

전통적인 생물학적 하수처리공정에 의한 의약품질 처리

엄정훈 · 장태수¹ · 홍영민¹ · 박재은¹ · 김현욱^{1†}

서울시 보건환경연구원, ¹서울시립대학교 에너지환경대학원

Removal of Pharmaceutical Compounds in Conventional Wastewater Treatment Plant

Jung Hoon Uhm, Tea Su Chang¹, Young Min Hong¹, Jae Eun Park¹, and Hyunook Kim^{1†}

Research Institute of Public Health and Environment, The Seoul Metropolitan Government

¹Graduate School of Energy and Environmental System Engineering, The University of Seoul, Seoul, Korea

Received June 16, 2012/Accepted June 28, 2012

The fates of a total of 30 pharmaceutical compounds, which have been frequently administrated, in a local wastewater treatment plant (WWTP) were evaluated. The main process of the WWTP was the conventional activated sludge. Wastewater and sludge samples were collected from each unit process of the plant. The collected samples were extracted and quantitated following the procedure proposed by the National Institute of Environmental Science. The quantitation of residual pharmaceuticals were performed using HPLC-MS-MS. In general, the conventional biological treatment process did not seem to be effective in treating antibacterial compounds. It should be noted that the sampling for the study was performed once. To draw a more concrete conclusion out, more sampling events should be designed to have more data.

Key words: residual pharmaceuticals, personal care products, wastewater treatment plant, LC-MS-MS

1. 서 론

의약품이 사용되거나 폐기된 이후, 환경 내에 유출된 의약품류들이 자연 상태에서 어떻게 변화되고 어느 정도의 농도로 검출되며, 노출된 인간, 동식물 등에 어떤 영향을 미치는 가에 대한 과학적인 관심이 2000년대에 들어서 고조되고 있다.¹⁾ 특히, 유럽과 미국, 캐나다 등에서 쓰레기, 지하수, 하천수 등 광범위한 환경 중에 잔류하는 활성상태의 의약품류 화학물질에 대한 조사가 활발하게 진행되고 있다.²⁾ 의약품은 제조목적 자체가 생체의 내부작용에 영향을 주기 위해서인 만큼 생체에 대한 활성도가 크며, 환경 중에 잔류하는 의약품은 다양한 경로를 통해서 생물 내로 유입되고, 내분비계 교란 및 급만성 독성, 변이성, 잔류성 등을 유발하게 된다.³⁾ 국내에 유통되는 의약품은 약 16,000종에 달한다고 알

려져 있으며, 사람이나 동물에 투여되는 항생제 량의 약 30%~90%가 소변을 통해 활성물질로서 배출 될 수 있다는 조사도 있다.¹⁾ 실제로 환경 중 의약품 노출실태에 대해 최근에 환경부나 여러 연구자 들이 조사한 내용에 따르면, 4대강 유역 하천수에서 인체용/동물용 소염, 항생, 해열, 진통제 및 다수의 의약품류가 검출되고 있다.

사람의 체외로 배설된 의약품과 제약공장의 방류수, 병원 폐수, 가정에서 쓰고 남거나 유효기간이 지난 의약품은 폐기 등에 의해 상당량 하수관로를 통하여 하수처리장으로 배출된다. 이렇게 하수처리장으로 유입된 의약품 화학물질들은 하수처리 과정에서 분해되거나, 하수 슬러지에 흡착되거나, 또는 처리되지 않은 채 그대로 지표수로 흘러들어 희석될 수 있다⁴⁾.

따라서, 본 연구에서는 현재 운영되고 있는 한 하수처리장의 하수처리공정에 유입되는 잔류의약품의 양과

[†]To whom correspondence should be addressed.

E-mail: h_kim@uos.ac.kr

제거효율, 슬러지 중의 농도를 확인하여 이러한 물질의 처리과정 중 거동을 파악하고자 한다.

