

TECHNICAL NOTE

## 낙동강 유역에 위치한 폐수처리시설 최종방류수의 수질과 항생물질 분석

박경덕<sup>1)</sup> · 강동환<sup>1)</sup> · 조원기<sup>1)</sup> · 유훈선<sup>2)</sup> · 윤연수<sup>3)</sup> · 김병우<sup>4)\*</sup>

부경대학교 마린융합디자인공학과, <sup>1)</sup>부경대학교 지질환경연구소, <sup>2)</sup>㈜이산친환경연구원, <sup>3)</sup>상지지오텍,  
<sup>4)</sup>한국수자원공사 K-water 연구원

### Analysis of Water Quality Components and Antibiotics in the Final Effluent of Wastewater Treatment Facilities in the Nakdong River Basin

Kyeong-deok Park, Dong-hwan Kang<sup>1)</sup>, Won Gi Jo<sup>1)</sup>, Hun Sun Yu<sup>2)</sup>, Yeon Su Yoon<sup>3)</sup>,  
Byung-Woo Kim<sup>4)\*</sup>

*Department of Marine Design Convergence Engineering, Pukyong National University, Busan 48513, Korea*

<sup>1)</sup>*Institute of Environmental Geosciences, Pukyong National University, Busan 48513, Korea*

<sup>2)</sup>*e-San Eco-friendly Lab Co., Ltd., Damyang 57309, Korea*

<sup>3)</sup>*Sangjigeotec, Busan 48058, Korea*

<sup>4)</sup>*K-water Research Institute, Korea Water Resources Corporation, Daejeon 34350, Korea*

#### Abstract

In this study, the antibiotic components in the final effluent from the 12 wastewater treatment facilities located in the Nakdong River basin were investigated, and the correlation between organic matters, nutrients and antibiotics was analyzed. In the final effluent of the wastewater treatment facilities, three sulfonamides antibiotics (sulfamethazine, sulfathiazole, sulfachlorpyridazine) and tetracyclines antibiotics (oxytetracycline, doxycycline) were detected. Sulfamethazine were detected at all points and ranged from 10.398 to 278.784 ng/L. Sulfathiazole were detected at 6 points (Andong, Gumi, Hapcheon, Miryang, Uiryong, Haman), and ranged from 23.773 to 144.468 ng/L. The correlation coefficients between sulfathiazole and TSS, COD, TOC, NH<sub>3</sub>-N, NO<sub>2</sub>-N, and T-N components were high in the range of 0.73 to 0.92. The correlation coefficient between sulfamethazine and T-N was 0.48, and the correlation with the rest of the water quality components was low. The correlation coefficient between sulfamethazine and sulfathiazole was 0.78. Through this study, it was confirmed that the concentration of sulfonamides antibiotics was higher than the concentration of tetracyclines antibiotics in the final effluent of 12 wastewater treatment facilities in the Nakdong River basin, and the concentration of sulfathiazole increased with organic matters and nutrients.

**Key words** : Nakdong River, Wastewater treatment facility, Antibiotics, Organic matters, Nutrients, Correlation analysis

Received 9 June, 2020; Revised 20 July, 2020;

Accepted 20 July, 2020

\*Corresponding author: Byung-Woo Kim, K-water Research Institute,  
Korea Water Resources Corporation, Daejeon 34350, Korea  
Phone : +82-42-870-7493  
E-mail : bwkim@kwater.or.kr

The Korean Environmental Sciences Society. All rights reserved.  
© 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.

## 1. 서론

연구지역인 낙동강 유역은 유역면적 23,817 km<sup>2</sup>, 유로연장 525 km에 이르는 우리나라 제2의 하천이다(Ahn et al., 2016; Jung et al., 2017; Kang et al., 2019). 낙동강은 강원도와 전북 일부를 포함하고 영남 지역의 대부분을 통과하기 때문에 곳곳에서 도시 및 산업단지와의 농·축산 지역을 많이 접하고 있다. 이러한 오염 환경을 규명하기 위해 낙동강 유역의 점오염원 및 비점오염원에 의한 낙동강 본류의 수질 변화 및 오염된 수질 평가를 위한 연구들이 수행되고 있다(Choi et al., 2012; Lim et al., 2015; Ahn et al., 2016; Jung et al., 2017; Park et al., 2018; Kang et al., 2019; Park et al., 2019). 낙동강 유역에서 수행된 대부분의 연구들은 중금속, 영양염, 유기물 성분을 이용한 부영양화 특성 분석에 집중되어 있다.

최근 신종 유해물질로 주목받고 있는 의약품질에 대한 연구는 국내 주요 수계 및 하·폐수처리장의 처리수를 대상으로 의약품질 모니터링 및 저감에 대한 관련 연구가 수행되고 있다(Kim et al., 2008; Lee et al., 2010; NIER, 2010; Kwon et al., 2011; Son and Jang, 2011). 잔류의약품질에 대한 효과적인 저감 대책을 마련하기 위해서는 배출원에서 이들 물질의 발생량과 거동에 대한 연구 및 현재 운영되고 있는 폐수처리공정에서 최종적으로 배출되는 의약품질과 수질성분의 상호 반응에 대한 연구가 이루어져야 한다.

국내에서는 항생물질, 항균제, 개인의약품 등을 포함한 의약품 검출 및 분포에 대한 연구가 2000년 대 중반부터 수행되었으며, 다음과 같은 연구들이 수행되었다. 남해안의 육상 및 해상 가두리양식장에서 어류의 질병 예방과 치료를 목적으로 fluoroquinolone계 항균제의 어체내 잔류 정도를 분석하였으며(Kim et al., 2006), 한강 수계 상수원의 취수지역에서 동물용 의약품에 의한 오염 실태를 파악하고 분석하였으며(Kim et al., 2008), 축분 퇴비화 시설 주변의 잔류 항생물질을 조사하고 분포 특성 평가하였으며(Lim et al., 2009), 의약품질을 배출하는 소규모 하수처리장, 축산 폐수 처리장, 축산단지, 도축장의 유입수와 유출수 중 잔류의약품질 함량을 조사하여 제거율에 대한 경향을 조사하였으며(NIER, 2010), 계분 처리시설을 중심으로 주변의 농경지 토양, 하천수,

저질토 내 항생물질의 잔류특성을 조사하여 평가하였으며(Lee et al., 2010), 울산 지역의 주요 하천에서 개인용 의약품(PPCP)의 농도와 분포 및 오염원을 추적하였으며(Kwon et al., 2011), 국내와 국외에서 검출된 잔류 의약품질의 거동 및 분포 현황 및 독성에 대한 종합적으로 분석하였다(Son and Jang, 2011).

