

## Evaluation on the removal efficiency of pharmaceutical compounds in conventional drinking water treatment processes

Hee-Jeong Seo<sup>★</sup>, Yong-Hoon Park, In-Sook Kang, Hwa-Bong Myong,  
Yang-Suk Song and Yeong-Ju Kang

*Water Quality Research Institute of Waterworks Gwangju*

(Received March 29, 2016; Revised June 15, 2016; Accepted June 17, 2016)

### 정수처리 공정에서 잔류의약품질 제어 효율 평가

서희정<sup>★</sup> · 박용훈 · 강인숙 · 명화봉 · 송양석 · 강영주

광주광역시상수도사업본부수질연구소

(2016. 3. 29. 접수, 2016. 6. 15. 수정, 2016. 6. 17. 승인)

**Abstract:** In the present study, we evaluated the efficiency of the drinking water treatment unit processes controlled by targeting high pharmaceutical compounds that are likely to be released into the water supply. In the coagulation process, the removal rate of sulfonamide, an antibiotic, amounted to 22.6–42.1 %, that of naproxen to 28.2 %, and that of acetaminophen to 20 %. Trimethoprim has demonstrated a low removal rate (4.4 %), while the removal rate of erythromycin was 2.4 %; aspirin was not removed at all. When applying a mixture of chlorination and the coagulation process, the removal rate was increased with increasing the chlorine dosage. When the chlorine injection with the concentration of 3 mg/L was applied, sulfonamide antibiotics, acetaminophen and naproxen, were completely removed. Trimethoprim exhibited a high removal efficiency of ca. 98%, while the removal efficiency of erythromycin was about 55 %; at the same time, aspirin showed a lower removal ratio (ca. 10 %). When applying the powdered activated carbon adsorption process, the removal rate was increased with increase of the concentration of the powder activated carbon injection. Sulfonamide antibiotics showed about 18–50 % removal efficiency in the 1 mg/L, the removal rate was increased by at least 80 % in 25 mg/L. The evaluation results of the titration injection concentration of chlorine treatment and adsorption, coagulation process for the efficient processing of the remaining pharmaceutical compounds in the water treatment process, when applying the chlorine 3 mg/L, powdered activated carbon 10 mg/L and coagulant 15 mg/L were removed more than 90 %.

**요약:** 상수원으로 유출될 가능성이 높은 잔류의약품질 대상으로 정수처리공정의 단위 공정별 잔류의약품질 제어 효율을 평가하였다. 응집 공정에서는 Sulfonamide계 항생제는 22.6–42.1 % 제거 되었으며, Naproxen 28.2 %, Acetaminophen 20 %가 제거되었다. Trimethoprim은 4.4 %, Erythromycin은 2.4 %로 낮

<sup>★</sup> Corresponding author

Phone : +82-(0)62-609-6334 Fax : +82-(0)62-609-6319

E-mail : [hjseo@korea.kr](mailto:hjseo@korea.kr)

This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

은 제거율을 보여 주었으며, Aspirin은 전혀 제거되지 않았다. 염소처리와 응집 혼합 공정을 적용하였을 때, 염소 주입량이 증가할수록 제거율이 증가되었다. 염소주입농도 3 mg/L일 때 Sulfonamide계 항생제, Acetaminophen, Naproxen은 100%, Trimethoprim은 약 98%로 높은 제거 효율을 나타내었으며 Erythromycin은 약 55%, Aspirin은 약 10%로 낮은 제거율을 보여 주었다. 분말활성탄 흡착 공정을 적용하였을 때, 분말활성탄 주입 농도가 증가할수록 제거율이 증가되었다. Sulfonamide계 항생제의 경우 1 mg/L에서 약 18~50% 제거율을 보였으며, 25 mg/L에서는 약 80% 이상으로 제거율이 증가하였다. 정수처리 공정에서 잔류의약품질의 효율적인 처리를 위한 염소처리와 흡착, 응집 공정의 적정 주입농도를 평가한 결과 염소 3 mg/L, 분말활성탄 10 mg/L, 응집제 15 mg/L을 적용했을 때 약 90% 이상이 제거되었다.

**Key words:** pharmaceutical compound, antibiotics, adsorption, coagulation

### 1. 서 론

의약품질은 사람뿐 아니라 동물에서 질병의 예방, 진단, 치료 목적으로 쓰이며 농산물 생산, 수산물 양식 등 광범위하게 사용되고 있다. 현재 전 세계적으로 다양한 종류의 의약품질들이 개발되고 있으며, 이들의 종류 및 생산량은 점점 더 증가하고 있는 실정이다. 식품의약품통계연보에 따르면 2014년 기준 의약품의 국내 생산품목수는 49,153 종, 생산금액은 약 14조원으로 해마다 증가 추세에 있다.<sup>1</sup>

사람 또는 동물에 투여되는 항생제량 중에서 약 30~90%가 소변을 통해 활성물질로 배출 될 수 있다는 연구결과를 고려할 때 환경 중으로 다양한 종류의 화합물들이 지속적으로 유입되고 있는 것을 알 수 있다.<sup>2</sup> 의약품질은 인간과 동물의 배설물, 폐수처리수, 하수 슬러지, 축산시설, 매립장 침출수 등 다양한 경로를 통해 상수원인 강이나 호소로 유입된다(Fig. 1).<sup>3</sup> 수 환경 중으로 유입된 의약품질과 대사산물은 수중의

