



방사선으로 처리된 항생물질의 수서 생태위해성 평가

A study on the aquatic eco-risk assessment of antibiotics treated by radiation

강선홍¹ · 장재구¹ · 가순규^{2*} · 김현영³ · 김상돈³ · 이면주⁴

Seon-Hong Kang¹ · Jae-Goo Chang¹ · Soon-Kyu Ka^{2*} · Hyun Young Kim³ · Sang Don Kim³ · Myun Joo Lee⁴

1 광운대학교 환경공학과 · 2 한국환경산업기술원 · 3 광주과학기술원 · 4 한국원자력연구원

(2012년 3월7일 접수; 2012년 5월17일 수정; 2012년 5월21일 채택)

Abstract

Antibiotics have been issued recently in water environments because of potential impacts on ecosystem and public health. This study was aimed to investigating the degradation of antibiotics such as tetracycline, lincomycin, sulfamethazine and cephadrine using gamma ray irradiation. And the toxicity before and after irradiation on antibiotics was tested in order to examine the aquatic eco-risk assessment by aquatic organisms. In addition, comparing tests on toxicity for gamma ray and UV irradiated antibiotics was conducted. Four different antibiotics were prepared by concentration of 30 mg/L with demi-water respectively. The absorption dose of gamma ray was ranged from 0.2 to 2 kGy. The concentration of four antibiotics was gradually decreased corresponding to the increase of the absorption dose. A method for toxicity assessment using *Pseudokirchneriella subcapitata* was evaluated to the most acceptable compared with methods by *Daphnia magna* and Microtox[®] in terms of sensibility. It showed that the reduction of toxicity on antibiotics treated by gamma ray was superior comparing to the test results obtained from UV treatment. By-products from antibiotics treated by gamma ray were easily decomposed by microorganism and their toxicity was also evaluated to low.

Key words : Antibiotics, Gamma ray irradiation, Decomposition, Toxicity, Eco-system

주제어: 항생물질, 감마선 조사, 분해, 독성, 생태계

1. 서론

항생제 및 의약품은 현대 생활에서 없어서는 안 될 필수품으로 인체에는 물론 가축, 식물, 물고기의 양식 등에 다양하게 이용되고 있다. 따라서 이들이 환경 중으로 노출되는 경로도 매우 다양하다. 인체에 사용되는 의약품은 대부분이 노나 대변을 통해 배출되는 것으로 알려져 있다. 일부 항생제의 경우에는 투여용량의 80~90%가 노를 통

해 활성물질, 대사산물, 중합체의 형태로 배출된다. 이러한 항생제들은 약리작용을 위해 잘 분해되지 않지만 물에는 잘 녹는 형태로 이루어져 있다. 따라서 노를 통해 배출된 항생제는 하수처리 공정을 거친다 하더라도 완전히 분해 제거되지 못하고 활성을 띤 형태로 수계에 배출되게 된다. 이렇게 자연 생태계에 노출된 의약품은 짧게는 1.5일에서 길게는 82일까지의 생분해 반감기를 갖는 것으로 보고되고 있다. Cleuvers (2003)는 자연

*Corresponding author : Soon-Kyu Ka, Tel.:+82-2-380-0469, Fax.:+82-2-380-0470, E-mail:skka@keiti.re.kr(S. K. Ka)

수계에 존재하는 의약품이 개별적으로 존재하지 않고 다른 화학물질 또는 다른 의약품들과 함께 존재하기 때문에 이들 간의 상호작용에 의해 나타나는 혼합독성 영향의 고려가 매우 중요하다고 주장하고 있으며, 의약품의 혼합독성은 불특정 생물에게 예상되는 것 보다 강한 독성을 나타낸다고 주장하고 있다.

의약품이나 이들의 대사산물은 하수처리장에서 별도의 특별한 처리가 이루어지지 않은 채로 하천 수계로 배출됨으로 인해 많은 연구자들에 의해 의약품의 처리를 위한 다양한 연구가 수행되었다. Tusnelda and Fritz (2005)는 TiO₂와 UV를 사용하여 분해가 잘 안되는 carbamazepine, clofibric acid, iomeprol 등의 분해 시험 결과 TiO₂와 연계된 photocatalysis는 난분해성 의약품의 분해에 매우 유용한 방법임을 제시하였다. Antonio *et al.* (2003)은 UV와 H₂O₂를 사용하여 99% 이상의 매우 높은 효율의 의약품 분해 가능성을 보고하였다. 그러나 아직까지도 의약품 분해산물에 대한 독성 연구는 미흡하며, UV와 catalyst를 사용한 연구 이외에는 의약품의 처리를 위한 연구가 매우 미흡한 실정이다. 최근에는 방사선을 이용하여 여러 가지 생물학적 난분해성 물질을 처리하고자 하는 연구

가 시도되고 있다. 방사선을 이용하는 이유는 짧은 시간내에 대량의 에너지를 투입함으로써 기존의 고도산화처리방법으로는 분해가 어렵거나 독성에 의해 생물학적으로 처리가 어려운 물질들을 보다 용이하게 처리할 수 있기 때문인 것으로 알려져 있다. 하지만 아직 방사선에 의해 조사된 피 조사체에 대한 생태학적 안전성에 대해 좀 더 많은 연구가 이루어져야한다는 필요성이 대두되기도 한다.