국외에서는 2000년대 초반부터 북미와 유럽을 중심으로 토양과 수계 내에서 의약품질의 분포 및 검출에 대한 연구가 수행되었으며, 중국은 2010년 이후 하구역과 연안 등에서 항생제 성분의 분포와 농도, 거동 특성에 대한 연구가 활발하게 진행되고 있다. 주요 연구로는 동물용 항생제 성분이 토양과 물에서 거동하는 특성과 유기체 및 박테리아 군집에 미치는 영향성에 관한 연구(Sarmah et al., 2006), 환경 내 존재하는 항생제의 유입, 성장, 이동과정, 생태계에 끼치는 효과 등 현재까지 연구된 자료를 종합적으로 정리한 연구(Kümmerer, 2009), 전 세계적으로 많이 사용되는 동물용 항생제에 대한 중국 황해 연안 수생환경에서의 거동 연구(Zhang et al., 2013), 양쯔강 하구 표층 퇴적물에서 5개 항생제 그룹에 대한 계절별 성장과 분포에 대한 조사 연구(Shi et al., 2014), 인간과 동물에 쓰이는 항생제의 기원 및 농도 분포를 바탕으로 연안환경에 미칠 수 있는 잠재적인 영향 연구(Gaw et al., 2014), 스페인 남동부 MarMenor lagoon의 해수와 퇴적물에서 의약품질 분석을 통해 계절적인 분포특성 파악 및 분배계수를 결정하여 의약품질의 주요 유출경로 파악 연구(Moreno-Gonzalez et al., 2015), 2009년 이후 환경에서 항생제의 발생과 성장에 대한 간단한 요약 및 토양, 침전물, 폐수 슬러지에서 미생물의 질소 순환에 미치는 항생제의 영향과 미생물의 질소 순환에 항생제가 미치는 영향에 대한 방법론적 접근 연구(DeVries and Zhang, 2016) 등이 수행되었다.

외국의 경우 환경 중에서의 항생물질 오염 현황 및 사용량을 정량화하기 위한 조사를 이미 시작하였고, 잔류 의약품질들의 인체에 대한 잠재적 위험성뿐만 아니라 상수나 하수처리 공정에서의 제거 기술에 관한 다양한 연구도 활발히 진행되고 있다. 이에 반하여 국내의 경우에는 잔류 의약품질들에 대해 전국 주요 하천과 상수원에 대한 모니터링 결과도 매우 부족한 실정이므로, 상수원으로 이용되는 전국 주요 하천과 호소에 대해 주기적이고 체계적인 오염현황 모니터링 및 평가가 선행되어야

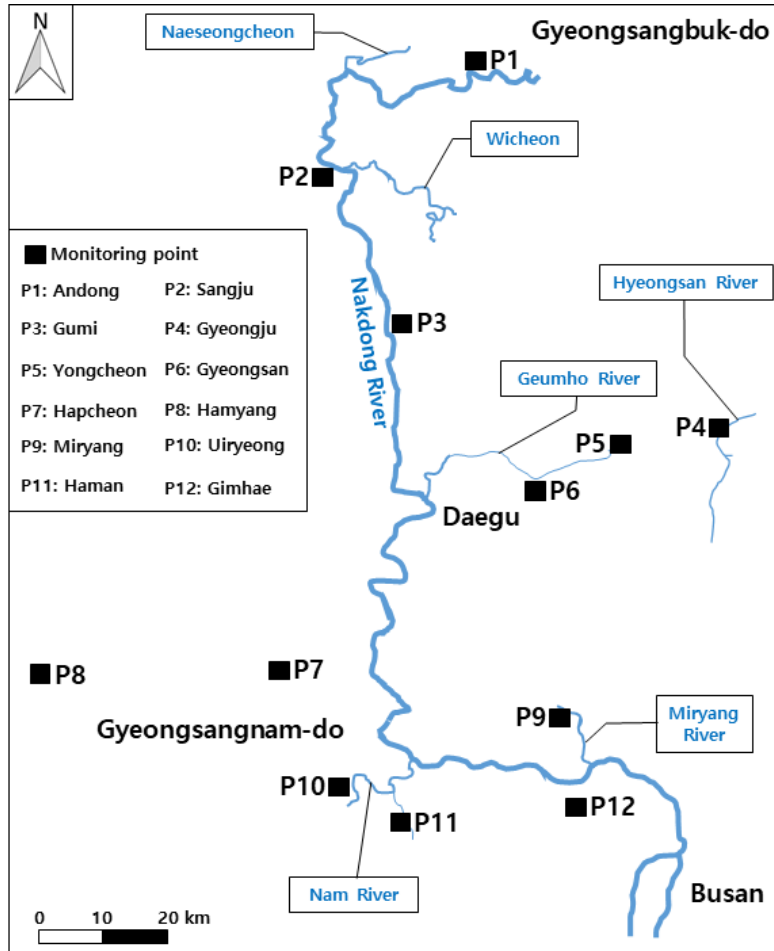


Fig. 1. Nakdong River basin and monitoring points in this study.

한다.

본 연구에서는 낙동강 유역에 위치한 12개 폐수처리 시설의 최종방류수 내 항생물질과 중금속, 유기물, 영양 염 성분을 조사하였으며, 항생물질과 상관성이 높은 수 질성분을 파악하고 항생물질 사이의 상관성도 분석하였다.

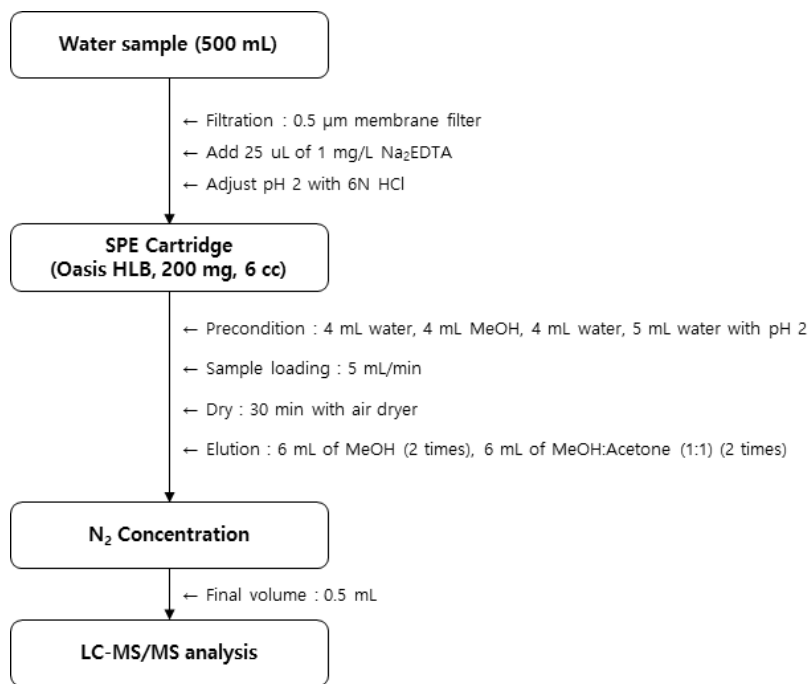
## 2. 재료 및 방법

무강우 기간인 2019년 5월 8~10일 동안 낙동강 유역에 위치한 12개 폐수처리시설의 최종방류수 1개 지점에서 시료(6L)를 채수하여 항생물질과 중금속, 유기물, 영양

염 성분을 분석하였다. 본 연구에서 조사된 폐수처리 시설은 안동(P1), 상주(P2), 구미(P3), 경주(P4), 영천(P5), 경산(P6), 합천(P7), 함양(P8), 밀양(P9), 의령(P10), 함안(P11), 김해(P12)에 위치하고 있다(Fig. 1). 폐수처리시설은 축산폐수처리장과 공공하수처리장으로 구분되며, 축산폐수처리장(단독공정)은 상주, 합천, 함안, 김해의 4개소이고 공공하수처리장(연계공정)은 안동, 구미, 경주, 영천, 경산, 함양, 밀양, 의령의 8개소에 해당한다. 폐수처리용량은 축산폐수처리장에서는 150~330 m<sup>3</sup>/day, 공공하수처리장에서는 4,900~320,000 m<sup>3</sup>/day 정도로서 공공하수처리장이 축산폐수처리장에 비해 수십 배 이상의 하수를 처리하고 있다.