콜로이드성 물질, 부유성 입자물질에 흡착되거나 용존성 유기물질들에 흡착 또는 결합되어 존재하면서 수중 미생물에 의한 생물분해, 친·소수성 등과 같이 생물학적 또는 물리·화학적인 요인들에 의해 자연적으로 일부 제거되고 수 환경에서 미량으로 존재하게 된다.<sup>4</sup> 수 환경 중의 잔류의약품질은 생태계 생물들에게 내분비계 교란 및 급·만성 독성, 변이성 등 심각한 영향을 줄 수 있다.<sup>5</sup>

유럽에서 1970년대 하수처리장 및 쓰레기 매립장에서 항생제, 항암제, 진통제, 호르몬제 등 다수의 의약품질이 검출되면서 환경에 잔류하는 의약품질이 새로운 오염물질로 거론되기 시작하였으며, 90년대에는 하수, 하천, 지하수 등 수 환경에서도 검출되어 현재까지 문제가 지속되고 있다.<sup>6</sup> 최근에는 독일, 캐나다, 호주 등 세계 각국에서 하수처리장, 축산폐수처리장 방류수뿐만 아니라 하천수, 음용수에서 잔류의약품질들의 검출 연구결과가 보고되고 있다.<sup>4</sup>

국내의 경우 환경부에서 2007년도에 4대강 유역 하천수, 하수처리장 및 축산폐수처리장의 유입수와 방류수 등에 대해 잔류의약품질 실태를 조사한 결과 하천수에서 15 종, 하수처리장 유입수 15 종, 하수처리장 방류수 13 종, 축산폐수처리장 유입수 18 종, 축산폐수처리장 방류수 16 종의 의약품질이 검출되었다.<sup>7</sup> 또한 2014년도 실시한 동북호 유입하천의 잔류의약품질 실태 조사에서는 항생제 및 진통·소염제 등 14 종을 분석한 결과 4 종의 의약품질이 검출되었으며, 검출농도는 수~수백 ng/L 수준으로 나타났다.<sup>8</sup>

국내외적으로 수 환경 중에서의 잔류 의약품질이 빈번히 검출되고 있고 최근 상수원으로 유입되는 하천수에서 잔류의약품질이 검출되어 상수원수에서의 잔류 의약품질의 노출 가능성이 있음에도 불구하고 정수장으로 잔류의약품질 유입 시 정수처리 제어에

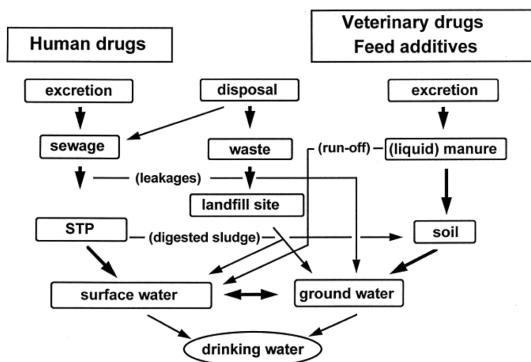


Fig. 1. Fate and transport of pharmaceuticals in the environment (WHO, 2011).

관한 자료는 부족한 실정이다.

본 연구에서는 상수원에서 검출빈도가 높은 잔류 의약품물질에 대해 정수처리 공정별로 제어 효과를 검토하여 정수처리에서 효율적인 잔류 의약품물질 처리 방안 마련을 위한 기초 자료로 활용코자 한다.

## 2. 연구방법

### 2.1. 연구대상 물질

본 연구에서는 잔류의약품 연구대상 항목을 선정하기 위한 기초자료로 환경부 및 국내 실태조사 자료를 바탕으로 국내 하천수, 하수처리장 및 축산폐수처리장에서 빈번히 검출되고 있어 상수원으로 유출될 가능성이 높은 의약품물질 9종(항생제 6종, 비스테로이드성 항염증제(NSAID) 3종)을 연구대상 물질로 선정하였다(Table 1, 2).<sup>7-9</sup>

### 2.2. 연구대상 시료 및 시약

실험에 사용한 시료는 실제 운영 중인 광주광역시 덕남정수장 도착수를 사용하였다. 시료에 대해 수질 분석 결과 잔류의약품물질은 검출되지 않았다(Table 3).

본 실험에 사용한 9종의 표준물질은 Supelco사와 Sigma-Aldrich사 제품을 사용하였으며, 분말제품으로 순도 99% 이상인 것을 사용하였다. 표준용액은 표준 물질을 단계적으로 희석하여 사용하였으며, 실험에 사용되는 표준용액은 실험 당일 조제하여 사용하였다.

전염소 처리에 사용한 염소표준용액은 차아염소산 나트륨(Sodium hypochlorite sol., Wako)을 초순수 증류수로 희석하여 1,000 mg/L로 조제하였다. 이 용액은 분석할 때마다 조제하여 사용하였으며, 잔류염소는 DPD Colorimetric Method를 이용하여 Pocket Colorimeter (HACH Co., USA)로 측정하였다. 응집제는 폴리염화알루미늄(PAC)용액을 사용하였다.

