

생물활성탄 공정에서의 Sulfonamide계 항생물질 제거특성

손희중[†] · 정종문 · 노재순 · 유평중

부산광역시 상수도사업본부 수질연구소

(2008년 6월 16일 접수, 2009년 2월 18일 채택)

Removal Characteristics of Sulfonamide Antibiotic Compounds in Biological Activated Carbon Process

Hee-Jong Son[†] · Jong-Moon Jung · Jae-Soon Roh · Pyung-Jong Yu

Water Quality Institute, Busan Water Authority

ABSTRACT : In this study, the effects of three different biological activated carbon (BAC) materials (each coal, coconut and wood based activated carbons), empty bed contact time (EBCT) and water temperature on the removal of sulfonamide 5 species in BAC filters were investigated. Experiments were conducted at three water temperatures (5, 15 and 25°C) and four EBCTs (5, 10, 15 and 20 min). The results indicated that coal based BAC retained more attached bacterial biomass on the surface of the activated carbon than the other BACs, increasing EBCT or increasing water temperature increased the sulfonamide 5 species removal in BAC columns. In the coal-based BAC columns, sulfachloropyridazine (SCP), sulfamethazine (SMT) and sulfathiazole (STZ) removal efficiencies were 30~80% and sulfadimethoxine (SDM), sulfamethoxazole (SMX) removal efficiencies were 18~70% for 5~20 min EBCT at 25°C. The kinetic analysis suggested a first-order reaction model for sulfonamide 5 species removal at various water temperatures (5~25°C). The pseudo-first-order reaction rate constants and half-lives were also calculated for sulfonamide 5 species removal at 5~25°C. The reaction rate and half-lives of sulfonamide 5 species ranging from 0.0094~0.0718 min⁻¹ and 9.7 to 73.7 min various water temperatures and EBCTs in this study could be used to assist water utilities in designing and operating BAC filters for sulfonamide antibiotic compounds removal.

Key Words : Biological Activated Carbon, Sulfonamide Antibiotic Compounds, Biodegradation, Water Temperature, Empty Bed Contact Time

요약 : 생물활성탄 재질별 sulfonamide계 항생물질 5종의 생분해능을 조사한 결과 유입수의 수온 25°C에서 EBCT 변화에 따른 생분해율을 평가한 결과, 석탄계 재질의 생물활성탄은 EBCT 5~20분에서 18~82%, 야자계나 목탄계의 경우는 11~67% 및 4~56%로 나타나 석탄계 재질의 생물활성탄에서 가장 높은 생분해능을 나타내었다. Sulfonamide계 5종에 대한 물질별 생분해능을 평가한 결과, 석탄계 재질의 생물활성탄에서 5~20분의 EBCT에서 SCP, SMT 및 STZ는 30~80%, SDM과 SMX는 18~70% 정도의 생분해율을 나타내어 SDM과 SMX가 다른 3종 보다는 생분해능이 낮은 것으로 나타났다. 유입수의 수온 상승에 따라 5~20분의 EBCT에서 생분해율은 크게 증가하였고, 유입수의 수온이 5°C일 경우 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 생분해 속도 상수는 0.0094~0.0118 min⁻¹, 반감기는 58.7~73.7분으로 나타났으며, 수온이 15°C 및 25°C일 경우는 생분해 속도상수가 0.0307~0.0397 min⁻¹ 및 0.0468~0.0718 min⁻¹로 나타났고, 반감기 17.5~22.6분 및 9.7~14.8분으로 나타났다. 유입수의 수온이 5°C에서 15°C로 상승할 경우 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 생분해 속도상수는 3.2~3.8배 정도 증가하였으며, 수온이 15°C에서 25°C로 상승할 경우는 1.5~1.9배 정도 증가하는 것으로 나타났다.

주제어 : 생물활성탄, 스폴나마이드계 항생물질, 생분해, 수온, 공탑체류시간

1. 서론

인간이 제조하여 사용하는 항생물질은 수십 년 동안 인간, 가축 및 양식어류의 질병 예방과 구제에 이용되어오고 있다. 하지만 인간의 질병예방과 치료 목적으로 항생물질의 과다한 남용과 가축, 양식어류의 질병구제 및 성장촉진 목적으로 사료에 넣어 남용한 결과로 이러한 항생물질은 가정과 병원을 비롯한 도시하수, 축산폐수 및 다양한 경로를 통하여 자연환경으로 유입되어 항생물질 자체