**Table 1.** Analysis methods with water quality components in the final effluent of the wastewater treatment facility

Water quality component	Method	Instrument
TSS	Total solid dried at 105°C	-
CODmn	Acidic Manganese method	-
TOC	High-temperature combustion method	Shimadzu TOC-L (Japan)
T-N	Oxidation method	HACH DR5000 (USA)
T-P	Ascorbic acid method	
NH <sub>3</sub> -N	Phenate method	
NO <sub>2</sub> -N	Colorimetric method	
PO <sub>4</sub> -P	Ascorbic acid method	
Heavy metals	Nitric acid digestion ICP analysis	Perkin Elmer Optima 7300DV (USA)
Antibiotics	SPE method LC/MS analysis	Shimadzu LCMS 8050 (Japan)

**Fig. 2.** Flow diagram of pre-treatment of water samples for antibiotic analysis.

폐수처리시설의 최종방류수에 대한 실내분석용 시료 채수 시 유기물(COD, TOC), 총부유물질(TSS), 영양염류(T-N, T-P, NO<sub>2</sub>-N, NH<sub>3</sub>-N, PO<sub>4</sub>-P), 중금속(Al, As, Cd, Cr, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, Zn) 분석용 시료는 폴리에

틸렌 병에, 항생물질 분석용 시료는 갈색 유리병에 각각 채수하여 차광 상태로 운반하였다. 유기물, 총부유물질, 영양염류는 수질공정시험법에 제시한 방법에 따라 분석하였으며, 중금속 성분은 질산을 이용한 산분해법으로

**Table 2.** LC-MS / MS analysis conditions for antibiotic analysis

LC-MS/MS	Shimadzu LCMS 8050																								
Column	SHIMA-PACK C18 (2 mm x 75 mm)																								
Column temperature	35℃																								
Injection volume	5 µL																								
Flow	0.3 mL/min																								
	A : 0.1% acetic acid in water, B : Acetonitrile																								
	<table border="1"> <thead> <tr> <th>Time</th> <th>A (%)</th> <th>B (%)</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>0</td> <td>95</td> <td>5</td> </tr> <tr> <td>2</td> <td>95</td> <td>5</td> </tr> <tr> <td>6</td> <td>65</td> <td>35</td> </tr> <tr> <td>9</td> <td>10</td> <td>90</td> </tr> <tr> <td>12</td> <td>10</td> <td>90</td> </tr> <tr> <td>12.5</td> <td>95</td> <td>5</td> </tr> <tr> <td>16</td> <td>95</td> <td>5</td> </tr> </tbody> </table>	Time	A (%)	B (%)	0	95	5	2	95	5	6	65	35	9	10	90	12	10	90	12.5	95	5	16	95	5
Time	A (%)	B (%)																							
0	95	5																							
2	95	5																							
6	65	35																							
9	10	90																							
12	10	90																							
12.5	95	5																							
16	95	5																							
Mobile phase																									
Ionization	Electrospray Ionization (ESI, Positive)																								
MS condition	Temperature : Interface (150℃), DL (250℃), Heat block (400℃) Interface voltage : 4.0 kV CID gas : 270 kPa																								

수중 유기물질을 분해하는 전처리 과정을 수행한 후 ICP-OES를 이용하여 중금속 성분의 농도를 분석하였다 (Table 1). 항생물질 성분은 고체상 추출방법(Solid Phase Extraction; SPE)을 적용하여 전처리를 수행한 후 LC-MS/MS를 이용하여 분석하였으며(Fig. 2), 항생물질 분석을 위한 LC-MS/MS의 운전 조건은 Table 2에 정리하였다.

본 연구에서는 낙동강 유역에 위치한 폐수처리시설의 최종방류수 내 유기물, 영양염, 중금속 성분 분석 자료에 대한 기술통계분석을 수행하였다. 최종방류수에서 검출된 항생물질 중 sulfamethazine 및 sulfathiazole에 대한 수질성분의 상관성 분석을 수행하였으며, sulfathiazole 성분과 상관성이 높게 나타난 수질성분(유기물, 영양염류 등)을 이용하여 수질성분에 대한 sulfathiazole 성분의 회귀함수를 추정하였다. 또한 sulfonamide 계열 항생물질인 sulfamethazine에 대한 sulfathiazole의 회귀함수도 추정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1. 폐수처리시설 최종방류수의 수질성분 분석

폐수처리시설 최종방류수 내 유기물과 영양염 성분

분석 결과를 Fig. 3과 Table 3에 정리하였다. TSS의 농도는 0.667~7.833 mg/L 범위이며, 김해에서 가장 낮고 상주에서 가장 높은 값을 보였으며, 모든 지점에서 방류수 수질기준 이하로 나타났다. COD 농도는 7.304~25.232 mg/L 범위이며, 함양에서 가장 낮고 상주에서 가장 높았으며, 모든 지점에서 COD에 대한 방류수 수질기준(50 mg/L 이하) 이하로 나타났다. TOC는 COD와 유사한 농도 경향을 보였으며, 농도는 4.605~23.227 mg/L 범위이었다. T-N의 농도는 2.651~16.878 mg/L 범위이며, 안동 지점에서 가장 높고 함안 지점에서 가장 낮았으며, 모든 지점에서 방류수 수질기준보다 낮았다. NH<sub>3</sub>-N 농도는 0.017~7.101 mg/L 범위이며, 김해 지점에서 가장 낮고 영천 지점에서 가장 높았다. NO<sub>2</sub>-N 농도는 0.033~9.428 mg/L 범위이며, 김해 지점에서 가장 낮고 영천 지점에서 가장 높았다. PO<sub>4</sub>-P 농도는 0.002~0.157 mg/L 범위이며, 경산 지점에서 가장 낮고 경주 지점에서 가장 높았다. T-P의 농도는 0.030~0.451 mg/L 범위이며, 김해 지점에서 가장 낮고 경주 지점에서 가장 높았으며, 모든 지점에서 방류수 수질기준 이하로 나타났다. 상주 지점의 경우 TSS와 유기물 항목의 농도가 다소 높으며, 경주 지점에서는 다른 항목의 농도는 비교적 낮으나 T-P의 농도가 다소 높았으며, 김해와 함천, 함안,

