à en augmenter le volume, telles que le bicarbonate de soude, le sucre, le lactose ou divers autres produits pharmaceutiques. Ces produits de coupe sont susceptibles d'en accroître les dangers. En effet, il est possible que les produits interfèrent entre eux. La pureté de la poudre vendue sur le marché clandestin est très variable (Richard & Senon, 1999). La saveur de la cocaïne est amère et provoque une sensation d'engourdissement sur la langue quand on la goûte. Elle est considérée comme le premier psychotrope illicite ayant donné lieu à un trafic organisé mettant en place les stéréotypes de ce type de marché (Richard & Senon, 1999).

1.2.3. Habitudes de consommation

L'usage le plus répandu consiste à inhaller (« sniffer ») la cocaïne sous forme de poudre, en général au moyen d'un petit tube creux appelé « paille ». La cocaïne est alors disposée en petits tas filiformes, appelés « traits », « barres », « rails », « lignes », « tracks » ou « traces ». L'effet se fait sentir au bout de 2 minutes et dure environ une heure (Salmandjee, 2003).

La cocaïne peut également être fumée en joint. Le « FreeBase » se fume dans une pipe spécifique (parfois considérée comme analogue à une pipe à crack). Les formes fumées produisent très rapidement des effets intenses (absorption pulmonaire rapide, concentration plasmatique très élevée), mais de courte durée (pas plus de 30 minutes). La dépression

profonde qui suit pousse à la réutilisation. La dépendance s'installe très rapidement. (Salmandjee, 2003).

L'expression « chasser le dragon » consiste à inhaller des vapeurs de cocaïne, laquelle, placée sur une feuille d'aluminium, est chauffée par le dessous (Bruneton, 1999).

La cocaïne peut encore être ingérée sous forme de parachutes. Il s'agit de l'envelopper dans du papier à cigarettes et de gober le tout. L'effet se fait ressentir au bout de 20 minutes et dure environ une heure (Salmandjee, 2003). Enfin, pratique généralisée chez les polytoxicomanes, elle peut être injectée par voie intra-veineuse. L'effet se fait sentir au bout de 10 minutes et dure plus ou moins 30 minutes (Salmandjee, 2003). Elle est ainsi parfois consommée avec de l'héroïne (« speed-ball ») afin de compenser les effets de la dysphorie qui suit la brève euphorie lors de la prise de cocaïne par intraveineuse (Bruneton, 1999). Cocaïne et alcool ne font pas bon ménage car ce mélange augmente la toxicité des deux produits, surtout à cause de la formation de cocaéthylène, lequel augmente fortement le risque d'infarctus du myocarde.

1.2.4. Effets

a. Effets recherchés et effets indésirables

La prise de cocaïne provoque une forte euphorie, une hyperactivité, un sentiment de puissance intellectuelle (illusion de tout comprendre, sentiment d'hyperlucidité, et d'avoir une intelligence inconcevable, sentiment d'accélération idéique) et physique (voire sexuelle) qui provoque une forte désinhibition. L'activité, proche de celle des amphétamines, se traduit non seulement par une diminution de sensation de douleur et de fatigue, par de l'insomnie, de l'anorexie, par une loquacité accrue, mais aussi par de l'irritabilité et des troubles de la perception, et éventuellement par un épuisement physique et une dépression émotionnelle (Bruneton, 1999; Salmandjee, 2003). Ces effets vont laisser place ensuite à ce qu'il est commun d'appeler « descente » ou « craving » : un état dépressif et une anxiété que certains apaiseront par une prise d'héroïne ou de médicaments psychoactifs.

b. Toxicité à court terme

La stimulation adrénégique se traduit par une hyperthermie, une mydriase et une vasoconstriction, ce qui induit de l'hypertension (augmentation de la pression sanguine). Au niveau cardiaque, on peut noter une tachycardie (augmentation du rythme cardiaque), et des troubles du rythme cardiaque (Salmandjee, 2003).

L'usage de la cocaïne provoque très souvent des céphalées sévères, parfois des crises convulsives. On peut également noter des cas d'illusions et d'hallucinations évoquant une psychose paranoïde grave, une activité compulsive de grattage (délires à ectoparasites) et, fréquemment, des troubles de l'expression verbale et de la mémorisation (Bruneton, 1999). La levée des inhibitions peut conduire à des excès de violence ou des agressions (Salmandjee, 2003).

La déplétion consécutive à l'inhibition du recaptage de la dopamine explique l'effet dépresseur à court terme : asthénie psychique et physique, dépression respiratoire et

vasomotrice. On peut également citer la survenue de crampes, de tremblements, de spasmes, d'une épilepsie, de saignements du nez, ainsi que d'une anosmie durant 48 heures en cas de prise par voie nasale. Les surdosages massifs sont caractérisés par un coma convulsif et des troubles cardiaques. Les risques sont augmentés chez les buveurs d'alcool, qui ont souvent recours à ce palliatif pour masquer les effets secondaires de la cocaïne. En effet, les estérases hépatiques trans-estérifient la cocaïne en cocaéthylène (benzoylénylecgonine) particulièrement toxique.

Les cas de décès imputés à la cocaïne sont dus à un état de santé incompatible avec la prise de cocaïne (antécédents de problèmes cardiaques, hypertension, insuffisance respiratoire, asthme, épilepsie, problèmes hépatiques ou rénaux, diabète), un dosage trop élevé (overdose), un mélange avec d'autres substances aggravantes (risque de coma toxique en mélangeant alcool et cocaïne, troubles cardiaques en mélangeant cocaïne et boissons stimulantes, alcool, tabac, sildénafil, amphétamines).

Chez la femme enceinte, la cocaïne traverse la membrane placentaire et expose le fœtus à des risques de retard de croissance, accidents vasculaires et malformations.

c. Toxicité à long terme

Les complications les plus importantes sont d'ordre cardiovasculaire (Bruneton, 1999): crise hypertensive paroxystique, ischémie myocardique (risque d'infarctus). L'hypertension peut conduire à une hémorragie cérébrale. Consommée de façon régulière, la cocaïne peut également entraîner une contraction des vaisseaux sanguins (Salmandjee, 2003) : les tissus insuffisamment irrigués, se nécrosent. C'est souvent le cas de la cloison nasale avec des lésions perforantes pouvant aller jusqu'à la nécrose chez les usagers prenant régulièrement de la cocaïne (Salmandjee, 2003).

d. Dépendance et tolérance

Une dépendance psychique forte s'installe rapidement (Salmandjee, 2003). On estime que 20% des usagers deviennent dépendants (Richard & Senon, 1999). La dépendance à la cocaïne est parfois réversible mais même après un arrêt complet de consommation, il faut attendre de 12 à 18 mois sans rechute pour être considéré comme « guéri » (Chevolleau & Geoffrion, 2007).

La tolérance ne concerne que certains des effets (notamment l'euphorie) et est fortement dépendante des susceptibilités individuelles (Richard & Senon, 1999).

1.2.5. Consommation de cocaïne dans le monde

L'ONUDC (Organisation des Nations Unies contre la Drogue et le Crime) estime que 14 millions de personnes dans le monde, soit 0,3 % de la population âgée de 15 à 64 ans, consomment de la cocaïne (Tableau 1). C'est l'Amérique du Nord qui compte le plus grand nombre de consommateurs de cocaïne (6,4 millions d'usagers). Elle est suivie par l'Europe occidentale et centrale (3,9 millions) et l'Amérique du Sud (y compris l'Amérique centrale et les Caraïbes: 2,2 millions) (Figure 4 et Figure 5).

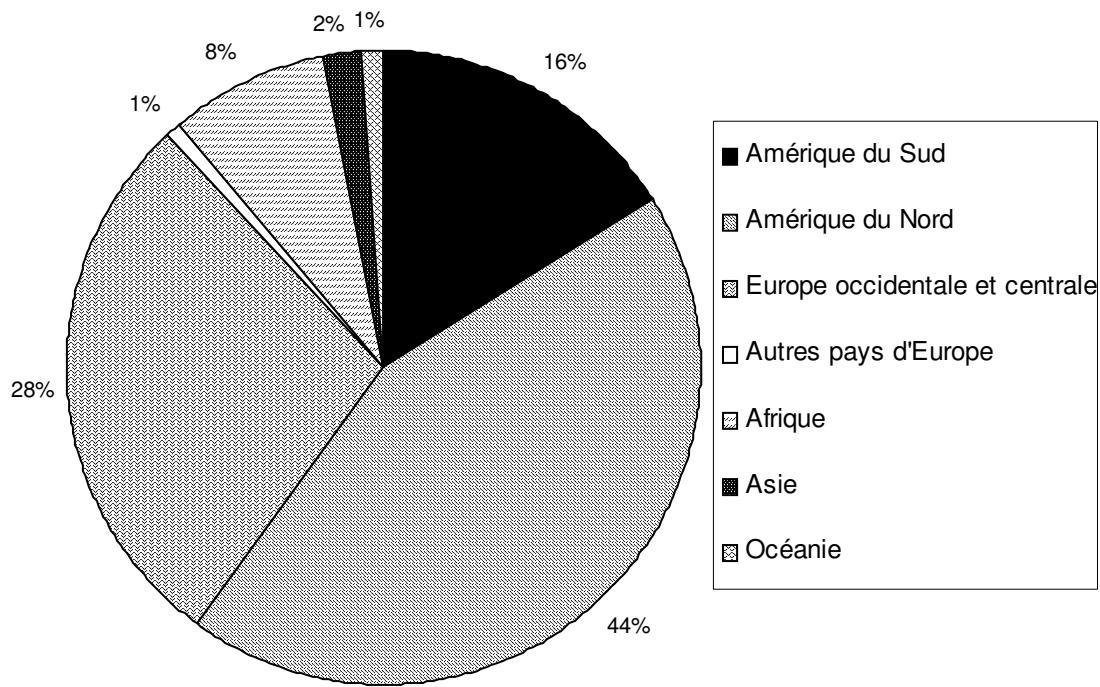


Figure 4: Prévalence annuelle de l'usage de cocaïne: ventilation par région (N=14.3 millions). Source: Nations Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007.

Tableau 1: Nombre de consommateurs de cocaïne recensé sur chaque continent, exprimé en % de la population âgée de 15 à 64 ans. Source: Nations Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007.

	Nombre d'usagers	% de 15 à 64 ans
Europe	4056000	0,75
Europe occidentale et centrale	3944000	1,24
Europe du Sud-Est	66000	0,08
Europe de l'Est	46000	0,03
Amériques	8610000	1,48
Amérique du Nord	6363000	2,19
Amérique du Sud	2247000	0,77
Asie	329000	0,01
Océanie	178000	0,83
Afrique	1084000	0,22
TOTAL MONDIAL	14257000	0,34

Parmi les jeunes adultes européens (âgés de 15 à 34 ans), l'usage de cocaïne est plus faible en général (5,7%) que celui rapporté en Australie (7,6%), au Canada (13,8%) et aux Etats-Unis (14,2%). Cependant, certains états européens, (Espagne, Italie, Danemark, Grande-Bretagne)

sont fortement concernés par la consommation de cocaïne par les jeunes adultes (European Monitoring Center for Drugs and Drug Addiction, 2007).

En ce qui concerne les statistiques relatives à l'usage par les jeunes au cours de l'année écoulée, la moyenne européenne (2,1%) est clairement inférieure à celle des Etats-Unis (4,4%), toutefois, il convient de noter que les prévalences en l'Espagne (5%) et en Grande-Bretagne (4,8%) sont plus élevées qu'aux USA (European Monitoring Center for Drugs and Drug Addiction, 2007).

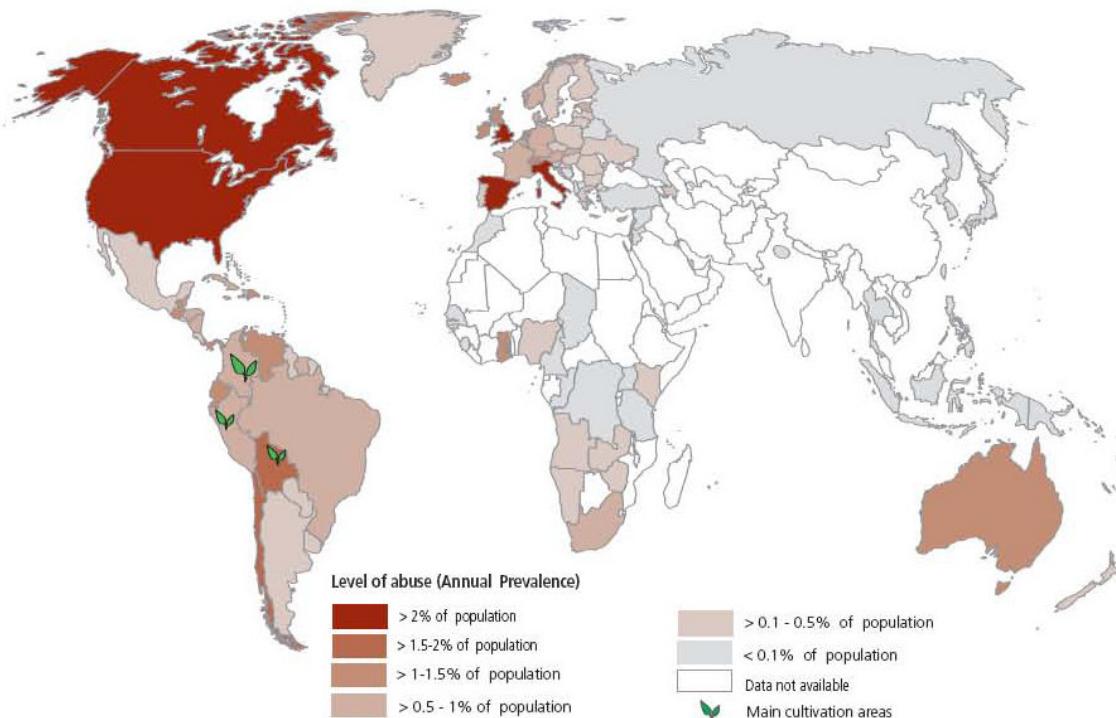
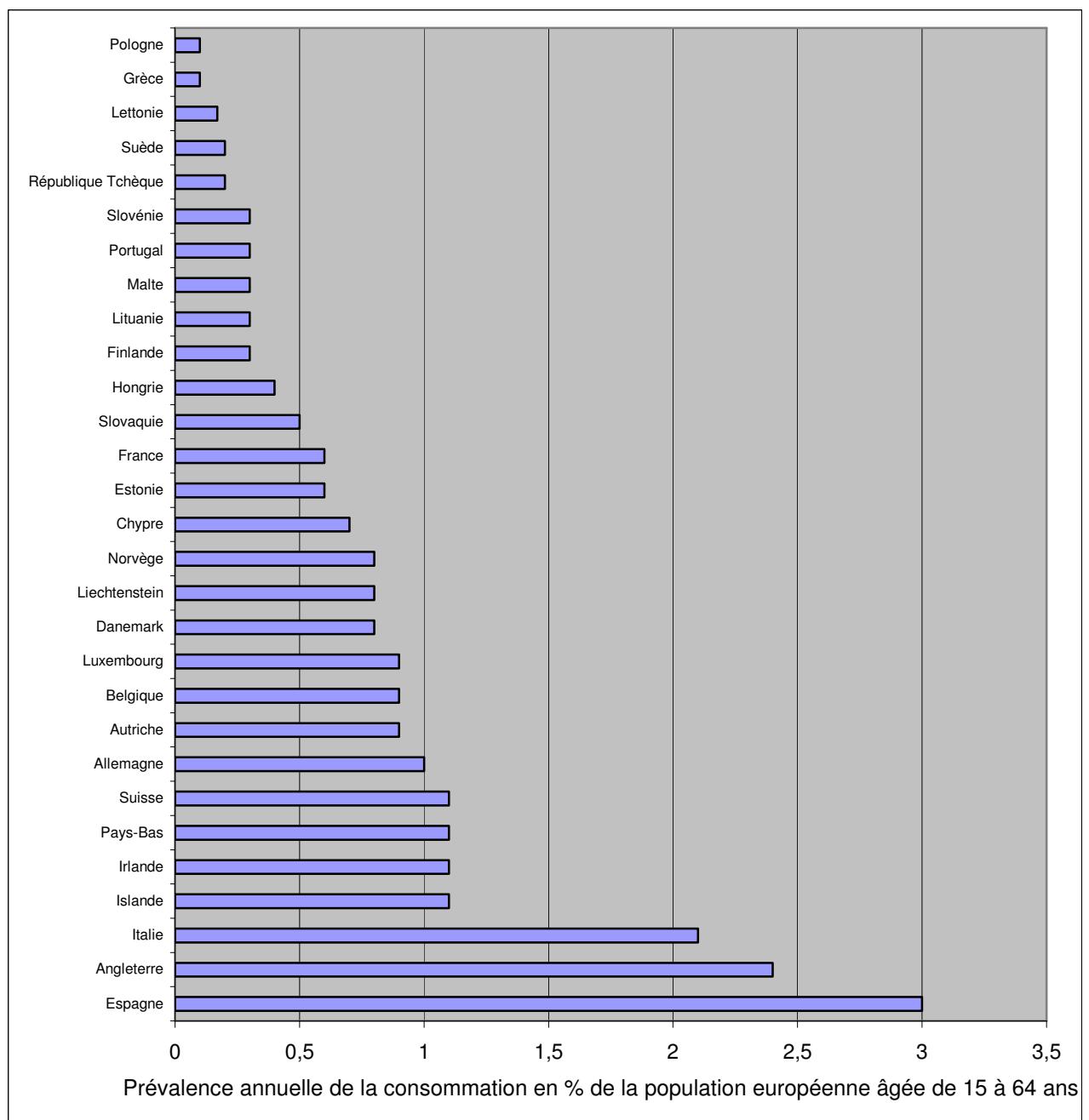


Figure 5: Consommation de cocaïne en 2005-2006, selon le pourcentage de population consommatrice par rapport au nombre total de personnes adultes du pays considéré. Source: Nations Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007.

1.2.6. Consommation de cocaïne en Europe

Des sondages et études ont montré une nette augmentation de la consommation de cocaïne par les populations jeunes dans certaines villes depuis la moitié des années 90. De plus, des études ciblées ont permis d'observer de très hauts niveaux de consommation de cocaïne durant certaines occasions récréatives (fêtes et discothèques majoritairement). Ceci est conforté par des données de disponibilité de la cocaïne en Europe (nombre de saisies et quantités saisies, qui ne cessent d'augmenter).



Graphique 1: Prévalence annuelle de la consommation de cocaïne en % de la population européenne âgée de 15 à 64 ans. Source: Nations Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007.

C'est en Espagne, depuis longtemps le principal point d'entrée de la cocaïne en Europe, que l'on trouve la plus forte consommation. Plus d'un cinquième des usagers européens de la cocaïne vit en Espagne, où la cocaïne est la drogue la plus consommée après le cannabis. Malgré des campagnes de prévention à grande échelle et des services de répression très actifs, l'usage de cocaïne a doublé dans la population générale (âgée de 15 à 64 ans), passant de 1,6%, en 1999, à 3%, en 2005. Les taux de consommation de cocaïne en Espagne sont plus du double de la moyenne des pays d'Europe occidentale (1,2%) et quatre fois supérieurs à la moyenne européenne. Les taux d'usage de la cocaïne y dépassent ceux des Etats-Unis (Nations Unies, 2007).

L'usage de cocaïne a également augmenté au Royaume-Uni. Selon les données de British Crime, les taux de prévalence annuelle de la cocaïne ont quadruplé par rapport à la décennie antérieure, passant de 0,6%, en 1996, à 2,4% de la population âgée de 16 à 59 ans, en 2006. La cocaïne est aujourd'hui la seconde drogue illicite consommée au Royaume-Uni, après le cannabis, surtout à Londres (Nations Unies, 2007).

L'Italie est le troisième marché de cocaïne en Europe. L'augmentation de la consommation y a été plus forte que dans bien des pays, le taux de prévalence annuelle passant de 1,1%, en 2001, à 2,1% de la population générale, en 2005. La cocaïne vient au second rang des drogues consommées, après le cannabis. Le nombre de personnes qui ont consommé une fois dans leur vie de la cocaïne a beaucoup augmenté, passant de 1000 personnes/an, dans la première moitié des années 1990, à 9000 personnes, en 2005. Avec ses quelques 800000 usagers, l'Italie représente près d'un cinquième du marché européen de la cocaïne (Nations Unies, 2007).

L'Allemagne, est, avec près de 240000 usagers, le quatrième marché de la cocaïne en Europe. Selon la dernière enquête auprès des ménages réalisée en 2003, le taux de prévalence était de 1% de la population âgée de 18 à 59 ans. La cocaïne vient au second rang des drogues consommées, après le cannabis (Nations Unies, 2007).

Enfin, la France est le cinquième marché de la cocaïne en Europe, la consommation annuelle de cocaïne atteignant 0,6% de la population âgée de 15 à 64 ans.

1.2.6.1. Consommation de cocaïne dans la population étudiante

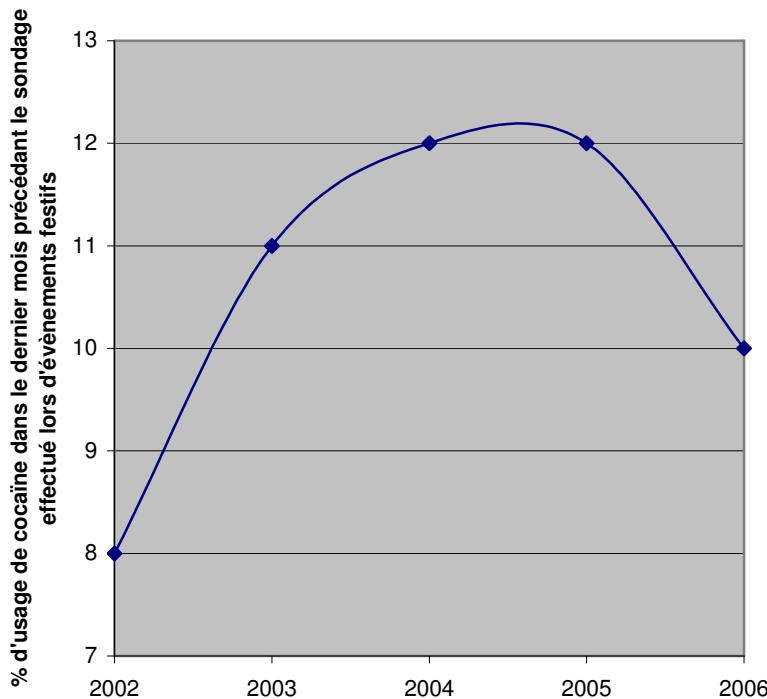
La consommation de la cocaïne est très faible parmi les étudiants, et considérablement plus faible que l'usage du cannabis. Ainsi, un sondage mené en 2003 dans les écoles de 28 pays révèle que moins de 2% des écoliers âgés de 15 à 16 ans avaient déjà précédemment essayé la cocaïne. La part d'écoliers ayant déjà consommé de la cocaïne augmente avec l'âge de ceux-ci. Ainsi, dans la tranche d'âge 17-18 ans, en 2004, la prévalence de l'usage de la cocaïne atteignait 19% en Espagne, suivi de 6% pour l'Italie et la Belgique, et de 5% pour les Pays-Bas (European Monitoring Center for Drugs and Drug Addiction, 2007).

En 2005, l'université et les collèges anversois, soit 27000 étudiants, ont participé à un sondage au sujet de la consommation de drogues illicites. Il en est ressorti que la consommation d'amphétamines, d'XTC et de cocaïne était plutôt exceptionnelle parmi les étudiants interrogés. Entre 2,3% et 3,4% de la population étudiante sondée avaient pris une de ces trois drogues durant l'année écoulée, tandis que l'usage fréquent de cocaïne ou d'amphétamine y était un phénomène marginal. Toutefois, une corrélation positive avait été mise en évidence entre « binge drinking » et consommation de cocaïne (Lamkaddem & Roelands, 2007).

1.2.6.2. Consommation de cocaïne en Belgique

L'usage récréatif de la cocaïne en Belgique est rencontré chez les jeunes dans les discothèques, festivals et autres occasions de rencontre festive. Il s'agit principalement de prise de cocaïne par sniffing.

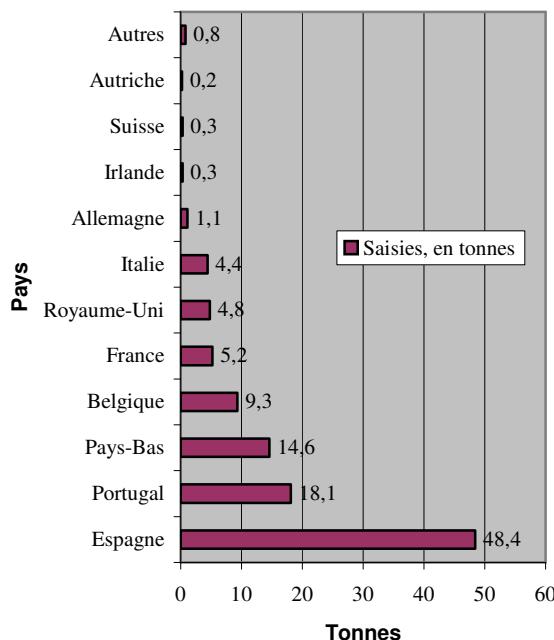
Le dernier rapport national belge sur les drogues montre que en 2006, 10% des personnes interrogées lors de certains de ces évènements révélaient avoir consommé de la cocaïne durant le mois précédent . Les résultats obtenus lors de sondages similaires fluctuent peu depuis 2002. (Graphique 2)



Graphique 2: Prévalence de l'usage de cocaïne durant le mois précédent le sondage effectué, à un moment donné, lors d'évènements festifs (discothèque, concert, festival etc), en communauté française de Belgique (Lamkaddem & Roelands, 2007).

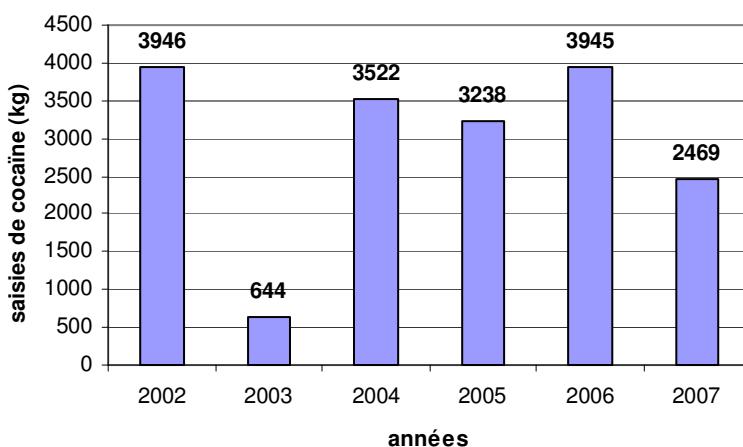
1.2.7. Saisies en Europe et en Belgique

La part de l'Europe dans les saisies mondiales de cocaïne a augmenté de façon fulgurante durant ces dernières années, passant de moins de 3 %, en 1980, à 8 %, en 2000, et à 14 %, en 2005 (Nations Unies, 2007). Cela reflète les courants de trafic régulièrement croissants et la propagation de l'usage de cocaïne en Europe. Au quatrième rang des saisies mondiales juste derrière la Colombie, les Etats-Unis et le Venezuela, arrive l'Espagne avec des saisies représentant 48 tonnes, soit 6,5 % du total des saisies mondiales. Depuis 2002, l'Espagne occupe le troisième ou le quatrième rang en termes de saisies. Depuis deux décennies, elle effectue régulièrement les plus fortes saisies de cocaïne en Europe (Graphique 3) (Nations Unies, 2007).



Graphique 3: Saisies de cocaïne en Europe, exprimées en tonnes. Source: Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007.

Selon les chiffres des Nations Unies (Graphique 3), la Belgique occupe la quatrième place européenne en ce qui concerne le tonnage de cocaïne saisie, à savoir 8,6% du total des saisies européennes en 2005, soit 9,3 tonnes (Nations Unies, 2007). Il faut toutefois noter une divergence dans les chiffres : selon la police fédérale belge, les saisies de cocaïne étaient de 3,2 tonnes en 2005 (Graphique 4).



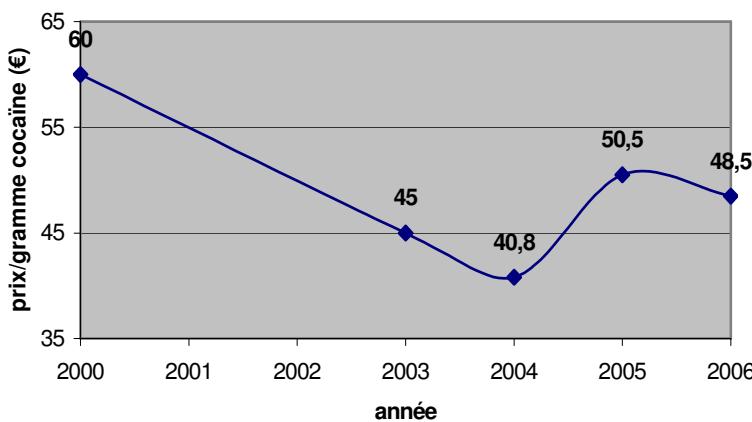
Graphique 4: Saisies de cocaïne en Belgique, de 2002 à 2007, exprimées en kg. Source: Belgian national report on drugs 2007 et communication de la police fédérale belge.

La quantité de cocaïne saisie en 2004 en Belgique était de 3522 kilogrammes, et donc plus de 5 fois supérieure à celle saisie en 2003 (644 kg) (Lamkaddem & Roelands, 2007). Par après, selon les chiffres de la police fédérale belge, les quantités saisies sont restées relativement stables, avec toutefois un léger déclin en 2007 (Graphique 4).

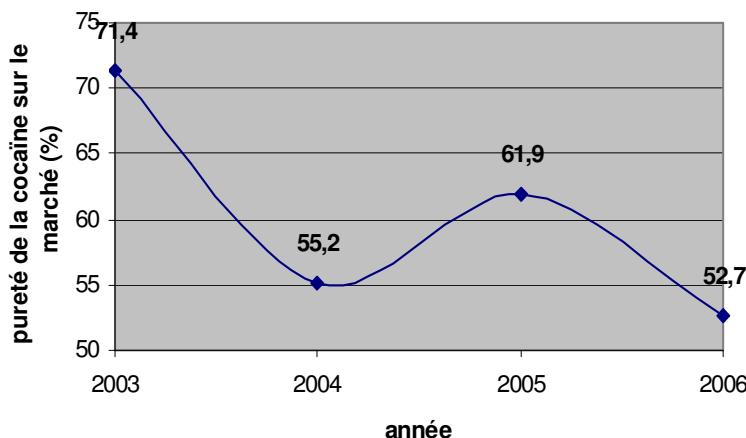
Des contrôles sévères sont menés sur les anciennes voies empruntées par ce trafic. Il existe une entrée directe en Europe via l'Espagne et les Pays-Bas, au départ d'Amérique du Sud, et une voie détournée par l'Afrique de l'Ouest (Nations Unies, 2007).

1.2.8. Prix et pureté de la cocaïne sur le marché belge

Après avoir augmenté entre 1996 et 2000, pour atteindre en moyenne 60€ le gramme (les prix variaient dans la fourchette allant de 45,9 € à 74,4 € pour un gramme), le prix de la cocaïne a fortement diminué entre les années 2000 et 2004, atteignant en moyenne 45€ le gramme en 2003, et même 40,8€ en 2004 (Graphique 5). Cette diminution de prix est à mettre en corrélation directe avec une diminution de la qualité de la drogue. En effet, alors que la pureté de la cocaïne était estimée à 71,4% en 2003, elle n'était plus que de 55,2% en 2004 (Graphique 6). Ainsi, de Décembre 2004 à Novembre 2005, 60 cas consécutifs d'intoxication due à la consommation de cocaïne coupée avec de l'atropine ont été signalés. Cette association est assez dangereuse, surtout parce qu'elle entraîne chez le cocaïnomane des effets auxquels il ne s'attend pas (par exemple des hallucinations) et qu'il en conçoit beaucoup d'anxiété.



Graphique 5: Evolution du prix d'un gramme de cocaïne sur le marché belge (Sleiman & Roelands, 2006; Lamkaddem & Roelands, 2007).



Graphique 6: Evolution de la pureté d'un gramme de cocaïne sur le marché belge (Sleiman & Roelands, 2006; Lamkaddem & Roelands, 2007).

1.3. Difficultés liées à l'évaluation des tendances de consommation

La consommation de cocaïne semble être un phénomène qui prend de l'ampleur dans beaucoup de pays (Nations Unies, 2007). Les tendances et l'importance de l'usage de cette drogue sont souvent estimées indirectement, à partir de statistiques générales basées sur des sondages parmi la population, des interviews de consommateurs, des données de centres médicaux et des statistiques policières (Zuccato et al., 2005). Ces indicateurs généraux ne permettent cependant pas d'estimer de façon réaliste le phénomène de cocaïnomanie au niveau régional, là où les aspects socio-économiques et culturels peuvent fortement influencer les habitudes et les tendances dans la consommation de drogue. De plus, les tendances obtenues via le questionnement d'utilisateurs confirmés ou potentiels de cocaïne sont souvent sous-estimées (Zuccato et al., 2005). En effet, plusieurs études ont montré des écarts importants entre déclarations et pratiques réelles (Harrison & Hughes, 1997; Winter et al., 2000). De nouvelles méthodes sont dès lors nécessaires, pas seulement pour fournir des estimations plus réalistes de la consommation de cocaïne, mais également pour pouvoir détecter immédiatement des changements dans les tendances de cette consommation parmi les populations locales. De telles méthodes pourraient aider les acteurs sociaux et les autorités pour répondre au mieux aux modifications d'habitudes de cocaïnomanie en mettant en place des mesures de préventions appropriées et efficaces, en temps réel.

1.4. Description du projet COWAT

La cocaïne est une drogue addictive dont les effets physiologiques sont la stimulation du système nerveux central, la toxicité cardiaque et pulmonaire, mais aussi les déséquilibres de la sécrétion sérotoninergique. Son usage « récréatif » a largement augmenté depuis 25 ans, parallèlement à une disponibilité accrue sur le marché des produits toxicomanogènes (Nations Unies, 2007).