의 독성뿐만 아니라 인간과 환경을 위협하는 항생물질에 강한 내성을 가진 병원균들의 출현에 기여하였다.^{1~7)}

전 세계적으로 항생물질의 사용량은 2003년도에 100,000~200,000톤 정도로 알려져 있으며,⁸⁾ 국내의 경우 수산업 및 축산에 이용된 항생제 사용량이 2003년 1,460톤으로 보고되고 있다.⁹⁾ 항생물질은 전국 도처에서 사용되고 있고, 사용된 양의 상당한 부분이 별도의 처리 없이 배출되고 있으며, 또한, 축산폐수 및 도시하수 처리장에서 완전히 제거되지 않고 자연 수계로 유입된다.¹⁰⁾ Choi 등¹¹⁾의 연구에서는 낙동강 부근에 위치한 하수처리장(activated sludge 공정)과 축산폐수 처리장(A₂O 공정)의 2차 처리수에서 여러 종류의 항생물질이 검출되었고 낙동강 지류 및 본류에서

[†] Corresponding author

E-mail: menuturk@hanmail.net

Tel: 051-669-4625

Fax: 055-323-4719

도 검출된다고 보고하고 있으며, 특히 sulfonamide계 항생물질들의 검출빈도 및 검출농도가 다른 항생물질들에 비해 비교적 높다고 보고하고 있다. 이들 sulfonamide계 항생물질들은 주로 가축의 질병예방 목적으로 축산농가에서 많이 사용하며, 축산농가에서 발생한 축산폐수가 처리되지 않고 강으로 방류되거나, 축산폐수 처리장에서 완전 제거되지 않은 sulfonamide계 항생물질들이 상수원으로 유출된다고 알려져 있다.¹¹⁾

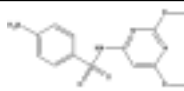
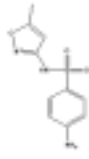
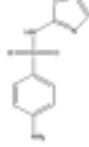

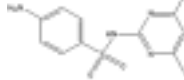
현재 국·내외적으로 여러 종류의 항생물질에 대해 다양한 수처리 공정을 이용하여 제거특성을 평가한 연구가 활발히 진행되고 있다.^{12~17)} 특히, 최근에는 멤브레인 및 고도산화 공정을 이용한 항생물질 제거에 관한 연구가 활발히 진행 중이다.^{18,19)}

본 연구에서는 생물활성탄(biological activated carbon, BAC) 공정에서의 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 수온 및 공탁체류시간(empty bed contact time, EBCT) 변화에 따른 제거특성을 살펴보기 위하여 300 m³/일 처리용량의 pilot-plant에서 2년간 사용한 석탄계, 야자계 및 목탄계 재질의 생물활성탄을 사용하였으며, 실제 정수장의 생물활성탄 여과지의 운전조건과 동일한 조건으로 실험을 수행하기 위해 정수장의 생물활성탄 여과지로 유입되는 유입수와 거의 유사한 성상을 지닌 시료수를 유입수로 사용하였다. 따라서 정수장에서 sulfonamide계 항생물질 5종의 제거를 위하여 생물활성탄 공정을 운전하는데 기초자료를 제공할 것으로 기대가 되며, 항생물질 제거를 위한 BAC 공정의 설계 및 운전 자료로 사용하고자 하였다.

2. 실험재료 및 방법

2.1. 실험 재료

Table 1. Characteristics of sulfonamides 5 species

Compound	Abbreviation	CAS-No.	Structure	Formular	M.W.
Sulfadimethoxine	SDM	122-11-2		C ₁₂ H ₁₄ N ₄ O ₄ S	310.3
Sulfamethoxazole	SMX	723-46-6		C ₁₀ H ₁₁ N ₃ O ₃ S	253.3
Sulfathiazole	STZ	72-14-0		C ₉ H ₉ N ₃ O ₂ S ₂	255.3
Sulfachloropyridazine	SCP	80-32-0		C ₁₀ H ₉ ClN ₄ O ₂ S	284.7
Sulfamethazine	SMT	57-68-1		C ₁₃ H ₁₅ N ₃ O ₂ S	278.3

2.1.1. 항생물질

본 실험에 사용된 항생물질은 sulfonamide계 5종으로 sulfadimethoxine (SDM), sulfachloropyridazine (SCP), sulfamethazine (SMT), sulfathiazole (STZ), sulfamethoxazole (SMX)이며, Sigma-aldrich사(U.S.A.)에서 제조한 순도 99% 이상의 특급물질을 사용하였다. 실험에 사용된 sulfonamide계 5종에 대한 물성치를 Table 1에 나타내었다.