### 2.3. 실험 방법

Jar-tester를 이용하여 염소소독, 흡착, 응집, 침전 실험을 하였으며 정수처리 단위 공정별 잔류의약품물질의 제거 효과를 알아보았다.

1차 실험은 전염소 투입농도에 따른 제거 효과를 평가하기 위해 단계적으로 염소 주입 농도를 변화시켜 응집침전 실험을 하였다. 염소는 1~6 mg/L 농도 범위로 하고, 응집제는 폴리염화알루미늄(PAC)을 사용하여 평상시 정수장에서 투입하는 15 mg/L 농도로 투입하였다. 잔류의약품물질 9종 혼합표준용액은 약 60~200 ng/L로 주입하였다. Jar-tester를 이용하여 시료를 1분 동안 150 rpm의 속도로 급속 교반, 10분간 50 rpm으로 완속 교반 후 30분간 정치하여 상층에서 시료를 샘플링하였다.

2차 실험은 전염소 및 응집침전 공정에서 제어 결과를 바탕으로 분말활성탄(PAC) 농도를 변화시켜 흡착에 의한 잔류의약품물질의 제거 효과를 조사하였다. 전염소 투입은 3 mg/L, 응집제(PAC)는 15 mg/L로

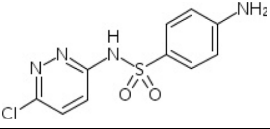
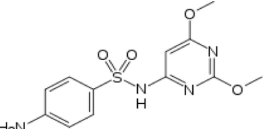
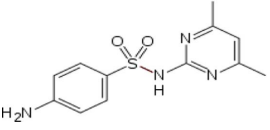
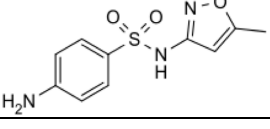
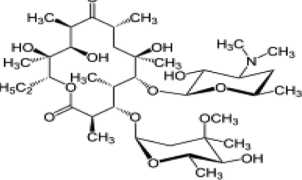
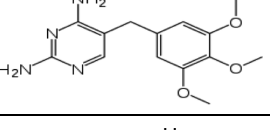
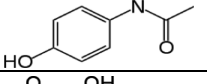
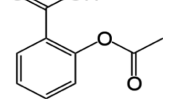
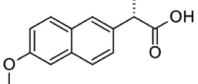
Table 1. Distributions of the target compounds in various water matrixes

Therapeutic use	Compounds	Primary usage	Concentration (µg/L)	Ref.
Antibiotic	Sulfachloropyridazine	Animal	0.019 <sup>a</sup>	9
	Sulfadimethoxine	Animal	0.014 <sup>a</sup>	9
	Sulfamethazine	Animal	0.030 <sup>a</sup> , 34.089 <sup>d</sup> , 37.244 <sup>e</sup>	7
	Sulfamethoxazole	Human/Animal	0.148 <sup>a</sup> , 1.025 <sup>b</sup> , 0.496 <sup>c</sup> 36.994 <sup>d</sup> , 1.387 <sup>e</sup>	7
Macrolide	Erythromycin	Human/Animal	0.028 <sup>a</sup> , 0.178 <sup>b</sup> , 0.090 <sup>c</sup> 0.358 <sup>d</sup> , 0.070 <sup>e</sup>	7
Pyrimidine	Trimethoprim	Human/Animal	0.014 <sup>a</sup> , 0.043 <sup>b</sup> , 0.040 <sup>c</sup> 2.097 <sup>d</sup> , 0.067 <sup>e</sup>	7
NSAID	Acetaminophen	Human/Animal	0.135 <sup>a</sup> , 26.910 <sup>b</sup> , 79.111 <sup>d</sup>	7
	Aspirin (Acetylsalicylic acid)	Human/Animal	0.064 <sup>a</sup> , 5.113 <sup>b</sup> , 0.116 <sup>c</sup> 13.336 <sup>d</sup> , 0.080 <sup>e</sup>	7
	Naproxen	Human	0.029 <sup>a</sup> , 1.096 <sup>b</sup> , 0.114 <sup>c</sup> 0.224 <sup>d</sup> , 0.038 <sup>e</sup>	7

a : Surface water, b : Sewage treatment plant influent, c : Sewage treatment plant effluent

d : Livestock wastewater treatment plant influent, e : Livestock wastewater treatment plant effluent

