

PC16) 만경강 수계에 있어서 PPCPs의 분포 및 하수처리장에 의한 영향

장호상*, 김종구, 유선재, 아리조노¹, 김준우¹

군산대학교 토목환경공학부,

¹일본 구마모토 현립대학교 환경공생학부

1. 서 론

산업사회로 접어들면서 많은 종류의 화학물질이 사용되고 있으며 이들 중에는 인간이나 생태계에 악영향을 미치는 것이 많았다. 이에 많은 과학자들은, 이들 물질이 환경 중에 어느 정도 존재하고 어떤 영향을 미치는가에 대해서 많은 연구를 진행하여 왔다. 그 중에서도 농약 및 중금속 또는 다이옥신류 등 비교적 독성이 강한 화학물질 등이 생활환경에 다량 배출됨으로서 환경이 급속도로 파괴되고 있으며, 장기적으로 인간에 미치는 영향은 점점 크고 복잡하게 나타나고 있는 실정이다. 지금까지 환경에 대한 영향은 무시하고 대량 생산되고 대량 소비되던 의약품, 생활용품들의 성분들이 환경 중에서 발견되면서, 새로운 환경오염물질로서 의약품 및 일용품 등에서 유래된 PPCPs (Pharmaceuticals and Personal Care Products)의 연구가 활발하게 진행되고 있는 실정이다.

세계적으로 연간 3000종류 이상의 PPCPs가 사용되어지고 일정하게 환경에 방출되지만 환경에 미치는 영향에 관한 연구가 미흡한 실정이다. 본 연구대상 지역인 만경강 수계는 현재 새만금 간척사업과 관련하여 사회적으로 많은 관심을 가지고 있으나, PPCPs에 관련한 연구는 전혀 보고되고 있지 않다.

따라서 본 연구는 새만금지구 상류하천인 만경강을 대상으로 전주시, 완주군, 익산시의 생활하수에 의한 수질특성과 PPCPs의 계절별 오염실태 조사를 하는 한편, 주 오염원인 하수처리장 방류수의 PPCPs에 의한 만경강 수계에 대한 영향 및 하수처리장을 통한 PPCPs의 제거율을 파악함으로써 PPCPs의 관리를 위한 방안을 검토하고자 한다.

2. 재료 및 방법

2.1. 조사지역 및 조사시기

본 조사지역인 만경강은 Fig. 1에 나타난 바와 같이 전주천, 고산천, 익산천의 수계별 총 5개 지점을 선정하여 2006년 8월부터 2007년 5월까지 계절별로 표층수를 채수하였다. 또한 만경강으로 유입되는 하수처리장 2개소를 선정하여 2007년 3월과 5월에 걸쳐 유입수와 방류수를 조사하였다.

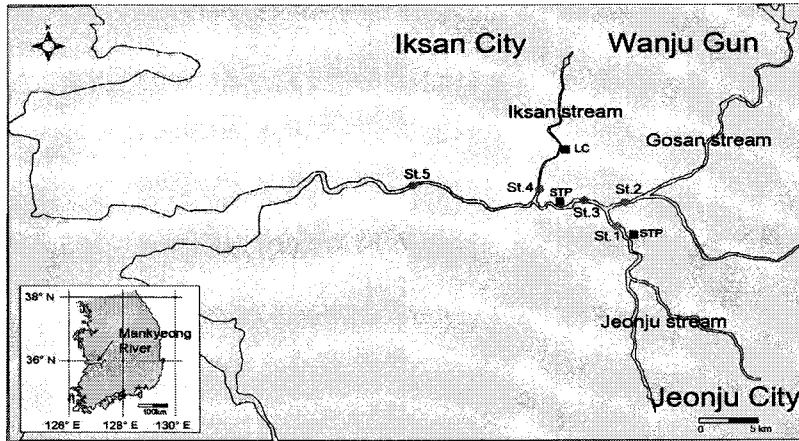


Fig. 1. Sampling locations along the Mankyung River and its tributaries in South Korea.

2.2. PPCPs 선택방법

수환경에서 의약품을 측정할 경우 국내에서는 측정할 경우가 거의 전무하고, 국외에서도 사용되어지고 있는 의약품의 종류 및 사용량이 다르기 때문에 측정대상물질을 단독으로 선정하지 않으면 안되는 경우가 있다. 그래서 본 연구에서는 의약품의 실태파악을 하기 위하여 수환경중에서 보다 검출이 많이 되는 의약품을 선정하기로 했다.