Les données chiffrées en matière de consommation sont habituellement tirées des enquêtes épidémiologiques de population, des statistiques policières et des registres médicaux. Il est évident que ces diverses approches sont tronquées et ne permettent pas une évaluation correcte des chiffres de la consommation (Harrison & Hughes, 1997; Winter et al., 2000).

Des informations complémentaires pourraient être obtenues à partir de l'analyse dans les eaux résiduelles, des produits de métabolisation de la cocaïne, et surtout du métabolite majeur, la benzoylecgonine. En effet, plusieurs études (Ternes et al., 1999; Heberer, 2002) ont démontré que les médicaments à usage humain, mais également ceux utilisés par les vétérinaires, lorsqu'ils sont excrétées par les humains ou les animaux, se retrouvent dans les cours d'eau, malgré le passage par une station d'épuration. Les concentrations retrouvées dans l'environnement reflètent dans une bonne mesure les usages locaux. Dès lors, si on tient correctement compte de la pharmacocinétique, et surtout du métabolisme des produits concernés, leur concentration dans les eaux peut être un indicateur fiable de leur consommation dans la région (Zuccato et al., 2005).

Pour la cocaïne, c'est ce que propose le projet COWAT, qui va s'attacher à la recherche et au dosage de la cocaïne et d'un de ses métabolites, la benzoylecgonine (BE), et ainsi proposer une approche par calcul de la consommation régionale (Zuccato et al., 2005), dans des échantillons représentatifs des eaux résiduelles et de surface répartis dans toute la Belgique. Plusieurs sites de prélèvements, en aval et en amont des agglomérations belges importantes ont été choisis. La localisation exacte des lieux de prélèvements a été convenue en étroite collaboration avec le Vlaamse Milieu Maatschappij (VMM) pour la Flandre, la Direction Générale des Ressources Naturelles et de l'Environnement (DGRNE) pour la Wallonie et la Brusselse Intercommunale voor Watervoorziening (BIW) pour Bruxelles. L'échantillonnage du RWZI (rioolwaterzuiveringsinstallaties) a été réalisé en collaboration avec Aquafin pour la Flandre, les Intercommunales wallonnes et la BIW pour Bruxelles.

Deux stratégies de prélèvements pour les eaux de surface ont été appliquées: prélèvement ponctuel et prélèvement passif (placement d'un dispositif permettant l'accumulation pendant 1 à 3 semaines). Pour les eaux résiduelles des prélèvements représentatives pour 24 h sont collectés. Deux campagnes de prélèvements espacées de plusieurs mois ont également été organisées. Sur le plan analytique, le projet a démarré par l'adaptation de la technique de préparation des échantillons et de la procédure d'analyse aux procédures d'échantillonnage, puis par une comparaison inter-laboratoire de la technique utilisée, la chromatographie liquide avec spectromètre de masse en tandem (LC-MS-MS). Les concentrations de cocaïne et/ou de ses métabolites dans le milieu, ainsi que des données pharmacocinétiques de métabolisation et de devenir dans le milieu environnemental, ont été utilisées pour évaluer l'usage de cette drogue. Pour évaluer la répartition géographique, le nombre d'individus desservis par des eaux épurées (RWZI) ou qui habitent dans la zone des bassins hydrographiques concernés a été exploité. L'estimation de l'usage local a également été effectué en intégrant toutes les informations disponibles au niveau local : statistiques annuelles de la VAD (Vereniging voor

Alcohol- en andere Drugproblemen), de l’Institut Scientifique de la Santé Publique et du Département de la Justice. Les diverses estimations relatives à l’usage de la cocaïne faites par ces Institutions ont été confrontées aux résultats obtenus par l’analyse des échantillons d’eau. Les prélèvements ayant été effectués avant et après le week-end, les résultats doivent permettre d’apprécier la variation de la consommation au cours de la semaine alors que l’échantillonnage passif fournit plutôt des informations sur la consommation moyenne sur une période de temps déterminée. En conclusion, une stratégie de surveillance a été définie, et un protocole pourra être rédigé pour permettre des études de routine.

Ce projet a pour objectif principal de répondre à la question suivante : à quel point les concentrations de cocaïne et de BE dans le milieu peuvent-elles être utilisées comme indicateurs de l’usage local de cocaïne ? Le projet COWAT peut se révéler très intéressant pour la lutte fédérale contre les drogues car il fournit des informations sur la répartition géographique de la cocaïne et de ses métabolites en Belgique, la corrélation de cette répartition géographique avec les données officielles, l’estimation du nombre de consommateurs de cocaïne dans les grandes agglomérations belges, les régions et l’entièreté du pays. Actuellement, en effet, cette donnée n’est pas disponible. L’origine de la cocaïne dans l’eau a été évaluée via le rapport entre la cocaïne et la BE, et permet d’établir une estimation de l’origine de la cocaïne retrouvée dans les prélèvements. D’autres informations sont fournies par le projet COWAT : les variations saisonnières (mensuelles) de l’usage de la cocaïne grâce aux deux campagnes d’échantillonnage, l’usage de cocaïne le week-end, l’établissement d’une stratégie de surveillance de la cocaïne dans le milieu aquatique, et enfin l’évaluation des stations d’épuration en terme d’efficacité d’élimination de la cocaïne et de ses métabolites avant rejet des eaux à traiter dans le milieu naturel.

2. Materiaal en methode

2.1. Staalname

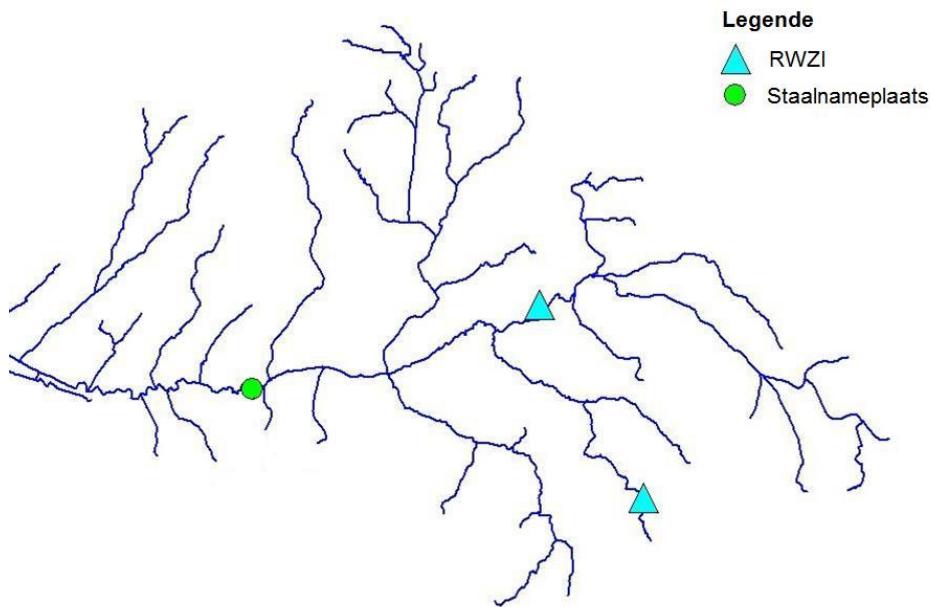
Aangezien temperatuur mogelijk een invloed heeft op de stabiliteit van cocaïne en metabolieten, voerden we 2 staalnamecampagnes uit in verschillende seizoenen. De eerste staalnamecampagne vond plaats tijdens de zomer en herfst van 2007. De tweede staalnamecampagne viel in de winter van 2007-2008.

Schepstalen geven slechts een momentopname. Het is niet echt accuraat om dit te extrapoleren naar een langere periode aangezien concentraties van opgeloste stoffen sterk kunnen fluctueren in de tijd. Om dit probleem te omzeilen kan men gebruik maken van automatische debietgebonden staalnametoestellen of passieve staalnametoestellen (Mills et al., 2007). Op de Belgische waterlopen zijn volgens onze informatie geen debietgebonden staalnametoestellen aanwezig die eigendom zijn van waterbeherende instanties. Dit zijn dure toestellen en men heeft ook energietoevoer nodig. Daarom werd geopteerd om voor de staalname in waterlopen toch manueel schepstalen te nemen en gebruik te maken van passieve staalnametoestellen. Op rioolwaterzuiveringsinstallaties (RWZI's) waren meestal wel debietgebonden staalnametoestellen aanwezig. Deze werden dan ook gebruikt voor de staalnames.

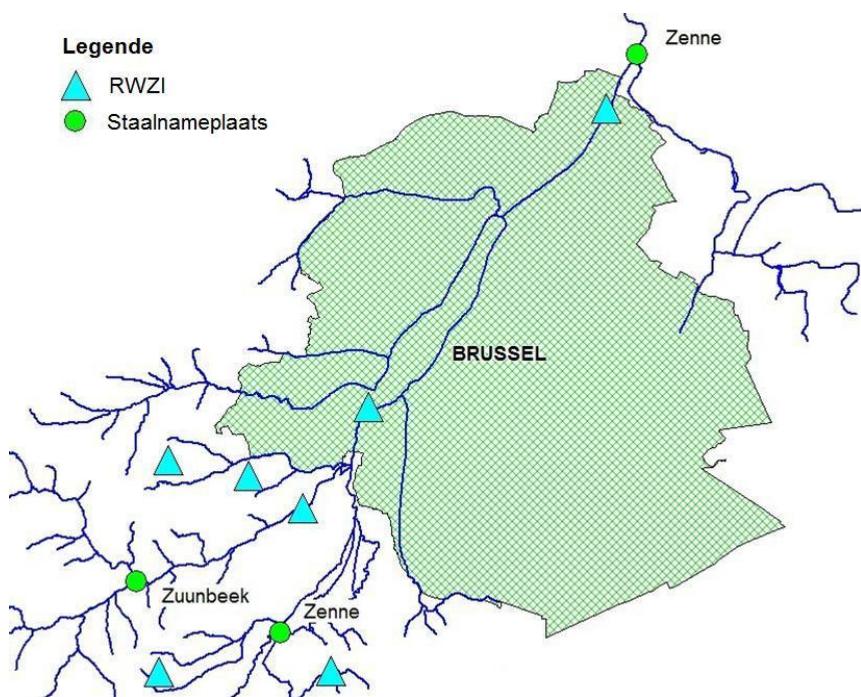
2.1.1. Staalname in waterlopen

Tijdens de eerste staalnamecampagne van het project werden 43 staalnameplaatsen in 28 waterlopen geselecteerd. Aangezien we in een aantal van deze stalen weinig of geen sporen van cocaïne aantroffen, werden deze plaatsen in de tweede staalnamecampagne niet opnieuw bemerst. Om de hoeveelheid cocaïne te kunnen berekenen die dagelijks door een waterloop stroomt was het nodig om het debiet van de waterloop te kennen. De bepaling van het debiet van een waterloop is een moeilijke en dure aangelegenheid. Daarom werd geopteerd om te werken met vaste debietmeters van de instanties die de waterlopen beheren, namelijk het Hydrologisch Informatiecentrum, de Vlaamse Milieumaatschappij, Afdeling Waterbouwkundig Laboratorium, Service d'Etudes hydrologiques Direction des Cours d'Eau non navigables, Direction des Cours d'Eau non navigables en Rijkswaterstaat Directie Limburg Informatie- en Adviesdienst (Nederland). De staalnameplaatsen werden dan ook geselecteerd op basis van de locatie van deze debietmeters.

Om te kunnen bepalen waar de cocaïne vandaan kwam, werden ofwel plaatsen geselecteerd die op het einde van een vallei gelegen waren (Figuur 6), ofwel werden staalnames stroomopwaarts van een stad geselecteerd (Figuur 7). Om de afbraak en/of verlies van cocaïne en metabolieten in oppervlaktewateren te bepalen werden er een aantal staalnameplaatsen op de Dijle, de Grote Nete en de Demer geselecteerd op plaatsen met een lage bevolkingsdichtheid. Hier konden we stellen dat er geen significante cocaïne-input aanwezig was. Als er dus afbraak of immobilisatie van cocaïne en metabolieten plaatsvond zou de staalnameplaats stroomafwaarts lagere waarden opleveren dan de plaats stroomopwaarts.



Figuur 6: Voorbeeld van selectie van een staalnameplaats op het einde van een vallei



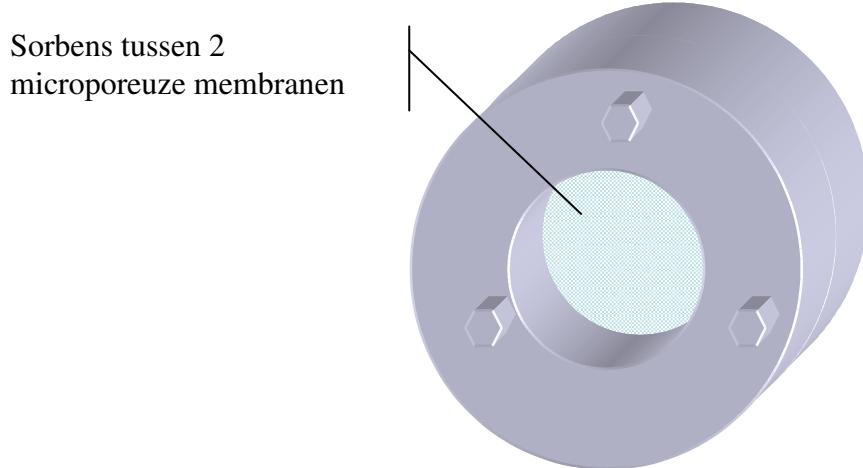
Figuur 7: Voorbeeld van selectie van staalnameplaatsen in de Zenne, voor en na Brussel

De waterlopen werden tijdens elke staalnamecampagne één maal bemonsterd. Bij de bemonstering werd gelet dat er de twee voorafgaande dagen geen overvloedige regenval was. Dit kon eventueel verdunning tot onder de meetlimiet met zich meebrengen. Ook kon er eventueel verlies optreden van cocaïne en metabolieten door overstromingen of toevoeging door het in werking treden van overstorten. Er werd 1 liter staal genomen door onderdompeling van een glazen fles. Dit werd verdeeld over twee glazen flessen van 1 liter.

Na aanzuring tot pH 2 met HCl 6 M bewaarden we de stalen in een diepvriezer bij -20 °C om degradatie van cocaïne en metabolieten te minimaliseren (zie later).

2.1.2. Staalname met passieve staalnametoestellen

Op 10 plaatsen in waterlopen werden passieve staalnametoestellen in het water gebracht. Het voordeel van dergelijke staalnametoestellen is dat we (1) een tijdgewogen gemiddelde krijgen van de concentratie aanwezig in de waterloop en (2) dat we occasionele lozingen kunnen waarnemen die we met schepstalen meestal zullen missen. Er werd voor het type POCIS (Polar Organic Chemical Integrative Sampling) geopteerd omdat dit soort passief staalnametoestel speciaal ontwikkeld is om polaire fracties uit een vloeibare matrix te binden (Jones-Lepp et al., 2004). Er is een commercieel model op de markt dat specifiek gebruikt kan worden om farmaceutische producten te binden (Exposmeter AB, Sweden). Dit bestaat uit 2 microporeuze membranen met daartussen Oasis HLB® sorbens. Dit wordt samengehouden tussen 2 nauw aansluitende metalen ringen (zie figuur 8). Tijdens de experimenten om het sorbens voor de vaste fase extractie te selecteren bleek dit sorbens de beste affiniteit voor cocaïne en metabolieten te vertonen (zie 2.2.1.4.). Het is dus geschikt voor de doeleinden van deze studie. Als alternatief werd op 2 plaatsen ook Oasis MCX® als sorbens gebruikt. Om dit sorbens te activeren werd het toestel vlak voor het plaatsen ondergedompeld in methanol, gespoeld met gedestilleerd water en daarna ondergedompeld in water, op pH 2 gebracht met HCl.



Figuur 8: Passief staalnametoestel type POCIS

De 10 plaatsen werden geselecteerd op basis van de resultaten van de schepstalen. Om verzadiging van het sorbens te vermijden werden ze in waterlopen gebracht met een gemiddelde en een lage concentratie cocaïne en benzoylecgonine. De opnamekinetiek en eventuele verzadiging van de toestellen werd onderzocht door op 3 plaatsen met een gemiddelde concentratie staalnametoestellen gedurende 3 weken te volgen, waarbij elke week 1 POCIS werd geanalyseerd. Op de andere plaatsen hingen we de staalnametoestellen

gedurende 3 weken in het water. De toestellen werden in een metalen geperforeerd omhulsel gebracht om de membranen te beschermen tegen beschadiging. Om praktische redenen werden deze omhulsels met touw vastgemaakt aan de kant van de waterloop, waarbij de membranen loodrecht op de stroom stonden.

2.1.3. Staalname van influenten van RWZI's

Rioolwaterzuiveringinstallaties (RWZI's) ontvangen het afvalwater uit een bepaalde regio via het rioleringstelsel. Ze zijn daarom heel interessant voor onze studie aangezien we kunnen bepalen uit welke regio, en van hoeveel mensen dit ongeveer afkomstig is. Influentbemonstering gebeurde in 41 RWZI's met de grootste capaciteit in België ($> 10\,000$ inwoners), geselecteerd op basis van gegevens daterend uit 2005. In Vlaanderen zijn er grotere RWZI's dan in Wallonië. Om een goed evenwicht te krijgen tussen staalnames in Vlaanderen en Wallonië schrapten we dus enkele Vlaamse RWZI's en vervangen deze door Waalse. Er werd op ieder station een staal genomen op zondag en op woensdag om het eventuele verschil tussen week- en weekendgebruik te kunnen waarnemen.

Voor de staalname opteerden we voor debietgebonden stalen in plaats van schepstalen. Schepstalen hebben namelijk als nadeel dat ze slechts een heel beperkte tijdspanne bedekken van het totale debiet dat er per dag stroomt. Debietgebonden staalnametoestellen nemen gedurende een ingestelde periode, meestal 24 h, staal van het afvalwater. De hoeveelheid water die genomen wordt hangt af van het debiet, waardoor dit staal een duidelijk beeld geeft van het afvalwater gedurende de ingestelde periode. Debietgebonden staalnametoestellen waren op de meeste RWZI's standaard aanwezig. Enkel in Ciney en Gembloux had men geen vaste toestellen en werden dus schepstalen genomen.

In Vlaanderen wordt de rioolwaterzuivering uitgevoerd door Aquafin N.V.. Hier zijn de toestellen standaard ingesteld om dagelijks gedurende 24 h staal te nemen voor de controle van de waterzuivering door de Vlaamse Milieumaatschappij (VMM). Om niet te interfereren met de werking van Aquafin en VMM gebeurden de staalnames dan ook in overleg met deze organisaties. In Wallonië wordt de rioolwaterzuivering regionaal uitgevoerd door zeven afgebakende intercommunales, namelijk l'Intercommunale du Brabant wallon (IBW), L'Association Intercommunale pour le Démergement et l'Epuration des communes de la Province de Liège (AIDE), l'Intercommunale pour la valorisation de l'eau en province du Luxembourg (AIVE), l'Intercommunale Namuroise de Services Publics (INASEP), l'Intercommunale de propriété publique de la région du Hainaut Occidental (IPALLE), l'Intercommunale de Développement économique et d'Aménagement du territoire de la région de Mons-Borinage-Centre (IDEA) en Intercommunale pour la gestion et la réalisation d'études techniques et économiques (IGRETEC). Er zijn dan ook grote verschillen tussen de zuiveringstations in Wallonië. De staalnametoestellen worden daar meestal ingesteld volgens het staal dat men nodig heeft. Er werden hier dus per station afspraken gemaakt om bruikbare stalen te verkrijgen zonder hun werking te belemmeren. Dit zorgde ervoor dat de staalnames in Wallonië soms meer dan 24 h bedroegen.

Om een idee te krijgen van de fluctuatie van het cocaïnegebruik in een week werden gedurende een periode dagelijks stalen genomen op de 2 zuiveringstations die tijdens de eerste meetcampagne hoge resultaten gaven, namelijk Brussel-Noord en Deurne. In Deurne namen we gedurende 11 dagen stalen, in Brussel-Noord was dit 19 dagen. Op 7 RWZI's

werden stalen genomen van zowel het influent als effluent om het verlies van cocaine en metabolieten tijdens het zuiveringsproces te bepalen.

Stalen werden binnen de 48 h opgehaald en aangezuurd tot pH 2 met HCl 6 M om degradatie van de cocaïne en metabolieten te minimaliseren. Ze werden tot aan de analyse bewaard in de diepvriezer bij -20 °C.

2.2. Bepaling van cocaïne en metabolieten in afval- en oppervlaktewater

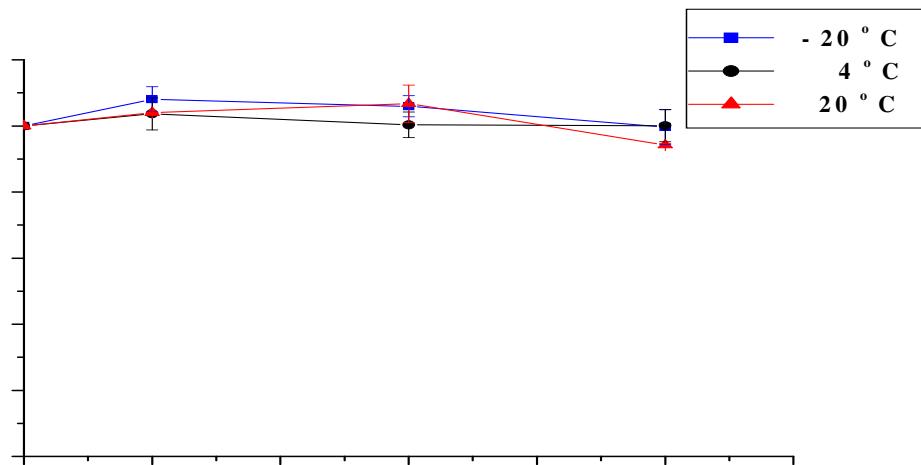
2.2.1. Optimalisatie van de analyseprocedure

De analyseprocedure moet toelaten om cocaïne en zijn belangrijkste metabolieten (benzoylecgonine en ecgonine methylester) in oppervlakte- en afvalwater te bepalen. Hiervoor was een analyseprotocol ontwikkeld en gevalideerd (Gheorghe et al., 2008) dat toelaat om de componenten in waterstalen te analyseren. Deze procedure omvat een aantal stappen:

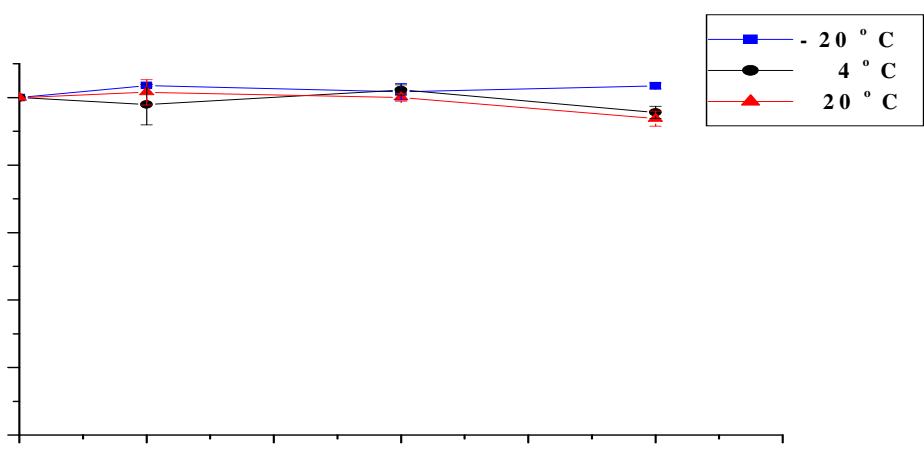
- Bewaring van het waterstaal na de staalname
- Filtratie van het waterstaal
- pH aanpassen
- Staalopzuivering dmv vaste fase extractie
- Scheiding, detectie en kwantificatie van de drie componenten
- Validatie van de methode

2.2.1.1. Bewaring van het waterstaal

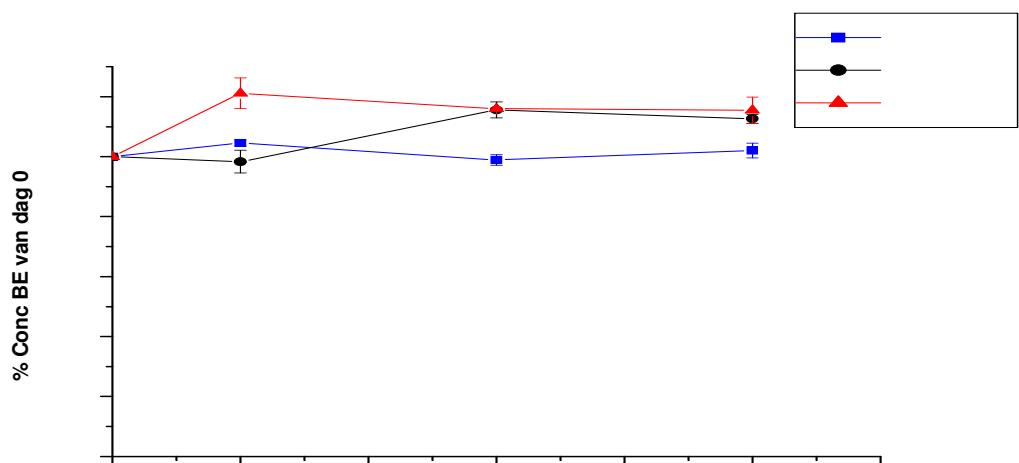
De stalen kunnen onmogelijk allemaal onmiddellijk geanalyseerd worden. Ze moeten dus op een manier bewaard worden zodat de stabiliteit van de te analyseren componenten gewaarborgd blijft. Experimenten zijn uitgevoerd om de invloed van pH (pH 2 en pH 6), temperatuur (kamertemperatuur (20°C), koelkast (4°C) en diepvries (-20°C)) en tijd (na 0, 1, 3 en 5 dagen) op de stabiliteit van cocaïne en benzoylecgonine te evalueren. Een gekende hoeveelheid cocaïne en benzoylecgonine, toegevoegd aan beekwater waarin de aanwezigheid van cocaïne en metabolieten zeer onwaarschijnlijk is, wordt onderworpen aan het analyseprotocol (zie later). Grafiek 7-10 tonen de resultaten.



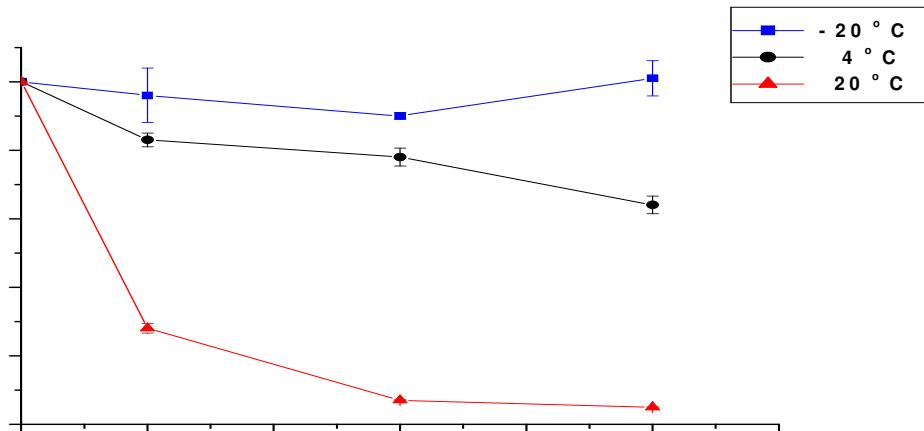
Grafiek 7: Stabiliteitstest voor benzoylecgonine bij pH 2



Grafiek 8: Stabiliteitstest voor cocaïne bij pH 2



Grafiek 9: Stabiliteitstest voor benzoylecgonine bij pH 6



Grafiek 10: Stabiliteitstest voor cocaïne bij pH 6

Elk datapunt in de grafiek wordt uitgedrukt als de verhouding tussen de hoeveelheid cocaïne of benzoylecgonine die werd teruggevonden na de analyse en de oorspronkelijke hoeveelheid cocaïne of benzoylecgonine die toegevoegd was. Voor cocaïne is duidelijk te zien dat er een verlies is bij bewaring bij kamertemperatuur, en dit zowel voor pH 2 als pH 6. Bij bewaring bij pH 2 blijkt er niet zo'n groot verschil te zijn tussen bewaring in de koelkast en in de diepvries. Bij pH 6 is er een duidelijk verlies aan cocaïne te zien na 5 dagen bij bewaring in de koelkast. Uit deze resultaten kan besloten worden dat na staalname de stalen op pH 2 gebracht moeten worden met 6 M HCl en in de diepvries (-20°C) bewaard moeten worden alvorens de analyses uitgevoerd worden.

2.2.1.2. Filtratie van het waterstaal

Oppervlakte- en afvalwaterstalen bevatten nogal wat vaste partikels en onzuiverheden. Door middel van filtratie over een glasfilter (240 mm diameter, Macherey-Nagel) (100 ml voor afvalwaterstalen; 500 ml voor oppervlaktewaterstalen) worden deze onzuiverheden uit de waterstalen gehaald. Er is met behulp van ultrasonicatie getest of er cocaïne of benzoylecgonine aan de vaste deeltjes geadsorbeerd wordt. Dit bleek niet het geval, tijdens de filtratiestap is er dus geen verlies aan cocaïne of benzoylecgonine.

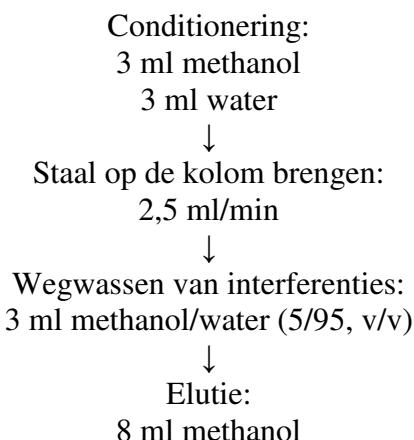
2.2.1.3. pH aanpassen

De waterstalen worden in de diepvries en op pH 2 bewaard. De staalopzuivering door middel van vaste fase extractie (zie later) vereist echter een pH 6 van de stalen. Na de filtratiestap zullen de stalen op pH 6 gebracht worden met behulp van een 30 % ammoniumhydroxide oplossing (NH_4OH). Voor afvalwaterstalen moet ongeveer 100 μl per 100 ml toegevoegd worden, voor oppervlaktewater ongeveer 250 μl per 500 ml.

2.2.1.4. Staalopzuivering met behulp van vaste fase extractie

In deze stap zal het volume van het staal sterk gereduceerd worden (van 100 ml of 500 ml naar 150 µl) en zullen de meeste interfererende componenten uit het staal verwijderd worden. Vaste fase extractie is de techniek die hiervoor gebruikt wordt. In deze techniek wordt het waterstaal met de te bepalen verbindingen ('analieten') over een kolom met een specifiek adsorbens geleid waarbij de analieten achterblijven door middel van verschillende interacties (hydrofiele, hydrofobe en ionische interacties). Interferenties worden van de kolom gewassen en daarna worden de analieten met een ander solvent weer van de kolom gespoeld ('elutie') en uiteindelijk geanalyseerd.

In het geval van de analyse van cocaïne en metabolieten in waterstalen wordt gebruik gemaakt van Oasis HLB® vaste fase extractiekolommen (6 cc inhoud, 500 mg sorbent, Waters). Deze vaste fase extractiekolommen gaven de beste resultaten uit een reeks van zeven verschillende geteste sorbenten (Oasis HLB®, Isolute ENV+®, Isolute C18(EC)®, Oasis MCX®, Chromabond Easy®, Bond Elut Certify®, Isolute PH®). Oasis HLB® kolommen bevatten een adsorbens bestaande uit een polymeer opgebouwd uit N-vinylpyrrolidone- en divinylbenzeengroepen. Deze groepen kunnen zowel hydrofobe als hydrofiele interacties uitoefenen. Alvorens het waterstaal op de kolom gebracht kan worden moet het adsorbens eerst geactiveerd worden ('geconditioneerd'). Het gevolgde vaste fase extractie protocol ziet er als volgt uit:



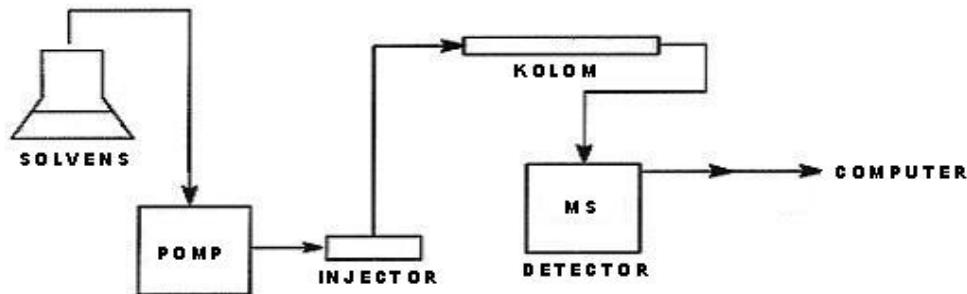
Dit eluaat wordt dan drooggedampt met behulp van een stikstofstroom. De droogrest wordt terug opgelost in 150 µl van acetonitrile/methanol mengsel (3/1, v/v), overgebracht in een centrifugale filter met 0,45 µm poriegrootte en gecentrifugeerd gedurende 5 minuten om partikels die nog in het staal zitten te verwijderen. Het gecentrifugeerde extract wordt overgebracht in een tube voor verdere analyse.

2.2.1.5. Scheiding, detectie en kwantificatie van de componenten

Cocaïne en benzoylecgonine moeten nu van elkaar gescheiden worden om ze te kunnen kwantificeren. De scheiding gebeurt door middel van vloeistofchromatografie (LC). LC maakt voor het scheiden van componenten gebruik van een verdeling van de analieten tussen een mobiele (het eluens) en een stationaire (de kolom) fase. De mobiele fase is een vloeistof, vaak samengesteld uit een bepaalde organische fase (vb: acetonitrile, methanol) en een zure

buffer die vluchtig is (bvb. formiaat- of acetaatbuffer) en heeft een bepaalde elutiesterkte. Dit is de overtuigingskracht van het eluens om een analiet van de stationaire fase mee te sleuren. De stationaire fase bestaat uit een vloeistoffilm rondom silicadeeltjes, waarop eventueel organische groepen zijn ingeplant. Er kunnen verschillende organische groepen ingeplant worden. Zijn dit lange, apolaire alkylketens (C_{18} , C_8 , ...), dan spreken we over een apolaire stationaire fase en over "reversed phase" chromatografie. Vooral apolaire analieten zullen retentie ondervinden op deze kolommen. Zijn de organische groepen eerder polair van aard (zuivere silica, amino, cyano, diol, amide, ...), dan spreken we over "normal phase" chromatografie. Hierop zullen de meer polaire analieten weerhouden worden. Een variant op "normal phase" LC is "hydrophilic interaction chromatography" (HILIC). Hierbij bestaat het starteluens meestal uit een hoge hoeveelheid organische fase. Zo kan een mengsel van polaire analieten gescheiden worden. In dit analyseprotocol wordt een HILIC-kolom op basis van zuivere silica gebruikt, zonder ingeplante groepen.