2. 연구방법

2.1. 의약품 선정

본 연구에서는 인체용 의약품물질의 총 생산량 및 동물용 항생제 판매량, 환경 중에 독성 및 유해성에 영향을 크게 줄 수 있는 물질^{1,3)} 등을 고려하고, 문헌을 참조하여 다음의 30가지 물질을 선정하였다. 괄호는 CAS number이다(Table 1).

2.2. 조사대상 하수처리장 공정구성 및 시료채취 지점

서로 다른 공법을 사용하는 1개 하수처리장을 대상으로 유입수, 유출수 및 각 단위공정의 처리수에서의

PPCPs 및 의약품의 농도를 확인하기 위해 시료를 채취하고 조사하였다. 각 공정상의 시료채취 위치는 유입수, 1차침전조, 미생물반응조, 2차침전조, 유출수 및 슬러지를 대상으로 선택하였다. 각 지점별 상세 샘플링 위치는 Table 2와 같다.

2.3. 시료의 전처리 및 분석법

시료는 분석 대상 물질 특성에 따라 6그룹으로 분류(Table 3)하여 전처리 및 분석 조건을 결정하고, 분석을 실시하였다.

액상 시료는 고상추출기(solid phase extraction: SPE) cartridge를 이용하여 추출하였고(Table 4), 슬러지는 초음파추출 후 역시 SPE cartridge를 이용하여 목적물질을 추출하였다(Table 5).

분석은 LC/MS/MS(Agilent 1200series & 6410 Triple-

Table 1. Pharmaceutical and person care products under study with CAS number

Acetaminophen (103-90-2)	Acetylsalicylic acid (50-78-2)	Cefadroxil (66592-87-8)	Cephadrine (388-21-533)	Chlortetracycline (57-62-5)
Ciprofloxacin (85721-33-1)	Diclofenac (15307-86-5)	Erythromycin (114-07-8)	Florfenicol (73231-34-2)	Ibuprofen (15687-27-1)
Lincomycin (154-21-2)	Mefenamic acid (61-68-7)	Naproxen (22204-53-1)	Norfloxacin (70458-96-7)	Oxytetracycline (79-57-2)
Penicillin-G (983-85-7)	Sulfamethazine (57-68-1)	Sulfamethoxazole (723-46-6)	Sulfathiazole (72-14-0)	Trimethoprim (738-70-5)
Tylosin (1401-69-0)	Vancomycin (1404-90-6)	Pefloxacin (70458-92-3)	Caffeine (1958-08-02)	Iopromide (73334-07-3)
Cimetidine (51481-61-9)	Streptomycin (57-92-1)	Virginiamycin M1 (21411-53-0)	Ivermectin (70288-86-7)	Fenbendazole (43210-67-9)

Table 2. Characteristics of wastewater treatment plants and sampling points

Facility	Sampling points
- Process: Conventional activated sludge - Capacity: 1,250,000 m ³ /d	Influent, Primary, Activated sludge, Secondary, Effluent Primary sludge, centrifused sludge, dewatered sludge, digested sludge, secondary sludge

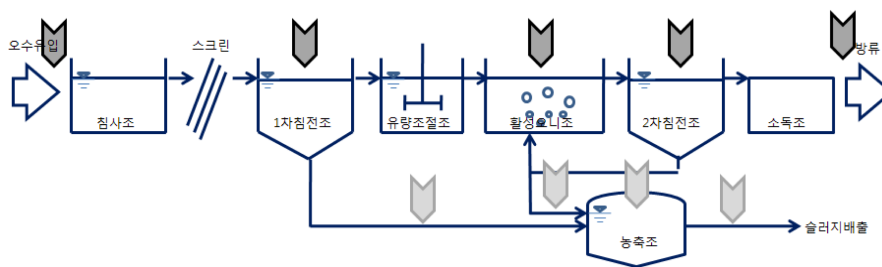


Fig. 1. Sampling points in wastewater treatment plant.