2.1.2. 유입수 성상

활성탄 컬럼으로 유입되는 유입수는 전염소처리 공정이 배제된 300 m³/일 규모의 고도정수처리용 pilot-plant의 후오존 처리수에 순도 99% 이상인 SDM, SCP, SMT, STZ 및 SMX 5종을 투입하여 유입되는 각각의 sulfonamide계 항생물질의 농도가 50 µg/L가 되도록 하였다. 후오존 처리수를 유입수로 사용한 이유는 실제 정수장에서의 BAC 여과지의 운전조건과 동일하게 만들기 위해서이며, 실험에 사용된 유입수의 특성을 Table 2에 나타내었다. 유입수의 수온은 수온조절 장치(Buchi, Recirculating chiller B-740, Swiss)를 이용하여 5~25℃로 조절하여 실험하였다.

2.1.3. 생물활성탄

본 실험에 사용된 생물활성탄(BAC)들은 석탄계(coal) 재질(F400, Calgon), 야자계(coconut) 재질(1급, Samchully) 및 목탄계(wood) 재질(pica, Picabiol)로 낙동강 원수를 정수처

Table 2. Characteristics of influent waters

	pH	Turbidity	DOC	Temp
	(-)	(NTU)	(mg/L)	(℃)
Influent water	7.5~7.7	0.04~0.05	1.25~1.31	5~25

Table 3. Biomass and activity of attached bacteria in the coal-, coconut- and wood-based BAC

BAC material	Coal-based		Coconut-based		Wood-based	
	Biomass (CFU/g)	Activity (mgC/m ³ · hr)	Biomass (CFU/g)	Activity (mgC/m ³ · hr)	Biomass (CFU/g)	Activity (mgC/m ³ · hr)
Biological data	2.3×10 ⁷	2.80	2.0×10 ⁷	2.31	2.0×10 ⁷	2.29

리하는 1일 300톤 처리규모의 pilot-plant BAC 공정에서 2년간 사용하였던 것이며, 운전한 bed volume은 108,000 정도이다. 실험을 위해 활성탄의 채집은 BAC 공정의 상부 20 cm 이상의 활성탄을 채집하였다. 또한, 실험에 들어가기 전에 BAC에 부착된 중속영양 박테리아의 유기물 섭취능을 간접적으로 평가할 수 있는 부착 세균의 생체량(biomass)과 활성도(activity)를 측정된 것을 Table 3에 나타내었다. 측정결과를 보면 석탄계 재질의 BAC에서 생체량과 활성도가 2.3×10⁷ CFU/g와 2.80 mgC/m³ · hr로 가장 높은 것을 알 수 있으며, 다음으로 아자계와 목탄계 순으로 나타났다.

2.2. 실험방법

2.2.1. 생물활성탄 공정 운전

생물활성탄 공정의 운전은 sulfonamide계 항생물질 5종 희석액 조에서 각각의 농도가 50 µg/L인 sulfonamide계 항생물질 5종 희석액을 정량펌프를 사용하여 36 mL/min으로 분배조(distributor)로 이송한 후 직경 20 mm인 12개의 투명 아크릴 활성탄 흡착조로 3 mL/min씩 균등하게 분배되도록 하였다. 컬럼 내 활성탄을 각각 15, 30, 45, 60 mL씩 충전하여 EBCT가 5, 10, 15, 20분이 되도록 조절하였고, 생물활성탄 컬럼은 하향류 방식으로 운전하였으며, Fig. 1에 개략적인 생물활성탄 컬럼 모식도를 나타내었다. 생물활성탄 컬럼의 역세척은 주 1회 정도 실시하였고, 역세척 방법은 생물활성탄 컬럼 하부로 처리수를 공급하여 활성탄 층이 50% 정도 팽창되도록 하였으며, 공세는 실시하지 않았다.

유입수의 수온은 수온조절 장치(Buchi, Recirculating chiller B-740, Swiss)를 이용하여 BAC 컬럼 상부에 온도계를 설치하여 컬럼으로 유입되는 유입수의 수온을 조절하였다. 수온은 5℃, 15℃ 및 25℃로 조절하여 실험하였으며, 수온을 조절 후 5일간 각각의 수온에 대한 순응기간을 가진 후 실험을 실시하였다.