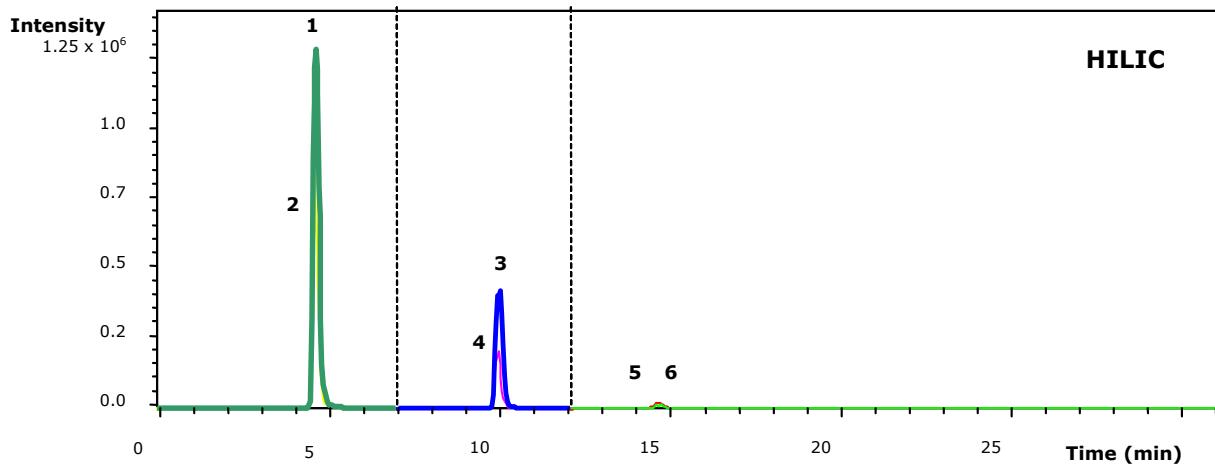
Het resultaat is dat door de verschillende polariteit van cocaïne en benzoylecgonine, beide componenten van elkaar gescheiden zullen worden in functie van de tijd (retentietijd). Een schematische voorstelling van een LC-systeem is weergegeven in (Figuur 9).



Figuur 9: Schematische voorstelling van een LC-systeem

Na de scheiding door vloeistofchromatografie moeten de gescheiden componenten nog zichtbaar gemaakt worden om aan kwaliteit- en kwantificatie te kunnen doen. Dit gebeurt door middel van massaspectrometrie. In massaspectrometrie worden de moleculen, gescheiden tijdens LC, in eerste instantie omgezet in geladen deeltjes. Deze ionen worden dan via een capillair in de eigenlijke massaspectrometer gebracht. In dit protocol wordt gebruikt gemaakt van een ion trap massaspectrometer. De ionen komen binnen in de ion trap en op basis van hun massa en hun lading zullen ze bij bepaalde, specifieke spanningen in de ion trap gehouden worden terwijl anderen de ion trap zullen verlaten. Zo kan men dus ionen met een bepaalde massa isoleren in de trap terwijl alle andere ionen waar men niet in geïnteresseerd is, verwijderd worden. Na de isolatie van de gewenste ionen verlaten deze de ion trap richting de elektronmultiplier door verandering van de spanning. Ook is het mogelijk de geïsoleerde ionen te fragmenteren door ze te laten botsen met heliumgas. Men kan dan deze fragmenten dan opnieuw isoleren en ze dan ofwel detecteren ofwel verder fragmenteren. Deze opeenvolging van isolatie en fragmentatie (ook wel weergegeven met de afkorting MS^n , waarbij n het aantal cycli van fragmentatie voorstelt) maakt het mogelijk zeer specifieke identificatie in een complex mengsel van componenten te verkrijgen. In deze toepassing wordt gebruikt gemaakt van MS^2 . De ionen die de trap verlaten worden door een specifiek detectiesysteem, meestal een elektronmultiplier, gedetecteerd. In Figuur 10 wordt een typisch

chromatogram met de pieken voor cocaïne, benzoylecgonine, ecgonine methylester en hun inwendige standaarden weergegeven.



Figuur 10: Chromatogram van de scheiding van cocaine en benzoylecgonine (1: cocaine; 2: cocaine-d3; 3: benzoylecgonine; 4: benzoylecgonine-d3; 5: ecgonine methylester; 6: ecgonine methylester-d3)

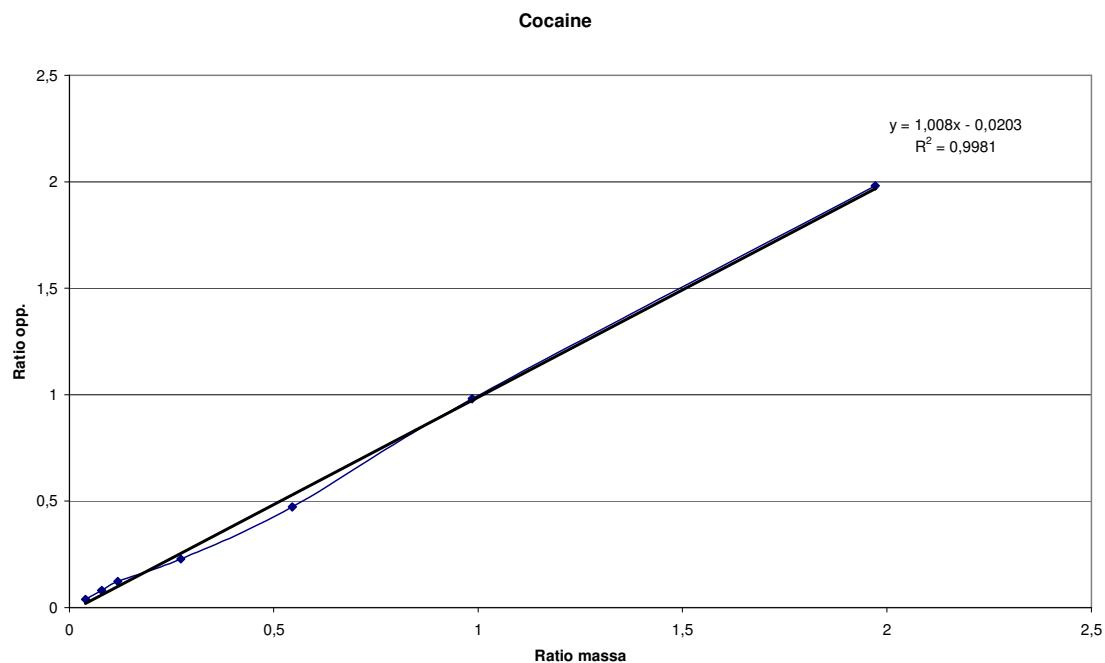
Voor de kwantificatie van cocaïne en benzoylecgonine wordt gebruik gemaakt van het principe van de inwendige standaard. Een inwendige standaard is een verbinding die zeer nauw, maar niet volledig, gelijkt op de chemische component die we wensen te bepalen en die tijdens de staalvoorbereiding en analyse hetzelfde reageert. De verhouding tussen de te analyseren component en de inwendige standaard blijft dus constant gedurende het hele analyseprotocol. Voor cocaïne en benzoylecgonine worden de gedeutereerde vormen, cocaine-d3 en benzoylecgonine-d3, als inwendige standaard gebruikt. Gedeutereerde inwendige standaarden hebben het voordeel dat ze minimaal verschillen van de te analyseren component en dat ze dus zeer waarschijnlijk hetzelfde gedrag zullen vertonen tijdens de analyseprocedure waardoor de verhouding component/inwendige standaard constant blijft gedurende de procedure. Het is wel zo dat deze inwendige standaarden een verschillende moleculaire massa dan te analyseren component hebben, waardoor zij in de massaspectra gemakkelijk te onderscheiden vallen van de te analyseren componenten.

Om te kwantificeren worden ijklijnen opgesteld met 7 standaarden waarin oplopende hoeveelheden cocaïne en benzoylecgonine en een vaste hoeveelheid cocaine-d3 en benzoylecgonine-d3 aanwezig is (Tabel 2).

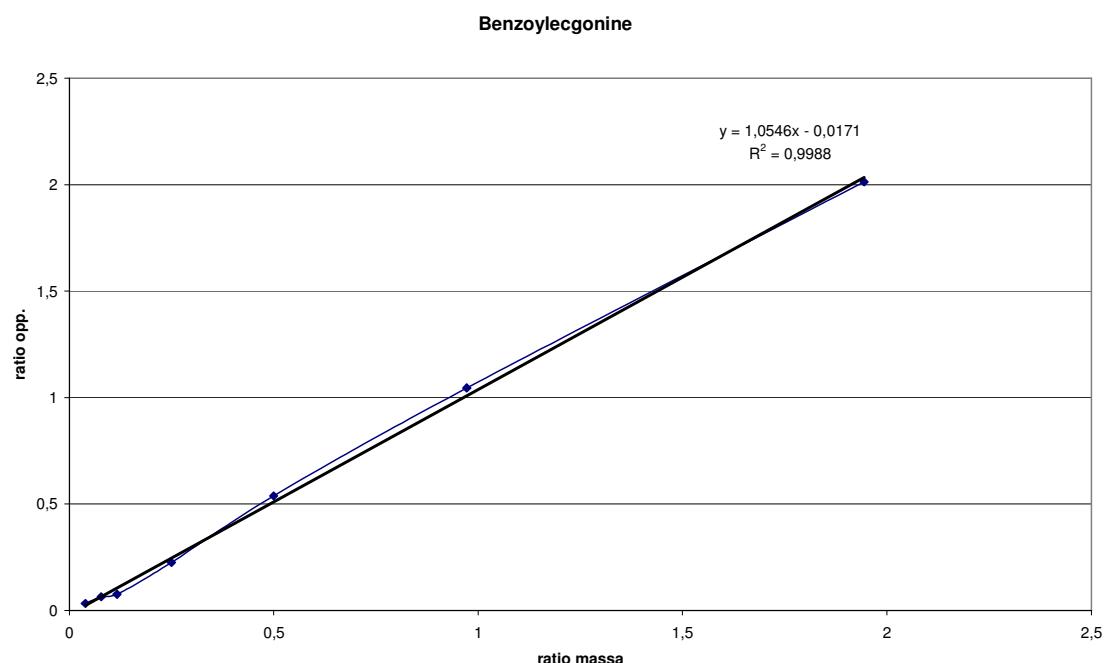
Tabel 2: Standaarden gebruikt voor de ijklijnen

Standaard	ng COC	ng COC-d3	verhouding COC/IS	ng BE	ng BE-d3	verhouding BE/IS
std 1	0,41	11	0,04	1,68	45,5	0,04
std 2	0,82	11	0,07	3,36	45,5	0,07
std 3	1,24	11	0,11	5,05	45,5	0,11
std 4	2,85	11	0,26	10,8	45,5	0,24
std 5	5,7	11	0,52	21,6	45,5	0,47
std 6	10,3	11	0,94	42,05	45,5	0,92
std 7	20,6	11	1,87	84,1	45,5	1,85

Deze verhoudingen worden uitgezet t.o.v. de verhouding van de piekoppervlakte van cocaïne en benzoylecgonine in de chromatogrammen tot de piekoppervlakten van hun respectievelijke inwendige standaard. Dit geeft volgende ijklijnen:



Grafiek 11: Ijklijn cocaïne

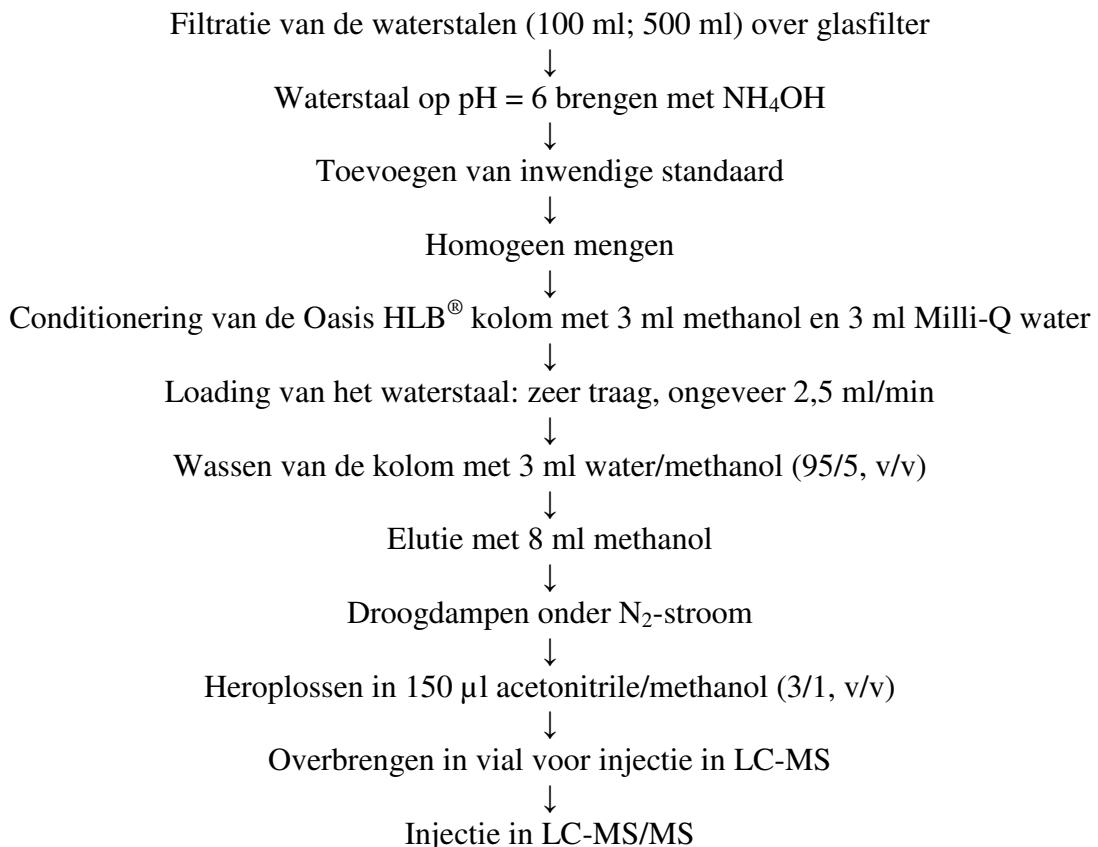


Grafiek 12: Ijklijn benzoylecgonine

Aan een te analyseren staal zal een gekende hoeveelheid inwendige standaard toegevoegd worden en het staal zal dan onderworpen worden aan het analyseprotocol. Na analyse zal de piekoppervlakte van elke component en zijn inwendige standaard bepaald worden. De

verhouding van de oppervlakte van de component en zijn inwendige standaard wordt berekend. Uit de ijklijnen kan dan de massaverhouding bepaald worden. Aangezien er geweten is hoeveel inwendige standaard er is toegevoegd, kan berekend worden hoeveel cocaine en benzoylecgonine er in het staal aanwezig was. Om de concentratie te kennen, worden deze hoeveelheden gedeeld door het volume staal dat gebruikt is voor de analyse (100 ml voor afvalwater, 500 ml voor oppervlaktewater).

2.2.1.6. Overzicht van het protocol toegepast door UA



2.2.1.7. Validatie van de methode toegepast door UA

Om de methode te evalueren worden volgende testen uitgevoerd:

Lineariteit

Er worden verschillende statistische testen op de gegenereerde ijklijnen (zie boven) uitgevoerd om na te gaan of er wel degelijk een rechtlijnig verband bestaat tussen de verhouding van de piekopervlakten en de verhouding van de massa's van analiet en inwendige standaard:

- 1) Bepaling van de correlatiecoëfficiënten: voor beide ijklijnen altijd boven 0,99
- 2) t-test op het intercept: het punt (0,0) verschilt niet significant van het intercept voor beide ijklijnen en de ijklijn loopt dus door dit punt.

- 3) t-test op de helling: de helling van beide ijklijnen verschilt significant van 0
- 4) Er is geen trend te zien in de storingen t.o.v. de ijklijn
- 5) ANOVA-test: beide lineaire modellen mogen gebruikt worden

“Intermediate precision”

Hier wordt de mate van spreiding in de meetresultaten binnen een dag en tussen verschillende dagen onderzocht. Er werden 3 beekwaterstalen geladen met een gekende hoeveelheid cocaïne, benzoylecgonine en ecgonine methylester en dit werd herhaald op drie verschillende dagen. Via een unifactoriele variantie analyse kan de “within day” en de “between day” relatieve standaard deviatie (RSD) bepaald worden. Voor deze methode zijn alle RSD’s < 8 %.

Accuraatheid

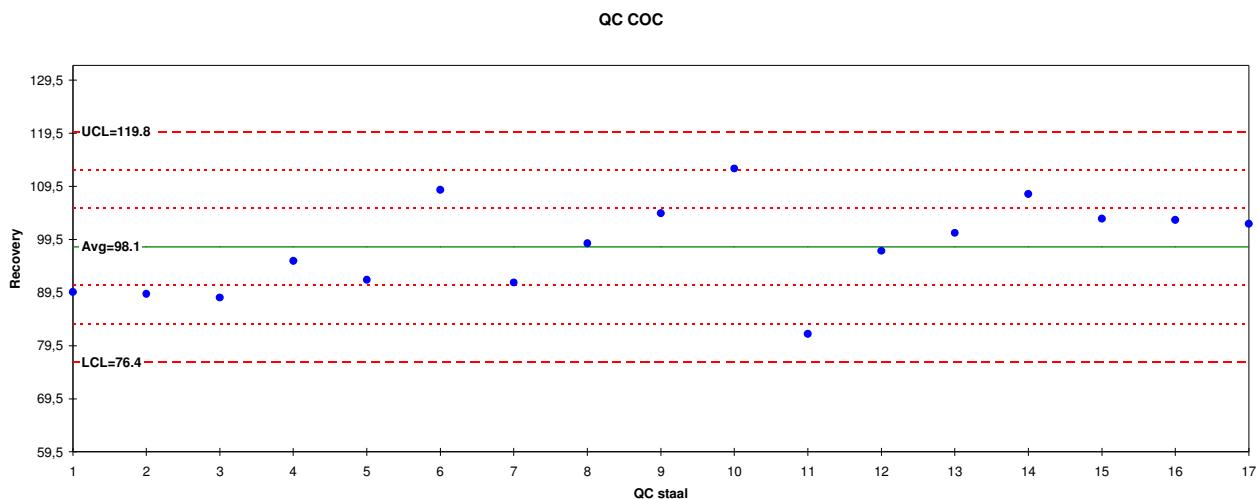
Er wordt nagegaan of de gemeten waarden overeenstemmen met wat er werkelijk in het staal aanwezig is. Hiervoor wordt beekwater geladen (op twee concentratieniveaus) met een gekende hoeveelheid cocaïne en benzoylecgonine en de “recovery” wordt bepaald. Voor cocaine en benzoylecgonine lagen beide recoveries boven 93 %.

Kwantificatielimit (Limit Of Quantification, LOQ)

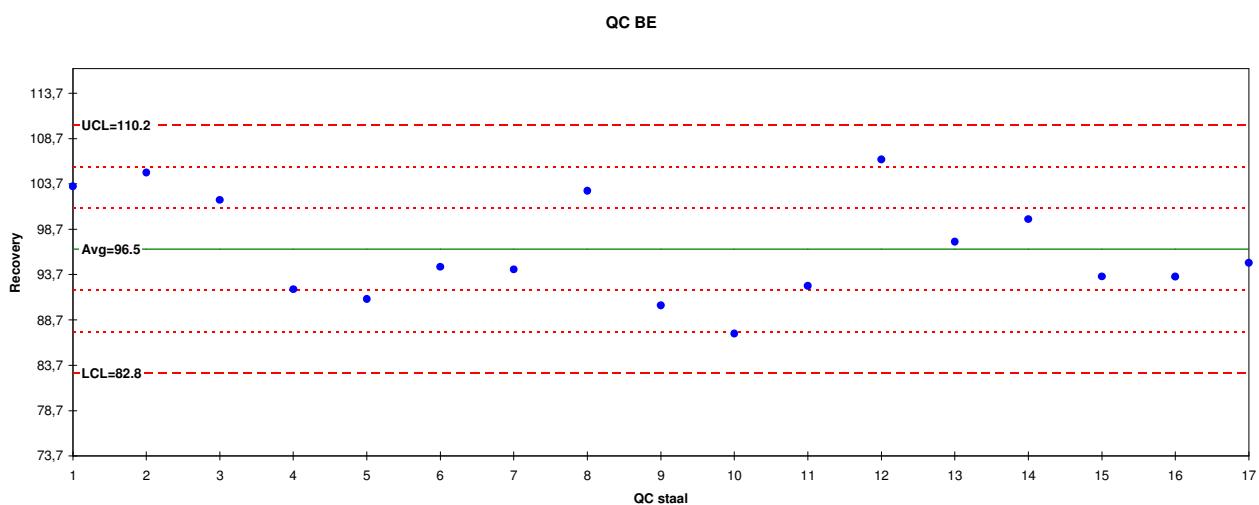
De LOQ is de kleinste hoeveelheid analiet die nog bepaald kan worden met een aanvaardbare precisie en accuraatheid. Hiervoor wordt de piekhoogte van een gekende hoeveelheid analiet in water bepaald en hieruit kan de LOQ bepaald worden, indien berekend wordt voor welke concentratie cocaïne, benzoylecgonine en ecgonine methylester er een signaal-ruisverhouding van tien bereikt wordt. Deze bedragen 1 ng/l; 0,5 ng/l en 20 ng/l voor cocaïne, benzoylecgonine en ecgonine methylester, respectievelijk. In alle geanalyseerde waterstalen lag ecgonine methylester onder de LOQ.

2.2.1.8. Kwaliteitscontrole UA

De uitgevoerde analyses zijn gespreid over een zevental maanden. Om na te gaan of de kwaliteit van de analyses gedurende deze periode gewaarborgd bleef, werd een kwaliteitscontrole uitgevoerd. Elke keer als een reeks analyses gebeurde, wordt tegelijkertijd een kraanwaterstaal, waaraan gekende hoeveelheden cocaïne en benzoylecgonine (201 ng/l en 841 ng/l respectievelijk) worden toegevoegd, geanalyseerd. Er kon dan voor elk van deze stalen een recovery bepaald worden en dit kan grafisch uitgezet worden. Om te kunnen zeggen dat de kwaliteit van het systeem gewaarborgd blijft, werd de gemiddelde recovery bepaald. De resultaten van de kwaliteitscontroles moeten allemaal binnen het gemiddelde $\pm 3 \times$ standaarddeviatie liggen. Alle punten die buiten het gemiddelde $\pm 2 \times$ standaarddeviatie liggen, moeten met aandacht bekeken worden en alle punten binnen het gemiddelde $\pm 2 \times$ standaarddeviatie, zijn in orde. In Grafiek 13 en 14 zijn deze kwaliteitscontroles voor cocaïne en benzoylecgonine weergegeven.



Grafiek 13: Kwaliteitscontrole voor cocaïne (groen = gemiddelde, rood = gemiddelde \pm 1x, 2x en 3x stdev)



Grafiek 14: Kwaliteitscontrole voor benzoylecgonine (groen = gemiddelde, rood = gemiddelde \pm 1x, 2x en 3x stdev)

Zowel voor cocaïne en benzoylecgonine zijn er maximum twee kwaliteitscontroles die net buiten de grens gemiddelde \pm 2 x standaarddeviatie liggen. Er kan dus algemeen gesteld worden dat het systeem voldoet aan de kwaliteitseisen.

2.2.1.9. Enkele technische specificaties voor de methode UA

LC-parameters:

Toestel: Agilent 1100 series HPLC gekoppeld aan Agilent 1100 LC/MSD trap

Kolom: ZORBAX Rx-SIL (2,1 mm x 150 mm, 5 μ m)

Solvens A: ammoniumacetaat 2 mM pH 4,5

Solvens B: acetonitrile (ACN)

Gradient: 0-1 min: 80 % B; 1-10 min: 80 % B => 40 % B; 10-18 min: 40 % B 18-21 min: 40 % B => 80 % B

Flow rate: 250 µL/min

Injectievolume: 2 µl

MS-parameters:

MRM-transities:

Cocaine: 304 > 182

Cocaine-d3: 307 > 185

Benzoylecgonine: 290 > 168

Benzoylecgonine-d3: 293 > 171

Egonine methylester: 200 > 182

Egonine methylester-d3: 203 > 185

Ionisatiebron (stikstofgas): 25 psi, 12 l/min, 350 °C

Retentietijden:

Cocaine en cocaine-d3: 4,7 min

Benzoylecgonine en benzoylecgonine-d3 : 10 min

Egonine methylester en egonine methylester-d3 : 14,8 min

2.2.1.10. Overzicht van het protocol toegepast door ULg

Waar de UA gebruik maakt van High Pressure Liquid Chromatography (HPLC), maakt de ULg gebruik van Ultrapressure Liquid Chromatography (UPLC). Het grote verschil tussen beide technieken ligt erin dat er met UPLC korte analysetijden (< 9 min vs 33 min) verkregen kunnen worden.

De detectie in het protocol van ULg gebeurt ook met MS², maar het type massaspectrometer verschilt hier. De UA maakt gebruik van een ion trap massaspectrometer, terwijl de ULg een triple quadrupole massaspectrometer gebruikt. Het principe van de detectie blijft gelijk, maar deze massaspectrometer kan normaal gezien een hogere gevoeligheid en specificiteit bereiken.

Het protocol zoals vermeld in 2.2.1.6 (bewaring, filtratie, pH aanpassing, vaste fase extractie) is voor ULg identiek, met dat verschil dat het heroplossen van de droogrest gebeurt in een mengsel mobiele fase/methanol (1/1, v/v).

2.2.1.11. Validatie van de methode toegepast door ULg

“Intermediate precision”

De RSD voor cocaïne ligt voor drie concentratieniveaus (10 ng/l, 100 ng/l en 400 ng/l) altijd lager dan 13 %. Voor benzoylecgonine ligt de RSD voor drie concentratieniveaus (10 ng/l, 100 ng/l en 400 ng/l) zelfs lager dan 9 %.

Accuraatheid

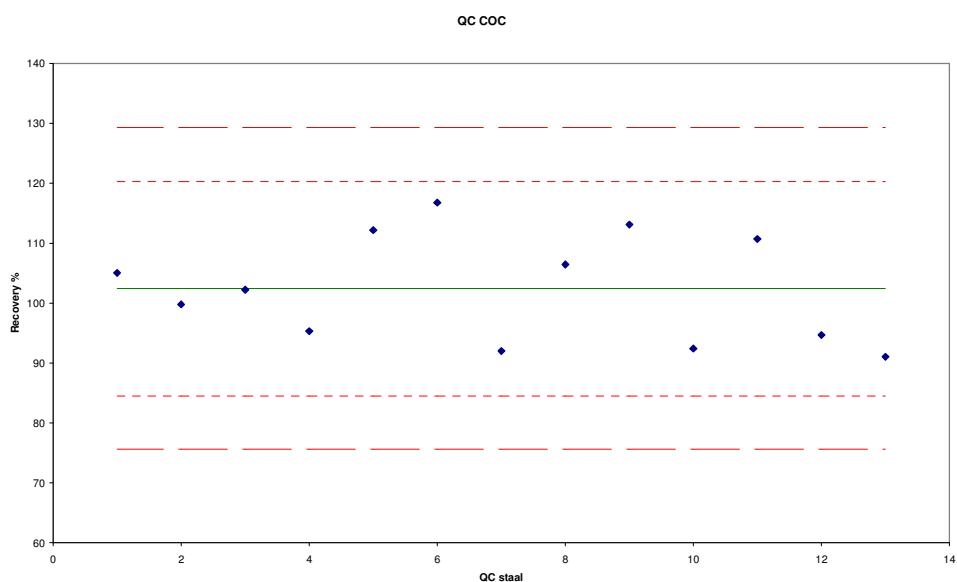
De accuraatheid van de methode werd getest voor drie concentratieniveaus (voor cocaïne en benzoylecgonine: 10 ng/l, 100 ng/l en 400 ng/l). Voor cocaïne lag de accuraatheid voor alle drie de concentratieniveaus boven 88 %, voor benzoylecgonine boven 96 %.

Kwantificatielimit (Limit Of Quantification, LOQ)

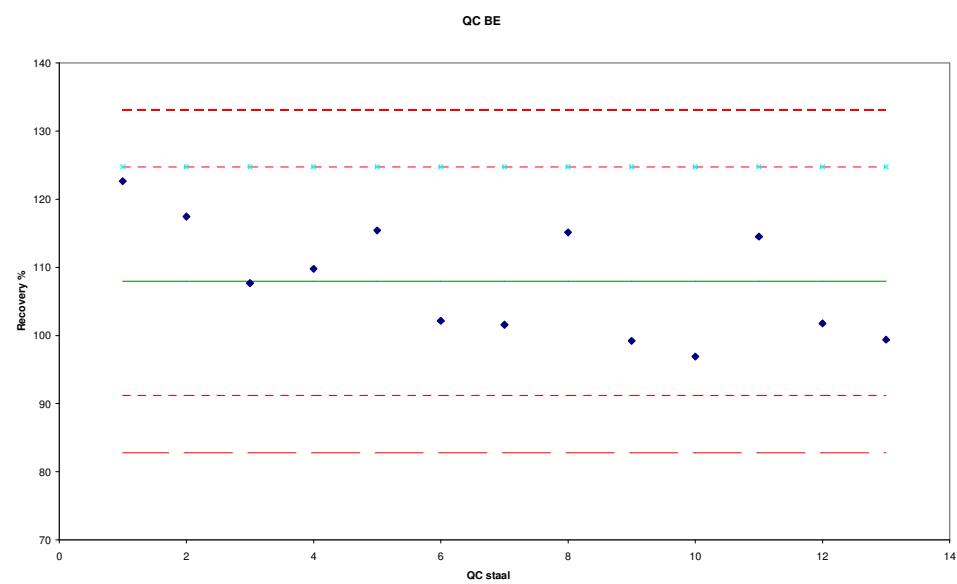
De kwantificatielimiet voor cocaine en benzoylecgonine was 5 ng/l.

2.2.1.12. Kwaliteitscontrole ULg

In de ULg is net zoals in de UA een kwaliteitscontrole uitgevoerd (zie 2.2.1.8.). Grafiek 15 en 16 geven visueel de spreiding van deze kwaliteitscontroles weer. Alle controles liggen binnen de grenzen van het gemiddelde $\pm 3 \times \text{stdev}$. Maximaal drie kwaliteitscontroles liggen buiten de grens gemiddelde $\pm 2 \times \text{stdev}$.



Grafiek 15: Kwaliteitscontrole voor cocaïne (groen = gemiddelde, rood = gemiddelde $\pm 2x$ en $3x$ stdev)



Grafiek 16: Kwaliteitscontrole voor benzoylecgonine (groen = gemiddelde, rood = gemiddelde $\pm 2x$ en $3x$ stdev)

2.2.1.13. Enkele technische specificaties voor de methode ULg

LC-parameters:

Toestel: Waters Acquity UPLC gekoppeld aan Waters Quattro Premier QqQ MS

Kolom: Waters Acquity UPLC BEH C18 (2,1 mm x 100 mm, 1,7 µm)

Solvens A: ammoniumformaat 5 mM pH 3

Solvens B: acetonitrile (ACN)

Gradient: 0-2,15 min: 5 % ACN; 2,15-5,88 min: 90 % ACN; 5,88-6,95 min: 95 % ACN; 6,95-8,55 min: 95% ACN

Flow rate: 500 µL/min

Injectievolume: 10 µl

MS-parameters:

MRM-transities:

Cocaine: 304 > 182

Cocaine-d3: 307 > 185

Benzoylecggonine: 290 > 168

Benzoylecggonine-d3: 293 > 171

Ecggonine methylester: 200 > 182

Ecggonine methylester-d3: 203 > 185

Retentietijden:

Cocaine en cocaine-d3: 4,08 min

Benzoylecggonine en benzoylecggonine-d3: 3,68 min

Ecggonine methylester en ecgonine methylester-d3: 0,56 min

2.3. *Interlaboratorium controle*

In het project werden analyses uitgevoerd door twee verschillende laboratoria (Université de Liège (ULg) en Universiteit Antwerpen (UA)). Deze twee laboratoria gebruikten licht verschillende analyseprotocollen (zie eerder) en de analyses werden uitgevoerd door verschillende operatoren. Dit alles kan eventueel aanleiding geven tot verschillende resultaten als eenzelfde staal in de twee laboratoria geanalyseerd wordt. Om na te gaan of de analyses in beide laboratoria dezelfde resultaten gaven is er in dit project een interlaboratorium controle uitgevoerd. 20 stalen werden in beide laboratoria geanalyseerd en vervolgens werd gekeken wat de afwijking tussen beide resultaten was. Volgens Reed et al. (2002) wordt een maximale relatieve standaardafwijking (RSD; $\text{stdev/gemiddelde} \times 100$) van 20 % voor resultaten tussen verschillende laboratoria aanbevolen.

In de eerste staalnamecampagne werden negen afvalwaterstalen zowel in ULg als in UA geanalyseerd, beide volgens hun eigen protocol. Verder werd ook nog een kraanwaterstaal, geladen met 200 ng/l cocaïne en 800 ng/l benzoylecgonine, geanalyseerd in beide laboratoria. In UA werden alle stalen in triplo geanalyseerd, in ULg in mono. In Tabel 3 zijn de resultaten van de analyses weergegeven.