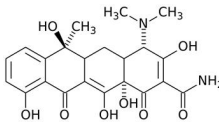
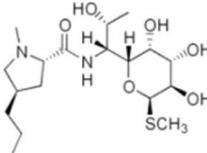
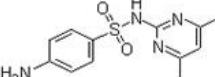
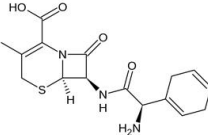
따라서 본 연구에서는 감마선을 이용하여 난분해성 의약품으로 알려진 대표적 항생물질들을 처리하고, 처리에 따른 독성 변화를 측정하는 한편, 방사선 처리된 항생물질들이 수계로 유입될 때 자정작용에 의한 생태학적 안전성이 확보될 수 있을지의 가능성에 대해 고찰하였다. 또한 한편으로는 기존의 처리방법으로 알려진 UV 처리 방법과도 비교 평가하였다.

2. 실험재료 및 방법

2.1 항생물질

대상 항생물질은 수계에서 가장 빈번히 검출되는 의약품을 선정하였으며 (서천규 외, 2009) 선정된 항생물질의 특성은 Table 1과 같다.

Table 1. Physicochemical characteristics of Antibiotics

Antibiotics	Tetracycline	Lincomycin	Sulfamethazine	Cephadrine
Structure				
Antibiotic group	Tetracyclines	Lincosamide	Sulfonamides	Cephalosporins
Formula	C ₂₂ H ₂₄ N ₂ O ₈	C ₁₈ H ₃₄ N ₂ O ₆ S	C ₁₂ H ₁₄ N ₄ O ₂ S	C ₁₆ H ₁₉ N ₃ O ₄ S
MW ^a (g/mol)	444.44	406.54	278.32	349.41
pKa	3.3, 7.8, 9.6	7.6	2.65, 7.4	
Log Kow	-1.19 ± 0.71	0.56	0.89	0.41

2.2 항생물질 처리 방법

2.2.1 Gamma ray 처리

감마선을 이용하여 항생물질을 처리하였다. 감마선원은 Cobalt-60 (방사능 270 kCi, Paratomic, UK)를 이용하였다. 감마선 조사는 상온(20℃)에서 수행하였으며, 이 때 ⁶⁰Co source의 방사능은 7.47×10^{17} Bq (397,949 Ci)이었다. 실험에 사용된 항생의약품의 초기농도는 증류수를 이용하여 각각 30 mg/L로 설정하였으며, 감마선의 흡수선량은, 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1.0, 2.0 kGy (1 kGy=1 kJ/kg)으로 각각 달리하면서 조사하였다.

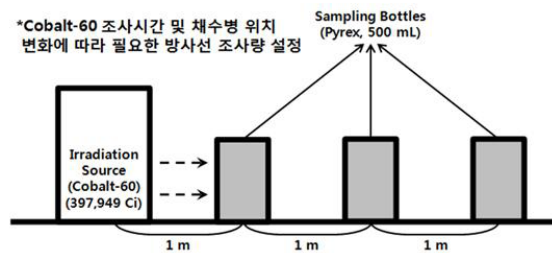


Fig. 1. Process of gamma ray irradiation

2.2.2 UV 처리

UV 처리를 위하여 사용된 UV lamp (Phillips TUV G6T5, 6W)는 1.0 L 용량의 반응기 가운데에 석영관을 설치하여 조사하였고, UV intensity와 투과거리를 측정하였다 (Kim *et al.*, 2008). 실험에는 증류수를 이용하여 30 mg/L의 초기농도로 각 항생의약품을 제조하였으며, 처리 시간은 각각 0, 5, 10, 30, 60, 90 min로 선정하였다.

2.3 생분해도 평가

감마선 조사 유무에 따른 생분해도 평가는 OECD의 방법을 따랐으며 (OECD 301 E, 1992), inoculum source로 활성슬러지를 사용하였다. 활성슬러지의 미생물에 미량 영양분 공급을 위하여 mineral medium, trace element solution 및 vitamin solution을 제조하였다. 각 medium의 구성은 Table 2와 같다. 각 대상의약품의 초기농도는 30 mg/L로 하였으

Table 2. Chemical composition of trace element solution and vitamin solution

Mineral medium		g/L(Water)
A	Potassium dihydrogen orthophosphate_KH ₂ PO ₄	8.50
	Dipotassium hydrogen orthophosphate_K ₂ HPO ₄	21.75
	Disodium hydrogen orthophosphate dihydrate_Na ₂ HPO ₄ ·2H ₂ O	33.40
	Ammonium chloride_NH ₄ Cl	0.50
B	Calcium chloride, anhydrate_CaCl ₂	27.50
	or Calcium chloride dihydrate_CaCl ₂ ·2H ₂ O	36.40
C	Magnesium sulfate heptahydrate_MgSO ₄ ·7H ₂ O	22.50
D	Iron(III) chloride hexahydrate, FeCl ₃ ·6H ₂ O	0.25