Table 3. Separation group of pharmaceuticals by analytical process

	Pharmaceuticals	No.
Group I-A	acetaminophen, lincomycin, sulfamethazine, sulfamethoxazole, sulfathiazole, trimethoprim, caffeine, streptomycin	8
Group I-B	chlortetracycline, oxytetracycline, enrofloxacin, ciprofloxacin, pefloxacin	5
Group I-C	diclofenac, acetylsalicylic acid, florfenicol	3
Group II	virginiamycin, erythromycin, tylosin, cimetidine	4
Group III	cephradine, cefadroxil, penicillin G, vancomycin, iopromide, fenbendazole	6
Group IV	naproxen, ibuprofen, mefenamic acid, ivermectin	4

Table 4. Summary of extraction process for liquid sample

	Group I(A,B,C)	Group II	Group III	Group IV
Filtering	Sample 500 mL centrifuge/filtration	Sample 500 mL centrifuge/filtration	Sample 500 mL centrifuge/filtration	Sample 500 mL centrifuge/filtration
pH adjustment	Adjust to pH 3, then Add EDTA	pH 6	Adjust to pH 2, then Add EDTA	pH 2
Solid phase extraction	HLB+MCX	HLB	HLB	MCX
Concentration	Nitro-evaporate to 0.5 mL	Nitro-evaporate to 0.5 mL	Nitro-evaporate to 0.5 mL	Nitro-evaporate to 0.5 mL
Filtration	Add I.S, then Filter with 0.2 μ m PTFE	Add I.S, then Filter with 0.2 μ m PTFE	Add I.S, then Filter with 0.2 μ m PTFE	Add I.S, then Filter with 0.2 μ m PTFE

Table 5. Summary of extraction process for solid sample

Pretreatment	Cry for 12 hr at 110
Extraction	Extract 1 g sample into solution [pH 2 H ₃ PO ₄ + CH ₃ CN] using sonication centrifuge twice
Concentration	Rota-evaporate to 200 mL, then dissolve into ultrapure water. Then, add EDTA of 500 mg
Solid phase extraction	HLB 20 cc/1g
Concentration	Nitroevaporate to 0.5 mL
Filtration	0.2 μ m PTFE syringe

quadrupole)를 이용하였으며 간략한 분석조건 및 내부 표준물질 등을 Table 6에 정리하였다. 각 분석 대상 화합물질에 대한 Mass ions를 Table 7-10에 나타내었다.

2.4. 정도관리

표준물질을 첨가하여 시료와 같은 방식으로 전처리하여 재현성, 회수율, 검출한계를 측정 한 결과는 Table 11

Table 6. Summary of analytical condition - LC/MS/MS

	Group I-A	Group I-B	Group I-C	Group II	Group III	Group IV
Compounds	Acetaminophen					
	Lincomycin					
	Sulfamethazine	Chlortetracycline			Cephadrine	
	Sulfamethoxazole	Oxytetracycline	Diclofenac	Virginiamycin	Cefadroxil	Naproxen
	Sulfathiazole	Enrofloxacin	Acetylsalicylic	Erythromycin	Penicillin G	Ibuprofen
	Trimethoprim	Ciprofloxacin	Florfenicol	Tylosin	Vancomycin	Mefenamic acid
	Caffeine	Pefloxacin		Cimetidine	Iopromide	
	Ivermectin*				Fenbendazole	
	Streptomycin*					

Table 6. Continued

	Group I-A	Group I-B	Group I-C	Group II	Group III	Group IV
Column	C18 75×3.0 (3 μ m)	C18 75×3.0 (3 μ m)	C18 75×3.0 (3 μ m)	C18 100×2.1 (2 μ m)	C18 100×2.1 (2 μ m)	C18 100×2.1 (2 μ m)
Eluent	formic acid, NH ₄ -formate/ acetonitrile	formic acid, NH ₄ -formate/ acetonitrile	acetic acid/ acetonitrile	NH ₄ -acetate/ Acetonitrile	formic acid/ acetonitrile	acetic acid/ acetonitrile
Injection	5 μ L	5 μ L	5 μ L	5 μ L	5 μ L	5 μ L
Ionization	ESI(+)	ESI(+)	ESI(-)	ESI(+)	ESI(+)	ESI(-)
Internal STD	13C3-atrazine	13C3-atrazine	13C6-2,4,5-T	13C3-atrazine	13C3-atrazine	13C6-2,4,5-T
Surrogate STD	13C3- Sulfamethazin	13C3- Ciprofloxacin	13C3-Ibuprofen	13C2- Erythromycin	13C6- Amoxicillin	13C3-Ibuprofen