Tabel 3: Resultaten van de interlaboratorium controle gedurende de eerste staalnamecampagne (* cocaïne = 200 ng/l; benzoylecgonine = 800 ng/l)

Staal	Cocaïne (ng/l ± RSD)		Benzoylecgonine (ng/l ± RSD)	
	ULg (n = 1)	UA (n = 3)	ULg (n = 1)	UA (n = 3)
RWZI Aalst 15/8/07	136	120 ± 7	463	447 ± 11
RWZI Antwerpen Noord 19/8/07	152	146 ± 11	562	517 ± 9
RWZI Hasselt 17/10/07	142	110 ± 9	472	462 ± 7
RWZI Leuven 17/10/07	116	93 ± 13	356	321 ± 9
RWZI Genk 17/10/07	307	266 ± 12	946	786 ± 13
RWZI Heist 24/10/07	182	141 ± 12	538	716 ± 10
RWZI Lokeren 15/8/07	156	112 ± 17	479	334 ± 5
RWZI Moeskroen 3/10/07	30	33 ± 6	100	118 ± 6
RWZI Mol 28/10/07	210	166 ± 4	662	692 ± 5
Geladen kraanwaterstaal*	188	196 ± 7	775	840 ± 1

In Appendix I is de interlaboratorium controle visueel weergegeven. De weergegeven waarden stellen de gemiddelde concentraties ± de RSD van de gemeten concentraties van beide laboratoria voor. Voor elk waterstaal ligt de RSD voor zowel cocaïne als benzoylecgonine beneden de 20 %, waaruit besloten kan worden dat het verschil tussen beide laboratoria binnen de aanvaardbare grenzen ligt.

Additioneel werden ook in de tweede staalnamecampagne 10 waterstalen in mono of in duplo geanalyseerd door beide laboratoria. De resultaten van de analyses zijn weergegeven in Tabel 4.

Tabel 4: Resultaten van de interlaboratorium controle gedurende de tweede staalnamecampagne (* n = 2)

Staal	Cocaïne (ng/l ± RSD)		Benzoylecgonine (ng/l ± RSD)	
	ULg (n = 1)	UA (n = 1)	ULg (n = 1)	UA (n = 1)
RWZI Antwerpen Zuid 6/2/08	150	165	307	393
RWZI Brugge 20/1/08	69	52	189	202
RWZI Gembloux 10/2/08	41	34	177	143
RWZI Gent 16/1/08	139	118 ± 8*	364	309 ± 15*
RWZI Hasselt 3/2/08	10	8	33	41
RWZI Heist 10/2/08	317	251	688	596
RWZI Moeskroen 11/3/08	49	38	227	234
RWZI Morkhoven 3/2/08	66	67	148	194
RWZI Waver 28/2/08	62	40 ± 5*	188	116 ± 6*
RWZI Wulpen 16/1/08	54	44 ± 5*	113	96 ± 8*

In Appendix II zijn de resultaten wederom visueel weergegeven, identiek aan de stalen van de eerste staalnamecampagne. In de tweede staalnamecampagne is er één staal, Waver (28/2/08), dat buiten de aanbevolen grenzen van een RSD van 20 % valt. De andere stalen vallen binnen deze grens. Aangezien de UA dit staal in duplo geanalyseerd heeft en de RSD voor deze twee analyses onder 6 % ligt, zal ULg hoogstwaarschijnlijk een incidentele fout gemaakt hebben bij de analyse van dit staal.

2.4. Berekeningen

Om een idee te kunnen krijgen van de hoeveelheid cocaïne die gebruikt is in een bepaalde regio, moeten de concentraties cocaïne en metabolieten gemeten in afval- en oppervlaktewater omgezet worden naar een kwantiteit cocaïne, uitgedrukt in gram per dag (cocaïne equivalenten). Om dit interregionaal te kunnen vergelijken, wordt deze hoeveelheid cocaïne dan nog genormaliseerd voor het aantal inwoners waarvoor het aantal cocaïne equivalenten berekend is. Deze normalisatie voor het aantal inwoners gebeurt enkel voor de RWZI's, aangezien de bevolkingsdichtheid rond een waterloop moeilijk in te schatten is.

In een eerste fase worden de gemeten concentraties cocaïne en benzoylecgonine omgezet naar een hoeveelheid in gram per dag van deze beide componenten. Dit wordt bereikt door de concentraties cocaïne en benzoylecgonine te vermenigvuldigen met het debiet (in m³/dag) van de afvalwaterstroom of de waterloop. Deze berekende hoeveelheden moeten dan verder getransformeerd worden naar een aantal cocaïne equivalenten. Hierbij moet rekening gehouden worden met de fractie van een cocaïnedosis die als cocaïne en/of benzoylecgonine urinair wordt uitgescheiden en zo in het rioleringssysteem of de waterloop terechtkomt. In de wetenschappelijke literatuur zijn hiervoor twee verschillende benaderingen terug te vinden. Zuccato et al. (2005) stellen een berekening voor op basis van de hoeveelheden benzoylecgonine. Zij nemen aan dat een cocaïnedosis voor 45 % als benzoylecgonine urinair wordt uitgescheiden en slechts een klein deel als onveranderde cocaïne. Verder wordt ook nog rekening gehouden met de verschillende structuur en moleculair gewicht van beide componenten wat een molaire ratio van 0,954 geeft. Dit alles leidt tot volgende formule om cocaïne equivalenten te berekenen:

$$\text{COCe} = 1/(0,45 \times 0,954) \times \text{BE} (\text{in g/dag}) = 2,33 \times \text{BE} (\text{in g/dag})$$

Door de simultane meting van COC en BE en door hun onderlinge ratio te bepalen kan ook gecontroleerd worden of de teruggevonden hoeveelheden cocaïne wel degelijk van humane consumptie komen. Bij lozing van pure cocaïne in het water zouden we namelijk een sterke stijging in de ratio COC/BE waarnemen.

Bones et al. (2007) stellen een andere manier voor om cocaïne equivalenten te berekenen. Deze groep maakt enkel gebruik van de hoeveelheden cocaïne en neemt aan dat een cocaïnedosis voor 10 % als cocaïne wordt uitgescheiden. Met benzoylecgonine wordt hier geen rekening gehouden.

Beide onderzoeksgroepen nemen aan dat cocaïne en benzoylecgonine 100 % stabiel zijn in water en negeren dus mogelijke degradatie van beide componenten tijdens hun aanwezigheid in oppervlakte- of afvalwater. Zoals echter aangetoond in onze experimenten (zie Grafiek 7 - 10) blijkt voornamelijk cocaïne niet stabiel te zijn in deze matrix (zie materiaal en methoden), waardoor de aanpak van Bones et al. (2007) niet echt betrouwbaar lijkt. De aanpak van Zuccato et al. (2005) geeft een betere benadering van de cocaïne equivalenten, maar deze berekende hoeveelheden zijn waarschijnlijk ook slechts onderschattingen, daar er geen rekening gehouden wordt met eventuele afbraak en adsorptie aan vaste deeltjes van beide componenten in het afval- en oppervlaktewater. Toekomstige experimenten zullen moeten leiden tot een mathematisch model voor een meer exacte berekening van de cocaïne equivalenten, waarbij rekening gehouden wordt met de stabiliteit in de waterstromen (pH, temperatuur, tijd).

In dit project zal de aanpak van Zuccato et al. (2005) gebruikt worden voor de berekening van de cocaïne equivalenten, maar het moet benadrukt worden dat deze berekening waarschijnlijk onderschattend is. Om het gebruik per regio te kunnen vergelijken is verder belangrijk om de berekende cocaïne equivalenten te normaliseren voor het aantal inwoners dat een rioolwaterzuiveringsinstelling of een waterloop omhelst om een idee te kunnen geven van de hoeveelheid cocaïne die per 1000 personen gebruikt werd. Het is zeer moeilijk in te schatten voor een waterloop hoeveel inwoners dergelijke waterstroom omsluit, mede ook omdat er hier met schepstalen gewerkt wordt. Daarom wordt voor de waterlopen het aantal cocaïne equivalenten niet genormaliseerd voor het aantal inwoners. Voor een rioolwaterzuiveringinstallatie worden twee manieren gebruikt om het aantal inwoners dat door een bepaalde RWZI bediend wordt, in te schatten. Een eerste manier is door het aantal inwoners te gebruiken die theoretisch aangesloten zijn op een RWZI. Deze gegevens zijn vorhanden bij de verschillende zuiveringsinstanties. Normalisatie voor het aantal inwoners op deze manier gebeurt bij RWZI's waarvan de hoeveelheid inwoners in de loop van de tijd weinig fluctueert.

Voor RWZI's aan de kust is het aantal inwoners zeer onderhevig aan fluctuaties (vakanties/lange weekends/good weer). Bij deze RWZI's wordt het aantal inwoners bepaald op basis van berekening van de inwonerequivalenten. Hierbij gaat men ervan uit dat een gemiddelde inwoner per dag een bepaalde hoeveelheid aan nutriënten loost (vuilvracht). Er worden heel regelmatig controlemetingen uitgevoerd door de Vlaamse Milieumaatschappij in het in- en effluent van de RWZI's. Op basis van metingen uitgevoerd rond de periode van staalname was het mogelijk om het aantal inwonerequivalenten te berekenen. We maakten hiervoor gebruik van de gemeten biologische zuurstofvraag om het aantal inwonerequivalenten te kunnen bepalen. De wettelijk bepaalde biologische zuurstofvraag om het aantal inwonerequivalenten te berekenen is 60 g per dag. Het aantal inwoners werd op deze manier bepaald in volgende RWZI's: Wulpen, Oostende, Heist en Brugge. Het is hier belangrijk om te vermelden dat bij de normalisatie voor het aantal inwoners rekening gehouden wordt met alle inwoners die bediend worden door een RWZI. Het is echter zeer onwaarschijnlijk dat er onder de inwoners van een RWZI die jonger dan 12 en ouder dan 60 jaar oud een hoog cocaïnegebruik is. Bij de extrapolatie van de resultaten naar België en de gewesten zal hiermee rekening gehouden worden.

Voor de berekening van de totale hoeveelheid gebruikt per jaar in België werden de totale hoeveelheden cocaïne equivalenten per zuiveringstation per dag opgeteld en genormaliseerd volgens het aantal inwoners aangesloten aan de beschouwde zuiveringstations:

COCeQ/inwoner * dag: totale hoeveelheid COCeQ/totaal aantal personen bemonsterd

Dit cijfer werd gebruikt om te extrapoleren naar de volledige Belgische bevolking. Hiervoor gebruikten we de meest recente cijfers van FOD Economie uit 2007 (Tabel 5). Voor de berekening volgens de gewesten werden de hoeveelheden cocaïne equivalenten per zuiveringstation binnen het gewest opgeteld en genormaliseerd volgens het aantal personen aangesloten op die RWZI's. Dit werd dan ook geëxtrapoleerd naar de totale bevolking van het gewest. Zo konden we het cocaïnegebruik per week- en weekenddag bepalen in België en de gewesten. Door dit om te rekenen naar een volledig jaar, rekening houdend met het aantal week- en weekenddagen, konden we de hoeveelheid gebruikte cocaïne bepalen die in België en de gewesten gebruikt wordt per jaar. Aangezien de kerngroep van de cocaïnegebruikers beschouwd wordt als personen tussen 15 en 45 jaar (World Drug Report 2004) rekenden we

dit om naar het aantal personen tussen 15 en 45 jaar. Dit moet echter met de nodige voorzichtigheid benaderd worden aangezien cocaïnegebruik verschilt van andere drugs. Er is namelijk nog een aanzienlijk deel van de gebruikers die ouder zijn dan 45 jaar (World Drug Report 2004).

Tabel 5: Populatiegegevens van België uit 2007 (Bron: FOD Economie)

	Totaal	15-44 jaar
Brussels Gewest	1.031.215	460.790
Vlaams Gewest	6.117.440	2.407.057
Waals Gewest	3.435.879	1.362.182
Totaal België	10.584.534	4.230.029

3. Resultaten en discussie

3.1. Cocaïne en metabolieten in waterlopen

3.1.1. Schepstalen in waterlopen

Tabel 6 en appendices III – IV geven de resultaten weer van de schepstalen in een aantal geselecteerde Belgische waterlopen. Plaatsen waar in de eerste staalnamecampagne, tijdens de zomer en het najaar van 2007, weinig of geen sporen van COC en BE werden aangetroffen, werden niet meer opnieuw bemonsterd in de tweede staalnamecampagne, tijdens de winter van 2008.

Het is duidelijk dat een aantal van de resultaten sterk verschillen tussen de eerste en tweede staalname. Dit is waarschijnlijk te wijten aan de manier van staalname, namelijk schepstaal, welke geen representatief beeld geeft van de waterstroom gedurende een dag. Voor de meeste monsterpunten waren de berekende cocaïne equivalenten vergelijkbaar tussen beide bemonsteringscampagnes. De volgorde van de staalnameplaatsen op basis van cocaïne equivalenten blijft in grote lijnen gelijk. Dit is ook visueel waar te nemen op de overzichtskaarten van de hoeveelheid cocaïne equivalenten gemeten per staalnameplaats in Figuur 11 en Figuur 12.

Op de kaarten in Figuur 11 en Figuur 12 is duidelijk te zien dat er in het zuidelijk deel van België weinig tot geen cocaïne of benzoylecgonine gemeten werd in de waterlopen. Dit is heel waarschijnlijk te wijten aan de lage bevolkingsdichtheid in deze regio. Dit impliceert dus niet dat het gebruik daar lager ligt. Men kan hier enkel uit besluiten dat bemonstering van waterlopen in regio's met een lage bevolkingsdichtheid geen goede methode is om het gebruik te schatten. Dit werd ook bevestigd door het bemonsteren van bepaalde Vlaamse waterlopen die zowel door dicht bevolkte als dun bevolkte gebieden stromen. Bij de Dijle, Grote Nete, Demer, Maas en Leie lag minstens 1 meting stroomafwaarts lager in cocaïne equivalenten dan een meetpunt stroomopwaarts. Dit was telkens nadat de waterloop door regio's stroomde waar de bevolkingsdichtheid lager lag dan deze stroomopwaarts. Er is dus mogelijk afbraak of immobilisatie van cocaïne en benzoylecgonine in het oppervlaktewater. Ook verdunning zal hier een belangrijke rol spelen.

Tabel 6: Cocaïne equivalenten in waterlopen (g/dag). Staal 1 werd genomen tijdens de zomer en het najaar van 2007, Staal 2 werd genomen tijdens de winter van 2007-2008. Ng: niet gemeten.

Waterloop	Plaats	Staal 1 (COC eq/dag)	Staal 2 (COC eq/dag)
Aa	Oud-Turnhout	1,45	Ng
Aa	Poederlee	5,07	5,55
Amblève	Martinrive	< LOQ	Ng
Bellebeek	Ternat	1,89	0,49
Binchebeek	Geraardsbergen	< LOQ	Ng
Demer	Aarschot	70,33	92,05
Demer	Halen	20,10	27,80
Demer	Hasselt	11,42	Ng
Demer	Kermt	22,82	36,07
Dender	Dendermonde	1,00	Ng
Dender	Overboelare	7,34	11,13
Dendre	Ligne	0,11	Ng
Dijle	Korbeek	68,72	23,55
Dijle	Limelette	12,09	2,14
Dijle	Wilsele	53,89	35,16
Dommel	Neerpelt	< LOQ	Ng
Dijle	Florival	14,15	6,40
Grote Molenbeek	Sint-Amands	8,40	18,48
Grote Nete	Geel	17,45	3,32
Grote Nete	Hulshout	8,99	8,96
Hain	Braine-le-Château	7,79	9,85
Herk	Wellen	1,67	Ng
Ieperlee	Zuidschote	1,39	Ng
Ijzer	Keiem	< LOQ	Ng
Ijzer	Roesbrugge	< LOQ	Ng
Kleine Nete	Grobendonk	11,75	23,06
Leie	Deinze	2,11	72,99
Leie	Menen	32,61	86,87
Lesse	Gendron	< LOQ	Ng
Maas	Lanaken	227,93	758,60
Maas	Maaseik	147,55	589,44
Ourthe	Tabreux	< LOQ	Ng
Petite Gette	Opheylissem	2,41	0,91
Rivierbeek	Oostkamp	0,32	Ng
Sambre	Solre	3,80	24,09
Semois	Chiny	< LOQ	Ng
Semois	Membre	< LOQ	Ng
Senette	Ronquières	1,44	Ng
Viroin	Treignes	< LOQ	Ng
Zeeschelde	Melle	89,99	1228,88
Zenne	Lot	50,61	37,22
Zenne	Vilvoorde	581,79	440,02
Zuunbeek	Sint-Pieters-Leeuw	0,76	0,51

Tabel 7: Cocaïne equivalenten (g/dag) in andere Europese waterlopen (1: Zuccato et al., 2005; 2: Zuccato et al., 2008).

Waterloop	Date	conc. BE (ng/l)	conc.COC (ng/l)	Debiet (m ³ /sec)	BE/dag (g)	COC/dag (g)	COCeq/dag (g)
Po (1)							3800,00
Po (2)	2006	5,10	0,80	1000	440,64	69,12	1095,81
Lambro (2)	2006	50,00	15,00	5	21,60	6,48	56,81
Olana (2)	2006	183,00	44,00	0,5	7,91	1,90	20,32

Als we onze resultaten vergelijken met 2 studies in Italië (Tabel 7) waar men dezelfde manier van berekenen toepaste (Zuccato et al., 2005; Zuccato et al., 2008), dan liggen ze binnen dezelfde grootte-orde. Deze vergelijking moet echter wel kritisch bekeken worden, aangezien er geen rekening gehouden wordt met bevolkingsdichtheid stroomopwaarts van het meetpunt. Het is dus niet mogelijk om deze hoeveelheden relatief ten opzichte van elkaar te gaan vergelijken.

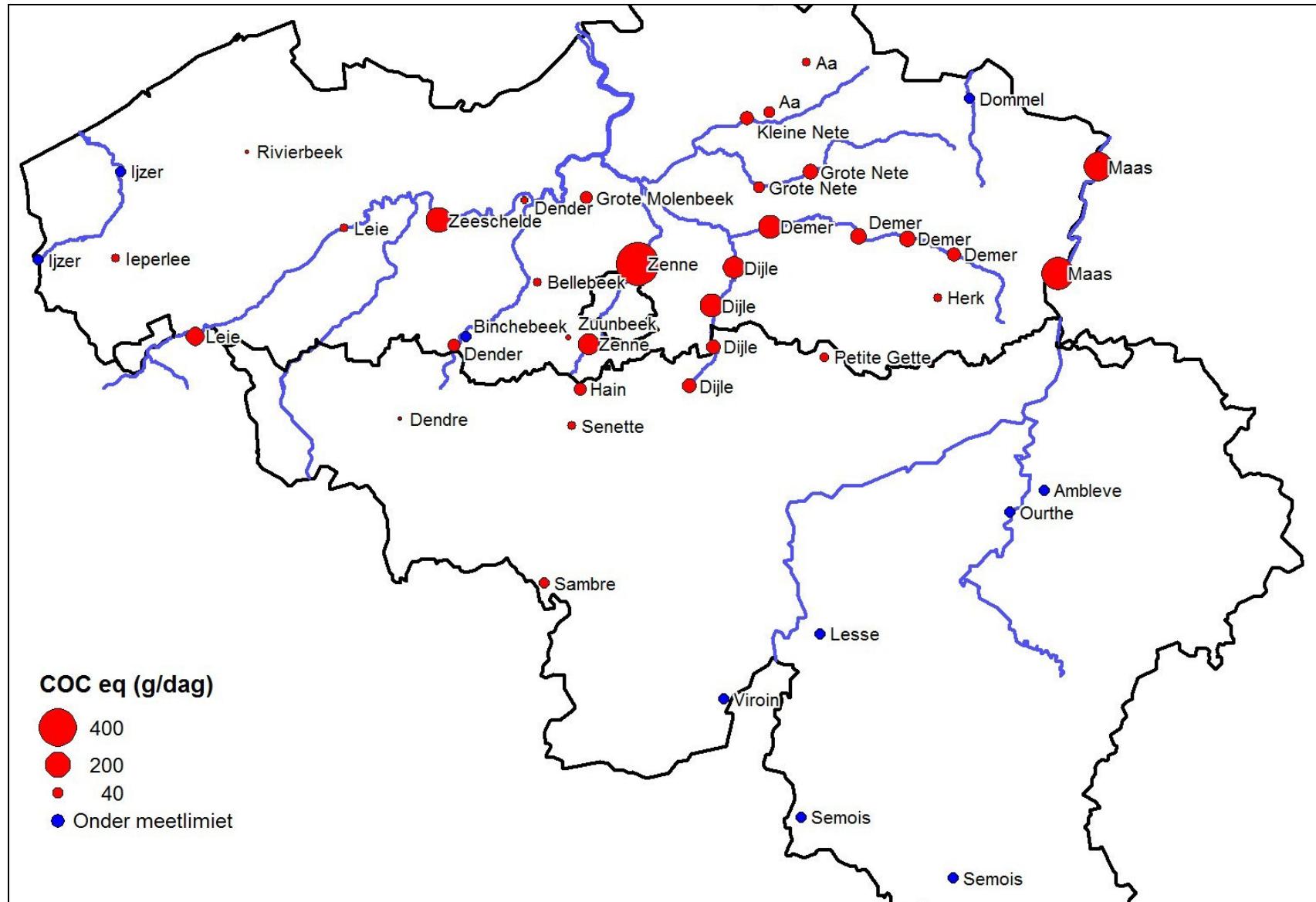
In waterlopen als de Zenne, Dijle en Demer werden op verschillende punten stalen genomen. Daar is duidelijk zichtbaar dat de hoeveelheid cocaïne equivalenten stijgt naarmate men verder stroomafwaarts gaat. Er is dus een duidelijke input van cocaïne en benzoylecgonine in deze waterlopen. Op basis hiervan zou het eventueel mogelijk zijn om de hoeveelheid cocaïne te berekenen die gebruikt wordt binnen een bepaalde regio die afwatert naar deze waterloop. Er zijn echter nog te veel onbekende factoren om dit nauwkeurig te doen. Zo moet men een duidelijk inzicht hebben in de afbraak of immobilisatie van cocaïne en benzoylecgonine in waterlopen, de geografische afwatering, en de bevolkingsdichtheid binnen deze regio. Een bijkomende belemmerende factor is de lozing van gezuiverd water uit de RWZI's in waterlopen. Het overgrote deel van de gebruikte cocaïne wordt afgebroken of geïmmobiliseerd in de RWZI's (zie Tabel 17). Het is dan ook zeer moeilijk om in rekening te brengen.

Op basis van de resultaten in de Zenne, bemonsterd voor en na Brussel, is het duidelijk dat nog steeds een groot aantal inwoners rechtstreeks in deze waterloop loost. Men is bezig met de aansluiting van de rioleringen op het zuiveringsstation van Brussel-Noord. Dit zou uiteindelijk 1,1 miljoen inwoners moeten bedienen. Tot op heden zijn naar schatting al ongeveer 850.000 inwoners aangesloten (pers. comm., J.F. Mougel). Een volledige afkoppeling van de rioleringen op de Zenne zou tot gevolg hebben dat we een nauwkeuriger beeld krijgen van het druggebruik in Brussel met deze techniek.

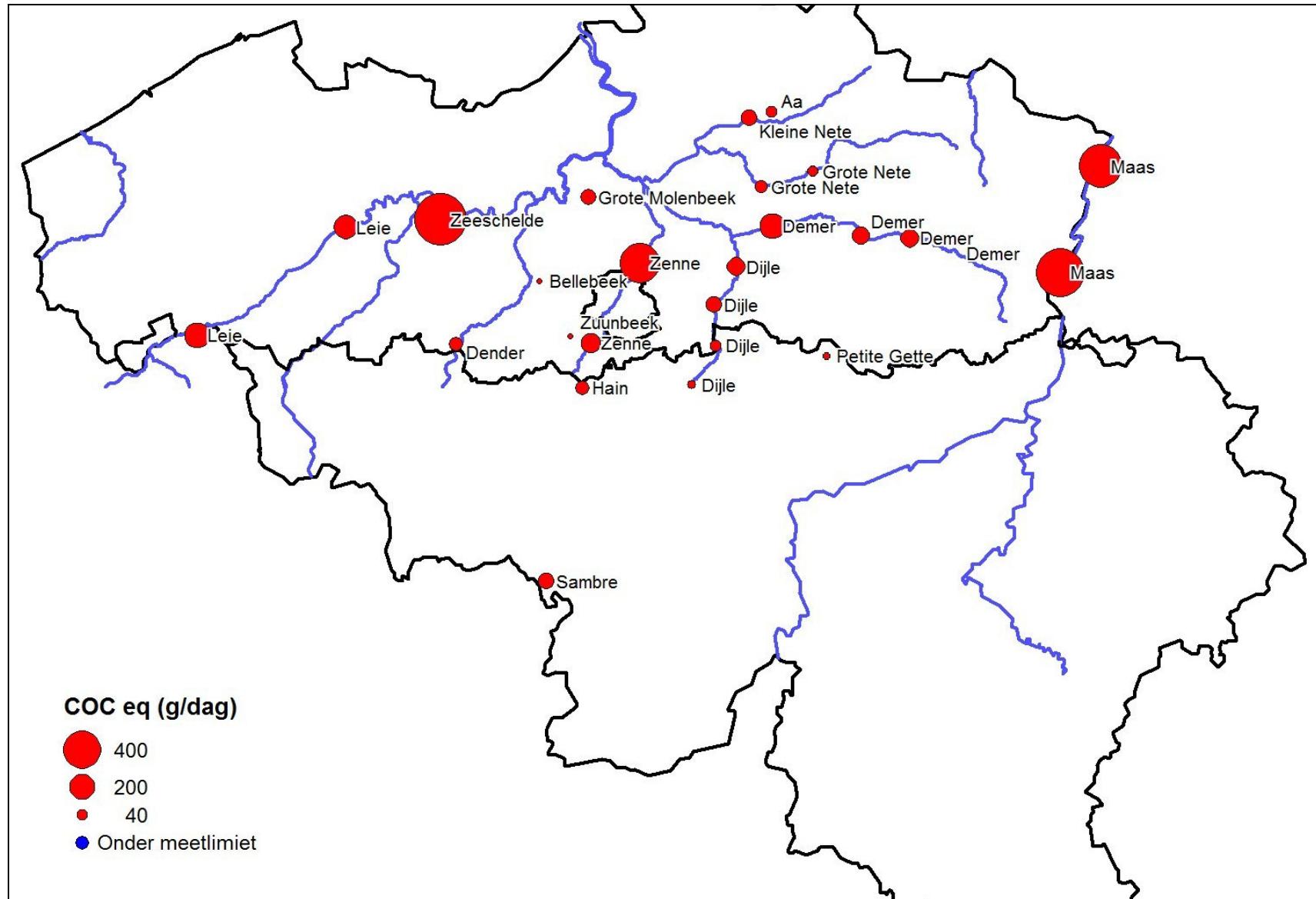
In de regio's Beneden-Schelde, Gentse kanalen, Brugse polders en Ijzer werden weinig stalen genomen omdat er daar weinig geschikte debietmeters aanwezig waren. In deze regio's is de bevolkingsdichtheid redelijk laag. In de regio Beneden-Schelde is er sterke invloed van getijdenwerking, wat de berekening bemoeilijkt. Ook in Wallonië werden minder stalen genomen door de lage bevolkingsdichtheid.

De ratio cocaïne/benzoylecgonine schommelde sterk bij de metingen van het oppervlaktewater. Tijdens de zomer en het najaar van 2007 bedroeg dit gemiddeld $0,19 \pm 0,12$ en tijdens de winter van 2007-2008 bedroeg dit $0,56 \pm 0,22$, waarbij 4 outliers werden gedetecteerd. Het is dus duidelijk dat er een zeer grote variatie was tussen de metingen, zeker in de tweede staalnamecampagne. Een oorzaak hiervan kunnen we niet geven. Het is ook

opmerkelijk dat de gemiddelde COC/BE ratio van de staalnames tijdens de zomer en najaar lager lag dan de ratio in de winter. Op basis van de stabiliteitsexperimenten uitgevoerd tijdens de voorbereiding van de staalnames (Grafiek) was dit te verwachten. Cocaïne blijft namelijk veel stabieler aanwezig in water bij een lagere temperatuur.



Figuur 11: Cocaïne equivalenten in oppervlaktewater tijdens de zomer en najaar van 2007 (g/dag)



Figuur 12: Cocaïne equivalenten in oppervlaktewater tijdens de winter van 2007-2008 (g/dag)

3.1.2. Passieve staalnametoestellen in waterlopen

Op 10 plaatsen werden passieve staalnametoestellen in het water gebracht. Normaal werd er met Oasis HLB® als sorbens gewerkt omdat deze ook gebruikt werd in de vaste fase extractie bij de analyse van waterstalen, maar ook Oasis MCX® werd uitgetest op twee plaatsen, namelijk de Demer in Kermt en de Leie in Deinze. De staalnametoestellen bleven gedurende 3 weken in de waterloop. Op 3 plaatsen, namelijk in de Demer te Kermt, de Dijle te Wilsele en de Zenne te Lot werd er iedere week een staalnametoestel geanalyseerd. Dit wordt in onderstaande tabel weergegeven als ‘week + cijfer’. Aangezien de staalnametoestellen achter elkaar geschikt zaten, was het mogelijk dat het eerste staalnametoestel in de beschermkoker de hoogste hoeveelheden cocaïne en benzoylecgonine bevatte. Dit werd getest door de volgorde van de staalnametoestellen in de beschermkoker op te tekenen in het veld. In onderstaande tabel is dit aangeduid met een letter.

Tabel 8: Cocaïne en benzoylecgonine gecapteerd met passieve staalnametoestellen. ‘Week’ is het aantal weken dat de passieve staalnametoestellen in de waterloop hebben gehangen; ‘Letter’ is de volgorde waarin de passieve staalnametoestellen in de beschermkoker zaten; (G): commercieel gekocht passief staalnametoestel. LOQ < 20 ng/g sorbens

Waterloop	Plaats	ng BE	ng COC	sorbens (g)	ng BE/g sorbens	ng COC/g sorbens
Aa A	Poederlee	5,6	5,9	0,059	96	101
Aa B	Poederlee	3,7	3,9	0,061	60	64
Aa C/D/E	Poederlee	< LOQ	< LOQ	<0,030	< LOQ	< LOQ
Bellebeek A	Ternat	2,1	1,5	0,083	25	18
Bellebeek B/C/D/E	Ternat	< LOQ	< LOQ	0,100	< LOQ	< LOQ
Demer week 1	Kermt	20,0	20,7	0,122	164	170
Demer week 2 MCX	Kermt	4,5	3,2	0,098	46	33
Demer week 3	Kermt	20,6	29,5	0,108	191	273
Dijle week 1 (G)	Wilsele	14,2	5,9	0,150	95	39
Dijle week 2	Wilsele	6,3	5,0	0,104	61	48
Dijle week 3 A/B/C	Wilsele	< LOQ	< LOQ	0,090	< LOQ	< LOQ
Grote Nete A	Hulshout	6,4	6,6	0,108	59	61
Grote Nete B	Hulshout	3,6	4,0	0,107	34	38
Kleine Nete A	Grobbendonk	3,4	2,0	0,071	48	29
Kleine Nete B/C/D/E	Grobbendonk	< LOQ	< LOQ	< 0,050	< LOQ	< LOQ
Leie A (G)	Deinze	22,6	20,2	0,167	135	121
Leie B	Deinze	5,3	3,3	0,085	63	39
Leie C	Deinze	5,8	4,0	0,095	61	41
Leie D	Deinze	7,9	6,1	0,095	84	65
Leie E MCX	Deinze	9,8	11,2	0,091	108	122
Zenne week 1	Lot	2,7	2,9	0,082	33	35
Zenne week 2 A/B	Lot	< LOQ	< LOQ	0,091	< LOQ	< LOQ

Het is duidelijk dat de passieve staalnametoestellen die commercieel aangekocht werden een hogere massa aan sorbens bevatten bij de analyse. Het is dus zeer waarschijnlijk dat de toestellen die vervaardigd werden aan de Universiteit Antwerpen niet goed sloten, waardoor een deel van het sorbens uitspoelde. Zoals verwacht bevatte het eerste staalnametoestel in de

koker hogere hoeveelheden cocaïne en benzoylecgonine ten opzichte van de andere staalnametoestellen in de koker. Opvallend is ook dat de ratio COC/BE ongeveer 1 is, terwijl dit in de schepstalen beduidend lager lag. Dit is waarschijnlijk te wijten aan een competitie tussen de componenten. In sommige waterlopen, zoals de Zenne, is er een hoge concentratie aan zwevende stoffen. Deze kunnen de poriën van de membranen verstoppen, waardoor weinig of geen cocaïne en benzoylecgonine op het sorbens kan binden. Ook troffen we op sommige membranen een begin van biofouling aan. Deze groei van levende organismen op de ondergedompelde staalnametoestellen kan de doorlaatbaarheid van de membranen aanzienlijk verminderen.

Op de plaatsen waar wekelijks een staalnametoestel werd geanalyseerd verwachtten we een stijging van de hoeveelheid cocaïne en benzoylecgonine in functie van de tijd. Op twee van de drie plaatsen zagen we echter een daling. Dit is hoogstwaarschijnlijk te wijten aan de problemen die ervaren werden met de staalnametoestellen, namelijk het uitspoelen van sorbens en het verstoppen van de poriën.

Tot op heden kunnen de passieve staalnametoestellen dus enkel kwalitatief gebruikt worden in het onderzoek naar cocaïne en metabolieten. Om de toestellen ook kwantitatief te gaan gebruiken is meer onderzoek nodig. Het gebruik van passieve staalnametoestellen zou een meer nauwkeurig beeld van de totale cocaïnebelasting in een waterloop over een bepaalde periode kunnen geven dan de schepstalen (Mills et al., 2007). Hiervoor moet eerst een kalibratiestudie uitgevoerd worden, wat nog nergens gebeurd is voor cocaïne en benzoylecgonine. Het gebruik van POCIS (Polar Organic Chemical Integrative Passive Sampler) is nog in volle ontwikkeling. Er is niets geweten over eventuele verstopping van de membranen door zwevende stoffen en belemmeringen door biofouling. In theorie is er weinig of geen ontwikkeling van biofouling mogelijk door de lage oppervlaktespanning van de polyethersulfone membranen. Wij merkten echter op sommige plaatsen toch een begin van biofouling op. Ook van de opnamekinetiek en saturatie van het sorbens is er weinig tot niets geweten. Dit is nochtans heel belangrijk om de totale belasting te berekenen. Mogelijk hebben de temperatuur en de stroming een belangrijke invloed op de opname. Een methode om dit te onderzoeken en de toestellen te kalibreren kan er in bestaan om de passieve staalnametoestellen te koppelen aan data van debietsgebonden staalnametoestellen. Hiermee kan exact bepaald worden welke belasting van cocaïne en metabolieten er passeerde gedurende een bepaalde periode. Passieve staalnametoestellen zouden ook gebruikt kunnen worden bij het lokaliseren van bronnen van lozing, vb.: het opsporen van illegale druglabo's, of monitoring van stoffen in het milieu, vb.: het volgen van trends in het druggebruik (Mills et al., 2007).