Table 2. Chemical properties of target compounds

Compounds	CAS number	Formular	pKa	log K <sub>ow</sub>	M.W	Structure
Sulfachloropyridazine	80-32-0	C <sub>10</sub> H <sub>9</sub> ClN <sub>4</sub> O <sub>2</sub> S	5.9	0.31	284.7	
Sulfadimethoxine	122-11-2	C <sub>12</sub> H <sub>14</sub> N <sub>4</sub> O <sub>4</sub> S	6.2	0.63	310.3	
Sulfamethazine	57-68-1	C <sub>12</sub> H <sub>14</sub> N <sub>4</sub> O <sub>2</sub> S	7.4	0.89	278.3	
Sulfamethoxazole	723-46-6	C <sub>10</sub> H <sub>11</sub> N <sub>3</sub> O <sub>3</sub> S	5.7	0.89	253.3	
Erythromycin	114-07-8	C <sub>37</sub> H <sub>67</sub> NO <sub>13</sub>	8.8	3.06	733.9	
Trimethoprim	738-70-5	C <sub>14</sub> H <sub>18</sub> N <sub>4</sub> O <sub>3</sub>	7.3	0.91	290.3	
Acetaminophen	103-90-2	C <sub>8</sub> H <sub>9</sub> NO <sub>2</sub>	9.4	0.46	151.2	
Aspirin (Acetylsalicylic acid)	50-78-2	C <sub>9</sub> H <sub>8</sub> O <sub>4</sub>	3.5	1.13	180.2	
Naproxen	22204-53-1	C <sub>14</sub> H <sub>14</sub> O <sub>3</sub>	4.2	3.18	230.3	

주입하고 Jar-tester를 이용한 조건과 잔류의약품질 농도는 1 차 실험과 동일하게 설정하였다.

#### 2.4. 잔류의약품질 분석 방법

시료 중 존재하는 잔류의약품질을 분석하기 위해

시료를 채취하여 On-Line SPE (고체상추출법)를 이용하여 추출, 정제, 농축하고 HPLC-MS/MS로 분석하였다.

시료의 전처리는 시료를 0.45 μm 멤브레인 필터로 여과하여 EPA method 1694에 준하여 실험하였다. 시료를 On-Line SPE 분석방법을 통해 수 ng/L까지 분

Table 3. Characteristics of raw water taken from Juam Reservoir

	pH	Turbidity (NTU)	TDS (mg/L)	Cond. ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ )	Alkalinity (mg/L)	TOC (mg/L)	DOC (mg/L)	UV-254 (mg/L)	NH <sub>3</sub> -N (mg/L)	Nitrate (mg/L)
1st	7.0	1.54	50	94	16.8	1.575	1.553	0.037	ND	0.375
2nd	6.9	1.24	48	74	19.6	1.587	1.507	0.032	ND	0.571

ND : not detected

Table 4. Precursor ion, product ion and collision energy for the determination of Pharmaceuticals

Compound	Precursor ion (m/z)	Product ion (m/z)	Collision energy(eV)
Sulfachloropyridazine	285	156 <sup>a</sup> 91.9 <sup>b</sup>	5 40
Sulfadimethoxine	311.1	156.1 <sup>a</sup> 92 <sup>b</sup>	20 40
Sulfamethazine	279.1	186 <sup>a</sup> 92 <sup>b</sup>	20 40
Sulfamethoxazole	254.1	92 <sup>a</sup> 65 <sup>b</sup>	40 40
Erythromycin	734.3	576.4 <sup>a</sup> 158.1 <sup>b</sup>	20 40
Trimethoprim	291.1	230.1 <sup>a</sup> 123.1 <sup>b</sup>	20 40
Acetaminophen	152.1	110.1 <sup>a</sup> 65 <sup>b</sup>	10 40
Aspirin (Acetylsalicylic acid)	179	137 <sup>a</sup> 93.1 <sup>b</sup>	10 20
Naproxen	229	170 <sup>a</sup> 169 <sup>b</sup>	10 20

<sup>a</sup>Quantitation ion, <sup>b</sup>Confirm ion

석하는 방법을 적용하여 분석하였으며, HPLC는 Agilent 1260 (Agilent, USA)와 MS/MS는 Agilent 6460 (Agilent, USA)을 사용하였다. 분석컬럼은 Poroshell-120 EC-C18, 2.7  $\mu\text{m}$ , 3.0  $\times$  50 mm (Agilent, USA)을 사용하였으며, 농축용 SPE는 HLB-PLRP(Waters, USA)를 사용하였다(Table 4, 5).

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1. 응집 공정에서 잔류의약품질 제어

정수처리 과정 중 응집 공정에서 잔류의약품질 제거 효율을 조사하였다(Table 6). 응집에 의한 제거 효율을 알아보기 위해 전염소 처리를 하지 않고 응집제인 PACI 15 mg/L를 주입하여 실험을 하였다.

전체적으로 응집 공정에서 의약품질을 제거율은 50% 이하로 큰 효과는 보이지 않았다. Sulfonamide계 항생제 (Sulfadimethoxine, Sulfamethoxazole, Sulfamethazine, Sulfachloropyridazine)가 22.6~42.1% 일부 제거되었으며, Pyrimidine계 항생제인 Trimethoprim은 4.4%, Macrolide계 항생제인 Erythromycin은 2.4%로 낮은 제거율을 보여 주었다. 비스테로이드성 항염증제 (NSAID)인 Naproxen과 Acetaminophen은 각각 28.2%, 20% 제거되었으나 Aspirin은 전혀 제거되지 않았다. 선행 연구에 의하면 화학적 응집만으로는 잔류의약품질의 제거율이 저조하다는 연구 결과를 보였다.<sup>10-12</sup> Stackelberg *et al.*(2007)은 Acetaminophen, Sulfonamide계 항생제 등과 같은 log  $K_{ow}$ <1 인 친수성 미량 오염물질들의 경우 응집제와 정전기적 결합이 가능하여 일부 제거가 가능하다고 보고하였다.<sup>13</sup> Erythromycin 등은 log  $K_{ow}$ >3 인 소수성 미량 오염물질들로 부유물질이나 콜로이드성 물질 등의 자연계 입자들과의 흡착 반응을 통한 응집 과정에서 미량 제거 되었으며 Adams *et al.*(2002)의 연구와 유사한 결과를 보였다.<sup>14</sup>