Table 7. Group -A, B, C MS/MS instrument condition

I-A	R.T. (min)	Precursor ion (m/z)	Confirm ion (m/z)	Quantitation ion (m/z)	Collision Energy (eV)	
Acetaminophen	3.9	152	65	93	110	15
Caffeine	4.3	195	83	110	138	20
Sulfathiazole	6.5	256	108	92	156	13
Lincomycin	6.8	407	407	359	126	15
Sulfamethoxazole	6.6	254	108	156	92	15
Trimethoprim	6.9	291	230	261	123	27
Sulfamethazine	6.8	279	108	124	186	20
I-B	R.T. (min)	Precursor ion (m/z)	Confirm ion (m/z)	Quantitation ion (m/z)	Collision Energy (eV)	
Chlortetracycline	8.8	479	444	154	462	15
Oxytetracycline	7.8	461	444	381	426	13
Ciprofloxacin	8.1	332	288	231	314	17
Enrofloxacin	8.5	360	316	245	342	20
Pefloxacin	8.0	334	233	290	316	17
I-C	R.T. (min)	Precursor ion (m/z)	Confirm ion (m/z)	Quantitation ion (m/z)	Collision Energy (eV)	
Acetylsalicylic	4.2	137	65	137	93	17
Diclofenac	10.3	294	294	214	250	10
Flufenicol	4.9	356	119	336	185	10

Table 8. Group II MS/MS instrument condition

	R.T. (min)	Precursor ion(m/z)	Confirm ion (m/z)	Quantitation ion (m/z)	Collision Energy (eV)	
Virginiamicin	6.33	526	337	355	508	10
Erythromycin	6.08	734.4	522	576	158	20
Tylosin	6.29	917	101	772	174	40
Cimetidine	5.31	253	94	117	159	10
¹³ C2-Erythromycin	6.07	736.6	578	542	160	20
Terbutylazine	5.90	212	86	114	156	20

Table 9. Group III instrument condition

	R.T. (min)	Precursor ion(m/z)	Confirm ion (m/z)		Quantitation ion (m/z)	Collision Energy (eV)
Cephadrine	6.56	350	140	176	108	20
Cephadroxil	5.76	364	158	208	114	10
Penicillin-G	9.69	335	70	202	91	25
Vancomycin	5.69	725	100	83	144	15
Iopromide	6.04	792	774	573	559	23
Fenbendazole	10.80	300	268	190	159	25

Table 10. Group MS/MS analytical condition

	R.T. (min)	Precursor ion(m/z)	Confirm ion (m/z)		Quantitation ion (m/z)	Collision Energy (eV)
Naproxen	3.0	229	185	-	170	3
Ibuprofen	6.5	205	205	-	161	3
Mefenamic acid	7.6	240	180	192	196	30
Ivermectin	14.4	873.5	855.5	837.5	567.5	30
¹³ C3-Ibuprofen	6.5	208	208	-	163	3
Fenoprop(ISTD)	5.2	269	159	197	161	30

과 같다. Streptomycin의 경우, 회수율 평가를 시행하지 않았다. 표에서 제시된 바와 같이 일부 화합물(예를 들

면, erythromycin 등)을 제외하며, 본 연구에 적용된 분석 방법은 좋은 회수율을 보였다.