3.2. *Cocaïne en metabolieten in RWZI's*

3.2.1. Consumptie in 41 Belgische regio's

Tijdens de studie werden 39 RWZI's vier keer bemonsterd. In twee RWZI's, namelijk Lier en Tessenderlo, werden slechts twee maal stalen genomen wegens logistieke redenen. COC en BE konden in alle influent stalen van de RWZI's gekwantificeerd worden. De gemeten concentraties cocaine varieerde van 10 tot 753 ng/l, voor benzoylecgonine lag dit tussen 33 en 2258 ng/l. Uitgaande van de gemeten concentraties werd de hoeveelheid cocaïne in g per dag per 1000 inwoners berekend. Dit wordt samengevat weergegeven in Tabel 9. Voor de originele concentraties en berekeningen verwijzen we naar de appendices V - VIII.

Tabel 9: Cocaïne equivalenten gemeten in rioolwaterzuiveringinstallaties (g/dag per 1000 inwoners). ng = niet gemeten, * = gemiddelde (weekend 1, weekend 2, week 1 en week 2)

RWZI	weekend 1 (zomer)	weekend 2 (winter)	gemiddelde weekend	week 1 (zomer)	week 2 (winter)	gemiddelde week	gemiddelde totaal*
Aalst	0,158	0,317	0,237 ± 0,112	0,229	0,210	0,220 ± 0,013	0,228 ± 0,066
Aartselaar	0,272	0,339	0,305 ± 0,048	0,232	0,172	0,202 ± 0,042	0,254 ± 0,070
Antwerpen-Noord	0,379	0,284	0,332 ± 0,067	0,252	0,165	0,209 ± 0,061	0,270 ± 0,088
Antwerpen-Zuid	1,829	1,828	1,829 ± 0,001	1,269	0,681	0,975 ± 0,416	1,402 ± 0,548
Arlon	0,763	1,166	0,965 ± 0,286	0,653	0,615	0,634 ± 0,027	0,799 ± 0,253
Beersel	0,259	0,295	0,277 ± 0,026	0,180	0,220	0,200 ± 0,029	0,239 ± 0,050
Brugge	0,298	0,248	0,273 ± 0,035	0,098	0,083	0,090 ± 0,011	0,182 ± 0,108
Brussel-Noord	0,802	0,835	0,819 ± 0,023	0,610	0,545	0,578 ± 0,046	0,698 ± 0,142
Charleroi	0,686	0,861	0,774 ± 0,124	0,652	0,841	0,746 ± 0,134	0,760 ± 0,106
Ciney	0,050	0,196	0,123 ± 0,103	0,217	0,076	0,146 ± 0,100	0,134 ± 0,084
Dendermonde	0,663	0,493	0,578 ± 0,120	0,379	0,359	0,369 ± 0,014	0,473 ± 0,139
Destelbergen	0,376	0,282	0,329 ± 0,066	0,190	0,231	0,211 ± 0,029	0,270 ± 0,080
Deurne	1,189	0,834	1,011 ± 0,251	0,949	0,748	0,849 ± 0,142	0,930 ± 0,191
Gembloux	0,059	0,093	0,076 ± 0,024	0,104	0,086	0,095 ± 0,013	0,086 ± 0,019
Genk	0,793	1,328	1,060 ± 0,379	1,128	0,345	0,737 ± 0,554	0,899 ± 0,430
Gent	0,470	0,495	0,483 ± 0,018	0,295	0,325	0,310 ± 0,021	0,396 ± 0,101
Harelbeke	0,553	0,559	0,556 ± 0,004	0,533	0,771	0,652 ± 0,168	0,604 ± 0,112
Hasselt	0,507	0,047	0,277 ± 0,325	0,552	0,331	0,442 ± 0,157	0,359 ± 0,229
Heist	0,314	0,864	0,589 ± 0,389	0,718	0,584	0,651 ± 0,095	0,620 ± 0,234
La Louvière	0,528	0,524	0,526 ± 0,003	0,217	0,339	0,278 ± 0,086	0,402 ± 0,151
Leuven	0,446	0,382	0,414 ± 0,045	0,225	0,250	0,238 ± 0,018	0,326 ± 0,106
Liedekerke	0,338	0,447	0,393 ± 0,077	0,220	0,250	0,235 ± 0,021	0,314 ± 0,102
Liège	0,358	0,543	0,450 ± 0,130	0,187	0,096	0,141 ± 0,064	0,296 ± 0,197
Lier	ng	1,065	1,065	ng	0,487	0,487	0,776 ± 0,408
Lokeren	0,357	0,512	0,435 ± 0,110	0,420	0,354	0,387 ± 0,046	0,411 ± 0,074
Mechelen-Noord	0,721	0,627	0,674 ± 0,067	0,393	0,468	0,430 ± 0,053	0,552 ± 0,149
Menen	0,277	0,450	0,363 ± 0,122	0,375	0,401	0,388 ± 0,018	0,375 ± 0,073
Mol	0,332	0,301	0,317 ± 0,022	0,132	0,100	0,116 ± 0,022	0,216 ± 0,117
Mons	0,241	0,695	0,468 ± 0,321	0,140	0,517	0,328 ± 0,266	0,398 ± 0,254
Morkhoven	0,200	0,174	0,187 ± 0,018	0,223	0,301	0,262 ± 0,055	0,224 ± 0,055
Mouscron	0,165	0,211	0,188 ± 0,032	0,171	0,287	0,229 ± 0,082	0,209 ± 0,056
Nivelles	0,435	0,640	0,537 ± 0,145	0,487	0,311	0,399 ± 0,125	0,468 ± 0,136
Oostende	0,194	0,548	0,371 ± 0,250	0,290	0,200	0,245 ± 0,064	0,308 ± 0,166
Roeselare	0,285	0,288	0,286 ± 0,002	0,244	0,136	0,190 ± 0,076	0,238 ± 0,071
Sint-Niklaas	0,270	0,642	0,456 ± 0,263	0,578	0,282	0,430 ± 0,209	0,443 ± 0,195
Sint-Truiden	0,250	0,344	0,297 ± 0,066	0,277	0,280	0,279 ± 0,002	0,288 ± 0,040
Tessenderlo	ng	0,327	0,327	ng	0,204	0,204	0,265 ± 0,087
Tournai	0,359	0,313	0,336 ± 0,032	0,132	0,365	0,248 ± 0,165	0,292 ± 0,110
Verviers	0,397	0,453	0,425 ± 0,040	0,269	0,268	0,268 ± 0,001	0,347 ± 0,093
Wavre	0,131	0,060	0,096 ± 0,050	0,112	0,070	0,091 ± 0,030	0,093 ± 0,034
Wulpen	0,418	0,188	0,303 ± 0,163	0,092	0,140	0,116 ± 0,034	0,210 ± 0,145
Gemiddeld	0,446	0,509	0,484 ± 0,116	0,374	0,33	0,351 ± 0,093	0,417 ± 0,146

Volgens de metingen wordt in het weekend gemiddeld 0,484 g cocaïne per dag per 1000 inwoners gebruikt, terwijl dit in de week slechts 0,351 g cocaïne per dag per 1000 inwoners is. Er kan uit deze cijfers besloten worden dat er statistisch significant meer cocaine gebruikt wordt in het weekend dan tijdens weekdagen ($p < 0,05$; gepaarde t-test). Dit is een

bevestiging van wat reeds algemeen geweten is, namelijk dat cocaïne vooral een drug is die in het uitgaansmilieu gebruikt wordt (Calafat et al., 2007). De resultaten van de stalen genomen tijdens de 2 weekends (in de zomer en in de winter) verschillen statistisch niet significant van elkaar ($p > 0,05$; gepaarde t-test). Hetzelfde kan gezegd worden van de stalen genomen tijdens de 2 weekdagen (zomer en winter) ($p > 0,05$; gepaarde t-test). In de RWZI's van Menen, Hasselt en Morkhoven werden systematisch meer cocaïne-equivalenten in de week gemeten ten opzichte van het weekend. Een duidelijke verklaring hiervoor kunnen we niet geven.

De overzichtskaarten (Figuur 13, Figuur 14, Figuur 15 en Figuur 16) geven een beeld van de hoeveelheid cocaïne per dag per 1000 inwoners gebruikt in de zuiveringsregio's. Het is nuttig te vermelden dat de grenzen van de steden waarnaar de RWZI's genoemd zijn, niet altijd overeenkomen met de gemeentegrenzen. De zuiveringsregio Deurne behelst bijvoorbeeld voor het grootste deel het centrum van Antwerpen. In de meeste gevallen komt de naam van een zuiveringsgebied overeen met de ruime omgeving.

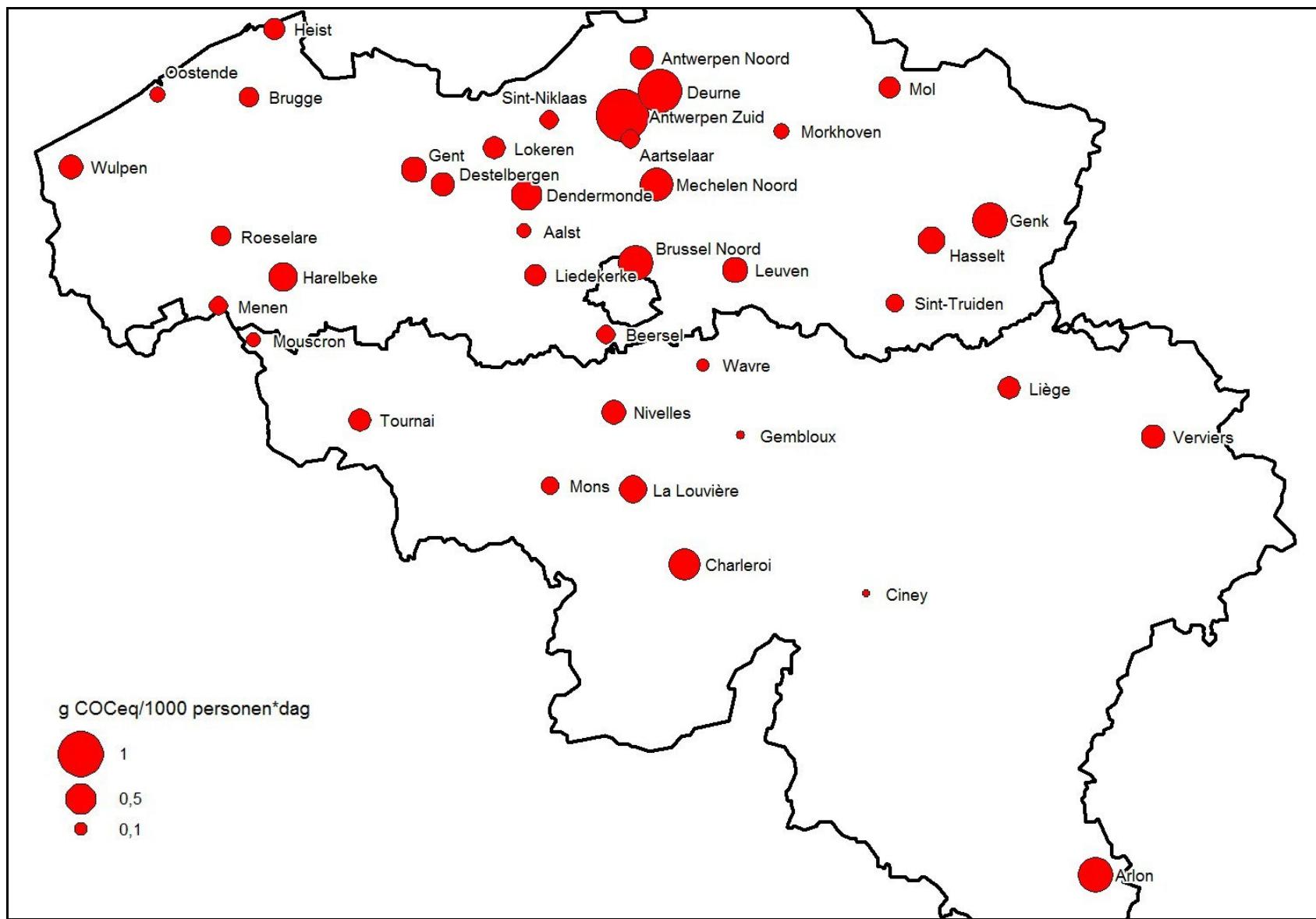
Zoals verwacht werden in de grotere steden de hoogste cocaïne equivalenten gemeten. De hoogste waarden werden gemeten in Antwerpen, Genk, Aarlen en Charleroi. Opmerkelijk waren de hoge resultaten in Heist en de lagere waarden in Waver, Gembloux en Ciney. Voor Gembloux en Ciney kan dit te wijten zijn aan de afwijkende manier van staalname. Hier werden namelijk schepstalen genomen, welke niet altijd representatief zijn voor het debiet van een volledige dag. In Brussel verwachten we waarden die in dezelfde lijn van Antwerpen lagen aangezien dit de twee grootste steden van België zijn. De waarden in Brussel lagen echter een flink stuk lager. Dit zou eventueel te wijten kunnen zijn aan een verkeerde inschatting van het aantal inwoners aangesloten aan de RWZI van Brussel-Noord. Aangezien de geanalyseerde concentraties ook lager waren in Brussel tegenover Antwerpen, vermoeden we echter dat de verklaring hiervoor een lager gebruik in Brussel is. Verwacht werd dat de resultaten in de kustgemeenten sterk zouden schommelen afhankelijk van het toerisme. Er werden geen metingen uitgevoerd tijdens de zomervakantie. In Heist is wel opvallend dat de hoogste meting tijdens de Krokusvakantie valt.

Tabel 10: Cocaine equivalenten in afvalwater verzameld op RWZI's in andere Europese landen (Zuccato et al., 2005; Castiglioni et al., 2006; Waumans et al., 2006)

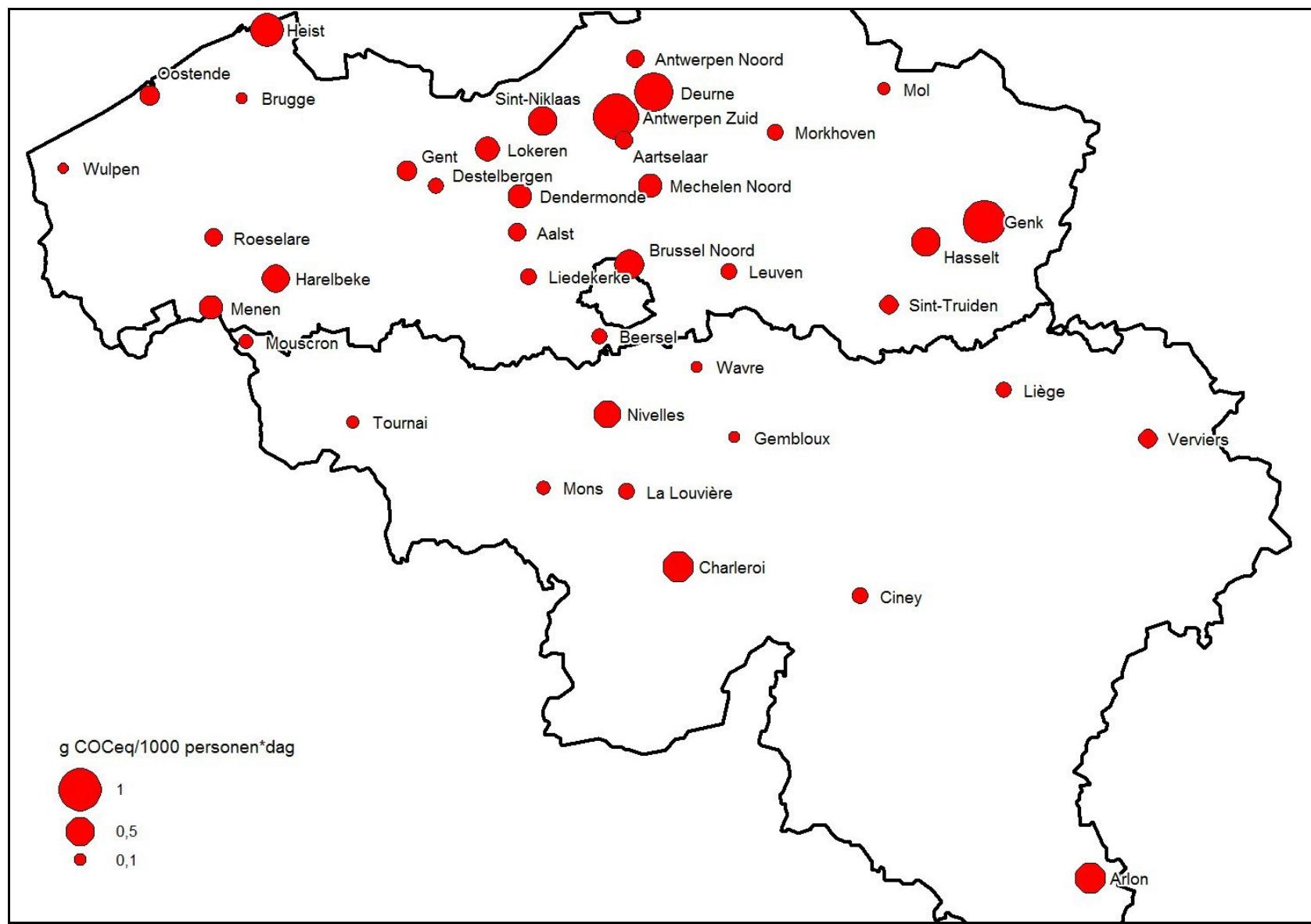
RWZI	personen	COC eq (g/staal)	COCeQ (g/dag*1000 personen)	Referentie
Cagliari	270.000	130,00	0,470	Zuccato
Cuneo	45.000	30,00	0,210	Zuccato
Latina	140.000	33,00	0,210	Zuccato
Varese	110.000	36,00	0,320	Zuccato
Nosedo	1.250.00	1162,49	0,930	Castiglioni
Lugano	120.000	89,63	0,747	Castiglioni
Leuven 13/4	108000	37	0,343	Waumans
Leuven 3/5	108000	45,4	0,420	Waumans
Leuven 4/5	108000	29,5	0,273	Waumans
Leuven 8/5	108000	33,6	0,311	Waumans
Leuven 12/5	108000	60,9	0,564	Waumans

Als we de berekende waarden in de Belgische RWZI's vergelijken met twee Italiaanse studies (Tabel 10) kunnen we stellen dat de resultaten in dezelfde lijn liggen. Cagliari, Cuneo, Latina en Varese zijn middelgrote Italiaanse steden. Nosedo en Lugano zijn twee RWZI's die het afvalwater van Milaan ontvangen. De resultaten van de middelgrote Belgische steden liggen in vergelijking met de Italiaanse steden eerder aan de hoge kant. Milaan is een stad met 1,3 miljoen inwoners, wat te vergelijken is met Brussel. Dit uit zich duidelijk in de resultaten welke in dezelfde grootte-orde liggen. De resultaten gemeten in Antwerpen lagen ongeveer dubbel zo hoog als de hoogste resultaten ooit gemeten in andere Europese RWZI's. Men kan dus stellen dat het cocaïnegebruik in Antwerpen zeer hoog is. Ook in Lier, Genk en Aarlen werden waarden opgetekend die hoger lagen dan de resultaten in Milaan. De waarden voor Leuven die Waumans et al. in 2006 rapporteerden, liggen in dezelfde grootte-orde met wat wij in Leuven meten (ranges van 0,273 – 0,564 en 0,225 – 0,446 g/dag per 1000 inwoners respectievelijk).

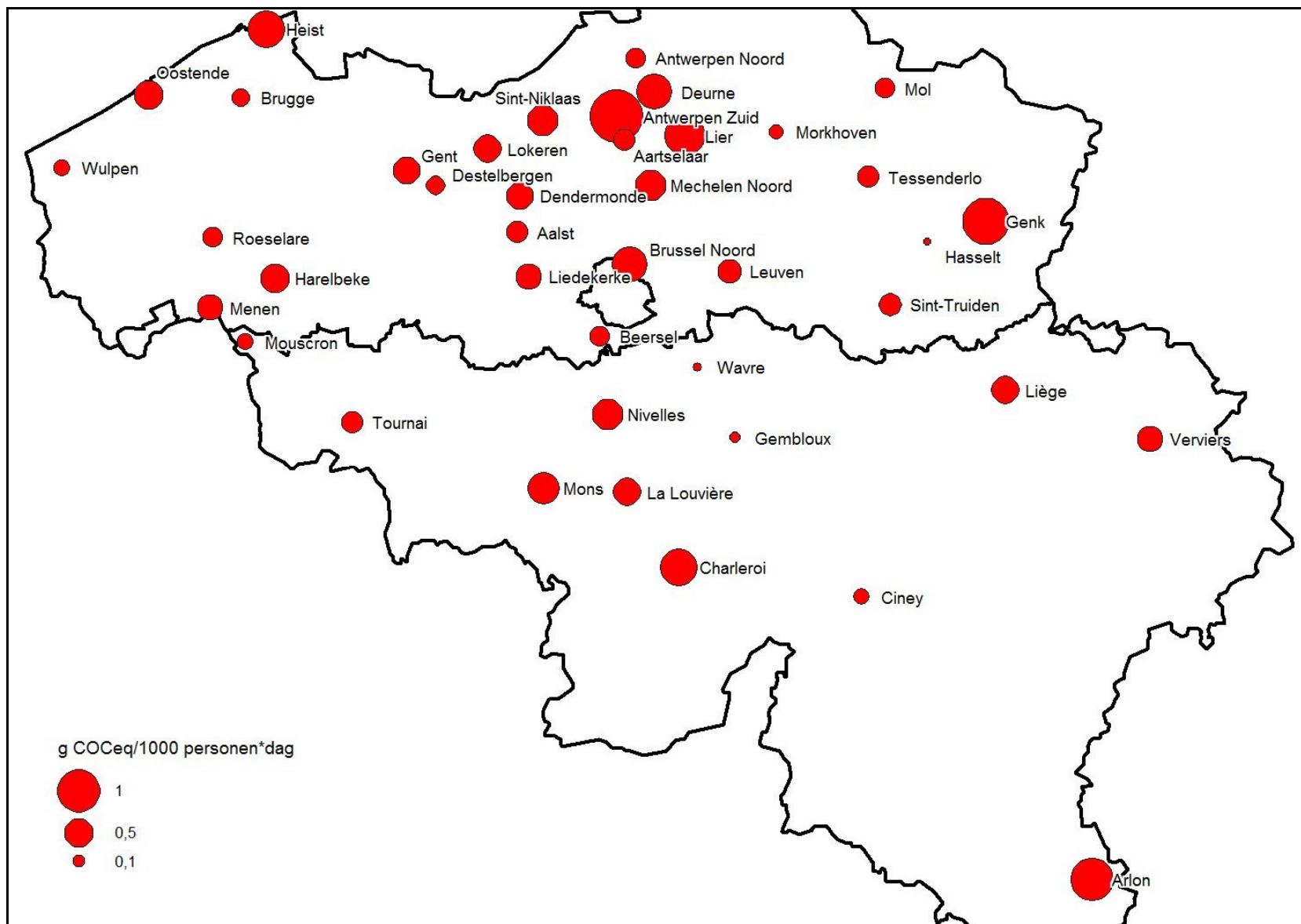
De gemiddelde COC/BE ratio in deze studie bedroeg $0,28 \pm 0,07$ tijdens de eerste en $0,38 \pm 0,13$ in de tweede staalnamecampagne. Net zoals bij de resultaten van het oppervlaktewater ligt de gemiddelde COC/BE ratio lager bij de staalnames in het najaar en de zomer ten opzichte van de winter. Dit bevestigt nogmaals dat cocaïne veel stabiever is in water bij een lagere temperatuur, wat ook al uit Grafiek 7 – 10 te besluiten kon worden.



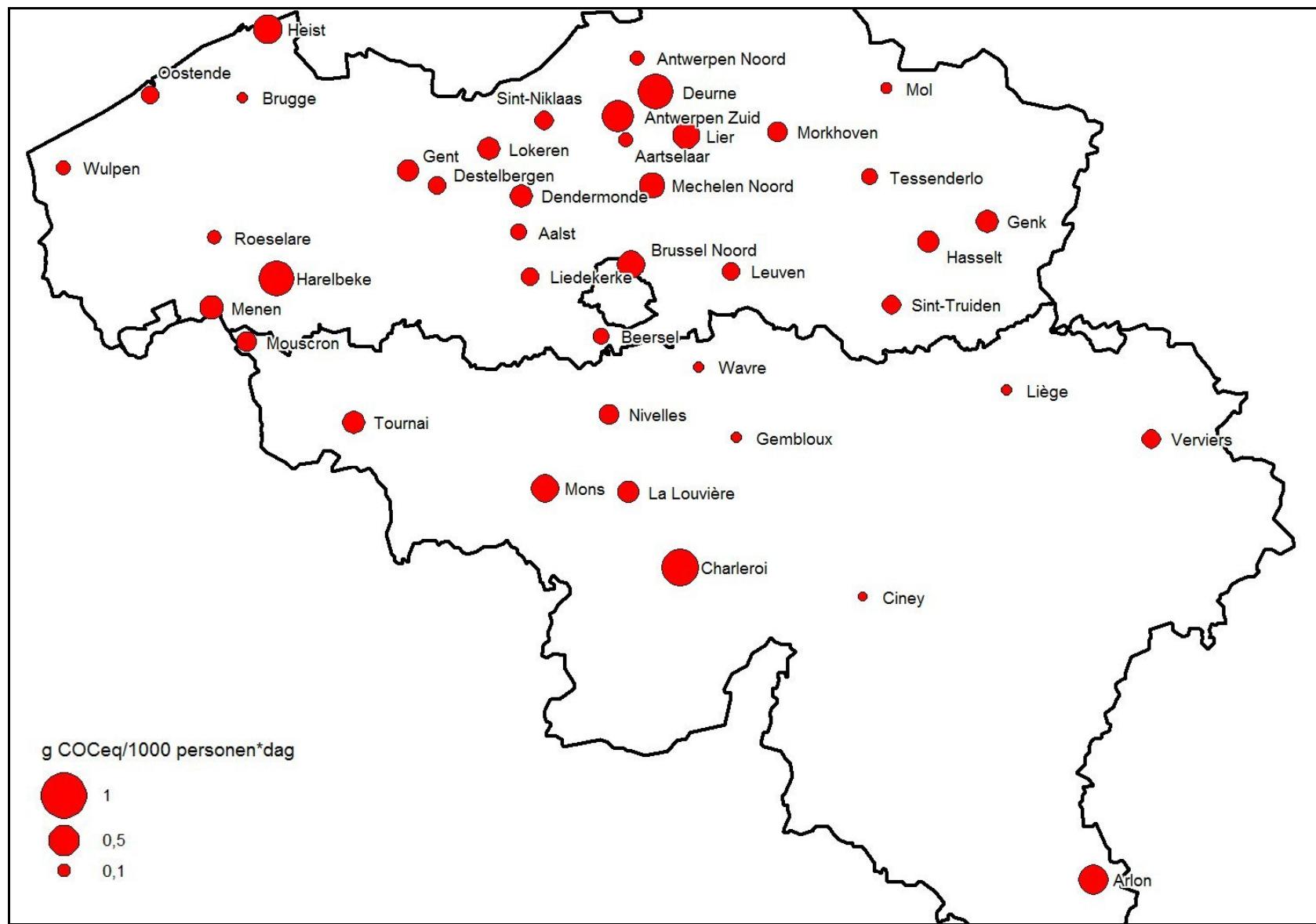
Figuur 13: Cocaïneconsumptie (g/dag per 1000 inwoners) tijdens het weekend in de zomer en najaar van 2007 gemeten in rioolwaterzuiveringinstallaties



Figuur 14: Cocaïneconsumptie (g/dag per 1000 inwoners) tijdens de week in de zomer en najaar van 2007 gemeten in rioolwaterzuiveringinstallaties



Figuur 15: Cocaïneconsumptie (g/dag per 1000 inwoners) tijdens het weekend in de winter van 2007-2008 gemeten in rioolwaterzuiveringinstallaties



Figuur 16: Cocaïneconsumptie (g/dag per 1000 inwoners) tijdens de week in de winter van 2007-2008 gemeten in rioolwaterzuiveringinstallaties

3.2.2. Cocaïnegebruik in België en de gewesten

In totaal werd per staalnamecampagne afvalwater afkomstig van gemiddeld 3.706.883 inwoners van België bemonsterd. In het Brussels hoofdstedelijk gewest omvatte deze studie 82,4 % van de bevolking, in Vlaanderen en Wallonië bedroeg dit respectievelijk 37,4 en 15,3 %. Door de gemeten waarden te normaliseren naar een gemiddelde hoeveelheid gebruikte cocaïne per inwoner binnen een geografisch gebied was het mogelijk om de gemeten hoeveelheden te extrapoleren naar het Belgisch grondgebied en de verschillende gewesten. De RWZI's van Ciney en Gembloux werden niet gebruikt bij de berekeningen aangezien hier schepstalen genomen werden. Deze stalen zijn minder betrouwbaar en geven waarschijnlijk geen representatief beeld van de hoeveelheid cocaïne en benzoylecgonine die er dagelijks voorbij stroomt.

Volgens onze schattingen wordt in totaal per jaar 1751 kg cocaïne gebruikt in België (Tabel 11). Het is dus duidelijk dat de legaal gebruikte cocaïne voor medische doeleinden, welke 12 kg per jaar bedraagt (B. Vandebosch, pers. comm.), hier slechts een heel klein deel van uitmaakt. Het hoogste gebruik ligt in het Brussels hoofdstedelijk gewest. Daar wordt in het weekend 1,83 g cocaïne per 1000 potentiële gebruikers (personen van 15 tot 45 jaar) per dag gebruikt (Tabel 14). In Wallonië wordt volgens onze metingen minder gebruikt dan in Vlaanderen, vooral in het weekend (1,43 g per dag per 1000 inwoners in Vlaanderen vs. 1,22 g per dag per 1000 inwoners in Wallonië) (Tabel 12 en 13). Dit moet wel genuanceerd worden aangezien in deze studie een kleiner deel van de bevolking van Wallonië bemonsterd werd dan van Vlaanderen.

Als men de hoeveelheid cocaïne equivalenten omrekent naar de kernpopulatie van gebruikers, namelijk personen tussen 15 en 45 jaar (World Drug Report 2004), dan kan men stellen dat er gemiddeld tijdens de week 1,03 g per dag per 1000 potentiële gebruikers en tijdens het weekend 1,41 g cocaïne per dag per 1000 potentiële gebruikers wordt gebruikt in België. Er van uitgaande dat 1 dosis cocaïne gemiddeld 0,1 g bedraagt (World Drug Report 2004), komt dit neer op 10 dosissen cocaïne per 1000 potentiële gebruikers op een weekdag en 14 dosissen tijdens een weekenddag in België. Dit is beduidend lager vergeleken met Spanje. Daar vond men in een studie op 42 RWZI's een gemiddeld gebruik van 1,4 g per 1000 inwoners voor de populatie van 15 tot 64 jaar (Huerta-Fontela et al., in press). Deze studie moet wel met een kritische kijk bekeken worden, aangezien in deze studies een aanzienlijk aantal zeer kleine RWZI's bemonsterd zijn (< 5000 inwoners). Als onze resultaten omgerekend worden naar een populatie van 15 tot 64 jaar wordt er in België 0,85 g per 1000 inwoners van 15 tot 64 jaar gebruikt.

