

## GAC 공정에서의 Sulfonamide계 항생물질 흡착특성

손희종<sup>†</sup> · 정종문 · 노재순 · 유평중

부산광역시 상수도사업본부 수질연구소

(2008년 2월 1일 접수, 2008년 3월 10일 채택)

### Adsorption Characteristics of Sulfonamide Antibiotic Compounds in GAC Process

Hee-Jong Son<sup>†</sup> · Jong-Moon Jung · Jae-Soon Roh · Pyung-Jong Yu

Water Quality Institute, Busan Water Authority

**ABSTRACT** : Adsorption performance of sulfonamide antibiotic compounds such as sulfadimethoxine(SDM), sulfachloropyridazine(SCP), sulfamethazine(SMT), sulfathiazole(STZ) and sulfamethoxazole(SMX) on granular activated carbon(GAC) was evaluated in this study. The coal-based activated carbon was found to be more effective than other carbons in adsorption of sulfonamide antibiotic compounds. The wood-based activated carbon was less effective than coconut- and coal-based carbon in adsorption nevertheless having larger pore volume and specific surface area than others carbons. The maximum adsorption capacities(X/M) of coal-based activated carbon for the five sulfonamide species was 1.3~1.5 and 1.8~2.1 times larger than coconut- and wood-based activated carbon, respectively. Carbon usage rates (CUR) of coal-, coconut- and wood-based activated carbons for SCP were 3.55 g/day, 4.29 g/day and 6.47 g/day, respectively. Similar results were obtained in the adsorption of the rest four sulfonamide species. It is concluded that coal-based activated carbon could removed the sulfonamide antibiotic compounds better than other material-based activated carbons.

**Key Words** : Activated Carbon, Sulfonamide Antibiotic Compounds, Adsorption, Continuous Column Adsorption Test

**요약** : 입상활성탄 재질별 신탄에서의 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 과과특성의 경우 석탄계 활성탄이 가장 늦게 과과에 도달하였으며, 다음으로 아자계, 목탄계 순으로 조사되었다. 또한, 물질별 활성탄에서의 과과특성을 살펴보면 sulfachloropyridazine(SCP)의 과과시점이 가장 늦은 것으로 나타났으며, 다음으로 sulfathiazole(STZ), sulfadimethoxine(SDM), sulfamethazine(SMT), sulfamethoxazole(SMX)로 나타났다. 활성탄 g당 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 최대 흡착량(X/M)은 석탄계 활성탄이 가장 높은 것으로 나타났으며, 다음으로 아자계와 목탄계 순으로 나타났다. sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 석탄계 활성탄의 최대 흡착량(X/M)은 아자계와 목탄계 활성탄에 비해 각각 1.3~1.5배 및 1.8~2.1배 정도 높은 것으로 조사되었다. 활성탄에서의 흡착용량을 나타내는 k값의 경우 활성탄 재질별로는 석탄계 활성탄이 가장 크게 나타났으며, 다음으로 아자계, 목탄계 활성탄 순으로 조사되어 석탄계 활성탄이 각각의 sulfonamide계 항생물질들에 대해 가장 큰 흡착용량을 가지는 것으로 조사되었다. 또한, 5종의 sulfonamide계 항생물질별로는 SCP가 전반적으로 다른 sulfonamide계 항생물질 4종에 비해 활성탄 재질별로 가장 큰 k값을 나타내었으며, 다음으로 STZ, SDM, SMT, SMX 순의 경향을 나타내었다. 활성탄 사용율(carbon usage rate, CUR)은 SCP의 경우 석탄계 재질의 활성탄이 3.55 g/일, 아자계나 목탄계 활성탄은 각각 4.29 g/day 및 6.47 g/day의 활성탄을 사용하여야만 제거가 가능한 것으로 조사되어 석탄계 활성탄이 다른 재질의 활성탄들에 비해 적은 양으로도 sulfonamide계 항생물질을 제거할 수 있는 것으로 나타났으며, 나머지 sulfonamide계 항생물질 4종에서도 이와 유사한 결과를 나타내었다.