Table 11. Performance data from single laboratory validation

Class	Compounds	MDL(n=7) (ng/mL)	Fortified Conc.(ng/mL)	Low Level(n=5)		
				average (%)	stdev.	%RSD
Group I-A	Acetaminophen	0.152	4	54	0.9	1.8
	caffeine	0.105	4	14	2.5	1.8
	sulfathiazole	0.034	0.4	130	5.1	3.9
	lincomycin	0.017	0.1	94	3.8	4.0
	sulfamethoxazole	0.016	0.4	130	5.5	4.3
	trimethoprim	0.023	0.8	110	3.3	2.9
	sulfamethazine	0.011	0.4	130	0.4	0.3
	streptomycin	0.500	0.4	-	-	-
Group I-B	oxytetracycline	0.024	0.4	120	7.5	6.2
	chlortetracycline	0.010	0.4	96	9.6	10
	ciprofloxacin	0.007	0.4	130	6.6	4.9
	enrofloxacin	0.013	0.4	120	5.3	4.6
	pefloxacin	0.015	0.4	110	5.4	5.0
Group I-C	acetylsalicylic acid	0.040	0.4	69	4.3	6.2
	diclofenac	0.022	0.4	71	8.5	12
	florfenicol	0.046	0.4	46	3.4	7.4
Group II	virginiamycin	0.033	0.4	74	2.3	3.1
	erythromycin	0.013	0.4	10	0.1	1.3
	tylosine	0.013	0.4	110	2.0	1.8
	cimetidine	0.013	0.1	73	8.4	12

Table 11. Continued

Class	Compounds	MDL(n=7) (ng/mL)	Fortified Conc.(ng/mL)	Low Level(n=5)		
				average (%)	stdev.	%RSD
Group III	cephradine	0.027	0.4	150	4.5	3.0
	cefadroxil	0.076	10	110	9.1	8.2
	penicillin G	0.005	0.2	88	6.1	6.9
	vancomycin	0.184	8	89	7.0	7.8
	iopromide	0.270	4	73	3.2	4.4
	fenbendazole	0.010	0.4	65	18	27
Group IV	naproxen	0.024	0.4	67	2.7	4.0
	ibuprofen	0.069	0.4	74	9.5	13
	mefenamic acid	0.021	0.4	43	2.1	4.9
	ivermectin	0.019	0.4	49	3.1	6.3

*MDL: 최소 검출한계 계산(Method Detection Limit Calculation)

3. 결과 및 고찰

3.1. 총괄처리효율

Table 12는 30가지 물질에 대한 전체적인 최소, 최대값의 처리효율을 나타낸 것이다. 고도산화 등의 추가 공정을 도입하지 않은 유기물 제거를 위한 기존의 처리방식에서 제거 가능한 대략적인 총괄효율을 확인할

수 있었다. 아울러 acetaminophen, streptomycin, florfenicol, cefadroxil, ivermectin의 5가지 물질은 유입수에서 검출되지 않았다. 사실, acetaminophen의 미검출은 예상치 못했다. Acetaminophen은 대부분의 문헌에서 높은 농도로 검출되던 항목이기 때문이다. 일부 측정 항목의 결과(예, virginiamycin, mefenamic acid)에서 보듯이, 여러 공정들에게 일시에 시료를 채취하여

Table 12. Summary of detected concentration for pharmaceuticals of each unit process in wastewater treatment plant under study