Fig. 2와 같이 측정대상물질은 처리대상을 인간에게 사용되는 3가지 조건을 고려하여 PPCPs를 선택하였다. 그룹 1은 이제까지 국외의 수환경중에서 검출이 보고되어져 왔던 물질로서 분류하였고, 그룹 2는 PEC/PNEC 및 환경잔류성이 높게 보고되어져 왔던 물질 (PEC:Predicted Environmental Concentratio, PNEC:Predicted No-Effect Environmental Concentration)로써, 그룹 3은 병원에서의 사용량이 많은 물질로 분류하였다.

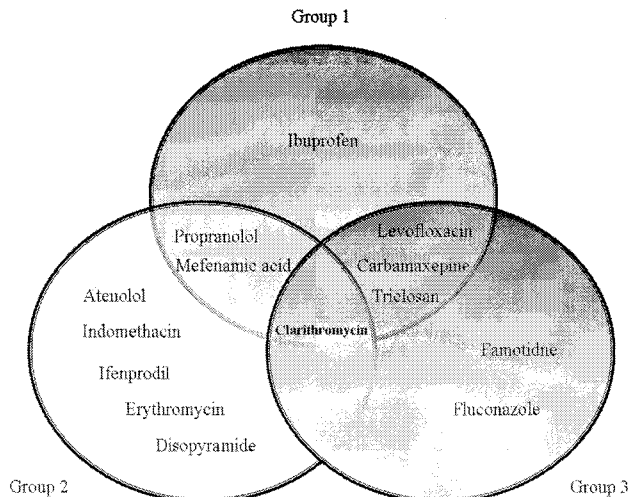


Fig. 2. Three classification groups of PPCPs.

2.3. PPCPs 측정방법

시료 1L를 pH=7 부근으로 맞춘 뒤, 유리섬유여과지(Whatman GF/F)와 Empore™ Disk(3M)을 사용하여 고상추출 하였다. 추출에 앞서 유리섬유여과지와 고상추출 카트리지를 여과기에 겹쳐서 올려놓고 메탄올 5ml와 초순수 15ml로 코팅한다. 코팅 후 시료 1L를 1분간 약 10~15ml 속도로 여과한 뒤, 10분간 진공으로 건조시킨다. 추출은 메탄올 5ml를 5회 사용하여 추출한 후, 질소가스를 사용하여 1ml로 농축한 뒤, LC-MS/MS로 분석했다. 대상물질로는 14종류(ibuprofen, mefenamic acid, indomethacin, carbamazepine, propranolol, atenolol, disopyramide, ifenprodil tartrate, famotidine, fluconazole, erythromycin, clarithromycin, levofloxacin, triclosan)를 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. PPCPs의 농도분포 특성

만경강 수계를 대상으로 한 PPCPs 분석 결과를 Table 1 및 Fig. 4~5 에 나타냈다. 본 연구대상 지역인 만경강에서 PPCPs는 Ibuprofen, Mefenamic acid, Clarithromycin, Atenolol, Fluconazole, Carbamazepine, Erythromycin, Levofloxacin, Indomethacin, Propranolol 등의 순서로 1.2 ng/L~7.4 µg/L의 농도범위로 검출되었다.

3.2. 만경강에서의 PPCP의 농도분포 특성

해열소염진통제인 ibuprofen, mefenamic acid, indomethacin의 분포는 ND~414.3ng/L, ND~326.0ng/L, ND~58.2ng/L의 범위로 나타났다. 특히 인구가 밀집되어 있는 전주시의 영향을 받는 지점 1에서 Mefenamic acid와 indomethacin이 높게 검출되었다.

항 간질제인 carbamazepine은 ND~594.5ng/l로 검출되었다. 항 부정맥용제인 propranolol, atenolol, disopyramide의 분포는 ND~267.5ng/l, ND~689.7ng/l, ND~1.2의 범위로 나타났다. 항 부정맥용제 중에서 atenolol의 농도가 가장 높게 검출되었다. 뇌순환대사개선제인 ifenprodil tartrate는 ND~38.5ng/L로 검출되었다. 항 진균제인 fluconazole의 분포는 ND~111.3ng/l로 검출되었다. 항생물질제인 erythromycin와 clarithromycin은 ND~151.7ng/l 및 ND~443.2ng/l로서, 만경강 수계의 지점 1에서 clarithromycin이 가장높게 높게 검출되었다. 합성항균제인 levofloxacin의 분포로는 ND~379.6ng/l로 검출되었고, 살균제인 triclosan은 지점1에서 5월에만 46.1ng/L로 검출되었다.