**주제어** : 활성탄, 슬폰아마이드계 항생물질, 흡착, 연속 컬럼흡착 실험

### 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 자체의 독성

뿐만 아니라 인간과 환경을 위협하는 항생물질에 강한 내성을 가진 병원균들의 출현에 기여하였다.<sup>1~7)</sup>

전 세계적으로 항생물질의 사용량은 2003년도에 100,000~200,000톤 정도로 알려져 있으며,<sup>8)</sup> 국내의 경우 수산업 및 축산업에 이용된 항생제 사용량이 2003년 1,460톤으로 보고되고 있다.<sup>9)</sup>

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.<sup>10)</sup>

Choi 등의 연구<sup>11)</sup>에서 낙동강 부근에 위치한 하수처리장(activated sludge 공정)과 축산폐수 처리장(A<sub>2</sub>O 공정)의 2

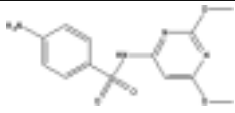
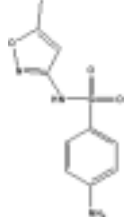
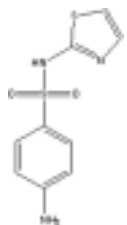
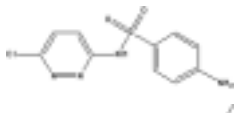
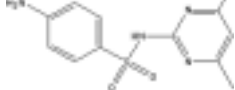
<sup>†</sup> Corresponding author

E-mail: menuturk@hanmail.net

Tel: 055-323-4718

Fax: 055-323-4719

**Table 1.** Characteristics of sulfonamides 5 species

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

차 처리수에서 tetracycline계와 sulfonamide계 항생물질이 검출되었다고 보고하고 있으며, 검출농도는 축산폐수 처리장의 2차 처리수에서 chlortetracycline이 90.9 µg/L, oxytetracycline이 6.53 µg/L 및 sulfathiazole이 4.27 µg/L로 검출되었다고 보고하였다.

본 연구에서는 입상활성탄(granular activated carbon, GAC) 흡착공정에서의 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 활성탄 흡착 특성을 살펴보기 위하여 석탄계, 야자계 및 목탄계 재질의 활성탄 신탄을 사용하였으며, 실제 정수장의 활성탄 흡착조의 운전조건과 동일한 조건으로 실험을 수행하기 위해 정수장의 활성탄 흡착조로 유입되는 유입수와 거의 유사한 성상을 지닌 시료수를 유입수로 사용하였다. 따라서 정수장에서 sulfonamide계 항생물질 5종의 제어를 위하여 실제 활성탄 필요량을 산정하는데 기초자료를 제공할 것으로 기대가 되며, 항생물질 제어를 위한 GAC 공정의 설계 및 운전 자료로 사용하고자 하였다.

## 2. 실험재료 및 방법

### 2.1. 실험 재료

#### 2.1.1. 항생물질

본 실험에 사용된 항생물질은 sulfonamide계 5종으로 sulfadimethoxine(SDM), sulfachloropyridazine(SCP), sulfamethazine(SMT), sulfathiazole(STZ), sulfamethoxazole(SMX)이

며, 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 전염소 처리 공정인 배제된 300 m<sup>3</sup>/일 규모의 고도정수처리용 파일롯트 플랜트의 최종 처리수를 사용하였다. 고도정수처리 공정은 오존/생물활성탄 공정을 갖추고 있다. 최종 처리수에 SDM, SCP, SMT, STZ, SMX 5종을 투입하여 유입되는 각각의 성분 농도가 20 µg/L가 되도록 하였다. 증류수가 아닌 수중에 DOC가 잔존하는 물을 유입수로 사용한 이유는 실제로 정수장에서의 활성탄 흡착조의 운전조건과 유사하게 만들기 위해서이며, 실험에 사용된 시료수의 특성을 Table 2에 나타내었다. 최종처리수의 성상은 DOC 농도가 0.9~1.1 mg/L, UV<sub>254</sub>는 0.008~0.012 cm<sup>-1</sup>로 조사되어 낙동강 원수를 정수 처리하는 정수장의 활성탄 접촉조 유입수의 특성과 거의 유사하였다.

**Table 2.** Characteristics of influent water

Parameters	pH	Turbidity	Alkalinity	DOC	UV <sub>254</sub>	Temp.
	(-)	(NTU)	(mg/L)	(mg/L)	(cm <sup>-1</sup> )	(°C)
Value	7.0~7.3	0.04~0.08	31~47	0.9~1.1	0.008~0.012	4~29

2.1.3. 입상활성탄 성상

본 실험에서는 석탄계 재질(coal-based)의 활성탄(F400, Calgon), 야자계 재질(coconut-based)의 활성탄(1급, Samchully), 목탄계 재질(wood-based)의 활성탄(pica, Picabiol) 신탄을 이용하였다.