#### 3.2. 염소 처리 공정에서 잔류의약품질 제어

전염소처리 과정에서 염소 주입량을 변화시켜 잔류의약품질 제거 효율을 비교하였다. 잔류염소 농도를 1~6 mg/L로 단계별로 변화시키고 응집제를 투입하여 산화와 응집, 침전에 의한 잔류의약품질 제거 효과를 알아보았다. 전체적으로 염소 주입량이 많을수록 잔류의약품질 제거율이 증가되었다. Sulfonamide계 항생제의 경우는 염소주입량 1 mg/L 농도에서 약 70% 이상, 1.5 mg/L에서는 95% 이상이 제거 되었으며, Acetaminophen과 Naproxen은 염소주입량 3 mg/L에서 전량 제거 되었다(Table 6).

응집 공정에서 5% 이내로 제거율이 미미했던 Erythromycin, Trimethoprim, Aspirin의 염소 주입 농도별 제거율을 Fig. 2에 나타내었다. Trimethoprim은 염소 주입량 3 mg/L에서 약 99% 이상 제거되었으며, Erythromycin은 염소 주입량 6 mg/L에서 약 90%가 제거 되었다. Westerhoff *et al.*(2005)의 연구에서는 염

Table 5. Operating conditions for HPLC/MS/MS and On-line SPE in the determination of Pharmaceuticals

Parameters		Condition			
HPLC condition	Column	Poroshell-120 EC-C18 (2.7 μm, 3.0 × 50 mm)			
	Mobile phase	A = 0.1 % Acetic acid B = Acetonitrile			
	Column flow rate	0.7 mL/min			
	Injection volume	1.8 mL			
		Time(min)	A (%)	B (%)	
		0.00	100	0	
	Gradient	2.00	95	5	
	3.50	70	30		
	9.00	0	100		
	11.50	95	5		
MS condition	Ion source	ESI			
	Capillary	3500 V			
	Sheath gas flow rate	12 L/min			
	Sheath gas temperature	350 °C			
	Nebulizer pressure	45 psig			
	Gas temperature	280 °C			
On-line SPE condition	SPE cartridge	HLB-PLRP-S, 15 μm			
	Injection volume	1.8 mL total			
	Mobile phase	A = 0.1 % Acetic acid B = isopropanol:Methanol:Acetonitrile (1:1:1) C = Acetonitrile			
		Time (min)	A (%)	B (%)	C (%)
		0.00	95	0	5
	Gradient	5.50	0	100	0
		11.10	95	0	5

Table 6. Removal efficiencies of pharmaceuticals compound by chlorination and coagulation processes

General use	Coagulant dose (mg/L)	15				
	Chlorine dose (mg/L)	-	1	1.5	3	6
Antibiotic	Sulfachloropyridazine	22.6	84.6	99.3	100	100
	Sulfadimethoxine	42.1	100	100	100	100
	Sulfamethazine	32.6	72.4	95.9	100	100
	Sulfamethoxazole	35.8	95.8	100.0	100	100
	Erythromycin	2.4	4.0	4.3	54.1	89.6
NSAID	Trimethoprim	4.4	32.2	63.1	98.7	99.5
	Acetaminophen	20.0	79.0	82.1	100	100
	Aspirin	0	0	2.7	10.1	16.1
	Naproxen	28.2	22.4	25.8	100	100

소 3.8 mg/L를 지표수에 투입하여 Acetaminophen, Trimethoprim, Erythromycin은 약 98 %, Sulfamethoxazole은 90 % 제거되었다고 보고하였다.<sup>15</sup> 또한, Stackelberg *et al.*(2007)은 염소 소독 후 Sulfamethoxazole

와 Acetaminophen은 검출 되지 않았으며, Erythromycin은 약 92 % 제거 되었으며, 유리 염소에 의한 산화 작용에 의한 것이라고 보고하였다.<sup>13</sup>

염소 처리 공정은 자유 염소에 의한 산화반응으로

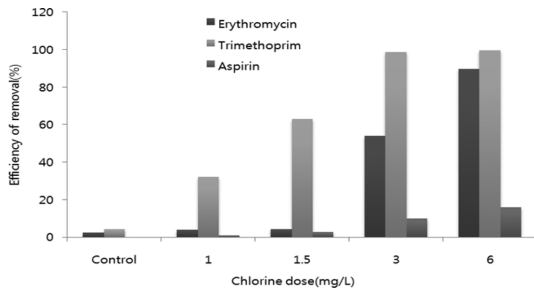


Fig. 2. Efficiency of removal of Erythromycin, Trimethoprim and Aspirin by Chlorination.

미량오염물질의 분해가 가능하여 염소 주입량 6 mg/L에서 대상 의약품의 약 90% 이상을 산화시킨 것으로 나타났으며, 응집 공정에서 제거되지 않았던 Aspirin은 산화 과정에 의해 16.1% 제거된 것으로 판단된다.