Trace element solution and vitamin solution		mg/L (Water)
i	Manganese sulphate tetrahydrate_MnSO ₄ ·4H ₂ O	39.9
	Boric acid_H ₃ BO ₃	57.2
	Zinc sulphate heptahydrate_ZnSO ₄ ·7H ₂ O	42.8
	Ammonium heptamolybdate (NH ₄) ₆ Mo ₇ O ₂₄	34.7
	Fe-chelate (FeCl ₃ ethylenediamine-tetraacetic acid) → Dissolve in Water and make up to 1 L	100.0
ii	Yeast extract → Dissolve in 100 mL water, 0.2 μL filtration (sterilization)	15.0

며 1 L의 의약품 활성슬러지 혼합액을 2 L 플라스크에 넣어 암실에서 생분해도 실험을 실시하였다. 각 플라스크에 대상물질과 각 medium을 첨가하였다 (A: 10 mL, B - D, i - ii : 각각 1 mL). Inoculum source로 사용된 활성슬러지는 채수 후 7일 동안 폭기 및 교반을 통하여 pre-conditioning 하였다. 사용된 sludge의 특성은 Table 3과 같다.

생분해도 실험을 위해 실험 물질과 활성슬러지를 포함한 inoculum sample 이외에도 실험 대상물질을 제외하고 활성슬러지만 포함하고 있는 inoculum blank, 대상물질과 활성슬러지 및 sterilizing agent를 포함한 adsorption control을 설정하여, 활성슬러지 내의 미생물에 의한 대상물질의 분해와 슬러지 유기물에 의한 흡착에 의해 야기된 대상물질의 감소를 각각 비

교하였다. 각 시험은 22℃로 유지되는 암실의 clean room에서 시행되었으며 120 rpm으로 교반하며 aeration 상태가 유지되도록 하였다. 샘플링은 이틀에 한번씩 28일 동안 수행되었으며 각 샘플링 후, 5 mL의 mineral medium을 재첨가해 주어 그 농도가 전체 테스트 기간 동안 유지되도록 하였다. 샘플링 후 즉시 0.2 μm의 filter로 여과하였고, 분석시까지 4 ℃로 보관되었다. 농도측정은 OECD 방법에서 제시한 DOC 분석을 통한 간접적인 모 화합물의 농도 변화 측정 방법을 수정하여 HPLC를 이용한 직접적인 방법을 통해 이루어졌다.

Table 3. Characteristics of activated sludge used as inoculum source

Parameter	
HRT	10h
SRT	10d
pH	6.7±0.02
DO	0.5 mg/L
MLSS	5744±63 mg/L

2.4 HPLC를 이용한 농도변화 측정

항생물질의 화학적 분석은 HPLC를 사용하였다. 시료 분석에 사용된 HPLC는 Agilent 1200 series를 사용하였으며, column은 물질의 특성에 따라 C8과 C18을 사용하였고, 컬럼 온도는 30 ℃로 하였다. 시료 주입량은 50~75 μL로 하였으며 mobile phase는 Methanol, Acetonitrile, Water 등을 사용하였다 (Table 4).

Table 4. HPLC analysis conditions for antibiotics

Test compounds	λ (nm)	Column	Column Temp. (°C)	Injection volume	Mobile phase
Tetracycline	355	Luna 5u C8(2) 100A 150×4.6mm	30	50 μL	0.01M oxalic acid : Methanol : Acetonitrile (72:8:20)
Lincomycin	210	zorbax sb-c 18	30	75 μL	1mM Ammonium Formate: Acetonitrile(65:35)
Sulfamethazine	254	Ony x Monolithic C18 (100×3mm)	30	50 μL	0.1%Formic Acid in Water : 0.1%Formic Acid Acetonitrile(70:30)
Cephadrine	254	Synergi 4u Polar-RP 80A 150×4.6mm	30	50 μL	20mM Ammonium Formate pH3.5 : Methanol (65:35)

시료는 여과 후 추가처리 없이 직접 분석하였으며, 검출기로는 UV detector를 사용하였다.

2.5 생물독성평가

2.5.1 Daphnia magna 급성독성 평가

*D. magna*는 US EPA (EPA 600-R-92-111, 1993)의 방법에 따라 배양하였다. 먹이로는 yeast, Cerophyll®, trout chow를 혼합한 YCT와 *P. subcapitata* (*S. capricornutum*)를 사용하였다. 배양액은 시험 지침서에 나와 있는 synthetic hard water (pH 7.8, hardness : 170±10mg/L as CaCO₃, alkalinity : 110±10mg/L as CaCO₃)를 제조하여 사용하였다. 배양은 25±1℃로 유지되는 clean room에서 수행하였으며, 광주기 및 광도는 16h_light, 8h_dark, 10~20 μE/m²/sec로 유지하였다. *D. magna*의 급성독성 평가는 US EPA 시험 방법에 따라 수행되었다 (EPA 600-R-92-111, 1993).