전주시의 영향을 받는 지점 1은 생활하수와 공장폐수 및 하수처리장의 유출수로 인하여 가장 높은 농도로 PPCPs가 검출되었으며, 비교적 오염원이 적은 지점 2는 대부분 저농도로 검출되었다. 지점 3은 전주천과 고산천의 합류로 인하여 고농도로 검출된 지점 1의 PPCPs가 희석되어 낮은 농도로 검출되었고, 익산시의 축산폐수 영향을 받는 지점 4는 저농도로 검출되었다. 모든 지점이 합류되는 지점 5는 PPCPs의 농도가 다시 높아졌다. 이는 삼례·봉동 지역의 생활하수 유입으로 생각되어진다.

Table 1. Seasonal variation in the occurrence of PPCPs in surface water from Mankung River and occurrence of selected PPCPs in the influent and effluent of the STPs and the removal rates of the STPs.

PPCPs	August		November		March		May		Jeonju STP		Wanju STP		Removal rates (%)
	min	max	min	max	min	max	min	max	influent	effluent	influent	effluent	
Ibuprofen	ND ^{a)}	103.2 (46.3)	ND	414.3 (208.6)	ND	278.3 (120.4)	ND	199.2 (119.0)	6519.5	441.4	1736.5	188.0	89.2
Mefenamic acid	ND	53.2 (10.6)	ND	326.0 (117.8)	ND	239.4 (78.8)	ND	179.1 (57.0)	851.4	416.6	808.6	405.3	49.9
Indomethacin	ND	11.4 (6.9)	ND	33.5 (14.4)	ND	58.2 (17.6)	ND	32.8 (8.2)	204.4	111.9	379.0	29.5	92.2
Carbamazepine	8.9	293.0 (104.6)	ND	594.5 (180.2)	24.2	315.9 (143.5)	ND	250.6 (95.9)	534.6	515.5	521.0	440.4	15.5
Propranolol	ND	267.5 (84.4)	ND	40.1 (8.0)	ND	48.9 (18.0)	ND	NA ^{b)}	50.6	90.1	52.2	73.9	NA
Atenolol	ND	497.2 (173.6)	ND	689.7 (169.9)	ND	216.1 (128.0)	ND	142.5 (43.0)	1020.3	409.0	719.7	210.8	70.7
Disopyramide	ND	1.2 (0.2)	ND	ND	ND	ND	ND	ND	10.0	ND ^{a)}	ND	ND	NA
Ifenprodil	1.4	38.5 (18.5)	ND	35.4 (7.1)	ND	32.2 (16.9)	5.5	20.7 (16.4)	14.0	35.7	ND	55.1	NA
Fluconazole	ND	22.0 (7.6)	ND	111.3 (46.2)	ND	86.7 (40.4)	ND	98.6 (34.7)	182.1	156.0	36.5	234.6	NA
Erythromycin	ND	151.7 (43.2)	ND	137.0 (51.9)	ND	ND	ND	96.0 (32.0)	376.2	129.1	491.9	145.5	70.4
Clarithromycin	ND	36.5 (12.4)	ND	443.2 (121.5)	ND	ND	ND	130.4 (38.5)	244.0	253.6	62.9	49.4	21.4
Levofloxacin	ND	ND	ND	87.4 (27.9)	ND	379.6 (125.9)	ND	188.3 (74.0)	786.2	350.7	712.1	340.9	52.1
Triclosan	ND	ND	ND	ND	ND	ND	ND	46.1 (9.2)	512.5	ND	370.4	113.6	69.3