2.2.2. Sulfonamide계 항생물질 고체상 추출 및 LC/MSD 분석

시료수는 1 L를 채수하여 입자성 물질의 제거를 위하여 0.2 µm 멤브레인 필터(Millipore, U.S.A.)로 여과한 후 5% Na₂EDTA를 4 mL 첨가하였다.²⁰⁾ Na₂EDTA 첨가 후 40% 황산을 사용하여 시료수의 pH를 3 이하로 조절한 후 고체상 추출장치(Autotrace SPE Workstation, Tekmar, U.S.A.)를 사용하여 고체상 추출(solid phase extraction, SPE)을 하였다.²⁰⁾

고체상 추출은 Oasis HLB extraction 카트리지(Waters, U.S.A.)를 사용하였으며, SPE 카트리지의 conditioning을 위해 메탄올 10 mL와 0.5 N HCl 10 mL를 통과시킨 후 3차 증류수 10 mL로 세척하였다. 시료수의 고체상 추출은 시료수 1 L를 10 mL/min의 유량으로 loading하여 SPE 카트리지에 sulfonamide계 항생물질을 흡착시켰으며, 0.1% formic acid/MeOH 혼합액 20 mL로 SPE 카트리지에 흡착된 sulfonamide계 항생물질을 용출시켜 질소농축기(Turbo Vap LV, Zyma가, U.S.A.)를 이용하여 1 mL로 농축하여 LC/MSD로 분석하였다.

LC/MSD(Agilent 1100 SL, Agilent, U.S.A.)는 diode array

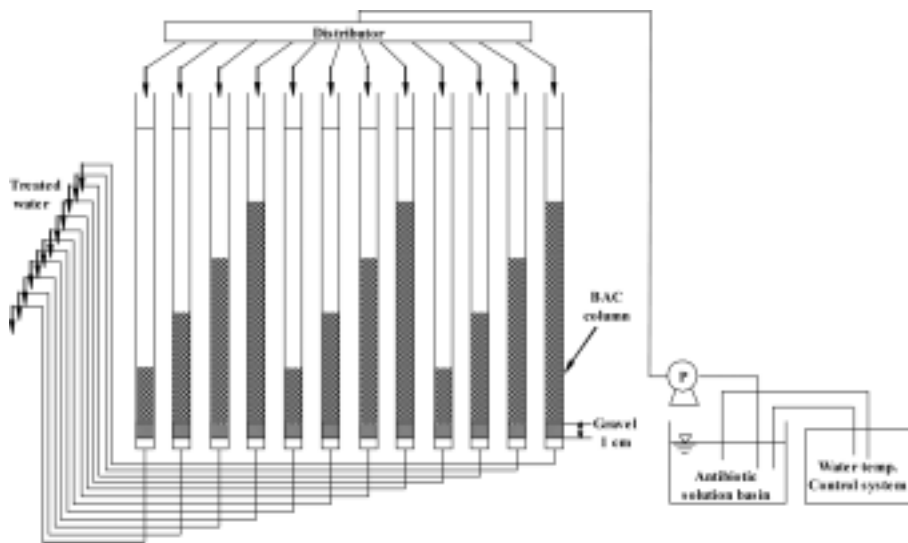


Fig. 1. Schematic diagram of continuous adsorption column.

Table 4. Analytical conditions of LC/MSD

Description	Analytical condition
Mode	API, positive
Fragment voltage, volts	100
Mobile phase	A : 0.1% formic acid in water B : 0.1% formic acid in acetonitrile
Gradient program	0 min, A/B = 96/4
	10 min, A/B = 75/25
	20 mins, A/B = 70/30
	21 min, A/B = 96/4
Flow, mL/minute	0.4

detector (DAD)가 장착되어 있으며, DAD의 UV 파장은 260 nm를 사용하였다.²⁰⁾ 항생물질 분리를 위하여 컬럼 충전물의 pore size 3 µm, 내경 및 길이가 2.1 mm × 50 mm인 Atlantis dC18 column (Waters, U.S.A.)을 사용하였다. 그 외의 LC/MSD 분석조건을 Table 4에 나타내었다. Sulfonamide계 항생물질 5종의 calibration 및 정량은 각각의 물질이 가지는 고유한 protonated molecular ion [M+H]⁺만을 추출해 내는 EIC (extracted ion chromatogram) 모드로 정량하였으며, 각각의 protonated molecular ion은 SDM, SCP, SMT, STZ, SMX 순으로 311, 285, 279, 256, 254이다.¹¹⁾

3. 결과 및 고찰

3.1. 생물활성탄 재질별 sulfonamide계 항생물질 5종 생분해 특성

유입수의 수온이 25°C일 때 생물활성탄 재질별 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 생분해 특성을 Fig. 2에 나타내었다. 생물활성탄 재질별 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 생분해 특성을 살펴보면 5종 모두 전체적인 경향이 EBCT가 증가할수록 생분해능이 커지는 것으로 나타나고 있으며, 생물활성탄 종류별로는 석탄계 재질의 활성탄에서의 제거율이 가장 높게 나타나고 있다.