활성탄 신탄들은 실험에 들어가기 전에 증류수로 충분히 세척하여 미탄들과 이물질들을 제거한 후 실온에서 7일간 건조시킨 다음 105℃의 건조기에서 3일간 건조시켜 실험에 사용하였다. 실험에 사용된 활성탄의 세공용적과 비표면적은 활성탄 세공용적 측정기(AUTOSORB-1 MP, Quantachrome, U.S.A.)로 측정하였고, 그 밖의 일반적인 물성치 실험은 KSI 규격<sup>12)</sup>과 수처리제 기준<sup>13)</sup>에 준하여 분석하였다. Table 3에 각 활성탄들의 물성치를 나타내었다. 신탄들의 비표면적 및 세공용적을 비교해보면 목탄계(pica)가 비표면적 1,610 m<sup>2</sup>/g으로 가장 높았고, 석탄계(F-400)가 1,050 m<sup>2</sup>/g으로 가장 낮았으며, 세공용적은 목탄계가 1.12 cm<sup>3</sup>/g으로 가장 큰 세공용적을 가졌고, 야자계(samchully)가 0.527 cm<sup>3</sup>/g으로 가장 적었다.

2.2. 실험방법

2.2.1. 입상활성탄 연속 흡착

Table 3. The physical characteristics of virgin and used activated carbons

Species	Case	Coal	Coconut	Wood
		(calgon F-400)	(samchully)	(pica)
		virgin	virgin	virgin
Bed volume used	(-)	0	0	0
Apparent density	(g/L)	400	360	230
Specific surface area	(m <sup>2</sup> /g)	1100	1260	1610
Total pore volume	(cm <sup>3</sup> /g)	0.639	0.527	1.12

본 실험에 사용된 pilot-plant 활성탄 접촉조는 아크릴 재질로 내경 5 cm, 총 길이 200 cm, 층고 100 cm이며, 각각의 pilot-plant 컬럼 세트에 고농도 sulfonamide계 5종의 조제수가 유입되어 혼합조에서 300 m<sup>3</sup>/일 처리규모의 pilot-plant 최종처리수와 혼합된 후 각각의 활성탄 접촉조로 유입되기 전의 각각의 sulfonamide계 5종의 농도가 20 µg/L가 되도록 설계하였다. 접촉조의 운전은 하향류식으로 공탑체류시간(empty bed contact time, EBCT)은 10분, 선속도(linear velocity, LV) 6.1 m/hr로 고정하여 운전하였고, 역세척은 잔류염소가 존재하지 않는 물로 주 1회 실시하였으며, 활성탄 접촉조의 상세한 설계인자를 Fig. 1에 나타내었다.

2.2.2. 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% Na<sub>2</sub>EDTA를 4 mL 첨가하였다.<sup>14)</sup> Na<sub>2</sub>EDTA 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.<sup>14)</sup>

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, Zyma, U.S.A.)를 이용하여 1 mL로 농축하여 LC/MSD로 분석하였다.

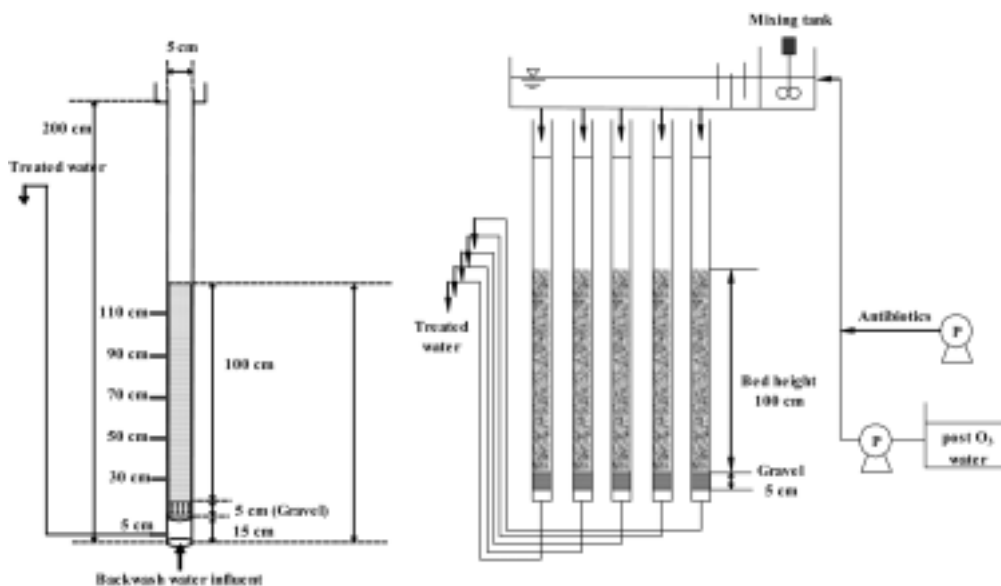


Fig. 1. Schematic diagram of continuous adsorption column.