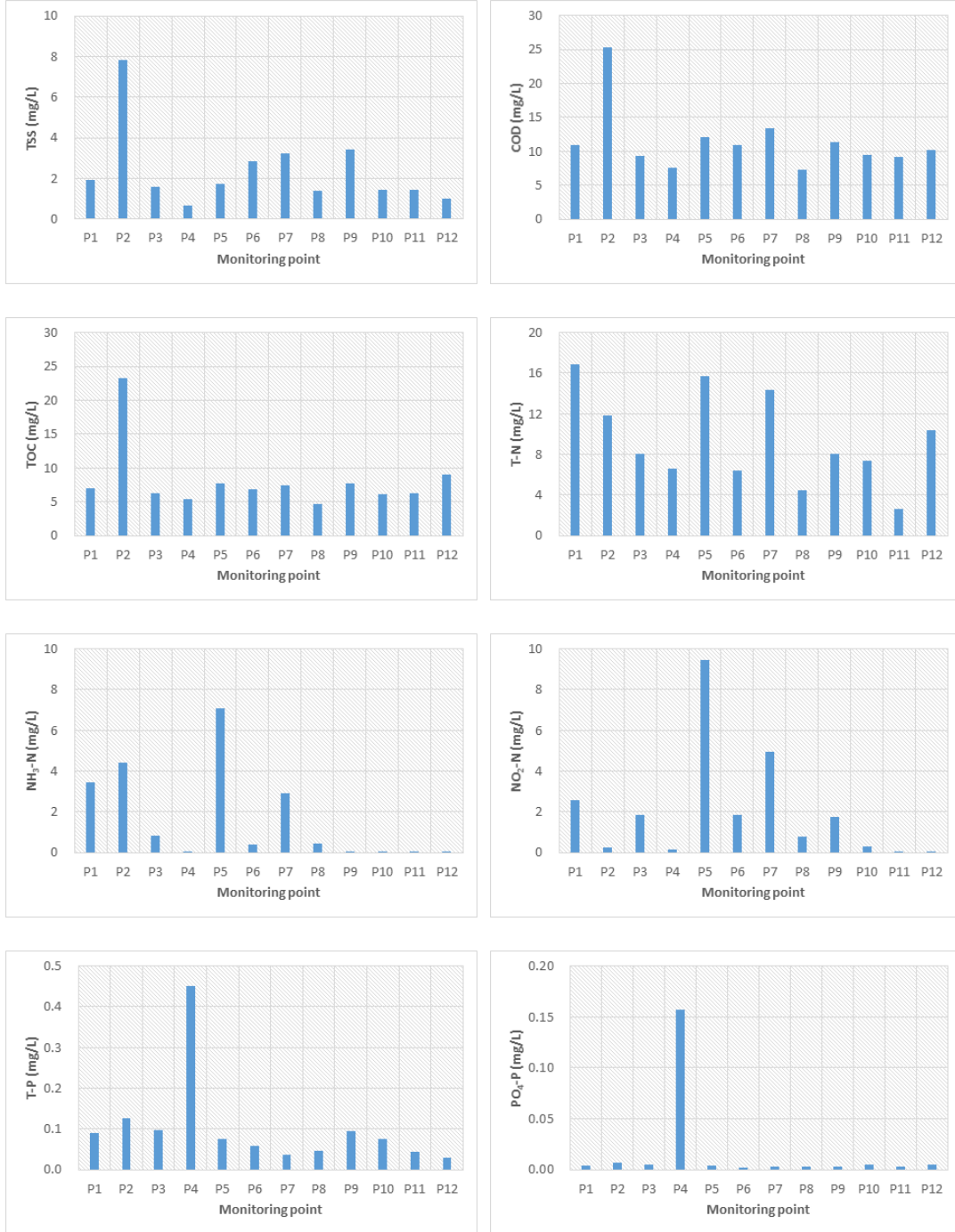


Fig. 3. Analysis results of organic matters and nutrients in the final effluent of wastewater treatment facilities.



Fig. 4. Analysis results of heavy metals in the final effluent of wastewater treatment facilities.

**Table 3.** Descriptive statistics for water quality components in the final effluent of wastewater treatment facilities (unit: mg/L)

Component	Avg	Min	Max	SD	CV
TSS	2.372	0.667	7.833	1.842	0.777
COD	11.410	7.304	25.232	4.491	0.394
TOC	8.139	4.605	23.227	4.681	0.575
NH <sub>3</sub> -N	1.648	0.017	7.101	2.218	1.346
NO <sub>2</sub> -N	1.997	0.033	9.428	2.626	1.315
T-N	9.399	2.651	16.878	4.296	0.457
PO <sub>4</sub> -P	0.017	0.002	0.157	0.042	2.522
T-P	0.102	0.030	0.451	0.109	1.062
Al	2.94	0.34	5.55	1.79	0.61
As	0.08	0.03	0.13	0.04	0.49
Cd	0.01	0.00	0.01	0.00	0.45
Cr	0.02	0.01	0.05	0.01	0.50
Cu	0.11	0.00	0.76	0.21	1.81
Fe	1.20	0.29	6.28	1.66	1.38
Mn	4.96	0.00	47.28	12.93	2.61
Ni	0.10	0.00	0.59	0.16	1.56
Pb	0.01	0.00	0.03	0.01	1.04
Zn	3.59	0.00	40.54	11.15	3.10

의령, 함양 등의 비교적 하류에 위치한 시설은 전체적으로 상류 지점에 비해 방류수의 수질이 낮았고, 김해와 합천, 함안 지점은 단독 공정임에도 불구하고 공공하수처리시설과 비슷한 수준의 수질을 보였다.

폐수처리시설 최종방류수 내 중금속 성분 분석 결과를 Fig. 4와 Table 3에 정리하였다. Al 농도는 0.34~5.55 mg/L 범위이며, 합천 지점에서 가장 낮고 밀양 지점에서 가장 높았다. As 농도는 0.03~0.13 mg/L 범위이며, 구미 지점에서 가장 낮고 경산과 합천, 의령 지점에서 가장 높았다. Cd 성분은 모든 지점에서 거의 검출되지 않았다. Cr 성분의 최고 농도는 상주 지점에서 0.05 mg/L 로서 매우 낮은 농도를 보였다. Cu 농도는 0.00~0.76 mg/L 범위이며, 안동과 상주, 의령 지점을 제외하면 소량이 검출되었다. Fe 농도는 0.29~6.28 mg/L 범위이며, 경산 지점에서 가장 낮고 상주 지점에서 가장 높았다. Mn 농도는 0.00~47.28 mg/L 범위이며, 상주 지점을 제외한 지점에서 1.00 mg/L 이하의 농도를 보이고 김해와 경주 지점은 검출되지 않았다. Ni 농도는 상주 지점을 제외하면 0.60 mg/L 이하의 낮은 농도를 보였다. Pb

농도는 최대 0.03 mg/L 로서 낮았다. Zn 농도는 0.00~40.54 mg/L 범위이며, 상주 지점에서 40.54 mg/L의 높은 농도를 보였으며, 나머지 지점에서는 0.20 mg/L 이하의 낮은 농도를 보였다. 폐수처리시설의 최종방류수에서는 Mn과 Zn의 농도가 매우 높았으나, 모든 중금속 성분이 방류수 수질기준에 적합한 것으로 나타났다.

### 3.2. 폐수처리시설 최종방류수의 항생물질 분석

낙동강 유역의 12개 폐수처리시설의 최종방류수에서 채수한 시료에 대한 항생물질을 분석한 결과, sulfonamide 계열의 항생물질 3종(sulfamethazine, sulfathiazole, sulfachlorpyridazine) 및 tetracycline 계열의 항생물질 2종(oxytetracycline, doxycycline)이 검출되었다(Table 4). Sulfamethazine 및 sulfathiazole은 각각 12개소와 6개소에서 검출되었으며, 2개 성분에 대한 검출 지점과 농도는 Fig. 5에 제시하였다.