Tabel 11: Schatting voor het Belgisch grondgebied op basis van de resultaten. *potentiële gebruikers: personen van 15 tot 45 jaar

België	COCeQ (kg)	COCeQ/1000 inw (g)	COCeQ/1000 pot. gebruikers* (g)
weekdag	4.349	0,436	1,03
weekenddag	5.960	0,612	1,41
jaar	1751		

Tabel 12: Schatting voor het Vlaamse gewest op basis van de resultaten. * potentiële gebruikers: personen van 15 tot 45 jaar

Vlaanderen	COCeQ (kg)	COCeQ/1000 inw (g)	COCeQ/1000 pot. gebruikers* (g)
weekdag	2,406	0,393	1,00
weekenddag	3,454	0,565	1,43
jaar	985		

Tabel 13: Schatting voor het Waalse gewest op basis van de resultaten. * potentiële gebruikers: personen van 15 tot 45 jaar

Wallonië	COCeQ (kg)	COCeQ/1000 inw (g)	COCeQ/1000 pot. gebruikers* (g)
weekdag	1,348	0,392	0,99
weekenddag	1,662	0,484	1,22
jaar	523		

Tabel 14: Schatting voor het Brussels hoofdstedelijk gewest op basis van de resultaten. * potentiële gebruikers: personen van 15 tot 45 jaar

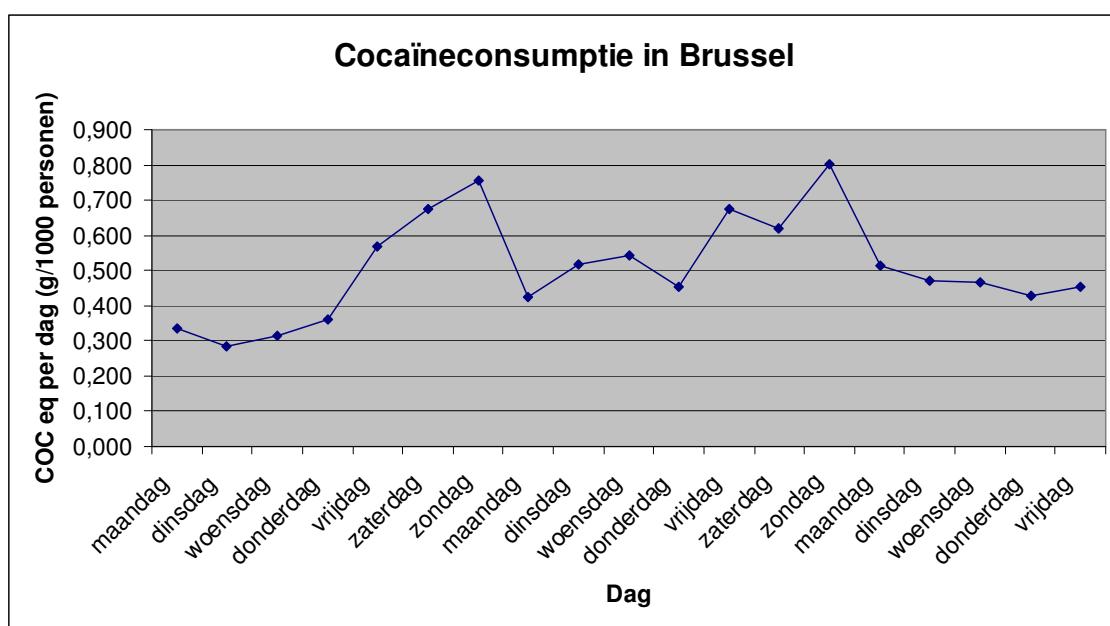
Brussel	COCeQ (kg)	COCeQ/1000 inw (g)	COCeQ/1000 pot. gebruikers* (g)
weekdag	0,596	0,578	1,29
weekenddag	0,844	0,819	1,83
jaar	243		

3.2.3. Dagelijkse cocaïneconsumptie in Brussel en Antwerpen

Om de dagelijkse cocaïneconsumptie en de weektrend in Brussel in te schatten werden gedurende 19 dagen stalen genomen met een debietgebonden staalnametoestel. Op onderstaande grafiek is een trend waar te nemen, waarbij het gebruik duidelijk hoger is in het weekend ten opzichte van de week. Gemiddeld wordt in de week 0,454 g cocaine per dag per 1000 inwoners gebruikt, terwijl dit in het weekend 0,712 bedraagt. De grootste hoeveelheden worden in het staal van zondag gevonden. Dit is logisch aangezien er een vertraging zit tussen het innemen van cocaïne, het uitscheiden en transport tot aan het waterzuiveringstation. We mogen dus veronderstellen dat de cocaïne gemeten in het staal van zondag, ingenomen werd gedurende vrijdagavond en zaterdag. De eerste week van de staalname lag tijdens de krokusvakantie. Tijdens deze vakantiedagen lag het gemiddeld gebruik opmerkelijk lager dan tijdens werkdagen, namelijk 0,372 g cocaine per dag per 1000 inwoners ten opzichte van 0,495. Dit kan te wijten zijn aan het feit dat veel mensen op vakantie gaan tijdens deze vakantie. Een andere oorzaak kan zijn dat mensen minder cocaïne gebruiken tijdens de vakantie. Verder onderzoek zou hierover uitsluitsel moeten geven.

Tabel 15: Resultaten van 24 h stalen in Brussel (RWZI Brussel-Noord) van maandag 4 februari tot en met vrijdag 22 februari 2008

Staal	Debiet (m ³ /dag)	Personen	conc BE (ng/l)	conc COC (ng/l)	BE/dag (g)	COC/dag (g)	COC eq (g)	COCeq/1000 personen (g/dag)
maandag	264414	850000	464	218	122,8	57,7	286	0,336
dinsdag	187227	850000	553	225	103,6	42,1	241	0,284
woensdag	176770	850000	647	255	114,4	45,0	266	0,313
donderdag	187375	850000	701	295	131,4	55,3	306	0,360
vrijdag	210817	850000	983	292	207,3	61,6	483	0,568
zaterdag	233303	850000	1055	539	246,2	125,7	574	0,675
zondag	210800	850000	1306	453	275,2	95,6	641	0,754
maandag	218608	850000	706	320	154,4	70,0	360	0,423
dinsdag	223103	850000	848	336	189,2	75,0	441	0,518
woensdag	247705	850000	802	339	198,8	84,0	463	0,545
donderdag	240677	850000	686	350	165,2	84,1	385	0,453
vrijdag	237451	850000	1038	388	246,6	92,2	574	0,676
zaterdag	231025	850000	977	382	225,6	88,2	526	0,618
zondag	228050	850000	1280	563	291,9	128,4	680	0,800
maandag	252875	850000	740	328	187,1	82,9	436	0,513
dinsdag	209733	850000	818	315	171,6	66,1	400	0,470
woensdag	240850	850000	708	318	170,5	76,5	397	0,467
donderdag	217675	850000	722	359	157,1	78,2	366	0,431
vrijdag	220574	850000	752	301	165,8	66,4	386	0,454



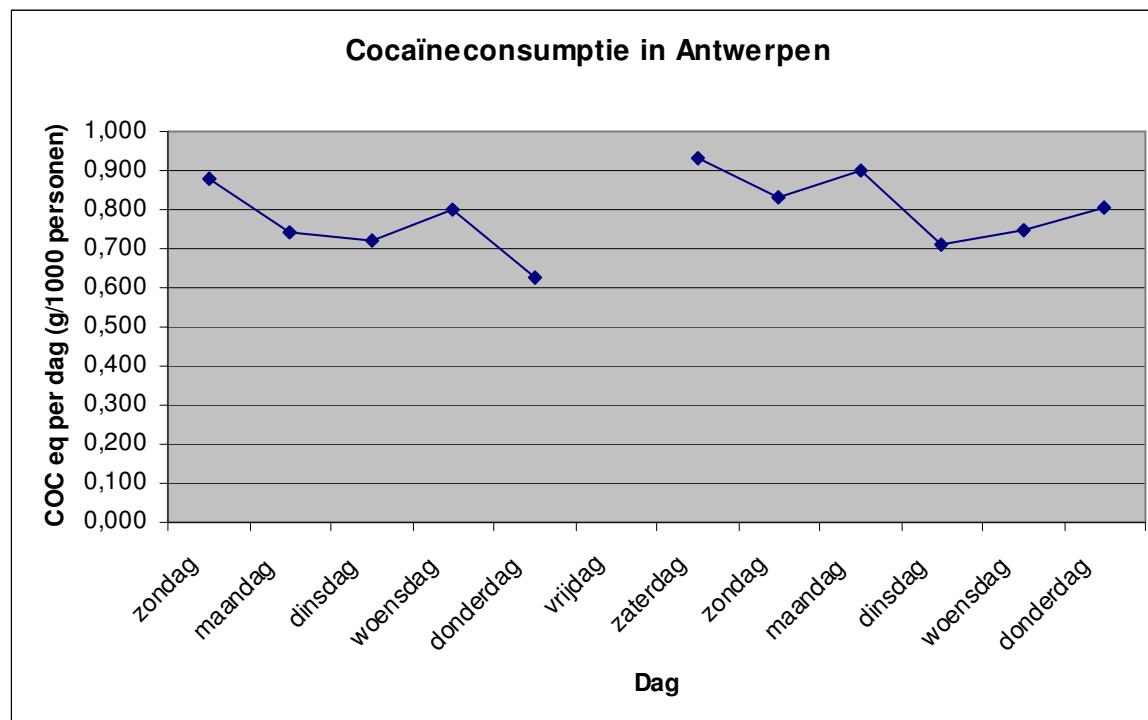
Grafiek 17: Trend van dagelijkse cocaïneconsumptie in Brussel (RWZI Brussel-Noord) van maandag 4 februari tot en met vrijdag 22 februari 2008

In Antwerpen werden gedurende 11 dagen debietgebonden stalen genomen. Wegens logistieke problemen ontbreekt het staal van vrijdag. Ook hier is duidelijk dat het gebruik in

het weekend hoger is dan in de week, namelijk 0,881 g cocaine equivalenten per dag per 1000 inwoners tijdens het weekend versus 0,757 op weekdagen. Het verschil is wel beduidend kleiner dan in Brussel. De eerste week van de staalnames lag ook tijdens de krokusvakantie. Aangezien de staalnameperiode korter is dan in Brussel, kunnen we hier geen verschil zien tussen werkweek en vakantieweek.

Tabel 16: Resultaten van 24 h stalen in Antwerpen (RWZI Deurne) van zondag 3 februari tot en met donderdag 14 februari 2008

Staal	Debiet (m ³ /dag)	Personen	conc BE (ng/l)	conc COC (ng/l)	BE/dag (g)	COC/dag (g)	COC eq (g)	COCeq/1000 personen (g/dag)
zondag	55864	198569	1339	613	74,8	34,2	174	0,878
maandag	60928	198569	1042	544	63,5	33,1	148	0,745
dinsdag	117496	198569	523	351	61,4	41,2	143	0,721
woensdag	103584	198569	659	383	68,3	39,7	159	0,801
donderdag	32940	198569	1009	495	53,2	26,1	124	0,624
zaterdag	55312	198569	1436	782	79,4	43,2	185	0,932
zondag	57088	198569	1245	394	71,0	22,5	166	0,833
maandag	56264	198569	1362	654	76,7	36,8	179	0,899
dinsdag	55768	198569	1084	526	60,4	29,3	141	0,709
woensdag	56120	198569	1136	606	63,8	34,0	149	0,748
donderdag	54696	198569	1257	576	68,8	31,5	160	0,807



Grafiek 18: Trend van dagelijkse cocaïneconsumptie in Antwerpen (RWZI Deurne) van zondag 3 februari tot en met donderdag 14 februari 2008

De analyses van Castiglioni (2006) bevestigden grotendeels onze resultaten. Zij volgden het cocaïnegebruik gedurende 3 weken in de twee RWZI's van Milaan. In hun resultaten is

duidelijk te zien dat het gebruik stijgt naar het weekend toe en een hoogtepunt bereikt op de zaterdag. Dit verschilt licht van onze resultaten aangezien wij in Brussel de hoogste concentraties zagen in het staal van zondag. Mogelijk is het cocaïnegebruik verschillend tussen deze twee steden. Een andere oorzaak hiervan kan zijn dat het afvalwater in Milaan vlugger in de RWZI's terecht komt. In Spanje volgde Huerta-Fontela (in press) het cocaïnegebruik gedurende 7 dagen. Zij vonden, net zoals in onze studie, de hoogste concentratie in het staal van zondag. In beide studies werden ook andere illegale drugs onderzocht. Opvallend hierbij was dat MDMA en amfetamines een veel sterker verschil vertoonden tussen de week en het weekend vergeleken met cocaïne. MDMA en amfetamines zijn dus duidelijke partydrugs, terwijl cocaïne ook in de week gebruikt wordt.

In Leuven analyseerde men het afvalwater van de RWZI gedurende een week om fluctuaties van het cocaïnegebruik in Leuven na te gaan (Waumans et al., 2006). Tijdens deze studie werden echter geen stalen genomen tijdens het weekend. De hoogste concentraties werden gemeten op vrijdag (Tabel 10). Dit is vergelijkbaar met onze resultaten en deze uit Italië en Spanje, waarbij een stijgende trend wordt waargenomen naar het weekend toe. Het feit dat Leuven een studentenstad is, waarbij de uitgaansdag vooral op donderdag ligt, zorgt waarschijnlijk voor een verhoogde concentratie in het staal van de vrijdag.

3.2.4. Verwijdering van cocaïne en metabolieten in RWZI's

Op 7 RWZI's werden stalen genomen van zowel het influent als het effluent om na te gaan in hoeverre cocaïne en benzoylecgonine afgebroken of geïmmobiliseerd worden tijdens het zuiveringsproces. Zoals te zien is in Tabel 17 wordt cocaïne nagenoeg volledig verwijderd uit het afvalwater. Slechts op 1 RWZI werd nog cocaïne gemeten in het effluent. Dit verschilt sterk van de resultaten in een Spaanse studie. Daar vond men op 16 RWZI's gemiddeld 21,5 % van de cocaïne terug in het effluent (Huerta-Fontela et al., 2007). Benzoylecgonine wordt ook grotendeels uit het afvalwater gezuiverd, maar blijft toch stabieler achter in het effluent dan cocaïne en komt zo dus nog voor in een klein deel in de waterlopen. De hoogste waarde die gemeten werd bedroeg 6,63 % van de oorspronkelijke concentratie in het influent. In Spanje was dit gemiddeld 26,7 %. Ook in Lugano (Italië) vond men in het effluent nog 18,3 % van de oorspronkelijke concentratie in het afvalwater terug (Castiglioni et al., 2006).

Waar en hoe de afbraak of immobilisatie gebeurt in het zuiveringsproces is niet duidelijk. Mogelijk worden de componenten verder afgebroken tot andere metabolieten. Ook UV-straling van het zonlicht kan bijdragen tot de afbraak (Jones et al., 2001; Mills et al., 2007). De grote verschillen tussen onze resultaten en deze in Spanje en Italië zijn waarschijnlijk te wijten aan een verschil in het zuiveringsproces.

Tabel 17: Verschil tussen concentraties cocaïne en benzoylecgonine in het influent en effluent van een aantal RWZI's. 1: Castiglioni et al., 2006; 2: Huerta-Fontela et al., 2007

RWZI	Dagstaal	Conc. COC in (ng/l)	Conc. COC eff (ng/l)	Efficiëntie (%)	Conc. BE in (ng/l)	Conc. BE eff (ng/l)	Efficiëntie (%)
Aalst	12/08/07	91,6	< LOQ	100,0	321,6	18,4	94,3
Aartselaar	26/08/07	118,4	< LOQ	100,0	365	16,2	95,6
Antwerpen-Noord	19/08/07	167,2	< LOQ	100,0	464,7	6,9	98,5
Deurne	19/08/07	753,4	< LOQ	100,0	2258,4	15,2	99,3
Gent	12/08/07	231,9	< LOQ	100,0	800,7	3,6	99,6
Lokeren	12/08/07	112	8,2	92,7	334	16,1	95,2
Sint-Niklaas	12/08/07	114,7	< LOQ	100,0	347	23	93,4
Nosedo (1)	feb/06	421,4	< LOQ	100,0	1132,1	< LOQ	100,0
Lugano (1)	mrt/06	218,4	10,7	95,1	547,4	100,3	81,7
Spanje (2)		79	17	78,5	810	216	73,3

3.2.5. Ecotoxicologie

Aangezien cocaïne en benzoylecgonine op bepaalde plaatsen toch in redelijk hoge concentraties in het water voorkomen, is het mogelijk dat dit een effect heeft op de biota van het aquatisch ecosysteem. Over de ecotoxicologie van deze stoffen is nog niets geweten. Wij troffen slechts 1 studie aan waarbij vissen werden blootgesteld aan concentraties cocaïne in het water (Darland & Dowling, 2001). Het ging hier om een gedragstudie van Zebrafissen (*Danio rerio*) om meer inzicht te krijgen in de moleculaire processen van het verslavende effect van cocaïne. Bij de laagste concentratie getest, 1 mg/l cocaïne, had men reeds een duidelijke acute reactie. De vissen vertoonden een staat van opwinding en gedroegen zich agressiever. Hun zicht verminderde ook. De geteste concentraties zijn echter weinig relevant voor de concentraties aangetroffen in het oppervlaktewater aangezien deze laatste een factor 10^4 lager waren.

Ook andere auteurs stellen dat illegale drugs een wijdverspreid milieuprobleem kunnen vormen (Jones-Lepp et al., 2004; Zuccato et al., 2005; Castiglioni et al., 2006; Huerta-Fontela et al., 2007). Ze komen onveranderd of als metabolieten in het oppervlaktewater terecht. Over de impact van illegale drugs op het milieu is tot op heden niets geweten. Ook over de zuiveringsefficiëntie van traditionele waterzuiveringsinstallaties op drugs is er weinig kennis. Uit een vergelijking van onze resultaten met deze van andere studies blijkt dat de zuiveringsefficiëntie sterk kan schommelen voor cocaïne en benzoylecgonine. Castiglioni (2006) onderzocht de zuiveringsefficiëntie voor verschillende drugs op twee zuiveringstations in Italië en vond dat een aantal van de geanalyseerde illegale drugs en metabolieten, namelijk MDMA, morfine, methadon en EDDP, nauwelijks verwijderd werden in de RWZI's. Ook in Spanje vond men nagenoeg geen verwijdering van MDMA in het zuiveringsproces (Huerta-Fontela et al., 2007). Het is dus mogelijk dat deze stoffen in het grond- en zelfs in het drinkwater terecht komen.

3.2.6. Andere illegale drugs

De methode toegepast in deze studie is ook bruikbaar voor het inschatten van het gebruik van andere illegale drugs in een geografische regio. Zoals reeds aangetoond in andere onderzoeken werden al heel wat illegale drugs en hun metabolieten aangetroffen in oppervlakte- en afvalwaters (Jones-Lepp et al., 2004; Castiglioni et al., 2006; Hummel et al., 2006; Kaleta et al., 2006; Huerta-Fontela et al., 2007; Kasprzyk-Hordern et al., 2007; Mills et al., 2007). Wij voerden enkele proefmetingen uit op morfine, de voornaamste heroïnemetaboliet, MDMA (ecstasy), en THC-COOH, de voornaamste psychotrope cannabismetaboliet. Bij de bepaling van morfine ondervonden we technische problemen en was het niet mogelijk om tot resultaten te komen met de technieken die wij toepasten. Morfine is ook niet direct bruikbaar om het heroïnegebruik in een geografische regio in te schatten, aangezien dit ook op grote schaal legaal gebruikt wordt. Dit probleem zou eventueel verholpen kunnen worden eenmaal met het legale morfinegebruik binnen de geografische regio kent. Voor MDMA en THC-COOH was onze techniek wel bruikbaar, mits optimalisatie. Proefmetingen op 5 RWZI's gaven voor MDMA resultaten tussen 40 en 223,3 ng/l en voor THC-COOH tussen 34,5 en 64,3 ng/l.

4. Conclusie

Onze studie toont aan dat een beeld kan gevormd worden van het cocaïnegebruik in een regio aan de hand van metingen in het afvalwater. Uit de resultaten bleek dat het gebruik vooral geconcentreerd was tijdens het weekend en in de grotere steden. Het hoogste cocaïnegebruik werd gedetecteerd in de regio's van de rioolwaterzuiveringsinstallaties van Antwerpen-Zuid (1,402 g/dag per 1000 inwoners), Deurne (0,930 g/dag per 1000 inwoners) en Genk (0,899 g/dag per 1000 inwoners). Deze monitoring naar cocaïnegebruik omhelst ongeveer 4 miljoen Belgen. Als de resultaten uit deze studie geëxtrapoleerd worden naar de totale Belgische bevolking, is er ongeveer 1,75 ton cocaïne in dit onderzoeksjaar gebruikt in België. Dit komt overeen met ongeveer 17 miljoen dosissen (dosis = 100 mg cocaine) die jaarlijks gebruikt worden. Aangezien in alle afvalwaterstalen cocaïne en benzoylecgonine gemeten werd, is het duidelijk dat cocaïnegebruik een wijdverspreid fenomeen is welke de nodige aandacht vereist.

Cocaïne wordt grotendeels als de metaboliet benzoylecgonine uitgescheiden. Dit blijft betrekkelijk stabiel in het afvalwater, zeker bij lagere temperaturen. In de literatuur wordt gerapporteerd dat 45 % van de oorspronkelijke cocaïnedosis wordt omgezet naar benzoylecgonine en urinair wordt uitgescheiden. Dit staat echter nog ter discussie en meer onderzoek zou een nauwkeuriger beeld moeten geven over de metabolisme van cocaïne. Er is ook nog geen duidelijk beeld over het verlies van deze metaboliet tussen de uitscheiding en de analyse. Mogelijk wordt een deel verder afgebroken naar andere metabolieten of wordt het geïmmobiliseerd in de rioleringen. Ook factoren als zware regenval, chemische toiletten op festivals en wildplassers zorgen voor verlies. Het is dan ook zeer waarschijnlijk dat onze resultaten een onderschatting geven van het werkelijke gebruik. Verder onderzoek naar de afbraak of immobilisatie zal dan ook leiden tot een nauwkeuriger beeld van het cocaïnegebruik.

In België is het aangewezen om gebruik te maken van debietgebonden staalnametoestellen op RWZI's om tot het meest nauwkeurige beeld te komen. Hiervan zijn gegevens over het aantal inwoners dat aangesloten is via de rioleringen aan de RWZI met een goede precisie gekend en meet men continu het debiet. Men kent ook nauwkeurig de begrenzing van de regio waar het afvalwater vandaan komt. Dit heeft dus duidelijke voordelen ten opzichte van waterlopen. Bij waterlopen is het namelijk veel moeilijker om in te schatten hoeveel inwoners het afvalwater lozen in de waterloop en is er een veel grotere verdunning waardoor we veel lagere concentraties meten. Op termijn moeten trouwens alle inwoners aangesloten worden op individuele waterzuivering of RWZI's om aan de wetgeving te voldoen.

Deze aanpak kan in de toekomst gebruikt worden om nauwkeurig en snel (binnen enkele dagen) het lokale cocaïnegebruik op te volgen. Een eerste schatting van de kostprijs van deze opvolging ligt op 100 € per staalname en analyse van één waterstaal. Het is niet alleen mogelijk de trend van het cocaïnegebruik in de tijd op te volgen, maar het is tevens mogelijk om regio's aan te duiden waar een verhoogd gebruik wordt waargenomen. Dit alles kan op zich een goede basis zijn voor aanvullende sociologische en epidemiologische studies, waarbij oorzaken kunnen gezocht voor dit verhoogd gebruik. Onze aanpak samen met dit soort studies hebben dus een complementaire waarde. Ook voor het evalueren van preventiecampagnes kan deze techniek een heel goed werkinstrument vormen. Met dergelijke informatie kunnen beleidsmakers en organisaties meer ondersteuning krijgen bij het aanduiden van probleemregio's en het stellen van prioriteiten voor een goed onderbouwd drugbeleid.

Notre étude démontre qu'il est possible de se faire une idée de la consommation de cocaïne dans une région géographique déterminée en procédant à l'analyse des eaux usées. Les résultats de ce travail indiquent que la consommation est plus importante durant le week-end, et dans les grandes villes. Les plus fortes teneurs ont été détectées au niveau des stations d'épuration de Anvers-Sud (1,402 g/jour pour 1000 habitants), Deurne (0,930 g/jour pour 1000 habitants) et Genk (0,899 g/jour pour 1000 habitants). Au total, les campagnes d'échantillonnage ont permis d'évaluer l'usage de cocaïne dans une population estimée à près de 4 million Belges, ce qui, par extrapolation, conduit à estimer la consommation annuelle belge totale à plus de 1,75 tonne de cocaïne, soit environ 17 million doses. Étant donné que de la cocaïne et de la benzoylecgonine ont été retrouvées dans tous prélèvements d'eaux usées, il est logique de conclure que la consommation de ce psychostimulant constitue un phénomène assez répandu qui exige qu'on lui porte toute l'attention nécessaire.

La cocaïne rejetée dans l'environnement se trouve principalement sous la forme de son métabolite, la benzoylecgonine. En raison des basses températures, l'équilibre cocaïne/benzoylecgonine est relativement stable dans les cours d'eau, avec un rapport entre la benzoylecgonine et la cocaïne d'environ 0,45. Une nouvelle étude devrait permettre de préciser cet équilibre métabolique. En effet, nos résultats ne confirment pas toujours la valeur de ce rapport, mais nous ne pouvons pas actuellement expliquer cela : soit l'équilibre métabolique est différent, soit il y a sous-estimation de la benzoylecgonine dégradée en d'autres métabolites ou immobilisée dans les égouts (influence des fortes pluies, WC chimiques lors de festivals, etc). Si on admet cette sous-estimation éventuelle de la concentration de benzoylecgonine, on peut alors affirmer qu'il est très probable que nos résultats sous-évaluent la consommation réelle de cocaïne.

Pour procéder à cette étude de l'estimation de la consommation de cocaïne en Belgique, deux approches ont été utilisées. La première a consisté à recourir à l'emploi des données relatives au débit des stations d'épuration, et aux informations se rapportant au nombre de personnes raccordées aux égouts, et ainsi desservies par chaque station d'épuration. La seconde a été d'analyser les informations concernant les bassins hydrographiques (provenance des cours d'eau). L'étude des cours d'eau présente certains avantages même s'il est beaucoup plus difficile d'estimer le nombre d'habitants dont les eaux usées, traitées ou non, y ont été déversées. Un autre inconvénient est l'ampleur du facteur de dilution. Il faut noter qu'à terme, et en vue de satisfaire la législation, tous les habitants en Belgique devront faire traiter leurs eaux usées avant leur rejet dans les cours d'eau, que ce soit par station d'épuration collective ou individuelle.

Grâce à la technique mise en œuvre dans le projet COWAT, la consommation de cocaïne peut être évaluée endéans quelques jours, et de façon assez précise. En première estimation, le coût d'une telle analyse s'élèverait à 100 € par prélèvement et analyse d'un échantillon d'eau. Ceci pourrait mener à un programme de surveillance où la consommation belge de cocaïne serait surveillée régulièrement. On pourrait ainsi enregistrer non seulement les tendances de consommation de cocaïne dans le temps, mais également par région, et mettre rapidement en évidence une zone géographique où un pic de consommation a lieu. La méthodologie exploitée par ce projet peut constituer une bonne base pour les études sociologiques ou l'évaluation des campagnes de prévention contre la drogue. Les résultats obtenus par ce genre d'analyse peuvent être directement exploitables et utilisés par les preneurs de décision en matière de gestion des drogues afin d'identifier les régions à problèmes et d'établir ainsi des priorités dans la politique de gestion des drogues.

5. Referenties

"World Drug Report 2004. Volume 2. Statistics." (2004). from http://www.unodc.org/pdf/WDR_2004/methodology.pdf.

United Nations, Office on drugs and crime, (2007a). World Drug Report 2007. Vienna., 282 p.

European Monitoring Centre for Drugs and Drug Addiction, (2007b). Cocaine and crack cocaine: a growing public health issue. Lisbon. 36 p.

Bones, J., Thomas, K.V., Paull, B. (2007). "Using environmental analytical data to estimate levels of community consumption of illicit drugs and abused pharmaceuticals." *Journal of Environmental Monitoring* 9: 701-707.

Bruneton, J. (1999). Editions médicales internationales. Pharmacognosie: phytochimie et plantes médicinales, 3 e édition. Paris Éd. Technique & Documentation: 826-831.

Calafat, A., C. F. Gómez, M. Juan & E. Becoña (2007). "Weekend Nightlife Recreational Habits: Prominent Intrapersonal "Risk factors" for Drug Use?" *Substance Use & Misuse* 42 (9): 1443 - 1454.

Carter, R. H. A. (1990). Pharmacodépendance et pharmacodélinquance. Paris, Les éditions Chiron: 86-101.

Castiglioni, S. (2006). Fate of illegal drugs in the environment. Oslo Workshop on the Environmental Fate and Effects of Pharmaceuticals and Personal Care Products. Center for Interdisciplinary Environmental and Social Research (CIENS): 26 p.

Castiglioni, S., E. Zuccato, E. Crisci, C. Chiabrandi, R. Fanelli & R. Bagnati (2006). "Identification and Measurement of Illicit Drugs and Their Metabolites in Urban Wastewater by Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry." *Analytical Chemistry* 78 (24): 8421-8429.

Chevolleau, F. & D. Geoffrion (2007). "Les nouveaux cocaïnomanes." Diffusé dans « Envoyé spécial ».

Darland, T. & J. E. Dowling (2001). "Behavioral screening for cocaine sensitivity in mutagenized zebrafish." *Proceedings of the National Academy of Sciences* 98 (20): 11691-11696.

Gheorghe, A., A. van Nuijs, B. Pecceu, L. Bervoets, P. G. Jorens, R. Blust, H. Neels & A. Covaci (2008). "Analysis of cocaine and its principal metabolites in waste and surface water using solid phase extraction and liquid chromatography – ion trap tandem mass spectrometry." *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 391(4):1309-19.

Harrison, L. & A. Hughes (1997). "The Validity of Self-Reported Drug Use: Improving the Accuracy of Survey Estimates." *NIDA Research Monograph* 167: 96-4147.

Heberer, T. (2002). "Occurrence, fate, and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: a review of recent research data." *Toxicology Letters* 131 (1-2): 5-17.

Huerta-Fontela, M., M. T. Galceran & F. Ventura (2007). "Ultraperformance Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry Analysis of Stimulatory Drugs of Abuse in Wastewater and Surface Waters." *Anal. Chem.* 79 (10): 3821-3829.

Huerta-Fontela, M., M. T. Galceran, J. Martin-Alonso & F. Ventura (in press). "Occurrence of psychoactive stimulatory drugs in wastewaters in north-eastern Spain." *Science of The Total Environment In Press, Corrected Proof.*

Hummel, D., D. LÖFFler, G. Fink & T. A. Ternes (2006). "Simultaneous determination of psychoactive drugs and their metabolites in aqueous matrices by liquid chromatography mass spectrometry." *Environmental science & technology* 40 (23): 7321-7328.

Israëls, H. & G. Busse (1999). *Der Fall Freud: die Geburt der Psychoanalyse aus der Lüge.* Hamburg, Europäische Verlagsanstalt.

Jones-Lepp, T. L., D. A. Alvarez, J. D. Petty & J. N. Huckins (2004). "Polar Organic Chemical Integrative Sampling and Liquid Chromatography-Electrospray/Ion-Trap Mass Spectrometry for Assessing Selected Prescription and Illicit Drugs in Treated Sewage Effluents." *Archives of Environmental Contamination and Toxicology* 47 (4): 427-439.

Jones, O. A. H., N. Voulvoulis & J. N. Lester (2001). "Human Pharmaceuticals in the Aquatic Environment a Review." *Environmental Technology* 22 (12): 1383-1394.

Kaleta, A., M. Ferdig & W. Buchberger (2006). "Semiquantitative determination of residues of amphetamine in sewage sludge samples." *Journal of Separation Science* 29 (11): 1662-1666.

Kasprzyk-Hordern, B., R. M. Dinsdale & A. J. Guwy (2007). "Multi-residue method for the determination of basic/neutral pharmaceuticals and illicit drugs in surface water by solid-phase extraction and ultra performance liquid chromatography-positive electrospray ionisation tandem mass spectrometry." *Journal of Chromatography A* 1161 (1-2): 132-145.

Lamkaddem, B. & M. Roelands (2007). Belgian national report on drugs 2007: new developments, trends and in-depth information on selected issues. Brussels, Scientific Institute of Public Health, Epidemiology Unit. 166 p.

Mills, G., B. Vrana, I. Allan, D. Alvarez, J. Huckins & R. Greenwood (2007). "Trends in monitoring pharmaceuticals and personal-care products in the aquatic environment by use of passive sampling devices." *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 387 (4): 1153-1157.

Pendergrast, M. (2000). *For God, Country and Coca-Cola: The Definitive History of the Great American Soft Drink and the Company that Makes it*, Basic Books.

Reed, G. F., F. Lynn & B. D. Meade (2002). "Use of Coefficient of Variation in Assessing Variability of Quantitative Assays." *Clin. Diagn. Lab. Immunol.* 9 (6): 1235-1239.

Richard, D. & J. L. Senon (1999). Dictionnaire des drogues, des toxicomanies et des dépendances, Larousse, Paris.

Richard, D. & J. L. Senon (2004). Dictionnaire des drogues, des toxicomanies et des dépendances, Larousse, Paris.

Salmandjee, Y. (2003). "Les drogues, Tout savoir sur leurs effets, leurs risques et la législation." Eyrolles, coll. « Eyrolles Pratique ».

Sleiman, S. & M. Roelands (2006). Belgian National Report on Drugs 2006, Scientific Institute of Public Health. 151 p.

Ternes, T. A., M. Stumpf, J. Mueller, K. Haberer, R. D. Wilken & M. Servos (1999). "Behavior and occurrence of estrogens in municipal sewage treatment plants -- I. Investigations in Germany, Canada and Brazil." The Science of The Total Environment 225 (1-2): 81-90.

Waumans, D., S. Pauwels, N. Brunel & J. Tytgat (2006). Quantification of cocaine and benzoylecgonine in wastewater by gas chromatography-mass spectrometry: mapping cocaine abuse in the Belgian university city of Leuven. The International Association of Forensic Toxicologists (TIAFT2006), Ljubljana, Slovenia.

European Monitoring Centre for Drugs and Drug Addiction, Winter, M. d., P. Cohen, M. Langemijer, J. Vicente & R. Hartnoll (2000). Methodological study to compare the effect of different methods of data collection on the prevalence of self-reported drug use in General Population Surveys. 128 p.

Zuccato, E., C. Chiabrando, S. Castiglioni, D. Calamari, R. Bagnati & S. Schaiarea (2005). "Cocaine in surface waters: a new evidence-based tool to monitor community drug abuse." Environmental Health 4 (14): 4-14.

Zuccato, E., Castiglioni, S., Bagnati, R., Chiabrando, C., Grassi, P., & R. Fanelli (2008). "Illicit drugs, a novel group of environmental contaminants." Water Research 42(4-5):961-968.