2.5.2 Microtox® 급성독성 평가

항생물질의 민감도를 비교하기 위하여 *D. magna*와 더불어 Microtox® 독성시험을 수행하였다. 이 실험방법은 Microbics Corporation의 81.9% basic test 및 Whole effluent toxicity test 절차에 따라 수행하였다. 먼저, EC₅₀ 값을 구하기 위해서는 고농도에서부터 단계적으로 희석된 (희석배수 2) 항생의약품질을 노출시켰으며, 10 μL의 *V. fischeri* colony를 주입하였다. 각 시료는 3개의 반복을 두었다. EC₅₀ 값을 산출하기 위한 독성 값은 15분간의 발광 감소를 기준으로 하였으며, Microtox Model 500 Analyzer (AZUR Environmental)를 사용하여 측정하였다. 감마선 처리 후의 독성평가는 처리 후 100%의 시료에 노출시킨 뒤, 발광도의 감소를 서로 비교하여 나타내었다.

2.5.3 Pseudokirchneriella subcapitata 독성평가

조류의 배양 및 독성평가는 모두 US EPA 시험

방법에 따라 수행되었다 (EPA/600/491/002, 1994). 제조된 조류 배양액은 즉시 0.2 μm의 filter를 이용하여 여과하였으며 여과장치와 배양 플라스크는 autoclaving을 통하여 멸균시켜 사용하였다. 조류는 10,000 cell/mL의 농도가 되도록 배양액이 들어있는 플라스크에 식중하였으며, 식중된 조류는 4300 lux의 광도로 25±1℃의 온도에서 96시간 동안 약 120 rpm으로 교반하여 배양하며, 4일 후 이 균집배양으로부터 새로운 균집배양을 수행하였다.

조류 독성 평가는 100 mL의 삼각 플라스크를 사용하였으며, 농도별로 3개의 반복을 두고 최종 시험액의 부피가 50 mL이 되도록 하였다. 시료를 주입 한 후, 10,000 cell/mL의 농도로 조류를 식중하였으며, 시료의 주입과 조류의 식중이 완료된 플라스크는 외부에서 박테리아 등의 유입을 막기 위하여 autoclaving으로 멸균된 스펀지를 이용하여 입구를 봉하였다. 조류는 shaking incubator를 이용하여 120 rpm, 25℃, 4300 lux의 지속 조명의 상태에서 96시간 동안 배양되었다. 조류에 대한 독성영향은 시험 종료 후 683 nm에서 흡광도를 측정하여 성장률을 비교하였다.

조류의 세포 수 측정은 조류 개수 및 흡광도의 상관 곡선을 작성하여 흡광도 측정으로 세포 수를 계산하며, 조류의 검량선은 4일간 배양된 조류를 100%로 하여 2배씩 희석하여 6단계의 concentration을 제조한 뒤 각각 683 nm에서 흡광도를 측정하고, 각 시료별 조류 세포수를 계수하여 흡광도 대 세포수로 작성하였다. 조류가 갖는 흡광도는 일반적으로 지정되어 있으나 실험실의 기기나 배양조건 등에 따라 최적 파장

이 달라질 수 있으므로 scanning 과정을 거쳐 적절한 흡광도를 선정하였다. 본 연구에서 사용된 조류의 흡광도는 683 nm에서 최적으로 나타났으며 조류개수는 Hemocytometer와 현미경을 이용해 계수 되었으며 mL 당 개체수로 나타내었다. 각 농도별 흡광도 와 세포수의 상관관계는 Fig. 2와 같다.

조류의 독성평가 결과는 p%의 성장률 저해를 나타내는 농도를 구하는 방법인 ICp (inhibition concentration)로 나타내었으며 주로 IC₅₀을 계산하였다. p%의 성장률 감소를 나타내는 농도는 EPA에서 제공하는 ICp program을 이용하여 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 독성평가 방법론 비교 평가

감마선 처리 전 항생물질에 대한 물벼룩, 형광박테리아, 조류의 독성 결과는 Table 5와 같다. 각 시험 중 가운데, 항생물질의 독성이 조류에서 0.167~1.246 mg/L의 EC₅₀ 값으로 가장 높게 나타남으로 민감도 측면에서 독성 평가 시 조류를 사용하는 것이 가장 적합한 것으로 판단되었다. 형광박테리아와 물벼룩은 35.99 mg/L~1750.67 mg/L의 EC₅₀값이 나타났으며 항생물질에 민감하게 반응하지 않아 독성평가에 적합하지 않은 것으로 판단되었다. 조류에 대한 각 항생물질의 농도-반응곡선 및 각 파라미터는 Table 6 및 Fig. 3과 같다. 항생물질별 IC₅₀값을 결정하기 위하여 0~10 mg/L의 주입 농도에서 가장 적절한 용량-반응곡선 회귀식을 얻었다. 각 물질별 회귀식은 0.96 이상의 높은 상관도를 나타내었다. 각 물질은 $Y=Y_0+a \times e^{-bx}$ 의 식으로부터 Y₀, a, b의 상수값이 결정되었다(Table 6). 네 가지 대상물질 중 tetracycline의 IC₅₀ 값이 0.167 mg/L로 가장 독성이 높은 것으로 나타났다. Lincomycin의 IC₅₀값은 0.439 mg/L로 나타났으며, sulfamethazine은 이보다 독성이 낮은 1.246 mg/L의 IC₅₀값을 나타내었다. Cephadrine의 조류에 대한 독성값은