Sulfonamide 계열의 항생물질인 sulfamethazine 성분은 12개 지점에서 10.398~278.784 ng/L 범위로 검출되었으며, 경산 지점(P4)에서 10.398 ng/L로서 가장 낮고 안동 지점(P1)에서 278.784 ng/L로서 가장 높았다.



**Table 4.** Analysis result of antibiotics in the final effluent of wastewater treatment facility (unit : ng/L)

ID	Monitoring point	Sulfa-methazine	Sulfa-thiazole	Sulfa-chlorpyridazine	Oxy-tetracycline	Doxy-cycline
P1	Andong	278.784	128.655	ND	ND	ND
P2	Sangju	51.702	ND	ND	ND	ND
P3	Gumi	48.903	23.773	ND	ND	ND
P4	Gyeongju	45.257	ND	ND	34.249	ND
P5	Yeongcheon	76.031	ND	11.441	ND	ND
P6	Gyeongsan	10.398	ND	ND	ND	ND
P7	Hapcheon	164.984	144.468	ND	ND	ND
P8	Hamyang	42.624	ND	ND	ND	ND
P9	Miryang	154.333	98.4	ND	ND	ND
P10	Uiryeong	122.256	47.935	ND	ND	ND
P11	Haman	117.619	29.508	ND	ND	ND
P12	Gimhae	15.047	ND	ND	ND	50.123

\* ND : Not Detected

Sulfathiazole 성분은 6개 지점(안동, 구미, 합천, 밀양, 의령, 함안)에서 23.773~144.468 ng/L 범위로 검출되었으며, 구미 지점(P3)에서 23.773 ng/L로 가장 낮았으며, 합천 지점(P7)에서 144.468 ng/L로서 가장 높았다. Sulfachlorpyridazine 성분은 영천 지점(P5)에서만 11.441 ng/L로 검출되었다. Tetracycline 계열의 항생물질인 oxytetracycline 성분은 경주 지점(P4)에서 34.249 ng/L, doxycycline 성분은 김해 지점(P12)에서 50.123 ng/L 농도로 검출되었다.

국내의 경우에는 가축용으로 소비된 항생물질 중 tetracycline 계열과 sulfonamide 계열의 항생물질이 많은 양을 차지하고 있으며(Lee et al., 2010), 국내 축산폐수처리시설의 유입수와 방류수에서는 tetracycline 계열보다 sulfonamide 계열의 항생물질이 더 많이 검출되는 것으로 보고되었다(NIER, 2010). 본 연구에서 조사된 12개 폐수처리시설의 최종방류수에서도 tetracycline 계열의 항생물질은 2개소에서만 검출되고 60 ng/L 이하의 농도로 나타났다. Sulfonamide 계열의 항생물질인 sulfamethazine 성분은 모든 지점에서 검출되고 5개 지점에서는 100 ng/L 이상으로, sulfathiazole 성분은 6개 지점에서 검출되고 2개 지점에서 100 ng/L 이상으로 나타나 기존 연구와 유사한 경향을 보였다(Fig. 5).

본 연구지역에서는 tetracycline 계열 항생물질의 총합

(TCs)은 34.249~50.123 ng/L 정도이고, sulfonamide 계열 항생물질의 총합(SAs)은 15.047~407.439 ng/L로서 tetracycline 계열보다 높게 나타났다. 이는 tetracycline 계열의 항생물질이 유기물질 및 광물입자와의 결합력이 강하고(Christian et al., 2003; Lim et al., 2009), 또한 tetracycline 계열의 항생물질은 폐수처리 과정에서 갈슘과 이온 성분들과 쉽게 결합하여 안정한 복합체를 형성하여 자유분자로 존재하지 않고 부유물질과 결합하기 때문인 것으로 판단된다(Hirsch et al., 1999). 국내에서 수행된 기존의 조사에 의하면, 영산강 수계에서 검출된 항생물질 중 lincomycin, sulfamethazine, sulfathiazole, sulfamethoxazole 성분들이 모든 조사 지점에서 검출 빈도가 높았으며(Shim, 2016), 금강 유역에서 축산단지 주변 하천수에서 검출된 sulfonamide 계열 및 tetracycline 계열의 항생물질 중 sulfamethazine 성분의 검출 빈도가 가장 높았다(NIER, 2018). 본 연구의 결과와 기존의 연구 결과를 통해 국내 폐수처리시설의 최종방류수에서는 sulfonamide 계열의 항생물질이 tetracycline 계열의 항생물질보다 상대적으로 높게 검출되고 있음을 확인하였다.

### 3.3. 항생물질과 수질성분의 상관성 분석

중금속 성분과 항생물질의 상관성은 매우 낮아서 제시하지 않았으며, TSS, COD, TOC, NH<sub>3</sub>-N, NO<sub>2</sub>-N, T-N

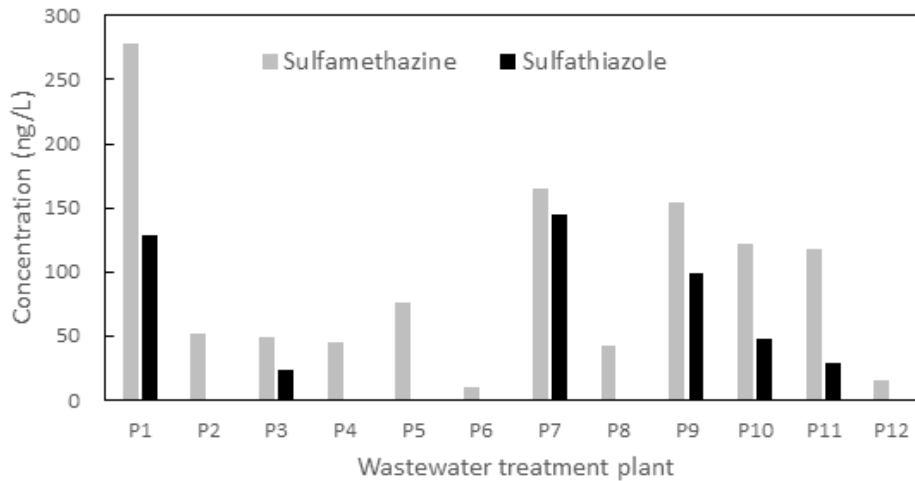


Fig. 5. Sulfamethazine and sulfathiazole detected in the final effluent of a wastewater treatment facility.