Lijst van figuren

Figure 1: Production potentielle annuelle de cocaïne en 2004, 2005 et 2006, dans les trois principaux pays producteurs : Colombie, Pérou, Bolivie (Nations Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007)	3
Figure 2: Représentation chimique de la cocaïne, benzoylecgonine, ecgonine méthyl ester, hygrine, cuscohygrine et méthyl-ecgonine cinnamate	4
Figure 3: Blocs de cocaïne et lignes de cocaïne sniffées à l'aide d'une paille.	5
Figure 4: Prévalence annuelle de l'usage de cocaïne : ventilation par région (N=14.3 millions). Source : Nations Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007.	8
Figure 5: Consommation de cocaïne en 2005-2006, selon le pourcentage de population consommatrice par rapport au nombre total de personnes adultes du pays considéré. Source: Nations Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007....	9
Figuur 6: Voorbeeld van selectie van een staalnameplaats op het einde van een vallei	19
Figuur 7: Voorbeeld van selectie van staalnameplaatsen in de Zenne, voor en na Brussel.....	19
Figuur 8: Passief staalnametoestel type POCIS	20
Figuur 9: Schematische voorstelling van een LC-systeem	27
Figuur 10: Chromatogram van de scheiding van cocaine en benzoylecgonine (1: cocaine; 2: cocaine-d3; 3: benzoylecgonine; 4: benzoylecgonine-d3; 5: ecgonine methylester; 6: ecgonine methylester-d3).....	28
Figuur 11: Cocaïne equivalenten in oppervlaktewater tijdens de zomer en najaar van 2007 (g/dag)	45
Figuur 12: Cocaïne equivalenten in oppervlaktewater tijdens de winter van 2007-2008 (g/dag)	46
Figuur 13: Cocaïneconsumptie (g/dag per 1000 inwoners) tijdens het weekend in de zomer en najaar van 2007 gemeten in rioolwaterzuiveringinstallaties	53
Figuur 14: Cocaïneconsumptie (g/dag per 1000 inwoners) tijdens de week in de zomer en najaar van 2007 gemeten in rioolwaterzuiveringinstallaties	54
Figuur 15: Cocaïneconsumptie (g/dag per 1000 inwoners) tijdens het weekend in de winter van 2007-2008 gemeten in rioolwaterzuivinginstallaties	55
Figuur 16: Cocaïneconsumptie (g/dag per 1000 inwoners) tijdens de week in de winter van 2007-2008 gemeten in rioolwaterzuiveringinstallaties	56
Figuur 17: Visuele voorstelling van de interlaboratorium controle van de eerste staalnamecampagne. De weergegeven waarden stellen de gemiddelde concentraties ± de RSD van de gemeten concentraties van beide laboratoria voor.....	74
Figuur 18: Visuele voorstelling van de interlaboratorium controle van de tweede staalnamecampagne. De weergegeven waarden stellen de gemiddelde concentraties ± de RSD van de gemeten concentraties van beide laboratoria voor.....	77

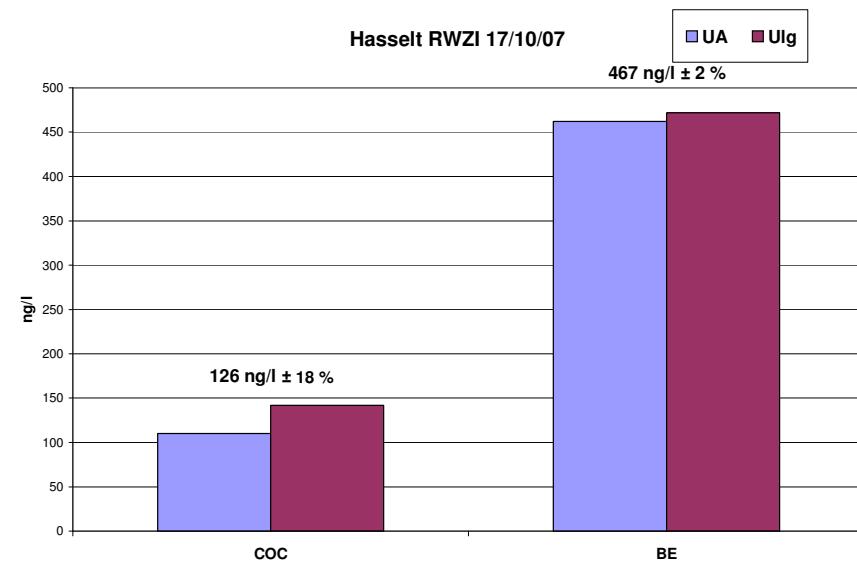
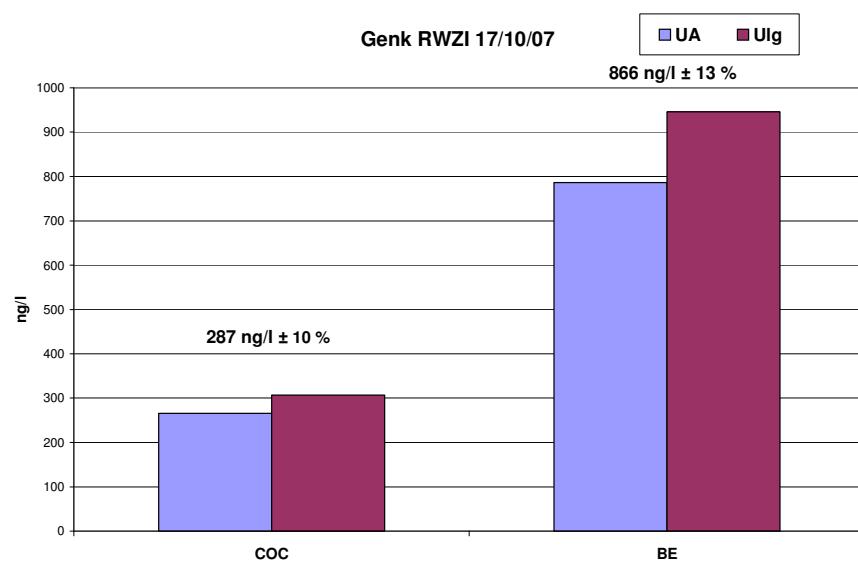
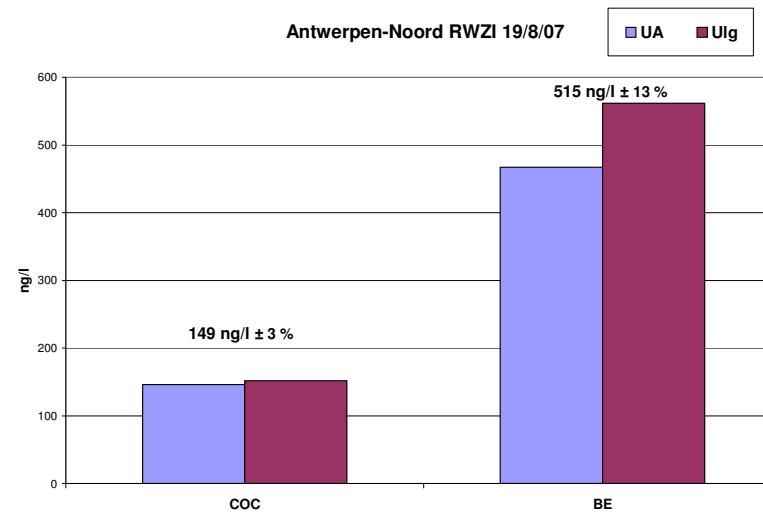
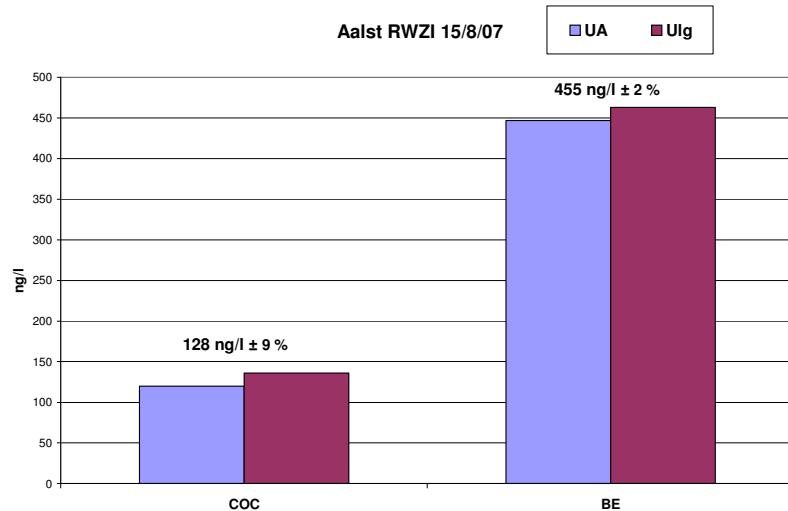
Lijst van grafieken

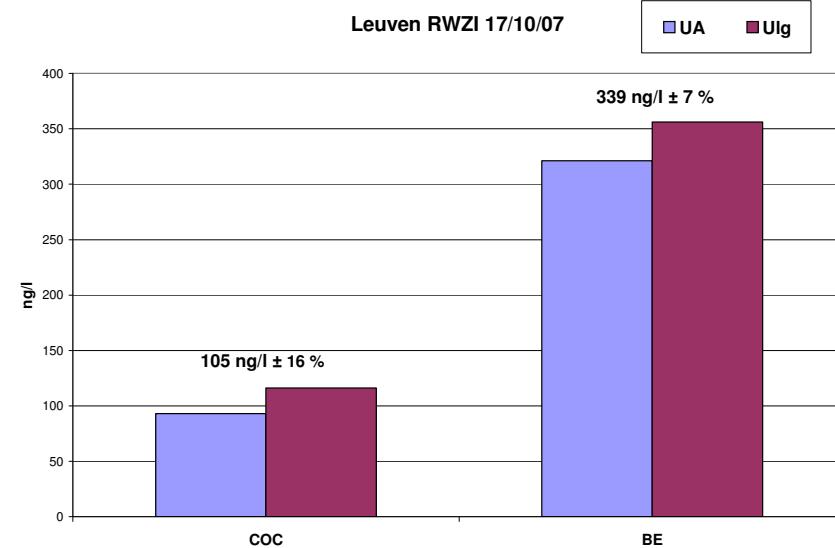
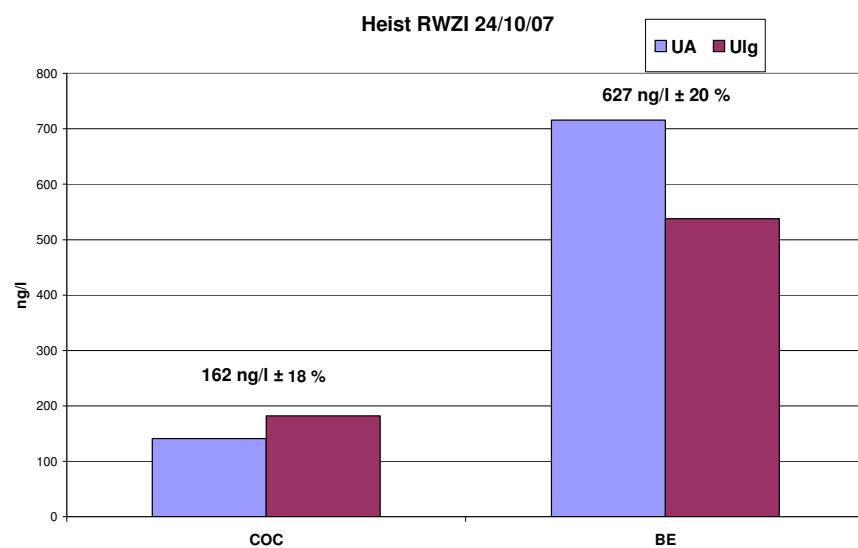
Graphique 1: Prévalence annuelle de la consommation de cocaïne en % de la population européenne âgée de 15 à 64 ans. Source: Nations Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007	10
Graphique 2: Prévalence de l'usage de cocaïne durant le mois précédent le sondage effectué, à un moment donné,lors d'évènements festifs (discothèque, concert, festival etc), en communauté française de Belgique (Lamkaddem & Roelands, 2007).....	12
Graphique 3: Saisies de cocaïne en Europe, exprimées en tonnes. Source: Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007	13
Graphique 4: Saisies de cocaïne en Belgique, de 2002 à 2007, exprimées en kg. Source: Belgian national report on drugs 2007 et communication de la police fédérale belge.	13
Graphique 5: Evolution du prix d'un gramme de cocaïne sur le marché belge (Sleiman & Roelands, 2006; Lamkaddem & Roelands, 2007).....	14
Graphique 6: Evolution de la pureté d'un gramme de cocaïne sur le marché belge (Sleiman & Roelands, 2006; Lamkaddem & Roelands, 2007).....	14
Grafiek 7: Stabiliteitstest voor benzoylecgonine bij pH 2	23
Grafiek 8: Stabiliteitstest voor cocaïne bij pH 2	24
Grafiek 9: Stabiliteitstest voor benzoylecgonine bij pH 6	24
Grafiek 10: Stabiliteitstest voor cocaïne bij pH 6	25
Grafiek 11: Ijklijn cocaïne.....	29
Grafiek 12: Ijklijn benzoylecgonine.....	29
Grafiek 13: Kwaliteitscontrole voor cocaïne (groen = gemiddelde, rood = gemiddelde ± 1x, 2x en 3x stdev)	32
Grafiek 14: Kwaliteitscontrole voor benzoylecgonine (groen = gemiddelde, rood = gemiddelde ± 1x, 2x en 3x stdev)	32
Grafiek 15: Kwaliteitscontrole voor cocaïne (groen = gemiddelde, rood = gemiddelde ± 2x en 3x stdev)	34
Grafiek 16: Kwaliteitscontrole voor benzoylecginine (groen = gemiddelde, rood = gemiddelde ± 2x en 3x stdev)	34
Grafiek 17: Trend van dagelijkse cocaïneconsumptie in Brussel (RWZI Brussel-Noord) van maandag 4 februari tot en met vrijdag 22 februari 2008.....	59
Grafiek 18: Trend van dagelijkse cocaïneconsumptie in Antwerpen (RWZI Deurne) van zondag 3 februari tot en met donderdag 14 februari 2008	60

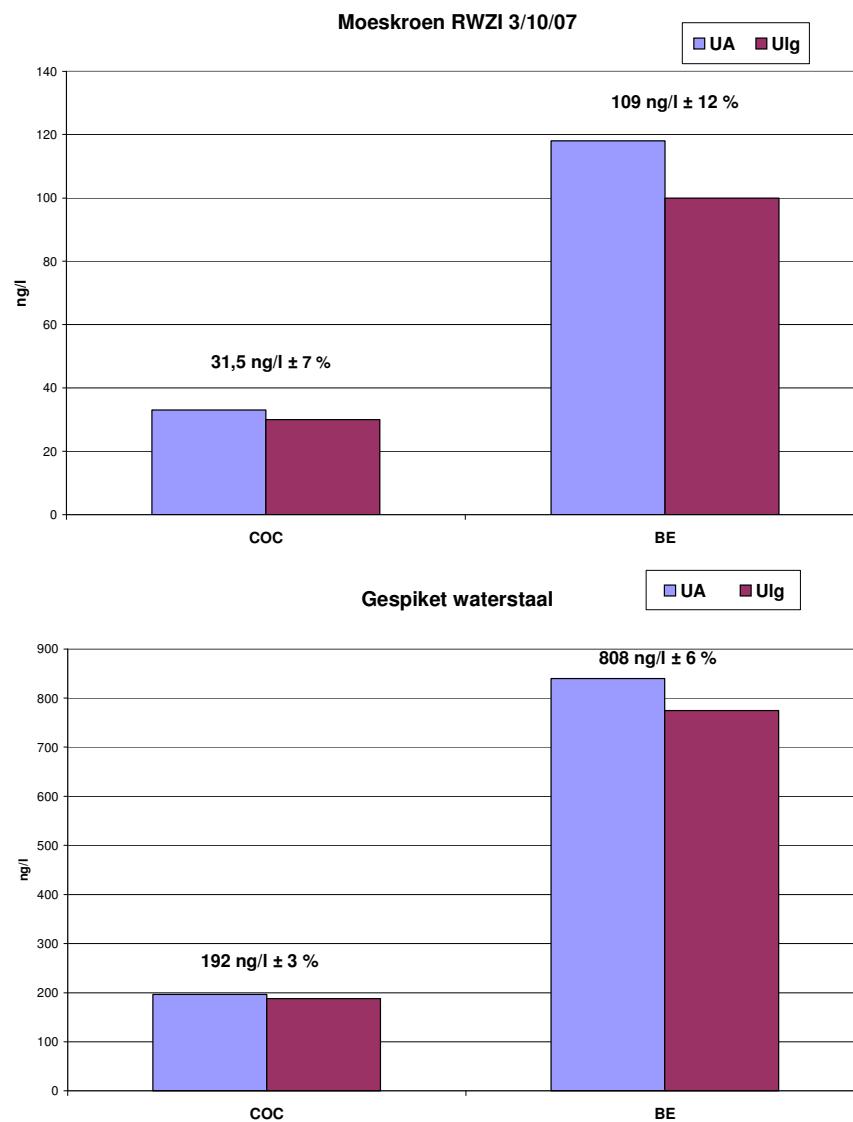
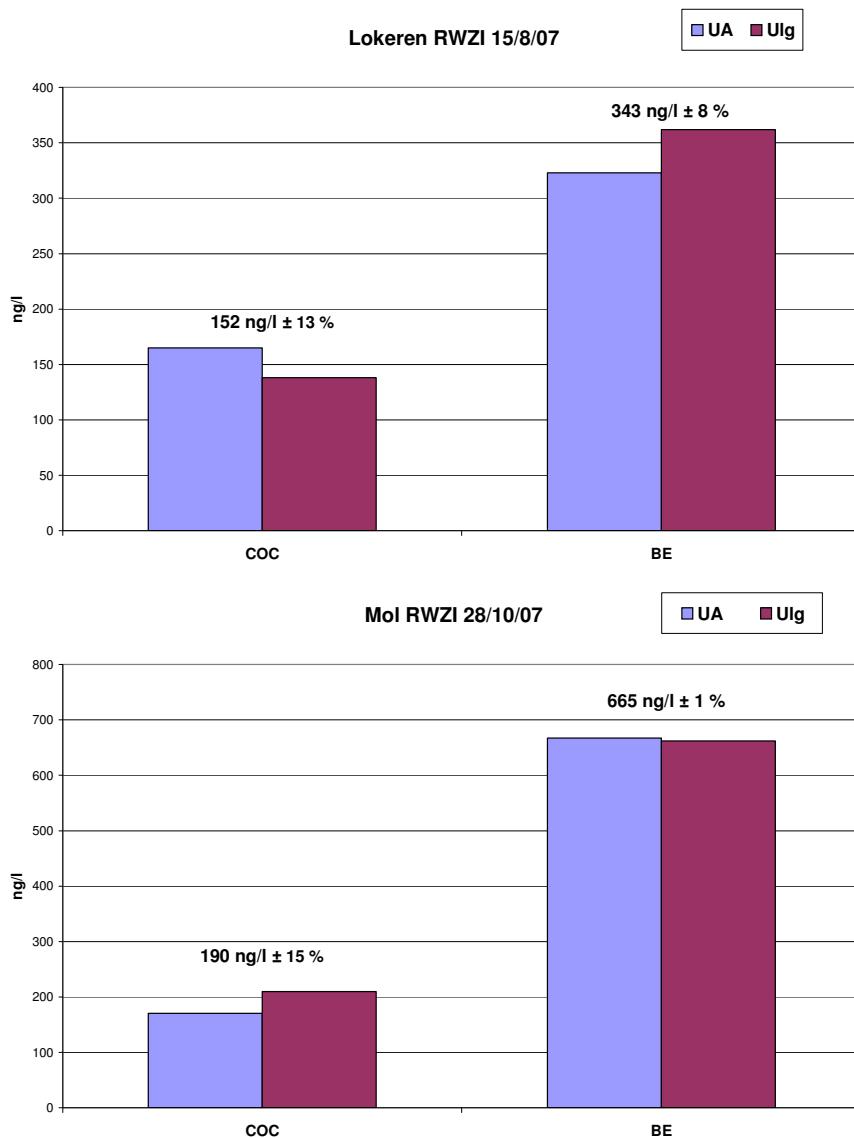
Lijst van tabellen

Tableau 1: Nombre de consommateurs de cocaïne recensé sur chaque continent, exprimé en % de la population âgée de 15 à 64 ans. Source: Nations Unies, Office contre la drogue et le crime, Rapport mondial sur les drogues 2007.....	8
Tabel 2: Standaarden gebruikt voor de ijklijnen	28
Tabel 3: Resultaten van de interlaboratorium controle gedurende de eerste staalnamecampagne (* cocaïne = 200 ng/l; benzoylecgonine = 800 ng/l).....	36
Tabel 4: Resultaten van de interlaboratorium controle gedurende de tweede staalnamecampagne (* n = 2).....	37
Tabel 5: Populatiegegevens van België uit 2007 (Bron: FOD Economie)	40
Tabel 6: Cocaïne equivalenten in waterlopen (g/dag). Staal 1 werd genomen tijdens de zomer en het najaar van 2007, Staal 2 werd genomen tijdens de winter van 2007-2008. Ng: niet gemeten.	42
Tabel 7: Cocaïne equivalenten (g/dag) in andere Europese waterlopen (1: Zuccato et al., 2005; 2: Zuccato et al., 2008).....	43
Tabel 8: Cocaïne en benzoylecgonine gecapteerd met passieve staalnametoestellen. ‘Week’ is het aantal weken dat de passieve staalnametoestellen in de waterloop hebben gehangen; ‘Letter’ is de volgorde waarin de passieve staalnametoestellen in de beschermkoker zaten; (G): commercieel gekocht passief staalnametoestel. LOQ < 20 ng/g sorbens.....	47
Tabel 9: Cocaïne equivalenten gemeten in rioolwaterzuiveringinstallaties (g/dag per 1000 inwoners). Ng = niet gemeten, * = gemiddelde (weekend 1, weekend 2, week 1 en week 2). 50	50
Tabel 10: Cocaine equivalenten in afvalwater verzameld op RWZI's in andere Europese landen (Zuccato et al., 2005; Castiglioni et al., 2006; Waumans et al., 2006).....	51
Tabel 11: Schatting voor het Belgisch grondgebied op basis van de resultaten. *potentiële gebruikers: personen van 15 tot 45 jaar	57
Tabel 12: Schatting voor het Vlaamse gewest op basis van de resultaten. * potentiële gebruikers: personen van 15 tot 45 jaar	58
Tabel 13: Schatting voor het Waalse gewest op basis van de resultaten. * potentiële gebruikers: personen van 15 tot 45 jaar	58
Tabel 14: Schatting voor het Brussels hoofdstedelijk gewest op basis van de resultaten. * potentiële gebruikers: personen van 15 tot 45 jaar.....	58
Tabel 15: Resultaten van 24 h stalen in Brussel (RWZI Brussel-Noord) van maandag 4 februari tot en met vrijdag 22 februari 2008	59
Tabel 16: Resultaten van 24 h stalen in Antwerpen (RWZI Deurne) van zondag 3 februari tot en met donderdag 14 februari 2008.....	60
Tabel 17: Verschil tussen concentraties cocaïne en benzoylecgonine in het influent en effluent van een aantal RWZI's. 1: Castiglioni et al., 2006; 2: Huerta-Fontela et al., 2007	62

Appendix I: Interlaboratorium controle eerste staalnamecampagne

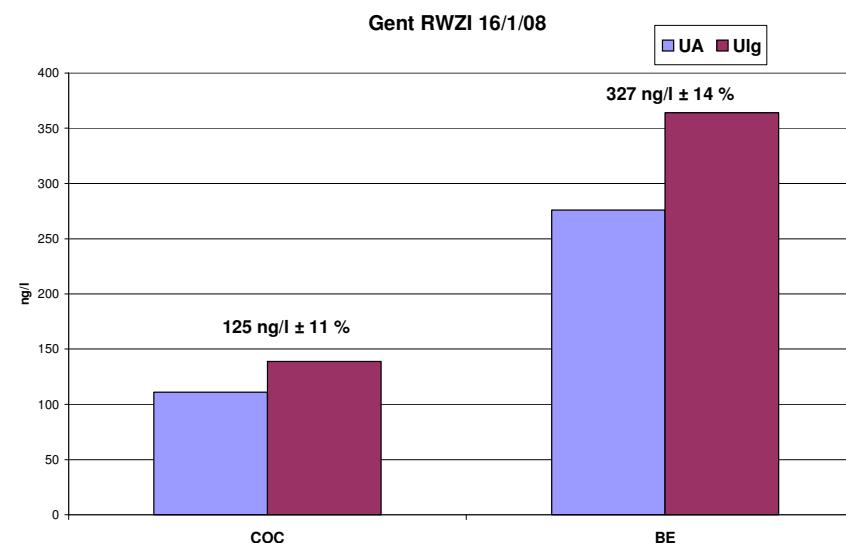
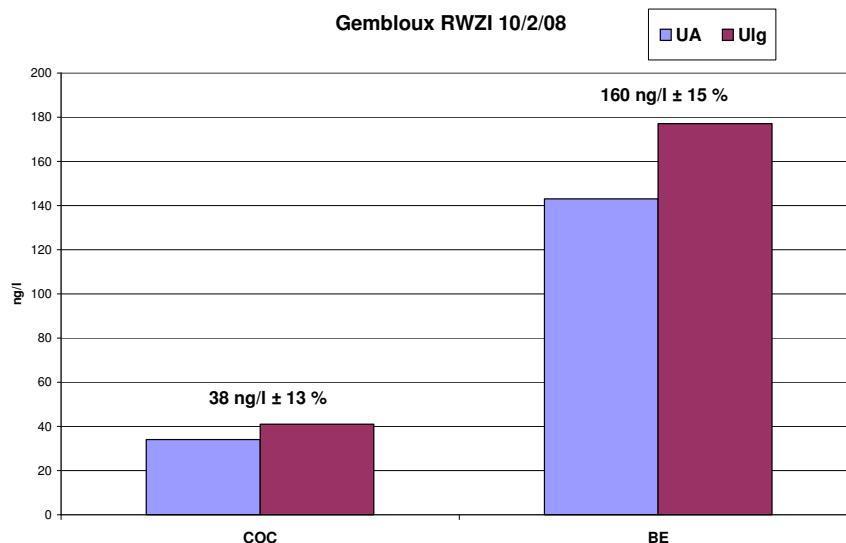
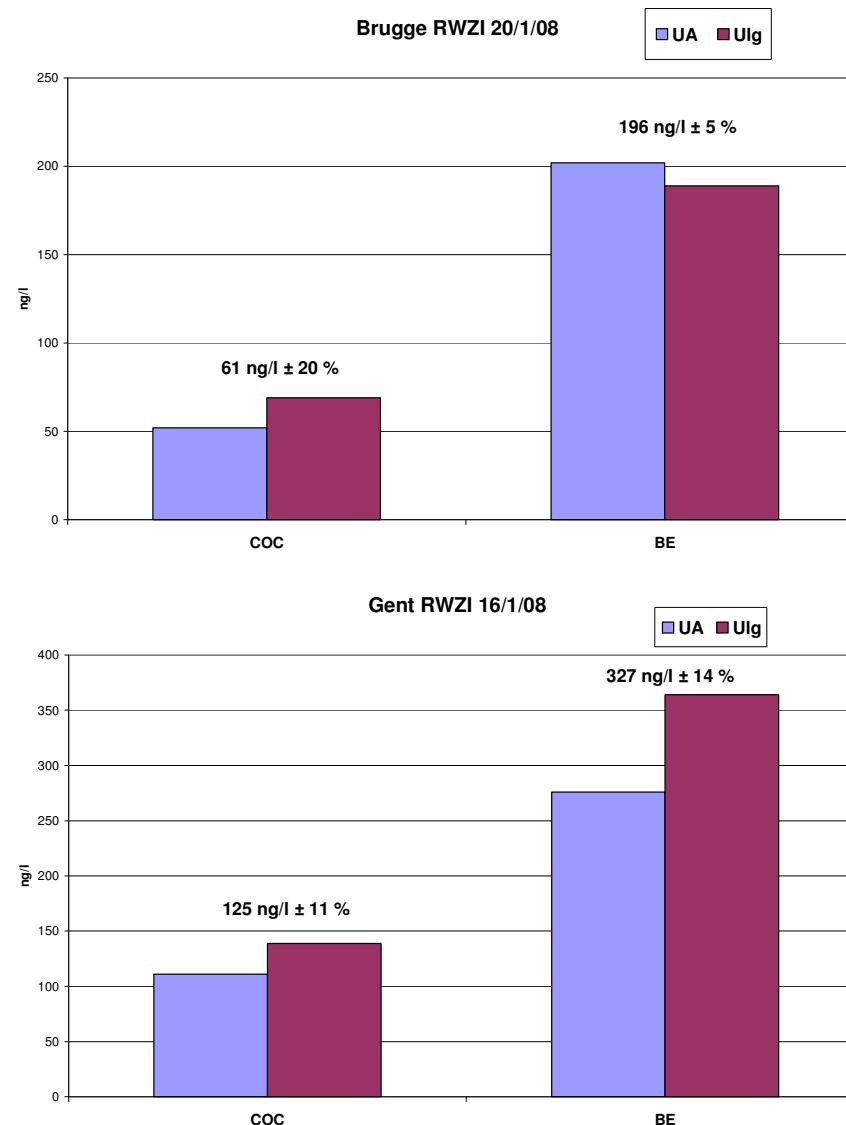
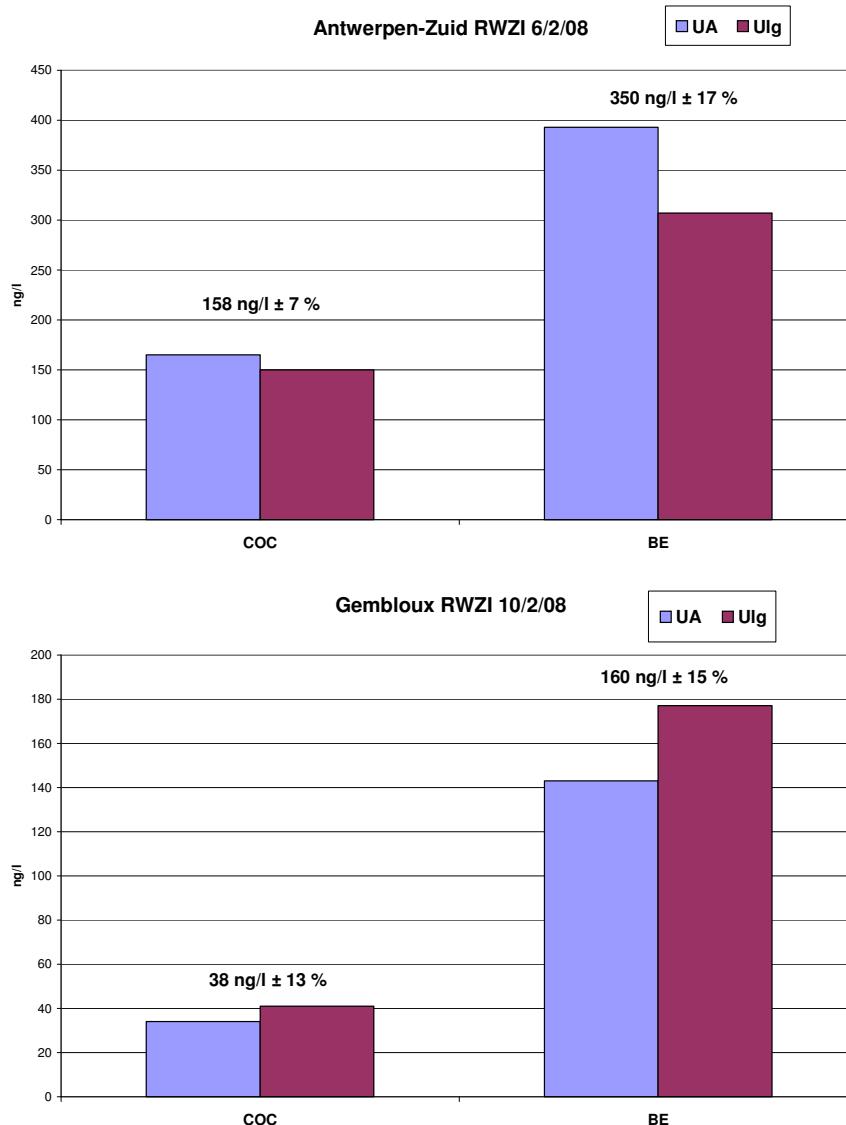