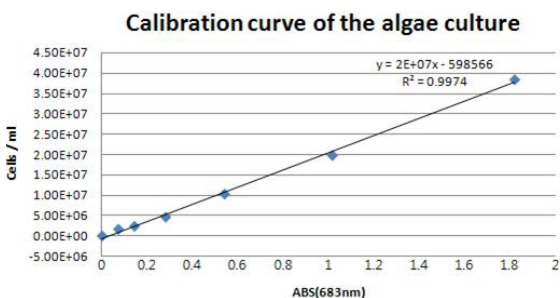


Fig 2. Calibration curve of the algae culture

Table 5. Evaluation of acute toxicity before gamma ray irradiation

Antibiotics	<i>D. magna</i>	<i>V. fischeri</i>	<i>P. subcapitata</i>
	LC ₅₀ (mg/L)	EC ₅₀ (mg/L)	IC ₅₀ (mg/L)
Tetracycline	36.56	35.99±3.00	0.167±0.107
Lincomycin	_a	_b	0.439±0.052
Sulfamethazine	66.22	286.72±21.36	1.246±0.852
Cephadrine	_c	1750.67±375.04	_d

- No observed effect at ^athe max. concentration of 3651 mg/L, ^b4990 mg/L, ^c3680 mg/L, ^d1000 mg/L.

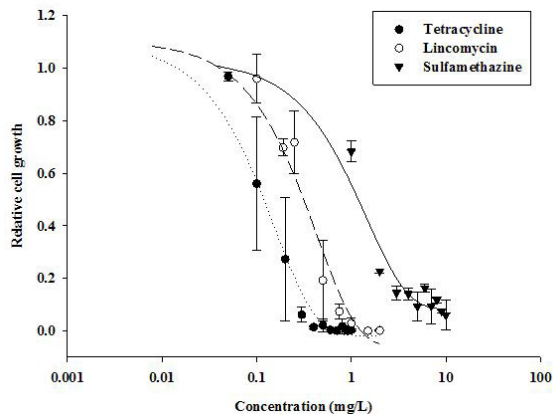


Fig 3. Concentration-relative cell growth curve

Table 6. Parameters for concentration-relative cell growth curve

Chemicals	Y ₀	a	b
Tetracycline	-0.0188	1.1207	6.4531
Lincomycin	-0.0618	1.1668	2.3251
Sulfamethazine	0.0809	0.9522	0.6932

$$Y = Y_0 + a \times e^{-bx}$$

1,000 mg/L의 노출실험에서 조류세포의 성장이 변화가 없는 것으로 나타나 조류에 대한 독성이 없는 것으로 판단되었다.

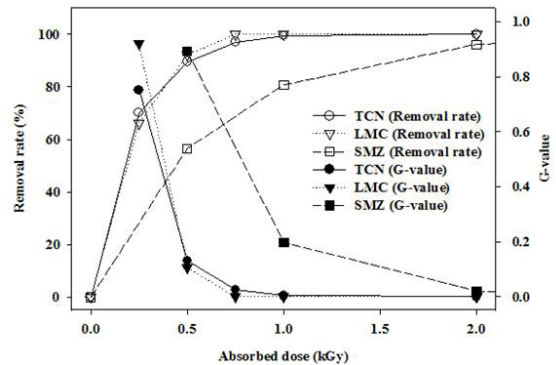


Fig 4. Concentration change and G-value of each antibiotics after gamma ray irradiation

Table 7. Results of *D. magna* and Microtox® bioassay after gamma ray irradiation

	Target compound	Absorbed Dose		
		0 kGy	0.5 kGy	1 kGy
Microtox (Toxicity)	Tetracycline	0.42±0.04	0.27±0.01	0.29±0.03
	Sulfamethazine	0.30±0.10	0.34±0.04	0.39±0.08
	Lincomycin	0.30±0.04	0.28±0.03	0.36±0.03
	Cephadrine	0.21±0.03	0.29±0.10	0.24±0.04
<i>D. magna</i> (% survival)	Tetracycline	97.5±3.54	100	100
	Sulfamethazine	97.5±3.54	97.5±3.54	89.5±14.89
	Lincomycin	100	85±14.14	92.5±10.61
	Cephadrine	97.5±3.54	100	100

Toxicity = $(I_{\text{control}} - I_{\text{sample}}) / I_{\text{control}}$ (I : luminescence of bacteria), Initial concentration is 30 mg/L.

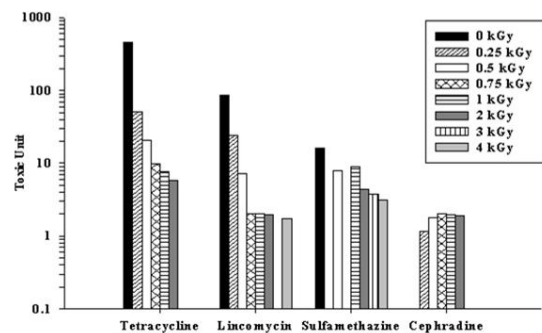


Fig 5. Change in algal toxicity of antibiotics by the treatment of Gamma ray irradiation

3.2 감마선 처리에 의한 독성평가

초기농도 30 mg/L의 각 항생물질에 대하여 방사선 조사량을 0~2.0 kGy까지 증가시켜 처리한 후, 모 화합물의 농도 및 제거효율을 측정하는 결과는 그림 4에서 볼 수 있듯이 모든 대상물질은 1.0 kGy에서 80% 이상 (sulfamethazine ;

80%, tetracycline, lincomycin, cephradine ; 90%이상)의 제거율을 나타내었다. 따라서 효과적인 대상물질의 처리를 위해서는 약 1.0 kGy의 조사선량이 필요한 것으로 판단되었다.