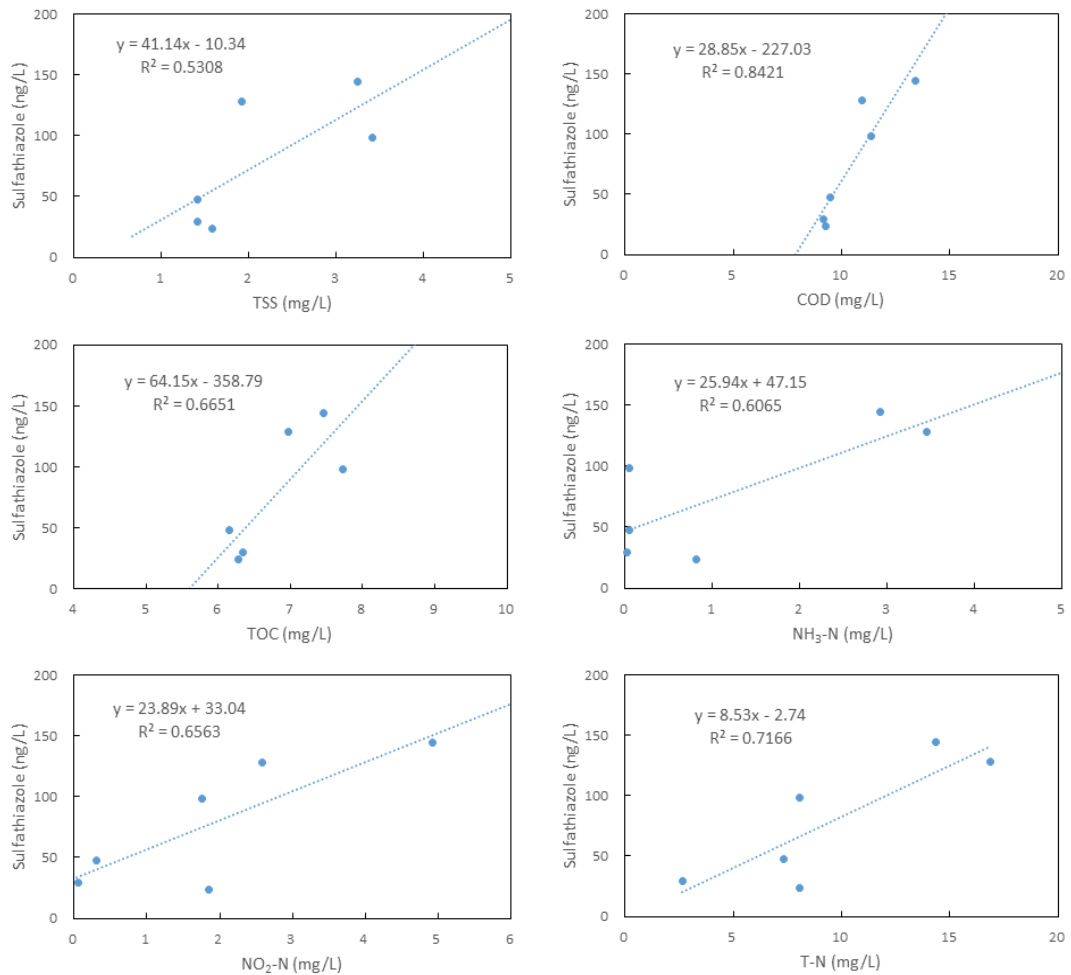
성분들과 sulfathiazole의 상관계수는 0.70 이상으로서 높은 상관성을 보였으며 Table 5에 정리하였다. Sulfamethazine 성분과 T-N 성분의 상관계수가 0.48의 상관성을 보였으며, sulfamethazine 성분과 나머지 성분 사이의 상관성은 낮은 것으로 나타났다. Sulfathiazole 성분은 TSS, 유기물, 영양염 성분과의 상관성이 높게 나타났으며, 상관계수는 0.73~0.92의 범위로서 COD 성분과의 상관계수가 0.92로서 가장 높은 상관성을 보였다. Sulfamethazine과 sulfathiazole 성분은 6개 처리시설(안동, 구미, 합천, 밀양, 의령, 함안)에서 검출되었으며, 두 성분의 상관계수는 0.78로서 높은 상관성을 보였다. 금강 유역의 축산단지 주변 하천수에서도 COD, TOC, NH<sub>3</sub>-N, T-N 성분이 양돈 단지 인근에서 다른 지점들에 비해 높은 농도로 검출되었으며(NIER, 2018), 폐수처리 시설에 유입되는 COD, T-N 성분의 농도가 매우 높고 최종방류수에서도 수~수십 mg/L의 농도로 유출되었다(NIER, 2010). 기존의 연구 결과에서도 국내 폐수처리 시설에서 항생물질이 검출되는 경우에는 유기물과 영양염이 높은 농도를 보이는 것은 유사하였다. 기존의 연구에서는 유기물과 영양염에 대한 항생물질의 상관성을 분석하지는 못하였으나, 본 연구에서는 폐수처리시설의 최종방류수에서 유기물과 영양염에 대한 sulfathiazole 성분의 상관성이 높음을 확인함으로써 향후에 폐수처리시설 및 수계에서 항생물질의 증감에 영향을 미치는 요인들에

대한 연구 결과를 제시하였다. Ok et al.(2011)은 퇴비화 시설(composting facility) 하류부에 위치한 강원도 홍천강에서 조사된 하천수의 수질성분과 항생물질 사이의 상관성 연구를 수행하였다. 하천수의 EC(전기전도도), T-N, 탁도 성분에 대한 sulfamethazine 성분의 상관계수는 0.880~0.989, sulfathiazole 성분의 상관계수는 0.890~0.996 으로서 높은 상관성을 보였으나, 본 연구에서는 T-N 성분에 대한 sulfamethazine 및 sulfathiazole 성분의 상관계수는 각각 0.48 및 0.85로서 낮았다. 이러한 결과는 동일 하천에서 조사된 자료를 이용하였기에 더 높은 상관성이 나타난 것이고, 본 연구에서는 공간적으로 이격되고 주변 오염 환경이 다른 12개 폐수처리시설의 최종방류수에서 조사된 항생물질과 수질 자료를 이용하였기 때문으로 판단된다.

Sulfathiazole 성분과의 상관성이 높은 성분들을 이용하여 회귀분석을 수행하였으며, TSS, 유기물, 영양염 성분들에 대한 sulfathiazole 성분의 선형회귀함수를 추정하였다(Fig. 6). TSS 성분에 대한 sulfathiazole 성분의 선형회귀함수의 결정계수는 0.5308, 함수의 기울기는 41.14로서 폐수처리시설의 최종방류수에 부유물질의 양이 많을수록 sulfathiazole 성분이 증가함을 확인하였다. COD 성분에 대한 sulfathiazole 성분의 선형회귀함수의 결정계수는 0.8421로서 매우 높았으며, 함수의 기울기는 28.85로서 축산폐수처리시설의 최종방류수에 화학적

**Table 5.** Correlation coefficients between water quality components and antibiotics

Component	TSS	COD	TOC	NH <sub>3</sub> -N	NO <sub>2</sub> -N	T-N	Sulfa-methazine	Sulfa-thiazole
TSS	1.00							
COD	0.95	1.00						
TOC	0.91	0.97	1.00					
NH <sub>3</sub> -N	0.40	0.55	0.43	1.00				
NO <sub>2</sub> -N	-0.03	0.06	-0.11	0.78	1.00			
T-N	0.27	0.42	0.30	0.80	0.65	1.00		
Sulfamethazine	0.01	-0.00	-0.14	0.22	0.20	<b>0.48</b>	1.00	
Sulfathiazole	<b>0.73</b>	<b>0.92</b>	<b>0.82</b>	<b>0.78</b>	<b>0.81</b>	<b>0.85</b>	<b>0.78</b>	1.00