석탄계 활성탄에서 EBCT 변화에 따른 sulfonamide계 항생물질 5종의 생분해율을 조사한 결과 EBCT가 5~20분으로 증가할수록 생분해율의 변화는 SDM의 경우 20~70%, SCP는 33~76%, SMT는 35~82%, STZ는 31~82% 및 SMX의 경우는 18~64%로 나타나 5종이 큰 차이를 보이

지는 않았으며, SCP, SMT 및 STZ의 경우는 EBCT 증가에 따라 30~80% 정도의 생분해율을 나타내어 SDM과 SMX의 18~70% 보다 높은 생분해율을 나타내었다.

생물활성탄 재질별로 EBCT 변화에 따른 생물분해능을 평가하기 위하여 sulfonamide계 항생물질 5종 중 SMT에 대한 제거율을 비교해보면 석탄계 재질의 생물활성탄의 경우는 EBCT 5~20분에서 제거율이 35~82%로 나타나고 있으나 야자계나 목탄계의 경우는 25~67% 및 13~56%로 나타나 석탄계 재질의 생물활성탄 보다는 낮은 제거율을 보였다. 생물활성탄에서 유기성 오염물질에 대한 주요 제거 메커니즘은 부착세균에 의한 생물분해이며, 이것은 부착세균의 생체량(biomass)이나 활성도(activity)에 의해 좌우된다. 앞의 Table 2에서 나타내었듯이 부착세균에 대한 생체량이나 활성도는 석탄계 재질의 생물활성탄이 가장 높은 것으로 나타났다.

3.2. 수온변화에 따른 sulfonamide계 항생물질 5종 생분해 특성

석탄계 재질 생물활성탄 컬럼을 이용하여 유입수의 수온 및 EBCT 변화에 따른 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 생분해능 실험결과를 Fig. 3에 나타내었다. Sulfonamide계 항생물질 5종 모두 유입수의 수온 상승에 따라 각각의 EBCT에서의 생물분해율이 급격히 증가하는 것으로 나타나고 있으며, SMT의 경우 수온이 5°C일 때 EBCT 5~20분에서의 생물분해율이 3~23%로 나타났으며, 나머지 4종의 sulfonamide계 항생물질에서도 EBCT 20분에서 18~20%의 제거율을 나타내어 수온이 저하되는 동절기에는 20분 이상의 EBCT에서도 높은 제거율을 기대하기가 어려운 것으로 조사되었다.

또한, 수온이 15°C일 때 SMT는 EBCT 5~20분에서 생물분해율이 22~56%로 나타나 수온 5°C, EBCT 20분과 수온 15°C, EBCT 5분과 거의 유사한 제거율을 나타내었으며, 나머지 4종의 경우도 유사한 경향을 나타내었다. 유입수의 수온을 25°C로 조절하여 석탄계 재질의 BAC 컬럼을 운전한 경우 SMT는 35~82%의 제거율을 나타내어 유입수 수온이 5°C 및 15°C의 경우와 비교하여 생분해율이 크게 증가하였고 하절기 수온의 상승에 따른 BAC 운전시 sulfonamide계 항생물질이 유입될 경우, EBCT 20분 이상에서는 70% 이상의 제거율을 기대할 수 있을 것으로 조사되었다.

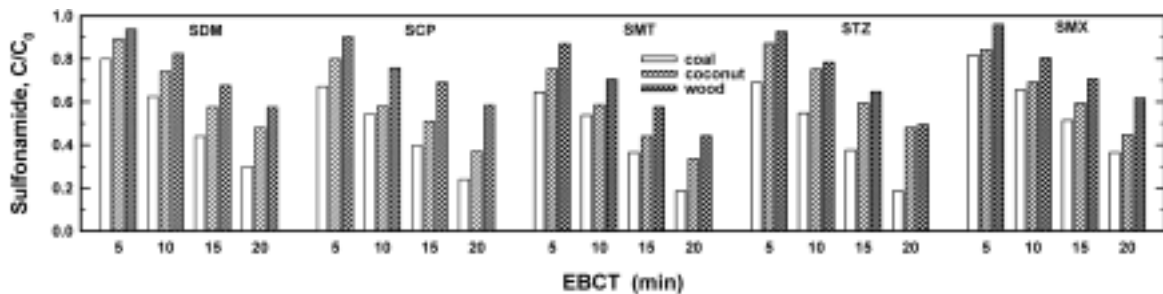


Fig. 2. Sulfonamide 5 species removals according to various EBCTs and BAC materials at 25°C.