### 3.3. 분말활성탄 흡착에 의한 잔류의약품질 제어

정수처리 과정 중 분말활성탄(Powdered activated carbon, PAC) 흡착에 의한 의약품질 제거율을 알아보기 위해 PAC, PAC/응집제, 전염소/PAC/응집제 등 혼합 공정으로 실험하였다.

분말활성탄 제거 효과를 알아보기 위해 전염소와 응집제를 투입하지 않고 시료에 분말활성탄을 단독으로 주입하여 보았다. 전체적으로 분말활성탄 주입 농도를 증가시킬수록 제거율은 증가되는 경향을 나타냈다. Sulfonamide계 항생제는 분말활성탄 1 mg/L에서 약 18~50% 제거율을 보였으며, 25 mg/L에서는 Aspirin을 제외한 잔류의약품질 8종이 약 80% 이상 제거되었다.

전염소(3 mg/L)처리를 하고 분말활성탄(1 mg/L) 처리, 응집제(15 mg/L)를 추가하였을 때 Sulfonamide계 항생제, Acetaminophen, Naproxen은 100%, Trimethoprim은

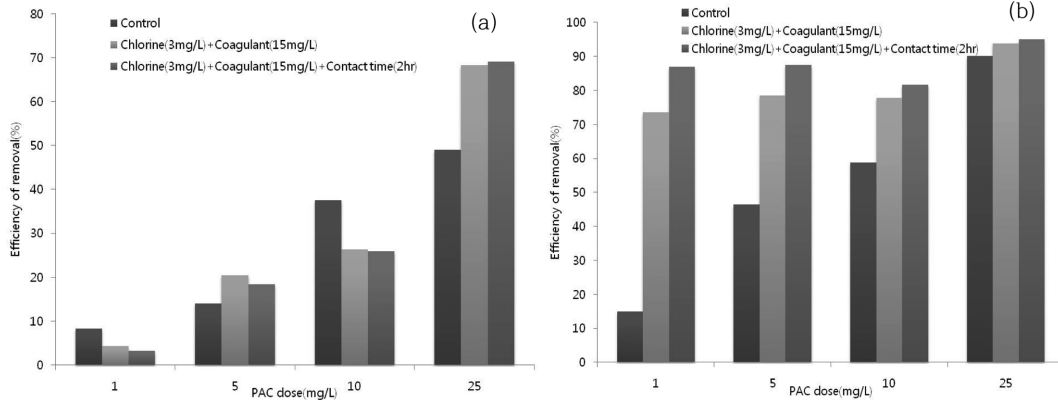


Fig. 3. Efficiency of removal of Aspirin(a) and Erythromycin(b) by chlorination, coagulation and adsorption processes.

Table 7. Removal efficiencies of pharmaceutical compounds by powdered activated carbon(PAC) adsorption

Chlorine dose (mg/L)	-				3				3			
	-				15				15			
Coagulant dose (mg/L)	-				-				2			
Contact time (hr)	-				-				-			
PAC dose (mg/L)	1	5	10	25	1	5	10	25	1	5	10	25
Sulfachloropyridazine	34.7	41.2	49.1	83.6	100	100	100	100	100	100	100	100
Sulfadimethoxine	42.1	45.5	69.8	88.5	100	100	100	100	100	100	100	100
Sulfamethazine	17.9	52.4	70.3	92.0	100	100	100	100	99.5	99.0	94.8	99.4
Sulfamethoxazole	50.3	38.8	55.6	76.4	100	100	100	100	100	100	100	100
Erythromycin	14.9	46.5	58.7	90.2	73.3	78.5	77.8	93.8	86.9	87.5	81.7	95.1
Trimethoprim	5.0	74.7	82.7	98.4	98.6	99.7	99.6	100	99.3	100	99.7	100
Acetaminophen	0	58.3	79.2	95.0	100	100	100	100	100	100	100	100
Aspirin	8.3	14.0	37.5	49.0	4.4	20.4	26.3	68.4	3.3	18.4	25.9	69.2
Naproxen	44.2	56.8	68.9	98.7	100	100	94.3	100	100	100	98.5	100

약 99% 제거되었다. 전염소 및 응집 처리에서 제거율이 낮았던 Aspirin과 Erythromycin의 공정별 제거율을 비교하였다(Fig. 3). Aspirin의 경우 전염소 및 응집제 처리, 분말활성탄 단독 처리시 제거 효율이 낮았으나, 전염소(3 mg/L), 분말활성탄(25 mg/L), 응집제(15 mg/L) 투입 후 2시간 접촉시간을 주었을 때 최대 69.2%까지 제거되었다. Erythromycin은 전염소(3 mg/L)와 응집제(15 mg/L) 투입시 54.1% 제거되었으나, 분말활성탄 25 mg/L을 추가하여 2시간의 접촉시간을 주었을 때 95.1%까지 제거되었다. 분말활성탄 주입농도 10 mg/L에서 접촉시간 변화에 따른 Aspirin 제거효과는 미미하였지만, Erythromycin은 분말활성탄 처