**Fig. 6.** Regression functions of water components (organics and nutrients) and sulfathiazole.

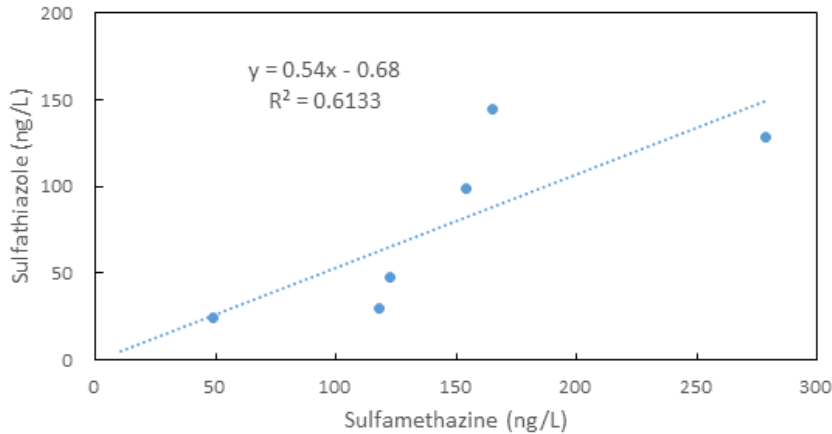


Fig. 7. Regression function of sulfamethazine and sulfathiazole.

산소 요구량이 증가할수록 sulfathiazole 성분이 증가함을 확인하였다. TOC 성분에 대한 sulfathiazole 성분의 선형회귀함수의 결정계수는 0.6651로서 높았으며, 함수의 기울기는 64.15로서 크게 나타났다. COD와 TOC 성분에 의한 sulfathiazole 성분의 선형적인 증가함수는 폐수처리시설의 최종방류수에 포함된 유기물 성분이 많을수록 sulfathiazole 성분의 농도가 증가함을 의미한다. NH<sub>3</sub>-N, NO<sub>2</sub>-N, T-N 성분에 대한 sulfathiazole 성분의 선형회귀함수의 결정계수는 각각 0.6065, 0.6563, 0.7166, 함수의 기울기는 각각 25.94, 23.89, 8.53으로 나타났고, 이를 통하여 폐수처리시설의 최종방류수에 포함된 질소 계열의 영양염 성분이 많을수록 sulfathiazole 성분이 증가함을 확인하였다. 본 연구에서는 폐수처리시설 최종방류수에 포함된 유기물과 영양염 성분이 많을수록 sulfathiazole 성분의 농도가 증가하는 기작 (mechanism)은 구명하지 못하였으며 향후에 이에 대한 연구가 필요할 것으로 판단된다.

Sulfamethazine 성분에 대한 sulfathiazole 성분의 회귀함수를 추정하였으며, 추정된 최적의 회귀함수는 선형의 증가함수로 나타났다(Fig. 7). Sulfamethazine 성분에 대한 sulfathiazole 성분의 선형회귀함수의 결정계수는 0.6133으로서 높았으며, 함수의 기울기는 0.54로서 본 연구에서 조사된 폐수처리시설의 최종방류수에서는 sulfamethazine 성분이 sulfathiazole 성분보다 2배 정도 높게 검출되고 있음을 의미한다.

#### 4. 결론

본 연구에서는 낙동강 유역에 위치한 12개 폐수처리시설의 최종방류수 내 항생물질과 중금속, 유기물을 조사하여 항생물질과 수질성분의 상관성을 분석하였으며, 본 연구를 통해 도출된 결론은 다음과 같다.

폐수처리시설 최종방류수 내 유기물과 영양염, 중금속 성분은 방류수 수질기준에 적합한 것으로 나타났으며, 폐수처리시설 지점별로 나타나는 방류수 수질 농도 차는 처리시설별 수처리 공정과 유입수의 특성에 따른 것으로 판단된다.

1) 본 연구에서 조사된 낙동강 유역의 12개 폐수처리시설 최종방류수에서는 sulfonamide 계열 3종과 tetracycline 계열 2종의 항생물질이 검출되었다. Sulfamethazine 성분은 모든 지점에서 10.398~278.784 ng/L, sulfathiazole 성분은 6개 지점(안동, 구미, 함천, 밀양, 의령, 함안)에서 23.773~144.468 ng/L 범위로 나타났다. 본 연구의 결과에서도 기존의 국내 연구와 동일하게 sulfonamide 계열의 항생물질이 tetracycline 계열의 항생물질보다 더 높은 농도로 유출되고 있었으며, 이는 tetracycline 계열의 항생물질이 유기물질 및 광물입자와의 결합력이 강하고 폐수처리 과정에서 안정한 복합체를 형성하기 때문인 것으로 판단된다.

2) Sulfathiazole 성분과 TSS, COD, TOC, NH<sub>3</sub>-N, NO<sub>2</sub>-N, T-N 성분들의 상관계수는 0.73~0.92의 범위로 높았으며, sulfamethazine 성분과 상관성이 가장 높은 T-N

성분의 상관계수는 0.48로 나타났다. Sulfamethazine과 sulfathiazole 성분의 상관계수는 0.78로서 높은 상관성을 보였다. 본 연구를 통해 폐수처리시설의 최종방류수에 포함된 유기물과 영양염에 대한 sulfathiazole 성분의 상관성은 확인하였으나, 유기물과 영양염 성분이 많을수록 sulfathiazole 성분의 농도가 증가하는 기작은 구명하지 못하였으므로 향후 이에 대한 연구가 필요하다.

3) Sulfathiazole 성분과 TSS, 유기물, 영양염 성분들은 선형의 증가함수가 최적인 것으로 추정되었으며, 선형회귀함수의 결정계수는 COD와 T-N 성분이 0.7 이상으로 높았으며 이는 폐수처리시설 최종방류수에서는 유기물과 영양염이 많을수록 sulfathiazole 성분의 농도가 증가함을 의미한다. Sulfamethazine 성분과 sulfathiazole 성분은 선형의 증가함수가 적합한 것으로 추정되었으며, 선형회귀함수의 결정계수는 0.6133 정도이고 함수의 기울기는 0.54로서 폐수처리시설의 최종방류수에서는 sulfamethazine 성분이 sulfathiazole 성분보다 2배 정도 높게 나타났다.

4) 본 연구에서는 기존의 국내 연구에서 수행되지 못한 폐수처리시설의 최종방류수에서 유출되는 유기물과 영양염 농도에 대한 항생물질 농도의 회귀함수를 추정하고 분석하였으며, 향후에는 폐수처리시설별 오염 환경과 계절별 유출 농도를 조사하여 낙동강 유역에서 항생물질의 시공간적인 특성을 연구할 예정이다.

감사의 글

본 논문은 환경부의 재원으로 한국환경산업기술원의 수요대응형 물공급 서비스사업(과제번호: 146517)의 지원을 받아 연구되었습니다.