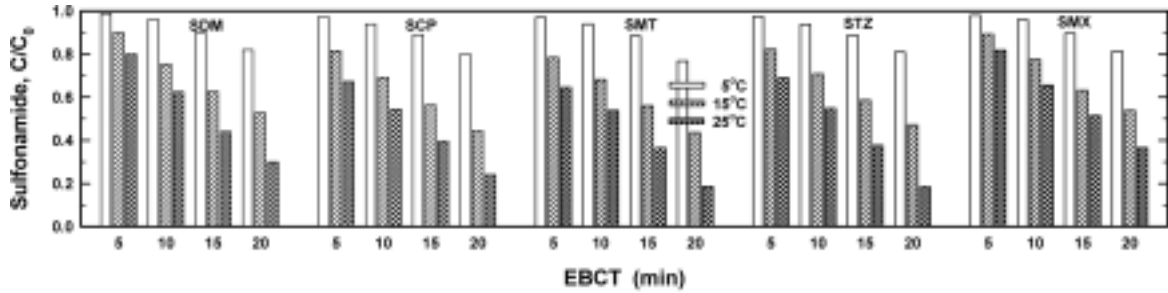


Fig. 3. Sulfonamide 5 species removals according to various water temperatures and EBCTs in the coal-based BAC filter.

3.3. Sulfonamide계 항생물질 5종의 생물분해 동력학 평가

손 등²¹⁾의 연구에 의하면 Fig. 4와 같이 속도 모델식에서 $\ln(C/C_0)$ vs. time이 직선식으로 나타날 경우 pseudo-first order rate로 표현 가능하다고 보고하였다. 따라서 Fig. 4에서 도출된 석탄계 재질의 BAC 컬럼의 각각의 EBCT에서 유입수 수온변화에 따른 sulfonamide계 항생물질 5종의 생물분해율을 이용하여 각각의 조건에서의 생물분해 속도상수(reaction rate constant, k)를 식 (1)로 구하였다.

$$C/C_0 = \exp(-k \cdot t) \tag{1}$$

여기서 절편값은 C (반응시간 후 농도)와 C_0 (초기농도)가 같을 때($C=C_0$)의 값이므로 1이며, k 는 생물분해 속도상수, t 는 반응시간(EBCT)이다. 식 (1)을 이용하여 여러 실험조건에서 도출된 결과를 회귀분석하여 생물분해 속도상수 k 를 구하였다. 또한, sulfonamide계 항생물질 5종의 50% 제거시점인 반감기(half-life, $t_{1/2}$)를 식 (2)로 구하였으며, Table 5에 BAC 컬럼의 운전 조건별 반응속도 상수(k)와 반감기($t_{1/2}$)를 나타내었다.

$$t_{1/2} = 0.693 / k \tag{2}$$

석탄계 재질의 BAC 컬럼 유입수의 수온변화에 따른 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 생물분해 속도상수와 반

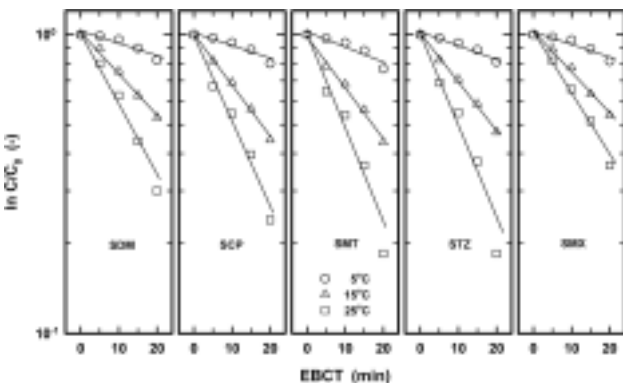


Fig. 4. Pseudo-first-order reaction plot of sulfonamide 5 species for various water temperature at 5, 15, 25°C in the coal-based BAC filter.