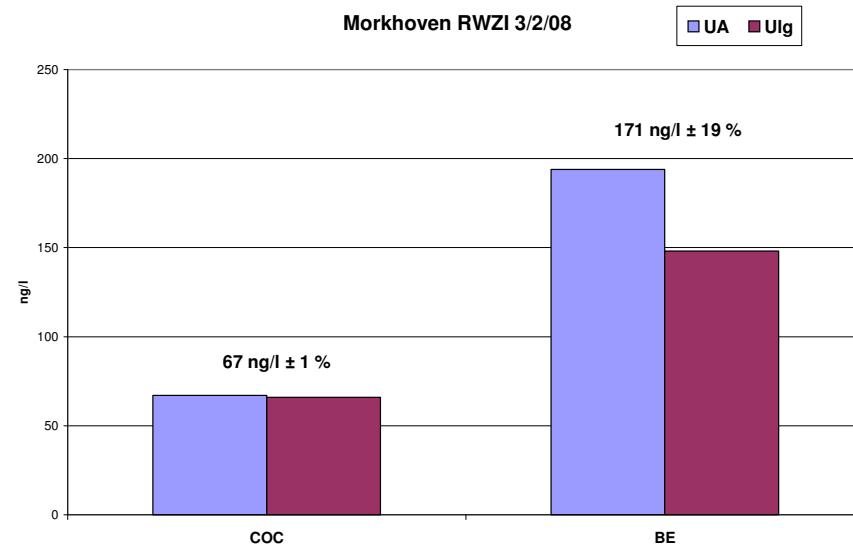
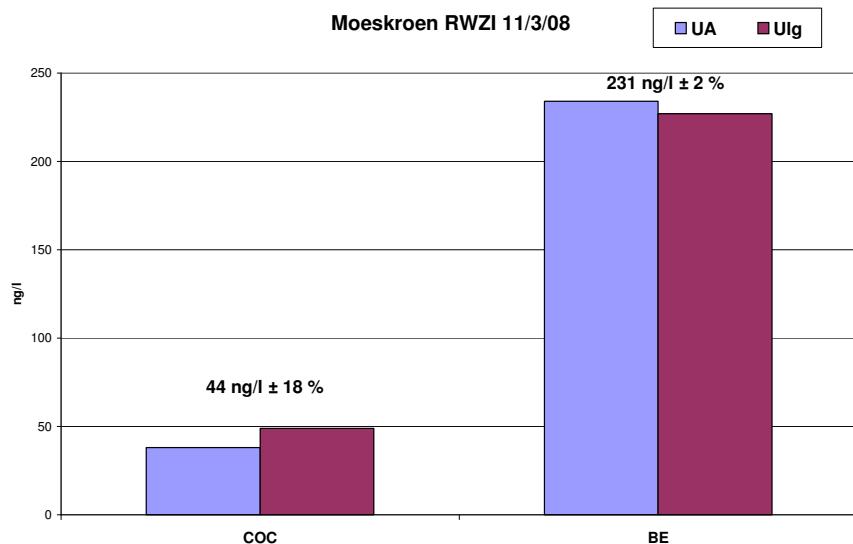
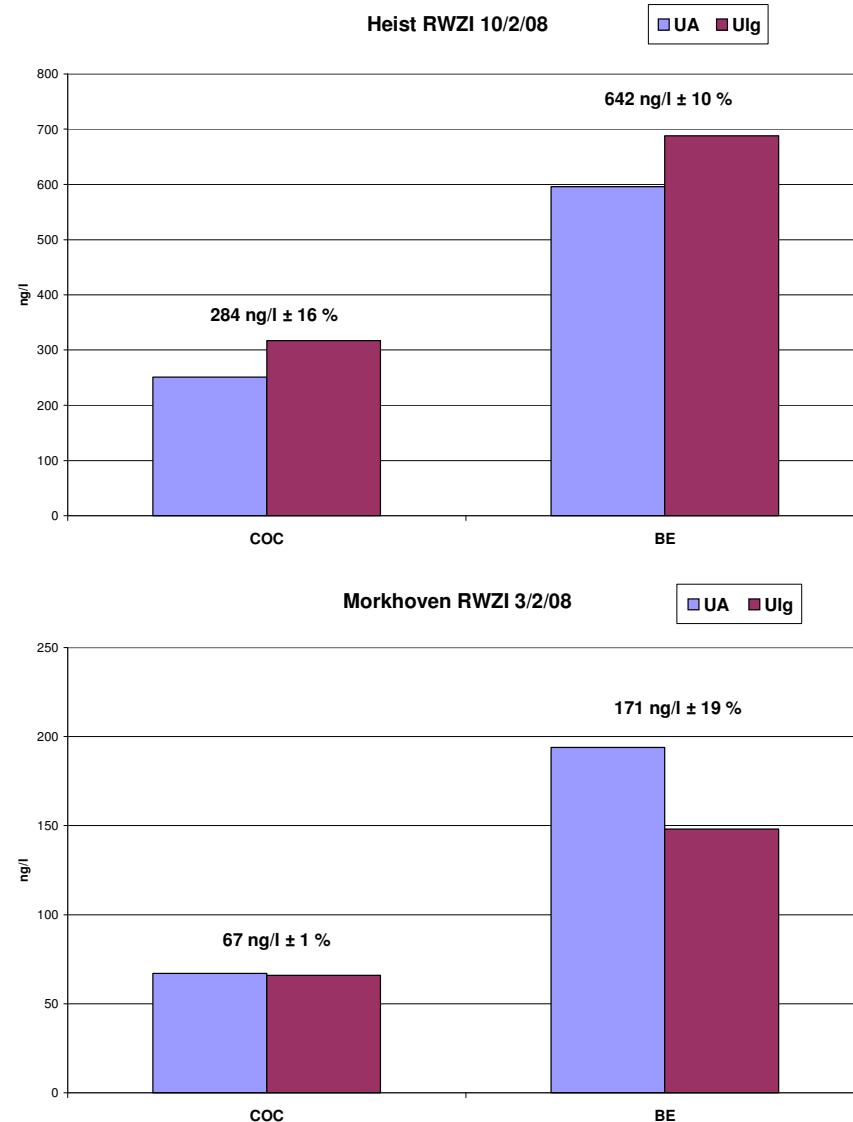
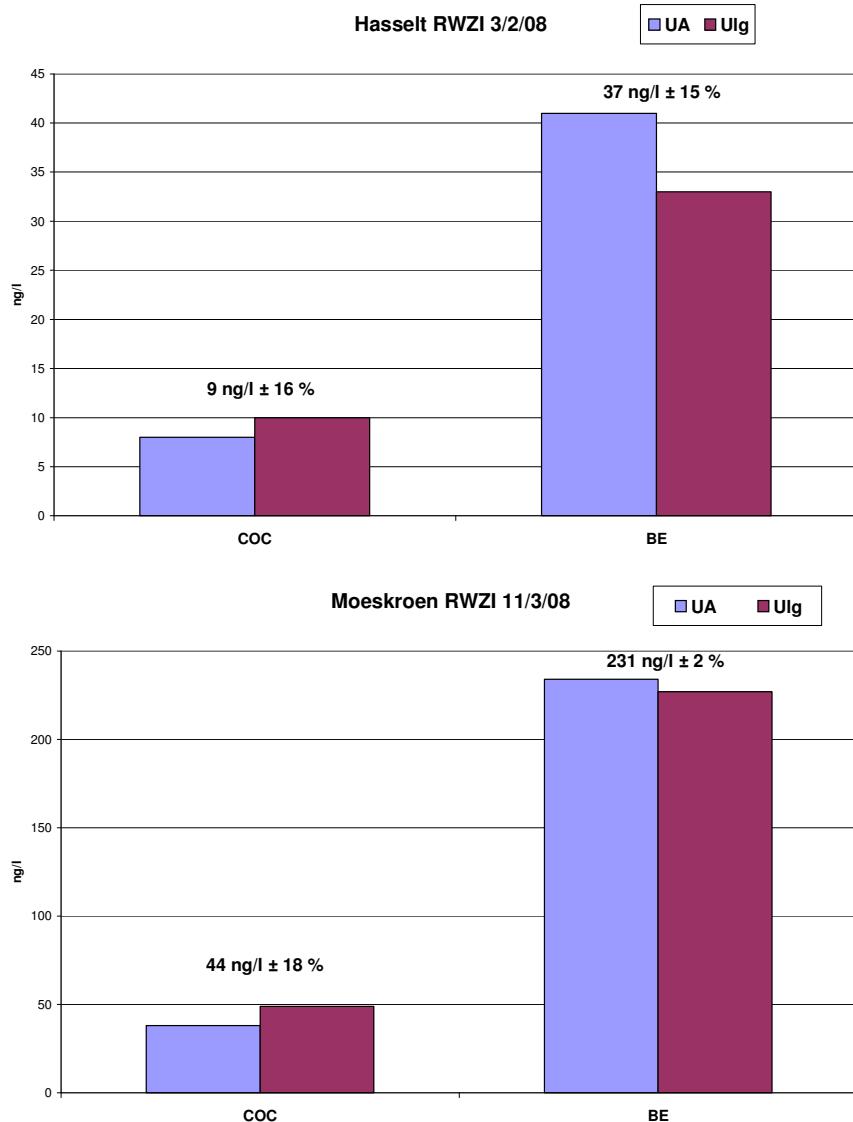


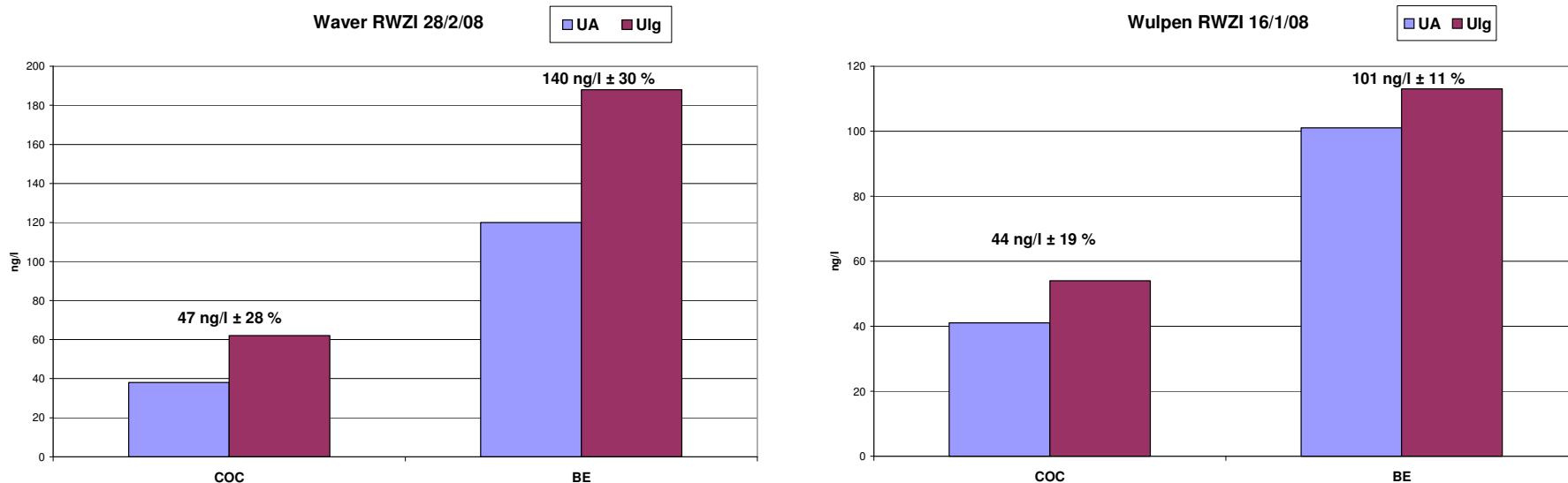


Figuur 17: Visuele voorstelling van de interlaboratorium controle van de eerste staalnamecampagne. De weergegeven waarden stellen de gemiddelde concentraties \pm de RSD van de gemeten concentraties van beide laboratoria voor.

Appendix II: Interlaboratorium controle tweede staalnamecampagne







Figuur 18: Visuele voorstelling van de interlaboratorium controle van de tweede staalnamecampagne. De weergegeven waarden stellen de gemiddelde concentraties \pm de RSD van de gemeten concentraties van beide laboratoria voor.

Appendix III: Resultaten oppervlaktewater 1ste staalnamecampagne

Waterloop	Plaats	Staalname	conc. BE (ng/l)	conc.COC (ng/l)	Debit (m ³ /sec)	BE/dag (g)	COC/dag (g)	COC eq/dag (g)
Aa	Oud-Turnhout	woensdag 27 juni 2007	8,58	4,15	0,8	0,62	0,30	1,453
Aa	Poederlee	woensdag 27 juni 2007	10,07	1,17	2,5	2,17	0,25	5,065
Amblève	Martinrive	vrijdag 12 oktober 2007	< LOQ	< LOQ	8,7	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Bellebeek	Ternat	zondag 10 juni 2007	75,08	12,17	0,1	0,81	0,13	1,889
Binchebeek	Geraardsbergen	vrijdag 27 juli 2007	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Demer	Aarschot	donderdag 26 juli 2007	38,48	7,64	9,1	30,18	5,99	70,316
Demer	Halen	donderdag 26 juli 2007	47,55	12,60	2,1	8,63	2,29	20,098
Demer	Hasselt	donderdag 26 juli 2007	44,27	13,19	1,3	4,90	1,46	11,415
Demer	Kermt	donderdag 26 juli 2007	32,25	8,29	3,5	9,79	2,52	22,813
Dender	Dendermonde	vrijdag 27 juli 2007	8,12	< LOQ	0,6	0,43	< LOQ	1,002
Dender	Overboelare	zondag 10 juni 2007	23,44	2,98	1,6	3,15	0,40	7,337
Dendre.	Ligne	vrijdag 27 juli 2007	2,25	< LOQ	0,2	0,05	< LOQ	0,106
Dijle	Korbeek	dinsdag 17 juli 2007	34,20	5,75	10,0	29,49	4,96	68,702
Dijle	Limelette	donderdag 26 juli 2007	21,54	2,37	2,8	5,19	0,57	12,083
Dijle	Wilsele	dinsdag 17 juli 2007	27,60	2,18	9,7	23,13	1,83	53,881
Dommel	Neerpelt	dinsdag 17 juli 2007	< LOQ	< LOQ	1,1	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Dijle	Florival	dinsdag 17 juli 2007	23,90	3,09	2,9	6,07	0,78	14,143
Grote Molenbeek	Sint-Amants	vrijdag 22 juni 2007	190,50	26,23	0,2	3,60	0,50	8,397
Grote Nete	Geel	woensdag 27 juni 2007	9,35	5,40	9,3	7,49	4,33	17,449
Grote Nete	Hulshout	woensdag 27 juni 2007	8,23	1,20	5,4	3,86	0,57	8,988
Hain	Braine-le-Château	vrijdag 27 juli 2007	151,18	26,73	0,3	3,34	0,59	7,790
Herk	Wellen	vrijdag 6 juli 2007	18,39	2,48	0,5	0,72	0,10	1,666
Ieperlee	Zuidschote	woensdag 10 oktober 2007	6,65	< LOQ	1,0	0,60	< LOQ	1,393
Ijzer	Keiem	woensdag 10 oktober 2007	< LOQ	< LOQ	24,3	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Ijzer	Roesbrugge	woensdag 10 oktober 2007	< LOQ	< LOQ	13,2	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Kleine Nete	Grobendonk	dinsdag 19 juni 2007	15,51	2,29	3,8	5,04	0,75	11,749
Leie	Deinze	donderdag 2 augustus 2007	5,06	< LOQ	2,1	0,90	< LOQ	2,105
Leie	Menen	vrijdag 3 augustus 2007	8,85	< LOQ	18,3	14,00	< LOQ	32,603
Lesse	Gendron	donderdag 11 oktober 2007	< LOQ	< LOQ	5,6	< LOQ	< LOQ	< LOQ

Maas	Lanaken	vrijdag 12 oktober 2007	18,87	1,99	60,0	97,83	10,29	227,884
Maas	Maaseik	donderdag 11 oktober 2007	12,22	< LOQ	60,0	63,33	< LOQ	147,516
Ourthe	Tabreux	vrijdag 12 oktober 2007	< LOQ	< LOQ	7,7	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Petite Gette	Opheylissem	dinsdag 17 juli 2007	22,38	3,96	0,5	1,03	0,18	2,410
Rivierbeek	Oostkamp	donderdag 2 augustus 2007	4,97	< LOQ	0,3	0,14	< LOQ	0,316
Sambre	Solre	vrijdag 12 oktober 2007	3,54	< LOQ	5,3	1,63	< LOQ	3,799
Semois	Chiny	donderdag 18 oktober 2007	< LOQ	< LOQ	2,8	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Semois	Membre	donderdag 18 oktober 2007	< LOQ	< LOQ	4,9	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Senette	Ronquières	vrijdag 27 juli 2007	53,01	7,39	0,1	0,62	0,09	1,440
Viroin	Treignes	vrijdag 12 oktober 2007	< LOQ	< LOQ	1,9	< LOQ	< LOQ	< LOQ
Zeeschelde	Melle	donderdag 2 augustus 2007	10,77	< LOQ	41,5	38,62	< LOQ	89,974
Zenne	Lot	maandag 9 juli 2007	68,84	12,64	3,7	21,72	3,99	50,601
Zenne	Vilvoorde	maandag 9 juli 2007	520,25	114,93	5,6	249,69	55,16	581,665
Zuunbeek	Sint-Pietersleeuw	maandag 9 juli 2007	75,08	14,36	0,1	0,32	0,06	0,756

Appendix IV: Resultaten oppervlaktewater 2de staalnamecampagne

Waterloop	Plaats	Staalname	conc. BE (ng/l)	conc.COC (ng/l)	Debit (m ³ /sec)	BE/dag (g)	COC/dag (g)	COC eq/dag (g)
Aa	Poederlee	donderdag 28 februari 2008	19,50	18,50	1,5	2,59	2,46	6,044
Bellebeek	Ternat	maandag 3 maart 2008	4,50	8,50	0,6	0,22	0,42	0,516
Demer	Aarschot	donderdag 6 maart 2008	31,50	13,00	16,1	43,82	18,08	102,074
Demer	Halen	donderdag 6 maart 2008	35,50	17,00	4,2	12,76	6,11	29,723
Demer	Kerm	donderdag 6 maart 2008	71,50	30,00	2,7	16,62	6,97	38,711
Dender	Overboelare	maandag 3 maart 2008	8,50	6,50	6,9	5,07	3,88	11,822
Dijle	Korbeek	woensdag 5 maart 2008	20,50	14,50	6,1	10,73	7,59	25,004
Dijle	Limelette	woensdag 5 maart 2008	7,00	4,50	2,3	1,40	0,90	3,256
Dijle	Wilsele	woensdag 5 maart 2008	22,50	11,00	8,2	15,94	7,79	37,134
Dyle	Florival	woensdag 5 maart 2008	12,50	87,00	2,8	2,99	20,78	6,954
Grote Molenbeek	Sint-Amands	donderdag 13 maart 2008	78,00	26,00	1,2	7,95	2,65	18,525
Grote Nete	Geel	donderdag 28 februari 2008	8,50	5,50	2,2	1,62	1,05	3,764
Grote Nete	Hulshout	donderdag 28 februari 2008	11,00	7,50	4,5	4,31	2,94	10,051
Hain	Braine-le-Château	vrijdag 29 februari 2008	74,00	22,50	0,7	4,55	1,38	10,590
Kleine Nete	Grobbendonk	donderdag 28 februari 2008	24,50	117,00	5,1	10,77	51,45	25,099
Leie	Deinze	maandag 25 februari 2008	44,00	47,50	8,8	33,45	36,12	77,931
Leie	Menen	maandag 25 februari 2008	18,50	9,50	24,8	39,64	20,36	92,342
Maas	Lanaken	donderdag 6 maart 2008	8,50	4,50	477,0	350,31	185,46	816,045
Maas	Maaseik	donderdag 6 maart 2008	6,50	3,50	480,0	269,57	145,15	627,959
Petite Gette	Opheylissem	maandag 3 maart 2008	8,00	7,50	0,6	0,43	0,40	0,998
Sambre	Solre	vrijdag 29 februari 2008	4,50	4,50	27,2	10,58	10,58	24,635
Zeeschelde	Melle	donderdag 13 maart 2008	26,00	5,00	238,0	534,64	102,82	1245,452
Zenne	Lot	vrijdag 29 februari 2008	38,50	15,00	5,2	17,13	6,67	39,907
Zenne	Vilvoorde	vrijdag 29 februari 2008	283,00	102,00	8,3	202,21	72,88	471,052
Zuunbeek	Sint-Pietersleeuw	vrijdag 29 februari 2008	6,50	6,50	0,4	0,24	0,24	0,549

Appendix V: Resultaten RWZI's van 1ste weekend

RWZI	personen	Staal	Debiet (m ³ /staal)	conc. BE (ng/l)	conc. COC (ng/l)	BE/dag (g/staal)	COC (g/staal)	COCeq (g/dag)	g COCeq /dag*1000 personen	opmerking
Aalst	89847	12/08/07	18976	322	92	6,10	1,74	14,218	0,158	Zomervakantie
Aartselaar	61520	26/08/07	19660	365	118	7,18	2,33	16,718	0,272	Zomervakantie
Antwerpen-Noord	69668	19/08/07	21920	515	149	11,29	3,27	26,297	0,377	Zomervakantie
Antwerpen-Zuid	157268	16/12/07	66468	1858	584	123,48	38,81	287,654	1,829	
Arlon	16043	13/01/08	14948	351	117	5,25	1,75	12,232	0,762	
Beersel	63531	14/10/07	13404	527	187	7,06	2,51	16,442	0,259	
Brugge	182399	23/12/07	71936	324	87	23,32	6,28	54,333	0,298	Kerstvakantie
Brussel-Noord	850000	16/12/07	253025	1157	362	292,69	91,54	681,828	0,802	
Charleroi	138000	18/11/07	40869	994	370	40,62	15,14	94,621	0,686	
Ciney	10000	14/01/08	6480	33	11	0,21	0,07	0,497	0,050	Schepstaal
Dendermonde	68276	28/10/07	15912	1221	230	19,43	3,67	45,255	0,663	
Destelbergen	57999	14/10/07	13420	698	138	9,36	1,85	21,815	0,376	
Deurne	198569	19/08/07	44872	2258	753	101,34	33,81	236,067	1,189	Zomervakantie
Gembloux	37131	8/01/08	3312	286	102	0,95	0,34	2,204	0,059	Schepstaal
Genk	68924	16/12/07	43570	538	230	23,45	10,01	54,617	0,792	
Gent	206109	12/08/07	51931	801	232	41,58	12,04	96,869	0,470	Zomervakantie
Harelbeke	111515	23/12/07	35232	751	271	26,47	9,56	61,669	0,553	Kerstvakantie
Hasselt	63333	16/12/07	34268	402	134	13,78	4,58	32,108	0,507	
Heist	25129	20/01/08	11450	296	80	3,39	0,92	7,895	0,314	
La Louvière	29800	13/01/08	41200	328	95	6,75	1,97	15,727	0,528	
Leuven	113015	21/10/07	20712	1045	220	21,64	4,56	50,412	0,446	
Liedekerke	92465	28/10/07	16568	811	253	13,43	4,20	31,283	0,338	
Liège	26300	13/01/08	7106	569	131	4,04	0,93	9,422	0,358	
Lokeren	37199	12/08/07	17072	334	112	5,70	1,91	13,283	0,357	Zomervakantie en Lokerse feesten
Mechelen-Noord	87452	21/10/07	13580	1994	515	27,08	6,99	63,078	0,721	
Menen	62575	4/11/07	12500	594	179	7,43	2,23	17,308	0,277	
Mol	47538	28/10/07	10174	665	190	6,77	1,93	15,761	0,332	

Mons	82350	18/11/07	66582	365	115	8,51	2,69	19,825	0,241	
Morkhoven	38211	28/10/07	6746	485	88	3,28	0,60	7,630	0,200	
Mouscron	27831	4/11/07	13840	143	32	1,97	0,44	4,598	0,165	
Nivelles	27000	16/12/07	14400	350	96	5,04	1,38	11,738	0,435	
Oostende	129531	21/02/08	33730	321	110	10,81	3,72	25,184	0,194	
Roeselare	62438	23/12/07	20104	380	128	7,65	2,57	17,815	0,285	Kerstvakantie
Sint-Niklaas	44443	12/08/07	14836	347	115	5,15	1,70	11,992	0,270	Zomervakantie
Sint-Truiden	44131	16/12/07	25100	189	59	4,74	1,47	11,051	0,250	
Tournai	29000	20/01/08	37002	211	52	7,81	1,92	18,187	0,627	
Verviers	95000	13/01/08	123810	261	75	16,17	4,66	37,666	0,396	
Wavre	80000	18/11/07	54375	248	60	4,50	1,09	10,484	0,131	
Wulpen	47378	4/11/07	15547	547	111	8,51	1,73	19,819	0,418	

Appendix VI: Resultaten van RWZI's van 2de weekend

RWZI	personen	Staal	Debiet (m³/staal)	conc. BE (ng/l)	conc. COC (ng/l)	BE/dag (g/staal)	COC (g/staal)	COCeq (g/dag)	g COCeq /dag*1000 personen	opmerking
Aalst	89847	10/02/08	29768	410	158	12,21	4,71	28,438	0,317	Krokusvakantie en Carnaval Aalst
Aartselaar	61520	3/02/08	31288	286	101	8,95	3,17	20,860	0,339	Krokusvakantie
Antwerpen-Noord	69668	3/02/08	34280	248	100	8,49	3,42	19,788	0,284	Krokusvakantie
Antwerpen-Zuid	157268	24/02/08	57932	2130	693	123,39	40,16	287,444	1,828	
Arlon	16043	24/02/08	12553	640	169	8,03	2,13	18,709	1,166	Carnaval
Beersel	63531	10/02/08	11614	692	273	8,04	3,17	18,733	0,295	Krokusvakantie
Brugge	178987	20/01/08	100776	196	61	19,75	6,15	46,013	0,257	
Brussel-Noord	850000	10/02/08	233303	1306	453	304,63	105,79	709,627	0,835	Krokusvakantie
Charleroi	138000	17/02/08	78657	1297	545	51,01	21,41	118,835	0,861	
Ciney	10000	19/02/08	6000	140	70	0,84	0,42	1,955	0,196	Schepstaal
Dendermonde	68276	10/02/08	25000	578	218	14,44	5,45	33,638	0,493	Krokusvakantie
Destelbergen	57999	20/01/08	17912	392	174	7,03	3,12	16,369	0,282	
Deurne	198569	10/02/08	57088	1245	394	71,05	22,52	165,503	0,833	Krokusvakantie
Gembloux	37131	10/02/08	8400	160	38	1,34	0,32	3,131	0,084	Schepstaal, Krokusvakantie
Genk	68924	3/02/08	45540	863	363	39,28	16,52	91,509	1,328	
Gent	206109	10/02/08	47744	918	350	43,81	16,69	102,066	0,495	Krokusvakantie
Harelbeke	111515	17/02/08	33292	803	244	26,74	8,12	62,299	0,559	
Hasselt	63333	3/02/08	38712	37	9	1,43	0,35	3,337	0,053	Krokusvakantie
Heist	18123	10/02/08	9770	642	284	6,27	2,77	14,611	0,806	Krokusvakantie
La Louvière	29800	17/02/08	32537	549	195	6,70	2,38	15,604	0,524	
Leuven	113015	10/02/08	22288	832	321	18,55	7,15	43,213	0,382	Krokusvakantie
Liedekerke	92465	10/02/08	27392	648	247	17,75	6,76	41,355	0,447	Krokusvakantie
Liège	26300	17/02/08	5773	1061	319	6,12	1,84	14,267	0,542	
Lier	28866	3/02/08	14800	891	321	13,19	4,74	30,732	1,065	Krokusvakantie
Lokeren	37199	20/01/08	28440	288	101	8,18	2,88	19,052	0,512	
Mechelen-Noord	87452	17/02/08	15180	1550	683	23,53	10,37	54,807	0,627	

Menen	62574	20/01/08	28892	361	133	10,43	3,84	24,287	0,388	
Mol	47538	3/02/08	18188	338	145	6,14	2,63	14,300	0,301	Krokusvakantie
Mons	82350	17/02/08	121155	625	217	24,57	8,51	57,246	0,695	
Morkhoven	38211	3/02/08	19358	171	67	3,31	1,30	7,711	0,202	Krokusvakantie
Mouscron	27831	17/02/08	11045	228	73	2,52	0,81	5,861	0,211	
Nivelles	27000	17/02/08	14400	515	133	7,42	1,92	17,279	0,640	
Oostende	106737	24/02/08	42096	596	208	25,11	8,77	58,487	0,548	
Roeselare	62438	20/01/08	33296	231	110	7,70	3,65	17,948	0,287	
Sint-Niklaas	44443	3/02/08	19756	620	228	12,25	4,50	28,533	0,642	Krokusvakantie
Sint-Truiden	44131	3/02/08	16590	393	159	6,52	2,63	15,188	0,344	Krokusvakantie
Tessenderlo	41761	3/02/08	16710	350	117	5,85	1,96	13,636	0,327	Krokusvakantie
Tournai	29000	17/02/08	8650	516	173	2,23	0,75	5,199	0,179	
Verviers	95000	17/02/08	66710	554	161	18,48	5,36	43,046	0,453	
Wavre	80000	24/02/08	47109	132	82	2,07	1,29	4,812	0,060	
Wulpen	57495	20/01/08	16070	289	90	4,64	1,44	10,813	0,188	

Appendix VII: Resultaten van RWZI's van 1ste week

RWZI	personen	Staal	Debiet (m³/staal)	conc. BE (ng/l)	conc. COC (ng/l)	BE/dag (g/staal)	COC (g/staal)	COCeq (g/dag)	g COCeq /dag*1000 personen	opmerking
Aalst	89847	15/08/07	19760	455	128	8,99	2,53	20,944	0,233	Zomervakantie
Aartselaar	61520	29/08/07	18742	327	66	6,13	1,23	14,286	0,232	Zomervakantie
Antwerpen-Noord	69668	29/08/07	21072	358	127	7,54	2,68	17,558	0,252	Zomervakantie
Antwerpen-Zuid	157268	5/12/07	95858	894	324	85,68	31,06	199,581	1,269	
Arlon	16043	7/01/08	14263	315	71	4,50	1,01	10,477	0,653	
Beersel	63531	5/12/07	28768	171	53	4,91	1,52	11,431	0,180	
Brugge	215636	3/10/07	171896	53	20	9,08	3,49	21,142	0,098	
Brussel-Noord	850000	19/12/07	245050	909	273	222,65	66,79	518,668	0,610	
Charleroi	138000	14/11/07	46024	839	242	38,60	11,13	89,917	0,652	
Ciney	10000	10/01/08	9600	97	15	0,93	0,14	2,165	0,217	Schepstaal
Dendermonde	68276	19/09/07	22008	504	110	11,10	2,42	25,852	0,379	
Destelbergen	57999	5/12/07	29368	161	50	4,74	1,48	11,044	0,190	
Deurne	198569	29/08/07	50248	1610	703	80,91	35,31	188,489	0,949	Zomervakantie
Gembloux	37131	10/01/08	8352	198	37	1,66	0,31	3,856	0,104	Schepstaal
Genk	68924	17/10/07	42480	866	287	36,79	12,19	85,697	1,243	
Gent	206109	15/08/07	50612	516	203	26,09	10,28	60,787	0,295	Zomervakantie
Harelbeke	111515	26/09/07	84000	304	97	25,50	8,14	59,404	0,533	
Hasselt	63333	17/10/07	32520	467	126	15,19	4,10	35,378	0,559	
Heist	17263	24/10/07	7430	716	141	5,32	1,05	12,393	0,718	
La Louvière	29800	14/11/07	17741	156	38	2,78	0,68	6,468	0,217	
Leuven	113015	17/10/07	34092	339	105	11,56	3,58	26,922	0,238	
Liedekerke	92465	19/09/07	22320	392	89	8,74	1,99	20,362	0,220	
Liège	26300	9/01/08	10218	206	69	2,11	0,71	4,910	0,187	
Lokeren	37199	15/08/07	20736	343	152	7,11	3,15	16,568	0,445	Zomervakantie
Mechelen-Noord	87452	5/12/07	38850	379	256	14,74	9,94	34,338	0,393	
Menen	62575	26/09/07	58128	173	47	10,07	2,70	23,457	0,375	
Mol	47538	12/12/07	16460	163	30	2,69	0,50	6,257	0,132	
Mons	82350	14/11/07	21528	249	83	4,95	1,65	11,526	0,140	

Morkhoven	38211	12/12/07	26018	140	44	3,65	1,14	8,513	0,223	Zomervakantie
Mouscron	27831	3/10/07	17297	109	32	1,89	0,55	4,392	0,158	
Nivelles	27000	19/12/07	12600	392	141	5,64	2,03	13,146	0,487	
Oostende	128113	3/10/07	88096	181	57	15,93	4,98	37,114	0,290	
Roeselare	62438	26/09/07	50096	131	32	6,54	1,58	15,231	0,244	
Sint-Niklaas	44443	15/08/07	25788	428	79	11,03	2,03	25,692	0,578	
Sint-Truiden	44131	24/10/07	16590	316	88	5,25	1,46	12,228	0,277	
Tournai	29000	16/01/08	35520	46	10	1,63	0,36	3,806	0,131	
Verviers	95000	9/01/08	58760	187	63	10,96	3,70	25,541	0,269	
Wavre	80000	14/11/07	25848	149	28	3,85	0,71	8,977	0,112	
Wulpen	48644	3/10/07	20487	94	23	1,92	0,46	4,463	0,092	

Appendix VIII: Resultaten van RWZI's van 2de week

RWZI	personen	Staal	Debiet (m ³ /staal)	conc. BE (ng/l)	conc. COC (ng/l)	BE/dag (g/staal)	COC (g/staal)	COCeq (g/dag)	g COCeq /dag*1000 personen	opmerking
Aalst	89847	20/02/08	25232	321	87	8,10	2,21	18,872	0,210	
Aartselaar	61520	23/01/08	29996	152	58	4,55	1,75	10,600	0,172	
Antwerpen-Noord	69668	23/01/08	35560	139	59	4,94	2,09	11,506	0,165	
Antwerpen-Zuid	157268	6/02/08	149572	350	158	52,35	23,63	121,950	0,775	Krokusvakantie
Arlon	16043	20/02/08	10032	422	145	4,24	1,46	9,872	0,615	
Beersel	63531	13/02/08	13792	436	184	6,01	2,53	13,992	0,220	
Brugge	173678	16/01/08	122912	50	25	6,17	3,09	14,373	0,083	
Brussel-Noord	850000	13/02/08	247705	802	339	198,78	83,99	463,055	0,545	
Charleroi	138000	14/02/08	45737	1089	420	49,79	19,23	115,995	0,841	
Ciney	10000	20/02/08	4800	68	25	0,33	0,12	0,758	0,076	Schepstaal
Dendermonde	68276	21/02/08	17168	545	159	9,35	2,73	21,781	0,319	
Destelbergen	57999	16/01/08	27268	211	73	5,76	1,99	13,413	0,231	
Deurne	198569	13/02/08	56120	1136	606	63,76	34,04	148,525	0,748	
Gembloux	37131	13/02/08	10800	127	45	1,37	0,49	3,183	0,086	Schepstaal
Genk	68924	6/02/08	52130	196	141	10,21	7,37	23,789	0,345	Krokusvakantie
Gent	206111	16/01/08	67933	327	125	22,21	8,49	51,748	0,251	
Harelbeke	111515	16/01/08	78378	471	141	36,90	11,02	85,958	0,771	
Hasselt	63333	6/02/08	72992	123	55	8,99	4,04	20,948	0,331	Krokusvakantie
Heist	15526	20/02/08	8730	446	143	3,89	1,25	9,069	0,584	
La Louvière	29800	14/02/08	13526	321	182	4,34	2,46	10,108	0,339	
Leuven	113015	5/03/08	26308	462	238	12,14	6,26	28,289	0,250	
Liedekerke	92465	21/02/08	23160	428	194	9,92	4,49	23,115	0,250	
Liège	26300	20/02/08	6587	165	100	1,09	0,66	2,530	0,096	
Lier	28866	23/01/08	13250	456	186	6,04	2,47	14,069	0,487	
Lokeren	37199	16/01/08	32628	173	83	5,65	2,70	13,164	0,354	
Mechelen-Noord	87452	23/01/08	19470	902	440	17,56	8,57	40,897	0,468	
Menen	62575	16/01/08	52904	203	89	10,76	4,72	25,067	0,401	
Mol	47538	6/02/08	18678	109	53	2,04	1,00	4,756	0,100	Krokusvakantie

Mons	82350	14/02/08	42487	430	155	18,26	6,58	42,539	0,517	Krokusvakantie
Morkhoven	38211	6/02/08	37636	131	160	4,94	6,01	11,503	0,301	
Mouscron	27831	14/02/08	15154	231	44	3,50	0,67	8,155	0,293	
Nivelles	27000	20/02/08	14400	250	94	3,60	1,35	8,383	0,310	
Oostende	129531	27/02/08	34696	320	130	11,10	4,50	25,867	0,200	
Roeselare	62438	16/01/08	56096	65	19	3,65	1,07	8,494	0,136	
Sint-Niklaas	44443	23/01/08	21352	252	103	5,39	2,21	12,549	0,282	
Sint-Truiden	44131	6/02/08	45710	116	79	5,31	3,63	12,373	0,280	
Tessenderlo	41761	6/02/08	27970	131	54	3,65	1,50	8,509	0,204	
Tournai	29000	21/02/08	31677	166	79	5,26	2,50	12,249	0,422	
Verviers	95000	20/02/08	31550	346	132	10,93	4,16	25,462	0,268	
Wavre	80000	28/02/08	16061	116	40	1,86	0,64	4,340	0,054	
Wulpen	34182	16/01/08	20306	101	44	2,05	0,89	4,778	0,140	