**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

Liquid chromatography/Mass Selective Detector(LC/MSD)는 Agilent 1100 SL(Agilent 1100 SL, Agilent, U.S.A.)로서 diode array detector(DAD)가 장착되어 있으며, DAD의 UV 파장은 260 nm를 사용하였다.<sup>14)</sup> 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]<sup>+</sup>만을 추출해 내는 EIC(extracted ion chromatogram) 모드로 정량하였으며, 각각의 protonated molecular ion은 SDM, SCP, SMT, STZ, SMX 순으로 311, 285, 279, 256, 254이다.<sup>11)</sup>

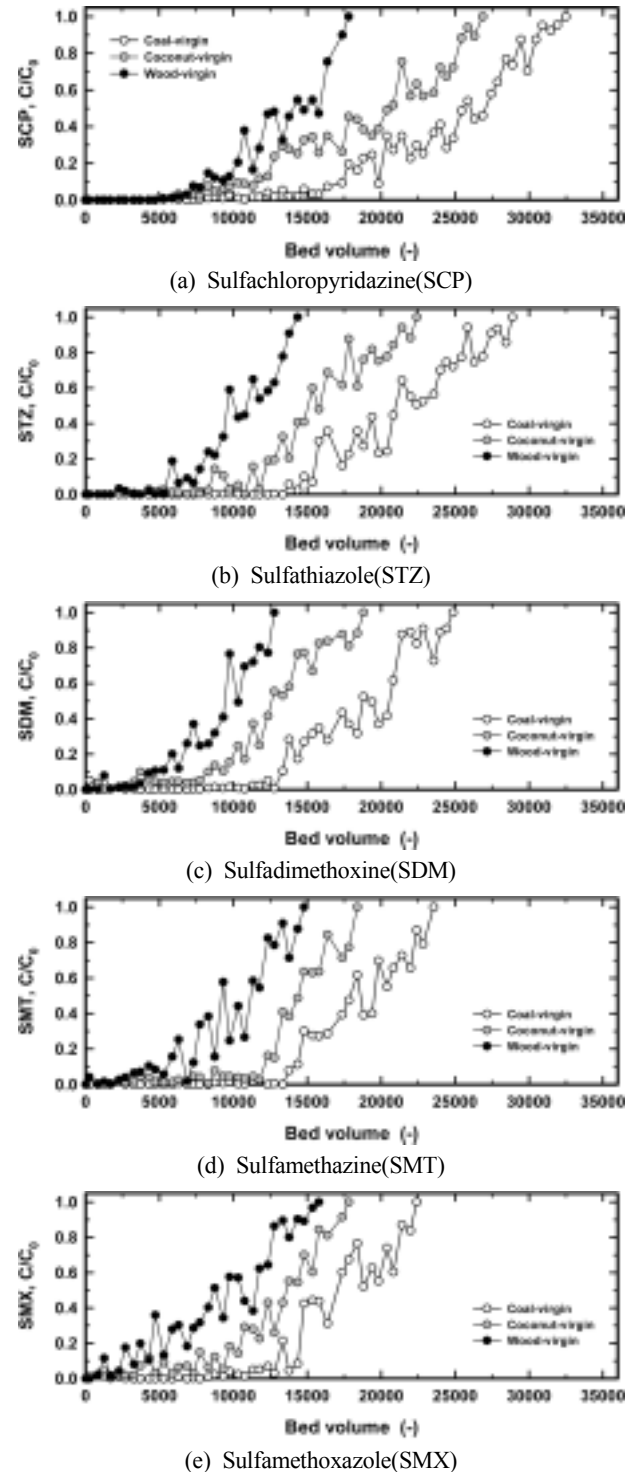
### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1. 활성탄 재질별 Sulfonamide계 항생물질 5종의 파과특성

입상활성탄 재질별 신탄에서의 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 파과곡선을 Fig. 2에 나타내었다. Fig. 2(a)에 나타낸 SCP의 파과곡선을 살펴보면 목탄계 활성탄이 bed volume(BV) 17805에 파과에 도달하였으며, 야자계 및 석탄계 활성탄의 경우는 파과시점이 BV 26866 및 32474로 나타나 석탄계 활성탄이 SCP에 대해 비교적 높은 흡착능을 가지는 것으로 나타났으며, 다음으로 야자계, 목탄계 활성탄 순으로 조사되었다. Fig. 2(b)~(e)에 나타낸 STZ, SDM, SMT, SMX의 파과곡선들에서도 Fig. 2(a)에 나타낸 SCP의 파과곡선에서와 같이 석탄계 활성탄이 가장 늦게 파과에 도달하였으며, 다음으로 야자계, 목탄계 순으로 조사되었다.

Sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 물질별 활성탄에서의 파과특성을 살펴보면 SCP의 파과시점이 가장 늦은 것으로 나타났으며, 다음으로 STZ, SDM, SMT, SMX로 나타났다. 파과가 늦게 진행이 된다는 것은 활성탄에 쉽게 흡착되어 활성탄에서의 흡착용량이 크다는 것을 간접적으로 확인할 수 있는 지표이며, 각각의 물질에 대한 활성탄 재질별로 파과에 도달하는 BV를 Table 5에 나타내었다.