감마선 처리 후 시료의 독성변화는 물벼룩, 형광박테리아, 조류에 대한 독성평가를 수행하였으며 결과는 Table 7 및 Fig. 5와 같다. 감마선 조사 전과 비교하였을 때, 물벼룩과 형광박테리아의 경우 독성 값이 크게 변화하지 않는 것으로 나타났다. 하지만 조류의 경우 Fig. 4에서 보는 바와 같이 TU 16.05~459.77에서 1.99~5.83로 감소되어 독성이 크게 감소되는 것으로 나타났다. Cephradine은 조류에 대한 독성이 나타나지 않다가 처리 후에 TU 값이 약 2까지 증가하는 것으로 나타났다.

3.3 UV 처리에 의한 독성 변화

감마선 처리에 따른 독성감소 효과를 UV 처리 방법과 비교해 보았다. 먼저 대상항생물질의 초기농도를 30 mg/L로 하고, UV 조사는 0~90 분간 변화시켰을때에 대한 모 화합물의 농도변화는 Fig. 6과 같다. Tetracycline과 sulfamethazine의 경우 UV 조사시간이 60분 이상에서 80% 이상의 제거율을 나타내었으며, Lincomycin은 38%의 제거 효율을 나타내었다. 독성 테스트 결과는 Fig. 7에서 보는 바와 같이 Tetracycline의 조류독성 경우 TU 값이 152.42에서 61.42로 감소하였고, Lincomycin은 222.12에서 63.68로 감소하여 여전히 높은 독성 값을 나타내었다. Sulfamethazine은 29.32에서 90분 조사 후 1.56까지 감소하여 가장 효과적인 저감효과를 나타내었다. Cephradine은 UV로 처리하였을 경우, IC₅₀ 값을 지정할 수 있을 정도의 독성이 나타난 것은 아니었으나, 독성이 없던 처리 전 시료에서 UV 조사 시간이 증가할수록 relative cell growth가 감소하는 경향을 나타내었다. 이는 감마선 처리 때와 유사한 결과를 보여주는 것으로 볼 때 모 화합물의 분석 및 조류독성 평가를 통하여, sulfamethazine의 경우 감마선 조사가 더욱 효과적인 처리방법으로

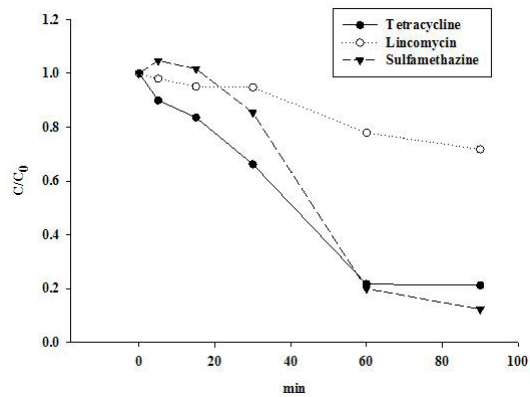


Fig 6. Concentration change of antibiotics by UV treatment

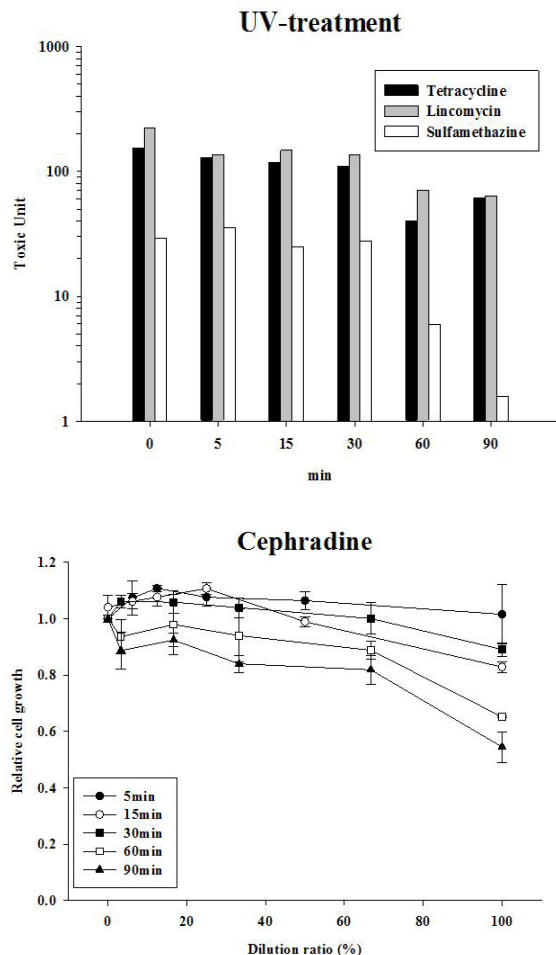


Fig 7. Change in algal toxicity of antibiotics by UV treatment

판단된다. Tetracycline과 lincomycin도 UV처리에서 모두 80% 이상의 높은 처리효율을 나타내었으나 감마선 조사와 비교하였을 때 Toxic Unit 값은 높게 나타났다. 따라서, 감마선이 대

상 물질의 높은 처리효율과 독성저감효과를 동시에 나타내는 처리방법으로 판단된다.