그룹	의약품명	Liquid(ng/mL)					유출/유입 잔류율(%)
		유입수	1차 침전지	활성슬러지조	2차침전지	유출수	
Group I-A	acetaminophen	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	-
	caffeine	7.078	8.326	0.355	0.342	2.264	32%
	sulfathiazole	b.q.l.	0.036	0.073	n.d.	b.q.l.	-
	lincomycin	0.067	0.063	0.052	0.052	0.051	76%
	sulfamethoxazole	0.268	0.198	0.086	0.070	0.109	41%
	trimethoprim	0.150	0.145	0.143	0.147	0.058	39%
	sulfamethazine	0.038	0.032	0.041	0.031	0.033	86%
	streptomycin	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	-
Group I-B	oxytetracycline	0.025	0.030	0.032	0.042	0.025	98%
	chlortetracycline	0.080	n.d.	0.084	0.080	n.d.	-
	ciprofloxacin	0.292	0.210	0.192	0.155	0.307	105%
	enrofloxacin	0.068	0.067	0.081	0.085	0.065	96%
	pefloxacin	0.046	0.044	0.045	0.044	0.044	95%
Group I-C	acetylsalicylic acid	0.085	0.083	0.263	0.095	0.077	91%
	diclofenac	0.135	0.156	0.157	b.q.l.	0.024	18%
	florfenicol	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	-
Group II	virginiamycin	0.030	0.082	0.036	n.d.	0.137	450%
	erythromycin	0.034	0.034	0.035	0.033	0.034	100%
	tylosine	0.030	0.031	0.027	0.031	0.028	94%
	cimetidine	0.317	0.150	0.139	0.084	n.d.	0

Table 12. Continued

그룹	의약품명	Liquid(ng/mL)				유출수	유출/유입 잔류율(%)
		유입수	1차 침전지	활성슬러지조	2차침전지		
Group III	cephradine	0.229	0.213	0.192	0.191	n.d.	0
	cefadroxil	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	-
	penicillin G	0.141	n.d.	0.148	0.150	0.168	119%
	vancomycin	0.750	0.688	0.550	0.721	0.945	126%
	iopromide	6.044	6.361	4.896	5.741	5.621	93%
	fenbendazole	0.011	0.011	0.011	0.012	0.012	105%
Group IV	naproxen	0.815	0.682	0.112	0.100	0.389	48%
	ibuprofen	0.897	0.893	0.175	0.635	0.229	25%
	mefenamic acid	0.167	0.141	0.143	0.140	0.306	183%
	ivermectin	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	-

- n.d.; not detected. - b.q.l.; below quantitaion limit.

분석함으로써, 처리공정에 따른 각 화합물들의 변화를 조사하는 데에 한계가 있었을 것으로 판단된다.

주요 화합물에 대한 처리효율을 살펴보면 다음과 같다. 아스피린의 주성분인 acetylsalicylic acid은 약 9%의 처리율만 보였다. 하지만, 또다른 해열제 주성분인 ibuprofen은 원수 대비 75%의 처리효과를 보였다. 항생제인 -mycin계열, cefa-(cephra)-계열, penicillin, quinolone계 항생제인 -floxacin계열 등도 역시 확연히 처리효율이 낮음을 확인할 수 있었다. chlorotetracycline은 유출수에서 검출되지 않았지만, 2차 침전지 유출수 농도를 참고하여 보면, 거의 분해가 되지 않는 것으로 파악되었다. Oxytetracycline의 경우도 거의 처리가 되지 않았다. 결과적으로 표준 활성슬러지 공정은 잔류 항생물질 분해에 효과적이지 않은 것으로 조사되었다. 물론, 본 조사는 일회성 시료 채취 후 분석에 의한 것으로, 보다 확실한 결론을 도출하기 위해서는 더 많은 시료채취와 분석이 이루어져야 할 것이다.

슬러지 중에 포함된 잔류 의약품물질을 분석한 경우에도 액체 중에서 검출되지 않았던 항목들 중 acetaminophen과 ivermactin은 검출이 되지 않았다. 슬러지 중에서 높은 검출된 화합물은 ciprofloxacin이었다. ciprofloxacin이 모든 분석대상 슬러지에서 2 ppm 이상 검출되었다.