REFERENCES

Ahn, J. M., Lee, I. J., Jung, K. Y., Kim, J. E., Lee, K. C., Cheon, S. U., Lyu, S. W., 2016, Characteristics of trend and pattern for water quality monitoring networks data using seasonal -kendall, SOM and RDA on the Mulgeum in the Nakdong River, J. Environ. Science Int., 25, 361-372.  
 Choi, K. Y., Im, T. H., Lee, J. W., Cheon, S. U., 2012, Evaluation of water quality characteristics in the Nakdong River using statistical analysis, J. Korea

Water Res. Assoc., 45, 1157-1168.  
 Christian, T., Schneider, R. J., F rber, H. A., Skutlarek, D., Meyer, M. T., Goldbach, H. E., 2003, Determination of antibiotic residues in manure, soil, and surface waters, Acta., hydrochim. hydrobiol., 31, 36-44.  
 DeVries, S. L., Zhang, P., 2016, Antibiotics and the terrestrial nitrogen cycle: A review, Current Pollution Reports 2, 51-67.  
 Gaw, S., Thomas, K. V., Hutchinson, T. H., 2014, Sources, impacts and trends of pharmaceuticals in the marine and coastal environment, Philosophical Transactions of the Royal Society B 369: 20130572.  
 Hirsch, R., Ternes, T., Haberer, K., Kratz, K. L., 1999, Occurrence of antibiotics in the aquatic environment, Sci. Tot. Environ., 225, 109-118.  
 Jung, S. Y., Kim, I. K., 2017, Analysis of water quality factor and correlation between water quality and chl-a in middle and downstream weir section of Nakdong River, J. Kor. Soc. Environ. Eng., 39, 89-96.  
 Kang, D. H., So, Y. H., Park, K. D., Kim, I. K., Kim, B. W., 2019, Analyses of TOC efficiency and correlation between DO, BOD, COD and influence factors using long-term observation data in the main stream of Nakdong River, J. Environ. Sci. Intern., 28, 465-474.  
 Kim, J. H., Park, C. K., Kim, M. Y., Ahn, S. G., 2008, Contamination of veterinary antibiotics and antimicrobials in Han River basin, J. Korean Soc. Environ. Analysis, 11, 109-118.  
 Kim, P. H., Lee, H. J., Jo, M. R., Lee, T. S., Ha, J. H., 2006, Residual concentrations of fluoroquinolones in farmed fish in the southern coast of Korea, J. Kor. Fish. Soc., 39, 66-71.  
 Kummerer, K., 2009, Antibiotics in the aquatic environ-ment - A review - Part I, Chemosphere 75, 417-434.  
 Kwon, H. O., Sim, W. J., Kim, H. Y., Oh, J. E., Choi, S. D., 2011, Distribution of pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in main rivers of Ulsan, Korea, J. Korean Soc. Environ. Analysis, 14, 158-164.  
 Lee, H. Y., Lim, J. E., Kim, S. C., Kim, K. R., Lee, S. S., Kwon, O. K., Yang, J. E., Ok, Y. S., 2010, Environmental monitoring of selected veterinary antibiotics in soils, sediments and water adjacent to a poultry manure composting facility in Gangwon Province, Korea, J. Korean soc. Environ. Eng., 32, 278-286.

- Lee, S. S., Kim, S. C., Yang, J. E., Ok, Y. S., 2010, Seasonal Monitoring of Residual Antibiotics in Soil, Water, and Sediment adjacent to a Cattle Manure Composting Facility, *Korean J. Soil Sci. Fert.*, 43, 734-740.
- Lim, J. E., Kim, S. C., Lee, H. Y., Kwon, O. K., Yang, J. E., Ok, Y. S., 2009, Occurrence and distribution of selected veterinary antibiotics in soils, sediments and water adjacent to a cattle manure composting facility in Korea, *J. Korean soc. Environ. Eng.*, 31, 845-854.
- Lim, J. S., Kim, Y. W., Lee, J. H., Park, T. J., Byun, I. G., 2015, Evaluation of correlation between chlorophyll-a and multiple parameters by multiple linear regression analysis, *J. Kor. Soc. Environ. Eng.*, 37, 253-261.
- Moreno-Gonzalez, R., Rodriguez-Mozaz, S., Gros, M., Barcelo, D., Leon, V. M., 2015, Seasonal distribution of pharmaceuticals in marine water and sediment from a mediterranean coastal lagoon (SE Spain), *Environ. Res.* 138, 326-344.
- National Institute of Environmental Research, 2010, Research on the source and behavior of pharmaceutical substances in the environment(III), NIER, 307.
- National Institute of Environmental Research, 2018, Monitoring of pharmaceutical residues in water samples from the livestock area(I), NIER, 44.
- Ok, Y. S., Kim, S. C., Kim, K. R., Lee, S. S., Moon, D. H., Lim, K. J., Sung, J. K., Hur, S. O., Yang, J. E., 2011, Monitoring of selected veterinary antibiotics in environmental compartments near a composting facility in Gangwon Province, Korea, *Environ. Monit. Assess.*, 174, 693-701.
- Park, J. B., Kal, B. S., Kim, S. H., 2018, Long-term trend analysis of major tributaries of Nakdong River using water quality index, *J. Wetl. Res.*, 20, 201-209.
- Park, K. D., Kang, D. H., So, Y. H., Kim, I. K., 2019, Temporal-Spatial Variations of Water Quality Level and Water Quality Index on the Living Environmental Standards in the West Nakdong River, *J. Environ. Sci. Intern.*, 28, 1071-1083.
- Sarmah, A. K., Meyer, M. T., Boxall, A. B. A., 2006, A Global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment, *Chemosphere*, 65, 725-759.
- Shi, H., Yang, Y., Liu, M., Yan, C., Yue, H., Zhou, J., 2014, Occurrence and distribution of antibiotics in the surface sediments of the Yangtze Estuary and nearby coastal areas, *Marine Pollution Bulletin*, 83, 317-323.
- Shim, J. H., 2016, Monitoring and management of antibiotics in livestock excretions flowing into the Yeongsan river basin, Chonnam National University, 210.
- Son, H. J., Jang, S. H., 2011, Occurrence of Residual Pharmaceuticals and Fate, Residue and Toxic Effect in Drinking Water Resources, *J. Korean soc. Environ. Eng.*, 33, 453-479.
- Zhang, R., Tang, J., Li, J., Cheng, Z., Chaemfa, C., Liu, D., Zheng, Q., Song, M., Luo, C., Zhang, G., 2013, Occurrence and risks of antibiotics in the coastal aquatic environment of the Yellow Sea, North China, *Sci. Tot. Environ.*, 450-451, 197-204.

- 
- Graduate student. Kyeong-Deok Park  
Interdisciplinary program of Marine Convergence Design,  
Pukyong National University  
godsla6593@nate.com
  - Ph.D. Dong-Hwan Kang  
Institute of Environmental Geosciences, Pukyong National  
University  
dhkang@pknu.ac.kr
  - Full-time Researcher. Won-Gi Jo  
Institute of Environmental Geosciences, Pukyong National  
University  
brilliantwg@gmail.com
  - Research Director. Hun-Sun Yu  
e-San Eco-friendly Lab Co., Ltd.  
yuhunsun75@gmail.com
  - President. Yeon-Su Yun  
Sangjigeotec Co., Ltd.  
ysyoon1966@naver.com
  - Principal Researcher. Byung-Woo Kim  
K-water Research Institute, Korea Water Resources  
Corporation  
bwkim@kwater.or.kr