일반적으로 Sulfonamide계 항생물질들은 기본적인 슬파민 구조에 S, Cl, O 등의 치환기가 결합되어 있는 형태에 따라 분류되며, 활성탄 처리에 의해서는 이들 치환기중 방향족 고리에 Cl기가 결합되어 있거나 sulfur를 고리내부에 가지고 있는 SCP와 STZ가 활성탄 흡착 공정에서 다른 물질들에 비해 흡착에 유리한 것으로 나타나고 있다.



**Fig. 2.** Sulfonamide antibiotic compounds breakthrough curves for various virgin GACs.

**Table 5.**  $BV_{breakthrough}$  of sulfonamide antibiotic compounds in continuous column adsorption test

Item	SCP			STZ			SDM			SMT			SMX		
	coal	coconut	wood	coal	coconut	wood	coal	coconut	wood	coal	coconut	wood	coal	coconut	wood
$BV_{breakthrough}$	32474	26866	17805	28879	22407	14353	24852	18812	12771	23558	18380	14785	22407	17805	15791

Sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 흡착능을 평가하기 위하여 각각의 활성탄 재질별 신탄들의 파괴시점( $BV$ )까지의 유입농도와 유출농도를 가지고, 식 (1)에 나타난 Freundlich 등온흡착식을 이용하여  $X/M$ 과  $C_e$ 를 구하여 그 결과를 Fig. 3에 나타내었고, 이를 회귀분석하여  $k$ 와  $1/n$ 을 구하였다.

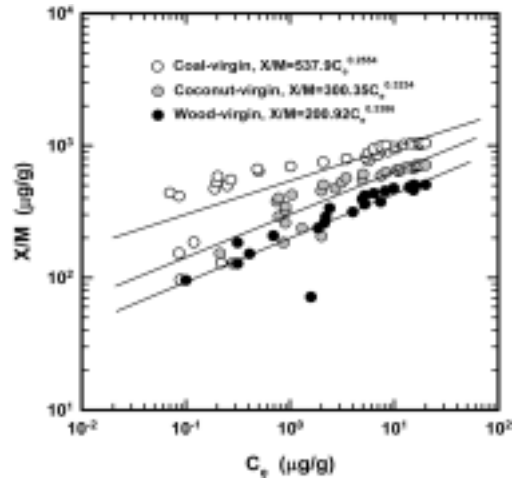
$$X/M = k \cdot C_e^{1/n} \quad (1)$$

$X$  = the amount of solute adsorbed( $\mu\text{g}$ )

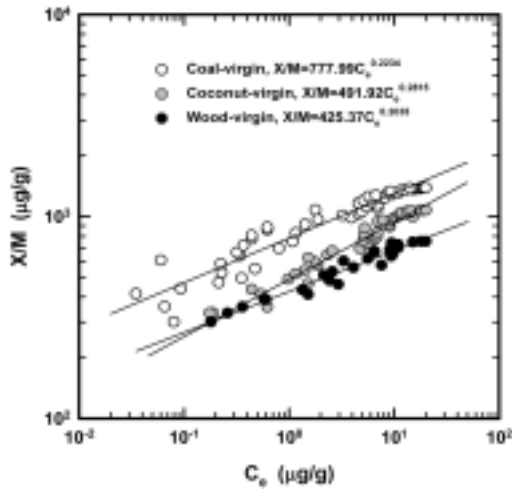
$M$  = the weight of adsorbent(g)

$C_e$  = the solute equilibrium concentration( $\mu\text{g/L}$ )

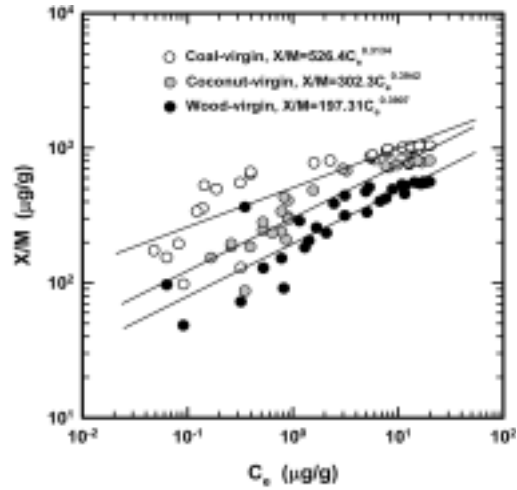
$k, 1/n$  = constants characteristic of the system