3.2. 외국 및 국내 타 연구와의 제거효율 비교

Table 14는 다른 연구와의 처리효율을 비교한 것이다. 처리효율이 마이너스(-)값으로 나온 경우 “-”으로 표현하였다. acetylsalicylic acid의 경우, 해외에서는 85% 이상의 처리 효율을 보고하고 있으나, 본 연구에서

Table 13. Pharmaceuticals detected from sludge samples

그룹	의약품명	Solid(μg/g)			
		생 슬러지	농축 슬러지	탈수 케익	소화 슬러지
Group I-A	acetaminophen	b.q.l.	n.d.	n.d.	n.d.
	caffeine	0.202	0.181	0.226	0.235
	sulfathiazole	n.d.	0.017	n.d.	0.022
	lincomycin	0.044	0.019	0.018	0.020
	sulfamethoxazole	0.032	0.020	0.017	0.024
	trimethoprim	0.045	0.029	0.030	0.036
	sulfamethazine	0.016	0.018	0.015	0.017
	streptomycin	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Group I-B	oxytetracycline	0.105	0.079	0.163	0.290
	chlortetracycline	n.d.	0.042	0.040	0.045
	ciprofloxacin	2.296	2.248	4.051	5.059
	enrofloxacin	0.036	0.040	0.042	0.044
	pefloxacin	0.058	0.061	0.088	0.109
Group I-C	acetylsalicylic acid	0.137	0.454	0.423	0.302
	diclofenac	b.q.l.	0.022	0.019	0.014
	florfenicol	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Group II	virginiamycin	0.167	0.295	0.147	0.089
	erythromycin	0.017	0.019	0.018	0.017
	tylosine	0.014	0.015	0.015	0.014
	cimetidine	0.238	0.268	n.d.	0.029
Group III	cephradine	0.096	n.d.	0.098	0.096
	cefadroxil	n.d.	n.d.	1.583	1.636
	penicillin G	0.095	0.154	0.107	0.081
	vancomycin	n.d.	n.d.	n.d.	0.483
	iopromide	1.508	0.388	0.354	0.580
	fenbendazole	0.007	0.007	0.007	0.009
Group IV	naproxen	0.031	0.034	0.027	0.031
	ibuprofen	0.496	0.061	1.049	0.079
	mefenamic acid	0.063	0.061	0.088	0.145
	ivermectin	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.

- n.d.; not detected. - b.q.l.; below quantitaion limit.

Table 14. Elimination of the studied pharmaceuticals in biological wastewater treatment plants of other study⁵⁻⁹⁾

물질명	제거율(%)			물질명	제거율(%)		
	외국	국내	본 연구		외국	국내	본 연구
Acetylsalicylic acid	85-98	-	9	Ciprofloxacin	58-97	-	0
Diclofenac	9-75	-	82	Erythromycin	0	-	0
Ibuprofen	22-100	-	75	Iopromide	11 - 33	-	7
Naproxen	15-98	-	52	Mefenamic acid	> 90	-	0
Sulfamethoxazole	50-80	50-74	59	Penicillin-G	37	-	0
Trimethoprim	49-80	3-91	61	Sulfamethazine	50 - 80	-	14
Caffeine	99	99	68	Tylosin	> 90	-	6

는 10% 내외의 처리 효율만을 보였다. ciprofloxacin, mefenamic acid, penicillin, sulfamethazine, tylosin의 경우도 해외 문헌에 보고된 처리효율 자료가 본 연구에서 얻은 결과 보다 상당 수준 높았다. 하지만, diclofenac, ibuprofen, naproxen, sulfamethoxazole, trimethoprim, caffeine 등의 화합물에 대한 분해 효과는 비슷한 결과를 보였다. 타 연구에도 처리효율이 마이너스(-)를 나타내는 경우가 존재하였다.

3.3. 처리공정 별 제거효율

유입수에서 유출수까지 각 처리공정에 대한 처리 효율을 정리한 결과, 세부적인 결과값들이 연속성이 떨어지는 화합물이 있었다. 다만 시료채취를 한 번에 전 공정을 대상으로 하였기 때문에 이러한 결과가 나온 것으로 판단된다. 이는 집중적인 반복조사가 좀 더 필요한 부분이라 사료된다.