a) ND: Not detectable

b) NA: Not applicable

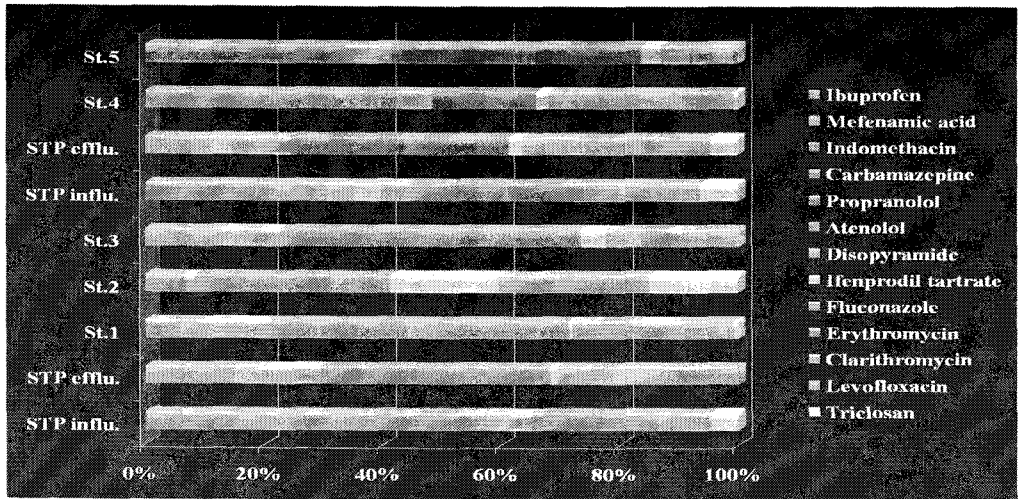


Fig. 4. Contribution of Total PPCPs.

3.2. 하수처리장에서 PPCP의 농도분포 특성

Fig. 5와 나타낸 바와 같이 각국의 하수처리장의 방류수와 비교하면 물질에 따라서 다르지만 높은 농도로 검출되었다.

해열·진통제인 Ibuprofen의 제거율은 평균 91.2%로서 하수처리장의 처리공정에 의해 제거가 많이 되었지만 만경강수계의 유입수 농도가 워낙 높았기 때문인 것으로 판단된다. 항간질제인 Carbamazepine은 하수처리공정에서 흡착 및 분해되지 않기 때문에 방류수에서 9.5%의 낮은 제거율로 평균 478.0ng/L의 농도로 검출되었다. 항부정맥제인 Atenolol은 만경강 주변에 위치한 지역들의 많은 사용량으로 인해 77.5%의 높은 제거율에도 불구하고 평균 309.9ng/L의 농도범위로 검출되었다.

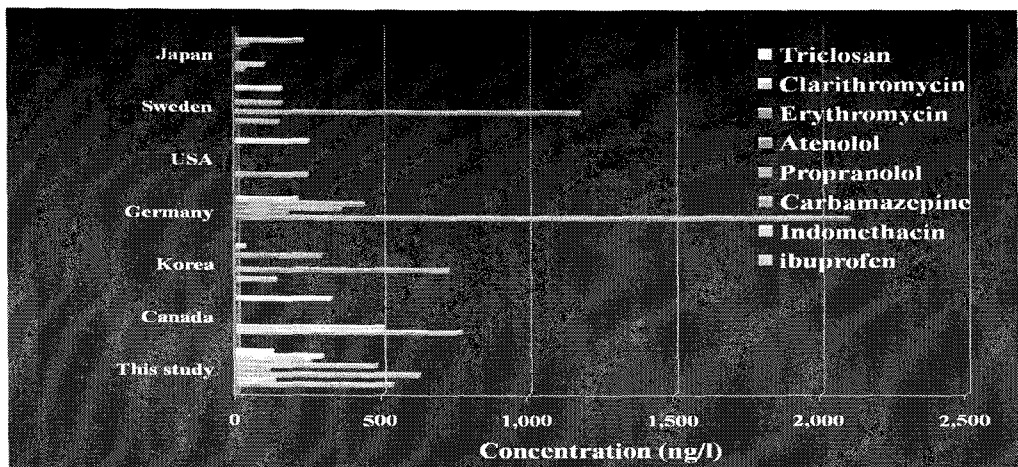


Fig. 5. Concentrations of PPCPs in STP effluents in the world and this study.