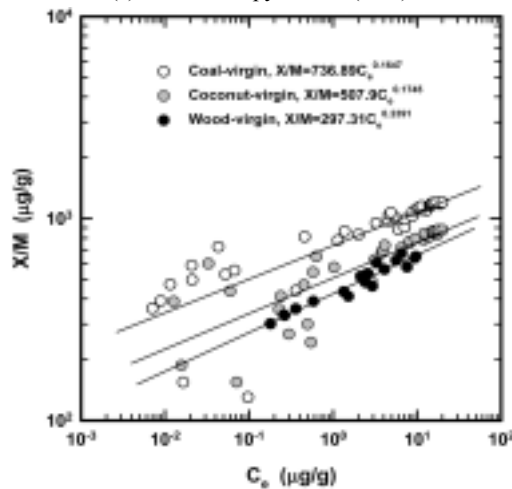
(c) sulfadimethoxine(SDM)



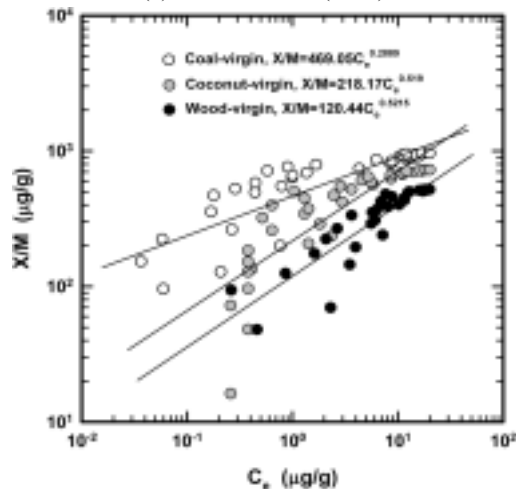
(a) sulfachloropyridazine(SCP)



(d) sulfamethazine(SMT)



(b) sulfathiazole(STZ)



(e) sulfamethoxazole(SMX)

**Fig. 3.** Adsorption isotherm of sulfonamide antibiotic compounds for various virgin GACs.

3.2. 입상활성탄 수명과 활성탄 사용율

Sulfonamide계 항생물질 5종에 대하여 실험에 사용된 활성탄 신탄들의 흡착용량(adsorption capacity)을 평가하기 위하여 Snoeyink의 연구<sup>15)</sup>에서 사용한 활성탄 사용율(carbon usage rate: CUR)과 활성탄 수명.bed life: Y)에 관한 식(2), (3)을 사용하였다.

$$CUR(g/day) = \frac{(C_0 - C_1)F}{(q_e)_0} \quad (2)$$

- C<sub>e</sub> = equilibrium concentration(μg/L)
- C<sub>0</sub> = influent concentration(μg/L)
- C<sub>1</sub> = desired effluent concentration(μg/L)
- F = volumetric flowrate of contaminated liquid treated(L/day)
- (q<sub>e</sub>)<sub>0</sub> = amount adsorbed per unit mass of carbon at C<sub>0</sub>

$$Y(day) = (V) \cdot \rho_{GAC} \frac{(q_e)_0}{(C_0 - C_1)F} = \frac{(V) \cdot \rho_{GAC}}{CUR} \quad (3)$$

- V : volume of adsorber(L)
- ρ<sub>GAC</sub> : apparent density(g/L)

식 (3)은 C<sub>e</sub> = C<sub>0</sub>를 가정할 때 구해지며, (q<sub>e</sub>)<sub>0</sub>를 구하기 위해서 식 (1)에서 구한 sulfonamide계 항생물질 5종 각각에 대한 활성탄 종류별 k와 1/n을 적용하였다. 일반적으로 평형 흡착실험은 분말활성탄(powder activated carbon, PAC)을 이용하여 batch식으로 수행하는 것이지만 이러한 조건은 실제 정수장의 활성탄 흡착조에서 활성탄과 물과의 접촉면적과 흡착시간과 같은 흡착조건이 크게 바뀐 상태이고, 또한 모든 활성탄이 평형상태를 이루지 않는 실제 정수장에서 그 값의 적용은 큰 차이가 있을 수 있다. 따라서 본 연구에서는 식 (2)를 연속칼럼에서의 파라미터를 적용하기 위하여 식 (4)로 변형하였다.<sup>16)</sup>

$$CUR(g/day) = \frac{\rho_{GAC} \cdot F}{BV_{breakthrough}} \quad (4)$$

- F = volumetric flowrate of contaminated liquid treated(L/day)
- BV<sub>breakthrough</sub> : bed volumes to breakthrough [-]

CUR의 계산은 식 (2), (4) 모두 사용이 가능하며, (q<sub>e</sub>)<sub>0</sub> 또는 BV<sub>breakthrough</sub> 값은 연속칼럼 흡착실험에서 파과 직전까지의 결과를 사용하여 k와 1/n을 도출하였고, CUR과 bed life는 파과시점의 bed volume을 이용하여 식 (4)에서 도출하였다. 이렇게 도출된 k, 1/n, CUR 및 bed life와 같은 흡착특성을 파악할 수 있는 지표들을 Table 6에 나타내었다.