리 후 2시간 접촉시간을 주었을 때 약 10% 제거율이 증가하였다(Table 7). Adams *et al.* (2002)은 Erythromycin 등과 같은 log K<sub>ow</sub>가 3 이상인 소수성 미량오염물질의 경우 부유물질이나 콜로이드성 물질등이 자연계 입자들과의 흡착반응을 통한 응집 과정에서 제거 가능성을 주장하였다.<sup>14</sup>

분말활성탄 주입농도 10 mg/L를 기준으로 전염소, 응집제 등에 따른 제거율 비교하였다(Fig. 4). 분말활성탄 처리만 단독으로 했을 때와 응집제 처리를 추가했을 때 제거율을 비교해 본 결과 Trimethoprim과 Naproxen을 제외하고는 PAC 처리에 응집제를 추가할 때 제거율이 더 감소하였다. 분말활성탄과 응집제 처

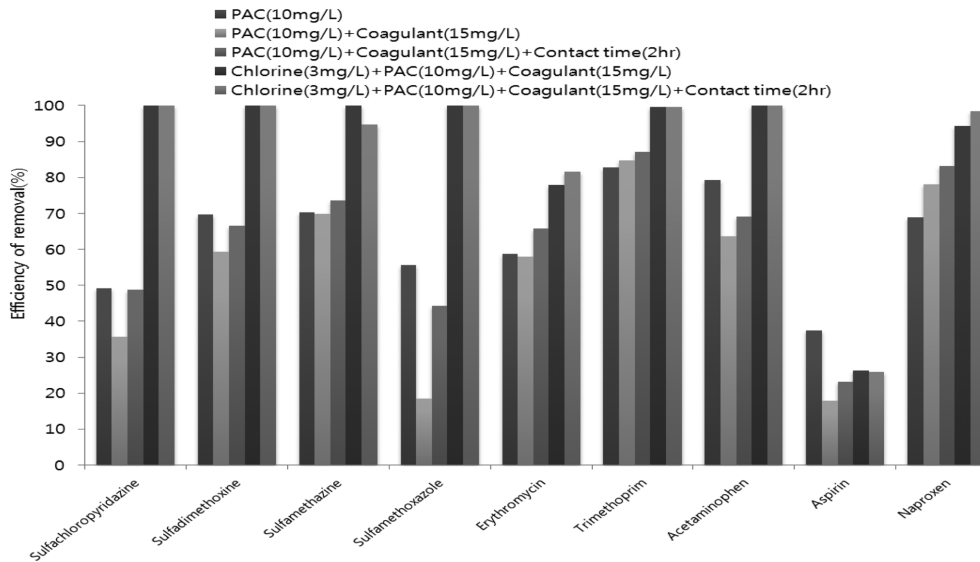


Fig. 4. Efficiency of removal of pharmaceuticals compounds by individual treatment processes.

Table 8. Removal efficiencies of Pharmaceuticals compounds in selected drinking water treatment processes

Compound	Coagulation	Chlorination + Coagulation	Adsorption	Adsorption + Coagulation	Chlorination + Adsorption + Coagulation
Sulfachloropyridazine	×	E	△	△	E
Sulfadimethoxine	△	E	○	△	E
Sulfamethazine	△	E	○	○	E
Sulfamethoxazole	△	E	△	○	E
Erythromycin	×	△	△	○	○
Trimethoprim	×	E	◎	◎	E
Acetaminophen	×	E	○	○	E
Aspirin	×	×	△	×	△
Naproxen	△	E	○	◎	E

※PAC : 10 mg/L, Coagulant : 15 mg/L, Chlorine : 3 mg/L

E : > 90 %, ◎: 80 ~ 90 %, ○: 65 ~ 80 %, △: 25 ~ 65 %, ×: < 25 %



리 후 2시간 동안 접촉시간을 설정한 후 분석한 결과 제거율이 증가하였으며, 특히 Sulfamethoxazole의 경우 약 26%가 증가하였다. 또한 분말활성탄과 응집제 처리에 전염소 처리를 추가하니 Sulfonamide계 항생제와 Acetaminophen은 검출되지 않았으며, 그 외 물질들도 제거율이 월등히 증가하였다. 단, Aspirin은 약 26%로 제거율이 저조하였다.

### 3.4. 정수처리 공정별 제어 효율 비교

일반적인 정수처리에 사용되는 산화, 응집, 흡착공정을 중심으로 잔류의약품물질의 제어 효율을 검토하였다. 유효염소 3 mg/L, 응집제 15 mg/L, PAC 10 mg/L로 주입 농도를 고정하여 공정별 제어 효율을 비교하여 Table 8에 나타내었다.

Sulfonamide계 항생제 4종, Trimethoprim, Acetaminophen, Naproxen은 전염소와 응집처리로 95% 이상 제거되었다. Erythromycin은 전염소, PAC 흡착, 응집처리를 했을 때 90% 이상 제거되었다. 제거율이 가장 낮은 Aspirin은 3단계 처리를 하여도 제거율이 30% 미만으로 저조하였다. PAC 주입농도를 25 mg/L로 증가시켰을 때 Erythromycin은 약 94% 제거되어 최상의 제어효율을 보였으며, Aspirin은 약 68% 제거율이 상승하였다.