감기를 나타낸 Table 5 (a)~(c)를 보면 유입수의 수온이 5°C일 경우 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 생물분해 속도상수는 0.0094~0.0118 min^{-1} , 반감기는 58.7~73.7분으로 나타났고, 유입수의 수온이 15°C 및 25°C일 경우는 생물분해 속도상수가 0.0307~0.0397 min^{-1} 및 0.0468~0.0718 min^{-1} 로 나타났으며, 반감기 17.5~22.6분 및 9.7~14.8분으로 나타났다. 유입수의 수온이 5°C에서 15°C로 상승할 경우 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 생물분해 속도상수는 3.2~3.8배 정도 증가하였으며, 수온이 15°C에서 25°C로 상승할 경우는 1.5~1.9배 정도 증가하는 것으로 나타났고, 5°C와 25°C를 비교하여 보면 4.9~7.0배 정도 증가하였고, 반감기도 비슷한 비율로 감소하는 것으로 나타났다.

Table 5. Pseudo-first-order reaction rate constants, half-lives for sulfonamide 5 species degradation at various water temperature in the coal-based BAC filter
(a) Influent water temperature : 5°C

Sulfonamide 5 species	Reaction rate constant, k (min^{-1})	Half-life, $t_{1/2}$ (min)	Reaction order, n (-)
SDM	0.0094	73.7	1.02
SCP	0.0103	67.3	1.02
SMT	0.0118	58.7	1.02
STZ	0.0100	69.3	1.02
SMX	0.0096	72.2	1.02

(b) Influent water temperature : 15°C

Sulfonamide 5 species	Reaction rate constant, k (min^{-1})	Half-life, $t_{1/2}$ (min)	Reaction order, n (-)
SDM	0.0318	21.8	1.02
SCP	0.0391	17.7	1.00
SMT	0.0397	17.5	0.99
STZ	0.0363	19.1	1.00
SMX	0.0307	22.6	1.02

(c) Influent water temperature : 25°C

Sulfonamide 5 species	Reaction rate constant, k (min^{-1})	Half-life, $t_{1/2}$ (min)	Reaction order, n (-)
SDM	0.0553	12.5	1.02
SCP	0.0653	10.6	0.99
SMT	0.0718	9.7	0.99
STZ	0.0700	9.9	1.00
SMX	0.0468	14.8	1.02

4. 결론

생물활성탄 공정에서 활성탄 재질별로 EBCT 및 수온 변화에 따른 sulfonamide계 항생물질 5종의 생물분해 특성을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

생물활성탄 재질별 유입수의 수온 25℃에서 EBCT 변화에 따른 생물분해율을 평가한 결과, 석탄계 재질의 생물활성탄은 EBCT 5~20분에서 18~82%, 야자계나 목탄계의 경우는 11~67% 및 4~56%로 나타나 석탄계 재질의 생물활성탄에서 가장 높은 생물분해능을 나타내었다.

Sulfonamide계 5종에 대한 물질별 생분해능을 평가한 결과, 석탄계 재질의 생물활성탄에서 5~20분의 EBCT에서 SCP, SMT 및 STZ는 30~80%, SDM과 SMX는 18~70% 정도의 생분해율을 나타내어 SDM과 SMX가 다른 3종 보다는 생물분해능이 낮은 것으로 나타났다.

유입수의 수온 상승에 따라 동일한 EBCT 조건에서 생물분해율의 크게 증가하였고, 유입수의 수온이 5℃일 경우 sulfonamide계 5종에 대한 생물분해 속도상수는 0.0094~0.0118 min⁻¹, 반감기는 58.7~73.7분으로 나타났으며, 수온이 15℃ 및 25℃일 경우는 생물분해 속도상수가 0.0307~0.0397 min⁻¹ 및 0.0468~0.0718 min⁻¹로 나타났고, 반감기는 17.5~22.6분 및 9.7~14.8분으로 나타났다. 유입수의 수온이 5℃에서 15℃로 상승할 경우 sulfonamide계 5종에 대한 생물분해 속도상수는 3.2~3.8배 정도 증가하였으며, 수온이 15℃에서 25℃로 상승할 경우는 1.5~1.9배 정도 증가하는 것으로 나타났다.