활성탄 g당 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 최대 흡착량(X/M)은 석탄계 활성탄이 가장 높은 것으로 나타났으며, 다음으로 야자계와 목탄계 순으로 나타났다. 야자계와 목탄계 활성탄의 최대 흡착량(X/M)에 대한 석탄계 활성탄의 최대 흡착량(X/M)은 SCP의 경우 석탄계 활성탄이 야자계와 목탄계 활성탄에 비해 1.3배 및 1.8배 정도 높은 것으로 나타났으며, STZ의 경우는 1.4배 및 2.1배, SDM의 경우는 1.5배 및 2.1배, SMT의 경우는 1.3배 및 1.9배, SMX의 경우는 1.3배 및 1.9배 정도 높은 것으로 나타났다.

활성탄 사용율(CUR)은 정수장의 활성탄 흡착조 운전조건이 본 연구에서의 조건과 같고, 유입수에 함유되어 있는 sulfonamide계 항생물질의 농도가 20 μg/L일 경우, SCP에 대한 석탄계 활성탄의 CUR은 3.55 g/일로 나타나 하루에 3.55 g의 활성탄을 사용하여 SCP의 제어가 가능한 것으로 조사되었으며, SCP에 대한 야자계 및 목탄계 활성탄의 CUR은 4.29 g/L 및 6.47 g/L로 나타나 석탄계 활성탄을 사용하였을 경우 보다 1.2배 및 1.8배 정도 활성탄의 소모율이 높은 것으로 나타났다. 이러한 경향은 나머지 sulfonamide계 항생물질 4종에서도 유사한 결과를 보여주고 있어 석탄계 활성탄이 다른 재질의 활성탄들에 비해 적은 양으로도 sulfonamide계 항생물질을 제어할 수 있는 것으로 나타났다.

활성탄에서의 흡착용량을 나타내는 k값의 경우 활성탄 재질별로는 석탄계 활성탄이 가장 크게 나타나고 있으며, 다음으로 야자계, 목탄계 활성탄 순으로 조사되어 석탄계 활성탄이 각각의 sulfonamide계 항생물질들에 대해 가장 큰 흡착용량을 가지는 것으로 조사되었다. 또한, 실험에 사용한 5종의 sulfonamide계 항생물질별로는 SCP가 전반적으로 다른 sulfonamide계 항생물질 4종에 비해 활성탄 재질별로 가장 큰 k값을 나타내었으며, 다음으로 STZ, SDM, SMT, SMX 순의 경향을 나타내었다.

목탄계 활성탄의 경우는 실험에 사용된 활성탄들 중에서 세공용적과 비표면적이 가장 높게 나타났으나 sulfonamide

Table 6. Adsorption capacity data of sulfonamide antibiotic compounds in continuous column adsorption test

Item	Unit	SCP			STZ			SDM			SMT			SMX		
		coal	coconut	wood	coal	coconut	wood	coal	coconut	wood	coal	coconut	wood	coal	coconut	wood
X/M	(μg/g)	1390	1078	754	1202	878	584	1043	712	504	1041	806	562	962	725	519
Bed life	(day)	226	187	124	201	156	100	173	131	89	164	128	103	156	124	110
CUR	(g/day)	3.55	4.29	6.47	3.99	5.14	8.02	4.64	6.12	9.02	4.89	6.26	7.79	5.14	6.47	7.30
k	[(ng/g)(L/ng) <sup>1/n</sup> ]	778.0	491.9	425.4	736.9	507.9	297.3	537.9	300.4	200.9	526.4	302.3	197.3	469.1	218.2	120.4
1/n	(-)	0.223	0.282	0.204	0.165	0.175	0.239	0.255	0.323	0.339	0.313	0.394	0.391	0.289	0.519	0.522

계 항생물질 5종에 대한 흡착능은 다른 재질의 활성탄에 비해 낮게 나타났다. 이는 수중의 유기물질이 가지는 전하(charge)와 활성탄 세공의 표면전하와 밀접한 관련이 있는 것으로 Bjelopavlic 등<sup>17)</sup>은 목탄계 활성탄은 수중의 pH가 7 부근에서는 음전하를 가지는 것으로 보고하고 있으며, 야자계나 석탄계 활성탄의 경우는 pH 7 부근에서는 표면전하가 중성인 것으로 보고하고 있다. 또한, Qiang 등의 연구<sup>18)</sup>에서는 sulfonamide계 항생물질의 경우 pH 7 부근에서 음이온 상태 혹은 쌍성이온(zwitterionic) 상태로 존재하고 있다고 보고하고 있다. 따라서 pH 7 부근에서 음이온 상태인 sulfonamide계 항생물질들은 pH 7 부근에서 표면전하가 음전하를 가지는 목탄계 활성탄에서 활성탄 표면과 sulfonamide계 항생물질과의 반발력으로 인하여 흡착능이 매우 낮게 나타나는 것으로 판단되었다.