3.4 감마선 처리 후의 생분해도 변화

일반적으로 항생물질에 대한 감마선으로 처리할 경우 본 연구에서 적용한 약 2 kGy 이내의 흡수선량 범위 이내에서는 완전한 무기화 반응이 일어나는 대신 또 다른 형태의 화학물질, 즉 부산물이 발생한다. 따라서 이러한 부산물에 대한 독성 평가 역시 수계환경에서의 안전성 확보를 위해서 매우 중요하다. Cephadrine은 HPLC 분석에 의해 모화합물의 retention time은 7.92로 나타나고 1.0 kGy의 감마선 조사에 의해 retention time 7.15에서 주요 분해부산물이 검출되었다. Fig. 8은 Cephadrine에 대해 감마선을 처리하지 않은 상태에서 활성 슬러지를 이용하여 활성슬러지에

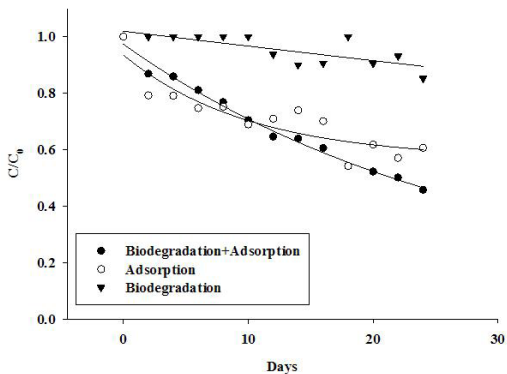


Fig 8. Concentration change of Cephadrine by adsorption and biodegradation before Gamma ray irradiation

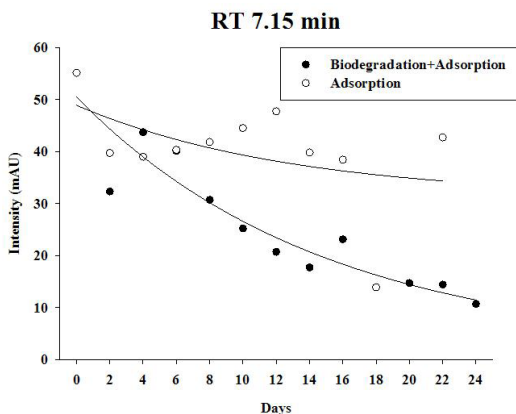


Fig 9. Concentration change of Cephadrine by adsorption and biodegradation after Gamma ray irradiation

의한 생분해와 흡착에 의해 변화되는 Cephadrine의 농도를 보여주는 결과이다. 감마선을 조사하지 않은 Cephadrine은 활성슬러지만에 의한 생분해와 흡착에 의해서는 20일이 경과해도 겨우 약 50% 이하만이 제거되고 있음을 알 수 있다. 그러나 감마선을 1.0 kGy 조사했을 경우에는 모화합물 대부분이 분해되고 분해부산물화 되어 주요 분해부산물이 retention time 7.15에서 검출되었다. 이렇게 감마선에 의해 새로이 생성된 분해부산물에 대해 활성슬러지에 의한 생분해 및 흡착의 영향은 Fig. 9에서 보는 바와 같이 intensity 측면에서 볼 때 훨씬 크게 작용하여 분해 부산물을 쉽게 제거하고 있음을 알 수 있다. 따라서 감마선 처리 후 항생물질이 수계로 배출되었을 경우, 생분해 가능한 물질로 전환된 항생물질류에 대해 수계의 생태 안정성을 확보하는데 있어서 감마선처리는 크게 도움이 될 수 있을 것으로 생각한다. 특히 Cephadrine 함유 폐수에 대해서는 감마선 처리 후 활성 슬러지를 연계한 공정을 통해 효과적인 제거 효율을 기대할 수 있을 것으로 판단된다.

4. 결론

4.1 수서생물종(D. magna, V. fischeri, P. subcapitata)을 이용한 대상 항생물질에 대해 감마선, UV 분해 처리 전후 독성평가 결과, 물벼룩, 형광박테리아, 조류 중 독성물질에 대한 민감도가 가장 높은 조류가 독성평가에 적합한 수서생물종으로 판명되었다.

4.2 UV처리 방법과 비교해 보았을 때, 감마선이 대상 물질에 대해 높은 처리효율을 나타내었으며, 독성저감효과도 큰 것으로 나타났다. 또한, UV 처리나 활성슬러지에 의한 처리는 같은 항생물질이라 하더라도 대상물질에 따라 처리효율 및 독성저감효과의 차이가 크게 나타났다. 그러나 감마선의 경우 항생물질의 종류에 의존성이 덜하면서 처리효율이 높았으며, 조류 독성변화는 안정적으로 이루어지는 것으로 판단되었다.