4. 결 론

만경강 수계의 수질특성 및 PPCPs의 분포특성을 종합적으로 조사하기 위하여 만경강을 대표할 수 있는 하천 5개 지점과 만경강에 유입되는 하수처리장 2곳을 선정하여 2006년 8월부터 2007년 5월까지 조사·연구한 결과를 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 전주시와 완주군의 하수처리장에서의 유입수 및 방류수의 PPCPs 분포를 보면 다음과 같다. 유입수에서 Ibuprofen(평균 4128.0ng/L)이 가장 고농도로 검출되었고, Atenolol(평균 870.0ng/L), Mefenamic acid(평균 830.0ng/L), Levofloxacin(749.1ng/L)의 순으로 검출되었다. 방류수는 Carbamazepine(평균 477.9ng/L)이 가장 고농도로 검출되었고, Levofloxacin(평균 345.8ng/L), Ibuprofen(평균 314.7ng/L), Atenolol(평균 309.9ng/L)의 순으로 검출되었다. 이는 유입수에서 고농도로 검출되었던 Ibuprofen의 경우 평균 91.2%의 높은 제거율로 인해 방류수에서 낮은 농도로 검출되었지만, 유입수에서 저 농도였던 Carbamazepine의 경우 평균 9.6%의 낮은 제거율로 인하여 방류수에서 높게 검출되었다.

2) 만경강 수계의 계절적 하천의 PPCPs의 분포특성은 다음과 같다. 계절별 하천의 농도 변화는 8월에 ND~497.2(평균 39.1ng/L), 11월에 ND~689.7ng/L(평균 73.3ng/L), 3월에 ND~379.6ng/L(평균 53.0ng/L), 5월에 ND~250.6ng/L(평균 40.6ng/L)의 농도 범위로 검출되었다. 본 조사 연구결과 11월에 가장 높은 농도로 검출되었다. 이는 첫 번째로 만경강 수계 지역의 높은 소비로 인하여 높은 검출되었다고 생각되어진다. 두 번째로는 하수처리장의 방류수에서 제거되지 않았던 PPCPs물질의 영향 때문에 하천에서 높은 농도로 검출되었다. 세 번째로는 건조기인 겨울철에 강우량이 적어 하천의 유량이 적어 높은 농도를 나타냈다고 생각된다.

3) 만경강 수계의 지점별 하천의 PPCPs의 분포특성은 다음과 같다. 지점별 하천의 농도 변화는 지점 1에서 ND~689.7ng/L(평균 133.5ng/L)로 가장 높았던 반면, 지점 4에서는 ND~278.3ng/L(평균 26.0ng/L)으로 낮게 검출되었다. 이 결과에서 나타낸 것과 같이 지점 1은 전주시의 하수처리장 및 인구가 밀집되어 있어서 많은 PPCPs를 소비했다고 생각되어지며, 지점 4의 경우 우리가 선택한 PPCPs가 인체사용 의약품이기 때문에 낮은 농도로 검출되었다고 생각된다.

참 고 문 헌

- Hirsch, R., Ternes, T., Haberer, K., Kratz, K.-L., 1999. Occurrence of antibiotics in the aquatic environment. *Sci. Total Environ.* 225 (1 - 2), 108 - 118.
- Zhang, S., Zhang, Q., Darisaw, S., Ehie, O., Wang, G., 2006. Simultaneous quantification of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), polychlorinated biphenyls (PCBs), and pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in Mississippi river water, in New Orleans, Louisiana, USA. *Chemosphere.* in press.
- Ternes, T.A., Bonerz, M., Herrmann, N., Teiser, B., Andersen, H.R., 2007. Irrigation of treated wastewater in Braunschweig, Germany: An option to remove pharmaceuticals and musk fragrances. *Chemosphere* 66, 894-904

환경부, 수질오염공정시험방법, 1998.

Ashtona, D., Hilton, M., Thomas, K.V., 2004. Investigating the environmental transport of human pharmaceuticals to streams in the United Kingdom Science of the Total Environment, 333, 167-184

Daughton, G.C., Ternes, T., 1999. Pharmaceuticals and personal care products in the environment. Agents of subtle changes Environ. Health Perspect. 107, 907 - 938.

Ellis, J.B., 2006. Pharmaceutical and personal care products (PPCPs) in urban receiving waters, Environmental Pollution, 144, 184-189

Moldovan, Z., 2006. Occurrences of pharmaceutical and personal care products as micropollutants in rivers from Romania. Chemosphere. 64(11), 1808-1817

Ternes TA. Occurrence of drugs in German sewage treatment plants and rivers. Water Res 1998;32:3245 - -60

Zuccato, E., Castiglioni, S., Fanelli, R., 2005. Identification of the pharmaceuticals for human use contamination the Italian aquatic environment. Journal of Hazardous Materials 122, 205-209