#### 4. 결론

활성탄 재질별 신탄에서의 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 흡착 특성을 조사한 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1) 입상활성탄 재질별 신탄에서의 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 파과특성의 경우 석탄계 활성탄이 가장 늦게 파과에 도달하였으며, 다음으로 야자계, 목탄계 순으로 조사되었다. 또한, 물질별 활성탄에서의 파과특성을 살펴보면 SCP의 파과시점이 가장 늦은 것으로 나타났으며, 다음으로 STZ, SDM, SMT, SMX로 나타났다.

2) 활성탄 g당 sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 최대 흡착량(X/M)은 석탄계 활성탄이 가장 높은 것으로 나타났으며, 다음으로 야자계와 목탄계 순으로 나타났다. sulfonamide계 항생물질 5종에 대한 석탄계 활성탄의 최대 흡착량(X/M)은 야자계와 목탄계 활성탄에 비해 각각 1.3~1.5배 및 1.8~2.1배 정도 높은 것으로 조사되었다.

3) 활성탄에서의 흡착용량을 나타내는 k값의 경우 활성탄 재질별로는 석탄계 활성탄이 가장 크게 나타났으며, 다음으로 야자계, 목탄계 활성탄 순으로 조사되어 석탄계 활성탄이 각각의 sulfonamide계 항생물질들에 대해 가장 큰 흡착용량을 가지는 것으로 조사되었다. 또한, 5종의 sulfonamide계 항생물질별로는 SCP가 전반적으로 다른 sulfonamide계 항생물질 4종에 비해 활성탄 재질별로 가장 큰 k값을 나타내었으며, 다음으로 STZ, SDM, SMT, SMX 순의 경향을 나타내었다.

4) 활성탄 사용율(CUR)은 SCP의 경우 석탄계 재질의 활성탄이 3.55 g/일, 야자계나 목탄계 활성탄은 각각 4.29 g/day 및 6.47 g/day의 활성탄을 사용하여야만 제거가 가능한 것으로 조사되어 석탄계 활성탄이 다른 재질의 활성탄들에 비해 적은 양으로도 sulfonamide계 항생물질을 제거할 수 있는 것으로 나타났으며, 나머지 sulfonamide계 항생물질 4종에서도 이와 유사한 결과를 나타내었다.

#### 참고 문헌

- 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).
- 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).
- 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).
- 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).
- 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).
- 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).
- Chee-Sanford, J. C., Aminov, R. I., Krapac, I. J., Garrigues-Jeanjean, N., and Mackie, R. I., "Occurrence and diversity of tetracycline resistance genes in lagoons and ground-water underlying two swine production facilities," *Appl. Environ. Microbiol.*, **67**, 1494~1502(2001).
- Kümmerer, K., "Significance of antibiotics in the environment," *J. Antimicrob. Chemother.*, **52**, 5~7(2003).
- 정석찬, 축산용 항생제 관리시스템 구축, 국가 항생제 내성안전관리 사업연구보고서, 식약청(2003).
- 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).
- Choi, K. J., Kim, S. G., Kim, C. W., and Kim, S. H., "Determination of antibiotic compounds in water by on-line," *Chemosphere*, **66**, 977~984(2007).
- 한국표준협회, KS 활성탄 시험방법, KS M 1802(1998).
- 환경부, 수처리제의 기준과 규격 및 표시기준, 환경부 고시 제1999-173호(1999).
- 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).
- Snoeyink, V. L., Adsorption of organic compounds, In *Water Quality and Treatment: a Handbook of Community Water Supplies*, 4th Ed., Edited by Pontius, F. W., McGraw-Hill Inc., New York, pp. 781~855(1990).
- Choi, K. J., Kim, S. G., Kim, C. W., and Kim, S. H., "Effects of activated carbon types and service life on

- removal of endocrine disrupting chemicals: amitrol, nonylphenol, and bisphenol-A," *Chemosphere*, **58**(11), 1535~1545(2005).
17. Bjelopavlic, M., Newcombe, G., and Hayes, R., "Adsorption of NOM onto activated carbon: effect of surface charge, ion strength and pore volume distribution," *J. Colloid and Interface Science*, **210**, 271~280(1999).
18. Qiang, Z. H. and Adams, C., "Potentiometric determination of acid dissociation constant(pKa) for human and veterinary antibiotics," *Water Res.*, **38**, 2874~2890(2004).