4.3 감마선 처리 전, 후 생분해 실험을 통하여 모 화합물 뿐 아니라 감마선 처리 후 생성된 분해산물이 생분해 과정과 슬러지에 흡착되어 농도가 감소하는 현상을 나타내었다. 따라서 감마선 처리

후 대상 의약품이 수계로 배출되었을 경우, 생분해에 의한 부가적인 분해효과가 있을 것으로 판단되었다 (Hyun Y. Kim et al, 2009). 따라서 감마선 처리는 다른 처리 공정과는 다르게 높은 독성 감소를 보여주었으며 본 연구에서 검토한 범위에 대하여 분해산물도 독성이 낮게 나타내는 특징을 보여주었다.

참고문헌

- 국립수의과학검역원(2005), 동물용 항생제 용도별 사용량.
- 국립환경과학원(2006), 환경중 의약품물질 분석방법 연구 및 노출 실태 조사.
- 김태훈, 최동규, 이면주, 유승호(2008), 고도산화공정을 이용한 항생제 분해, 응용화학, 12(2), 337-340.
- 김판기 (2006), Ecotoxicological Risk Assessment for Acetaminophen in Kyongahn River, 한국 환경보건학회지 32, 440-445
- 서천규 외 (2009), LC/ESI-MS/MS를 이용한 축산폐수 처리장의 의약품물질 모니터링, 한국환경분석학회지, 12(4).
- Al-Ani, M. Y. and F. R. Al-Khalidy(2006), "Use of ionizing radiation technology for treating municipal wastewater", *Int. J. Res. Public Health*, 3(4), 360-368.
- Alexy, R., T. Kumpel, L., and Kummer(2004), "Assessment of degradation of 18 antibiotics in the Closed Bottle Test", *Chemosphere*, 57, 505-512.
- Andreozzi, R., V. Caprio, A. Insola, and R. Marotta(1999), "Advanced oxidation process (AOP) for water purification and recovery", *Catal Today*, 53, 51-59.
- Andreossi R., Canterino M., Giudice R., Marotta, Pinto R.G., and Pollio A., 2006, Lincomycin solar photodegradation, algal toxicity and removal from wastewater by means of ozonation, *Water research*, 40, 630-638
- Chanda, P. K., T. Ganguly, M. Das, C. Y. Lee, T. T. Luong, and S. Sau(2007), "Detection of antistaphylococcal and toxic compounds by biological assay systems developed with a reporter staphylococcus aureus strain harboring a heat inducible promoter-lacZ transcriptional fusion", *J Biochem Mol Biol*, 40(6), 936-943.
- Choi, T. Y.(2003) "Quality assurance for commercially prepared microbiological culture media", *Korean J Clin Microbiol*, 6(1), 56-62.
- Hyun Y. Kim et al, " Radiolysis of selected antibiotics and their toxic effects on various aquatic organisms", *Radiation Physics and Chemistry*, 78(2009), 267-272.
- Johnson V.M., Allanson J.P., Causon R.C., 2000, Determination of the cephalosporin antibiotic cephradine in human plasma by high performance liquid chromatography with ultraviolet detection, *Journal of chromatography B*, 740, 71-80.
- Kim, H.Y., S. H. Yu, M. J. Lee, T. H. Kim, and S. D. Kim(2009), "Radiolysis of selected antibiotics and their toxic effects on various aquatic organisms", *Radiat Phys chem*, 78, 267-222.
- Kim S.D., Cho J., Kim I.S., Vanderford B.J. and Snyder S.A., 2007, Occurrence and removal of pharmaceuticals and endocrine disruptors in South Korean surface, drinking, and waste waters, *Water Research*, 41(5), 1013-1021.
- Marzo A., and Bo L., 1998, Chromatography as an analytical tool for selected antibiotic classes: a reappraisal addressed to pharmacokinetic applications, *Jouranal of chromatography A*, 812, 17-34
- Reyes, C., J. Fernández, J. Freer, M. A. Mondaca, C. Zaror, S. Malato, and H. D. Mansilla(2006), "Degradation and inactivation of tetracycline by TiO₂ photocatalysis", *J Photochem Photobiol Chem*, 184, 141-146.
- Sanchez-Polo, M., J. Lopex-penalver, G. Prados-Joya, M. A. Ferro-Garcia, and J. Rivera-Utrilla(2009), "Gamma irradiation of pharmaceutical compounds, nitroimidazoles, as a new alternative for water treatment", *Water Res*, 43, 4028-4036.
- Singh, B., D. V. Parwate, and S. K. Shukla(2009), "Radiosterilization of Fluoroquinolones and Cephalosporins : Assessment of radiation damage on antibiotics by changes in potential property and colorimetric parameters", *Pharm Sci Tech*, 10(1), 34-43.
- Yu, S., B. Lee, M. Lee, I. Cho, and S. Chang(2008), "Decomposition and mineralization of cefaclor by ionizing radiation: Kinetics and effects of the radical scavengers", *Chemosphere*, 27, 2106-2112.