정수처리 공정별 잔류의약품물질 제어 효율은 잔류의약품물질의 물리·화학적 특성 및 공정의 제어 기작에 따라 차이가 있었으며, 잔류의약품물질을 단일 공정으로 처리하는 것보다 혼합 공정으로 처리함으로써 제어 효율을 향상시킬 수 있으며 정수처리의 안전성 확보가 가능하다고 판단된다.<sup>10</sup>

## 4. 결 론

본 연구에서는 국내 하수처리장 및 축산폐수처리장에서 빈번히 검출되고 있어, 상수원으로 유출될 가능성이 높은 잔류의약품물질 9종을 정수처리공정의 주요 단위공정별로 제어 효율을 분석하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 응집 공정을 단독으로 적용하였을 때, Sulfonamide계 항생제는 22.6~42.1%로 일부 제거 되었으며, Naproxen 28.2%, Acetaminophen 20%가 제거되었다. Trimethoprim은 4.4%, Erythromycin은 2.4%로 낮은 제거율을 보여 주었으며, Aspirin은 전혀 제거되지 않았다.

2. 염소처리와 응집 혼합 공정을 적용하였을 때, 염

소 주입량이 증가할수록 제거율이 증가되었으며, 염소 주입농도 3 mg/L일 때 Sulfonamide계 항생제, Acetaminophen, Naproxen은 100%, Trimethoprim은 약 98%로 높은 제거 효율을 나타내었다. Erythromycin은 약 55% 제거되었으며, Aspirin은 약 10%로 낮은 제거율을 보여 주었다.

3. 분말활성탄 흡착 공정을 단독으로 적용하였을 때, 분말활성탄 주입 농도가 증가할수록 제거율이 증가되었다. Sulfonamide계 항생제의 경우 1 mg/L에서 약 18~50% 제거율을 보였으며, 25 mg/L에서는 약 80% 이상으로 제거율이 증가하였다.

4. 염소처리와 응집 혼합공정에서 제거율이 낮았던 Erythromycin은 염소처리와 분말활성탄 흡착, 응집 혼합 공정 후 2시간 접촉시간을 주었을 때 최대 95%까지 제거되었으며, Aspirin은 약 70% 제거되었다.

5. 정수처리 공정에서 잔류의약품물질의 효율적인 처리를 위한 염소처리와 흡착, 응집 공정의 적정 주입농도를 평가한 결과 Sulfonamide계 항생제와 Acetaminophen, Naproxen, Trimethoprim은 유효염소 3 mg/L, 분말활성탄 10 mg/L, 응집제 15 mg/L을 적용했을 때, 약 90% 이상이 제거되었다. Erythromycin과 Aspirin은 분말활성탄 주입농도를 25 mg/L로 증가시켰을 때 약 94%, 70%의 우수한 제어 효율을 보였다.

국내 상수원에서 잔류의약품물질이 미량 검출되고 있으므로 향후 정수장 유입 가능성을 두고 체계적이고 지속적인 모니터링과 처리 방안 마련이 필요할 것으로 판단된다.

## References

1. Ministry of Food and Drug Safety, 2015 Food and drug statistical yearbook, 2015.
2. National Institute of Environmental Research, Pharmaceuticals in the Environment: source and Fate(III), 2010.
3. World Health Organization, Pharmaceuticals in Drinking-water, 2011.
4. H. J. Son and S. H. Jang, *Env. Eng. Res.*, **33**(6), 453-479 (2011).
5. F. Baquero, J. L. Martinez and R. Canton, *Curr. Opin. Biotech.*, **19**, 260-265 (2008).
6. P. E. Stackelberg, E. T. Furlong, M. T. Meyer, S. D. Zaugg, A. K. Henderson and D. B. Reissman, *Sci. Total Environ.*, **329**, 99-113 (2004).
7. National Institute of Environmental Research, Devel-

- opment of Analytical Method and Study of Exposure of Pharmaceuticals and Personal Care Products in Environment(II), 2007.
8. Water Quality Research Institute of Waterworks Gwangju, 2015 Water Quality Reports, 2015.
  9. J. H. Kim, C. K. Park, M. Y. Kim and S. G. Ahn, *J. Kor. Soci. Environ. Anal.*, **11**(2), 109-118 (2008).
  10. S. W. Nam and K. D. Zoh, *J. Environ Health Sci.*, **39**(5), 391-407 (2013).
  11. N. Vieno, T. Tuhkanen and L. Kronberg, *Environ. Tech.*, **27**(2), 183-192 (2006).
  12. T. A. Ternes, M. Meisenheimer, D. McDowell, F. Sacher, H. J. Brauch, B. Haist-Gulde, B. *et al.* *Environ. Sci. Technol.*, **36**(17), 3855-3863 (2002).
  13. P. E. Stackelberg, G. Jacob, E. T. Furlong, M. T. Meyer, S. D. Zaugg and R. L. Lippincott, *Sci. Total Environ.*, **377**, 255-272 (2007).
  14. C. Adams, Y. Wang, K. Lofin and M. Meyer, *J. Environ Eng.*, **128**(3), 253-260 (2002).
  15. P. Westerhoff, Y. Yoon, S. Snyder and E. Wert, *Environ. Sci. Technol.*, **39**, 6649-6663 (2005).