4. 결 론

- 1) 하수처리장으로 유입되는 일반 생활하수 중에는 caffeine, iopromide, naproxen, ibuprofen 등의 물질이 농도가 높았다. 반면에 pefloxacin, erythromycin, chlortetracycline, tylosine, oxytetracycline, fenbendazole, sulfathiazole, streptomycin, florfenicol, ivermectin 등의 물질은 검출이 되지 않거나 소량이 검출되었다.
- 2) 본 연구 결과, 항생제인 -mycin계열, cefa-(cephra-)계열, penicillin, quinolone계 항생제인 -floxacin계열 등에 대한 처리효율은 낮은 것으로 관찰되었다. 또한, m tetracycline 계열도 분해가 되지 안하였다. 따라서 이런 항생제들이 생물학적 처리장 미생물의 활성에도 영향을 끼치고 있다고 추정할 수 있었다.
- 4) 슬러지의 경우 생슬러지 (1차침전지 슬러지)와 이후

공정의 슬러지를 비교할 때 ciprofloxacin은 점점 농도가 높아져 축적이 일어나는 경향이 있으며, iopromide, ibuprofen의 경우 농도가 낮아지는 경향이 있으나 이들 이외의 성분은 뚜렷한 경향을 찾기 어려웠다.

- 5) 많은 의약품들이 생물학적 처리과정을 거치면서 어느 정도 제거가 이루어지고 있는 것으로 판단할 수 있으나, 일부 화합물들은 전혀 분해가 되지 않는 것으로 조사되었다.
- 6) 시료를 한 번에 처리시설 전체 공정에 대하여 채취하였기 때문에 각각의 이전 공정(unit)에서의 분석값과 연계성이 떨어지는 경우가 있었다. 보다 신뢰성 있는 결론을 도출하기 위해서는 좀 더 집중적이고 반복적인 조사연구가 필요하다고 판단된다.

감사의 글

본 연구는 국립환경과학원의 연구비 지원으로 이루어졌으며, 이에 감사를 드립니다.

참고문헌

1. 명승운, 권오승, 박준규, “환경 중 의약품 분석방법 연구 및 노출실태조사”, 2006, 국립환경과학원.
2. Brenton Nicholson, “ORGANIC CHEMICAL ISSUES IN WASTEWATER QUALITY A REVIEW OF CURRENT ANALYTICAL METHODS”, 2006, Australian Water quality centre CRC for water quality and treatment, Australia.
3. 박정임, “의약품물질의 환경위해성 평가 체계 구축 방안”, 2006, 한국환경정책·평가연구원.
4. M. Klavarioti, D. Mantzavinos and D. Kassinos, *Environment International*, 2009, 35, 402-417.
5. 김주형, 박찬구, 이민영, 안승구, “LC/MS를 이용한 물

- 환경내의 잔류의약품 분석”, 2008, 한국환경분석학회지, 제11권 (제2호), 99-108.
6. Pharmaceuticals and Personal Care Products in the Environment: Agents of Subtle Change Environmental Health Perspectives. 107:6:907-938. Daughton, C. G. and T. A. Ternes. 1999.
 7. Hiroe Hara, Removal of Pharmaceuticals from Municipal Wastewater using Membrane Bioreactors and Activated Sludge Process, Environ. Sci Technol. 2007, 41, 3708-3714.
 8. C. Miege., “Fate of pharmaceuticals and personal care products in wastewater treatment plants – Conception of a database and first results”, Environmental Pollution 157. 2009. 1721-1726.
 9. Occurrence of pharmaceuticals in finish sewage treatment plants, surface water, and their elimination in drinking water treatment processes.pdf
 10. 약사법, [일부개정 2006.10.4 법률 제8035호], 2007, 제2조 제4항
 11. 통계청 사이트 <http://mi.nso.go.kr/mi/help/D32600.html>
 12. 환경부, “주요 하천수에서 항생제 등 일부 의약품질 검출”, 2008, 환경부 보도자료
 13. Method 1694: “Pharmaceuticals and Personal Care Products in Water, Soil, Sediment, and Biosolids by HPLC/MS/MS”, 2007, EPA, USA
 14. 명승운, “환경 중 의약품질 분석방법 연구 및 노출실태조사(최종보고서)”, 2007, 환경부.