참고문헌

1. Daughton, C. G. and Ternes, T. A., "Pharmaceuticals and personal care products in the environment: agents of subtle change?," *Environ. Health Perspect.*, **107**, 907~942(1999).
2. Halling-Sorensen, B., Nielson, S. N., Lanzky, P. E., and Ingerslev, L. F., "Occurrence, fate and effects of pharmaceutical substances in the environment—a review," *Chemosphere*, **36**(2), 357~393(1998).
3. Hileman, B., "Troubled waters: EPA, USGS try to quantify prevalence, risks of compounds from drugs, personal care products," *Chem. Eng. News*, **79**, 31~33(2001).
4. Heberer, T., "Occurrence, fate and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: a review of recent research data," *Toxicol. Lett.*, **131**, 5~17(2002).
5. Boxall, A. B. A., Kolpin, D., Halling-Sorensen, B., and Tolls, J., "Are veterinary medicines causing environmental risks," *Environ. Sci. Technol.*, **36**, 286~294(2003).
6. Wollenberger, L., Halling-Sorensen, B., and Kusk, K. O., "Acute and chronic toxicity of veterinary antibiotics to *Daphnia magna*," *Chemosphere*, **40**(7), 723~730(2000).
7. Chee-Sanford, J. C., Aminov, R. I., Krapac, I. J., Garri-

- gues-Jeanjean, N., and Mackie, R. I., "Occurrence and diversity of tetracycline resistance genes in lagoons and groundwater underlying two swine production facilities," *Appl. Environ. Microbiol.*, **67**, 1494~1502(2001).
8. Kümmerer, K., "Significance of antibiotics in the environment," *J. Antimicrobial Chemotherapy*, **52**, 5~7(2003).
9. 정석찬, 축산용 항생제 관리시스템 구축, 국가 항생제 내성안전관리 사업연구보고서, 식약청(2003).
10. Stumpf, M., Ternes, T. A., Wilken, R. D., Rodrigues, S. V., and Baumann, W., "Polar drug residues in sewage and natural waters in the state of Rio de Janeiro, Brazil," *Sci. Total Environ.*, **225**, 135~141(1999).
11. Choi, K. J., Kim, S. G., Kim, C. W., and Kim, S. H., "Determination of antibiotic compounds in water by on-line SPE-LC/MSD," *Chemosphere*, **66**, 977~984(2007).
12. Rooklidge, S., Miner, R., Kassim, T., and Nelson, P., "Antimicrobial contaminant removal by multistage slow sand filtration," *J. AWWA*, **97**(12), 92~100(2005).
13. Choi, K. J., Kim, S. G., and Kim, S. H., "Removal of antibiotics by coagulation and granular activated carbon filtration," *J. Hazard. Mater.*, **151**(1), 38~43(2007).
14. 손희중, 정종문, 노재순, 유평중, "GAC 공정에서의 sulfonamide계 항생물질 흡착특성," *대한환경공학회지*, **30**(4), 401~408(2008).
15. Kim, S. D., Cho, J., Kim, I. S., Vanderford, B., and Snyder, S., "Occurrence and removal of pharmaceuticals and endocrine disruptors in South Korean surface, drinking, and waste waters," *Water Res.*, **41**, 1013~1021(2007).
16. Andreozzi, R., Canterino, M., Marotta, R., and Paxeus, N., "Antibiotic removal from wastewater: the ozonation of amoxicillin," *J. Hazard. Mater.*, **122**, 243~250(2005).
17. Huber, M. M., Korhonen, S., Ternes, T. A., and von Gunten, U., "Oxidation of pharmaceuticals during water treatment with chlorine dioxide," *Water Res.*, **39**, 3607~3617(2005).
18. Snyder, S., Adham, S., Redding, A., Cannon, F., DeCarolis, J., Oppenheimer, J., Wert, E., and Yoon, Y., "Role of membranes and activated carbon in the removal of endocrine disruptors and pharmaceuticals," *Desalination*, **202**, 156~181(2007).
19. Choi, K. J., Kim, S. G., Son, H. J., Roh, J. S., Yoo, P. J., and Kim, S. H., "Comparison of oxidation methods and GAC adsorption in antibiotics removal," Proceedings of 4th IWA Conference on Oxidation Technologies for Water & Wastewater Treatment, Goslar, Germany(2006).
20. Yang, S. H. and Carlson, K., "Evolution of antibiotic occurrence in a river through pristine, urban and agricultural landscapes," *Water Res.*, **37**, 4645~4656(2003).
21. 손희중, 류동춘, 김영웅, "회전 드럼형 광촉매 산화장치를 이용한 비스페놀-A 제거," *한국화학공학회지*, **39**(4), 493~500(2001).