大韓環境工學會誌 · 論文 - Original Paper - pp. 1192~1197. 2006.

입상활성탄을 이용한 이온성 및 비이온성 의약품의 제거

오희경† · 香川 千繪 · 浦瀨 太郎 · 島崎 大* · 國包章一*

동경공업대학 토목공학과 · *국립보건의료과학원 수도공학부

(2006년 6월 19일 접수, 2006년 11월 27일 채택)

Removal of Ionic and Non-ionic Pharmaceuticals Using Granular Activated Carbon

Heekyong Oh† · Chie Kagawa · Taro Urase · Dai Simazaki* · Shoichi Kunikane*

Department of civil engineering, Tokyo Institute of Technology

**Department of water supply engineering, National Institute of Public Health*

ABSTRACT : Adsorbability of ionic and nonionic pharmaceuticals was studied using granular activated carbon(GAC). In a batch adsorption test of muticomponent solution, 500 mg/L of GAC dose removed all target compounds between 94 and 98% at initial concentration of 10 μg/L. Adsorption of ionic pharmaceuticals increased as pH was lowered toward to p*K*a, however adsorption capacity of nonionic pharmaceuticals showed insignificant variation with the changing pH. The enhanced adsorption capacity of ionic pharmaceuticals at lower pH was attributed to the corresponding increase in the molecular form of ionic pharmaceuticals with carboxylic group at low pH. In addition, decrease of pH increased hydrogen ion concentration in the bulk solution and the protons bound to the available sites on the carbon enhanced the removal of the ionic pharmaceuticals from solution. After 40 days of continuous operation, GAC column showed the removal of target compounds were removed by 93~99% at 15 min of EBCT mainly due to adsorption mechanism of GAC. At shorter EBCT than 15 min, breakthrough of CA, IBP and GFZ occurred earlier than the other ionic and nonionic pharmaceuticals. Effect of EBCT on adsorption of nonionic pharmaceuticals was greater than ionic ones. This study showed that persitent pharmaceuticals found in drinking water treatment could be effectively controlled by adsorption in GAC process.

Key Words : *Adsorption, Granular Activated Carbon, GAC Column, Pharmaceutical*

요약 : 입상 활성탄을 이용한 회분식 흡착실험과 연속식 흡착 컬럼 실험을 통해 이온성 및 비이온성 의약품의 제거특성을 평가하였다. 초기 혼합 의약품을 10 μg/L로 주입한 회분식 흡착실험의 경우 입상 활성탄을 500 mg/L로 하였을 때 대상 의약품은 94~98% 이상의 높은 제거율을 보였다. 이온성 의약품은 pH가 감소할수록 흡착능이 증가하였으나 비이온성 의약품의 흡착능은 pH변화에 큰 영향을 받지 않았다. 이온성 의약품은 pH가 이온화 상수(p*K*a) 이하로 낮아짐에 따라 COOH형태로 비이온화되어 흡착이 용이하게 되지만 pH가 p*K*a 이상에서는 이온 상태의 COO^-로 존재하게 되어 흡착이 저하되기 때문이다. 또한 pH저하는 액상내 H^+ 증가 및 활성탄 표면에 양하전을 증가시켜 용액으로부터 이온성 의약품을 이온 결합에 의해 제거시킬 수 있기 때문이다. 40일간 흡착 컬럼을 연속 운전한 결과 15분의 공탑체류시간(EBCT)에서는 활성탄과 의약품의 충분한 접촉시간으로 대상 의약품에 대해 93~99%의 제거율을 얻었다. 짧은 EBCT의 운전조건에서는 이온성 의약품 가운데 CA, IBP 및 GFZ가 다른 이온성 및 비이온성 의약품에 비해 빠르게 파과에 도달했고 EBCT의 변화에 따른 흡착특성의 변화는 비이온성 의약품에서 더 크게 나타났다. 본 연구를 통해 기존 정수 처리공정을 통해 제거되기 어려운 의약품을 입상 활성탄 흡착공정을 통해 효과적으로 제어할 수 있음을 알 수 있었다.

주제어 : 흡착, 입상 활성탄, 흡착컬럼, 의약품

1. 서 론

의약품과 의약품 대사물질이 하수처리장 유출수에서 미량으로 검출되고 지표수, 지하수 및 정수에서도 극미량으로 존재함에 따라 최근 이들의 거동 및 위해성 평가에 많은 관심이 주목되고 있다.[1~4] 의약품은 환경 시스템내에서 잔존성이 강하고 대부분 기존의 농약이나 산업용 화학물질보다 대부분 극성을 강하게 나타내며 일부는 산성, 염기성 및 양쪽성의 이온특성을 보여 기존 수처리 공정을 통해 제거가 어렵고 검출방법도 복잡하다.[5~7] 의약품의 위해성에 있어서는 먹는물을 통한 의약품의 일일 간접 노출량과 치료상 일일 복용량 간에는 적어도 1000배의 차이가 있다고 보고되었다. 또한 상수원으로 유입된 의약품이 처리되지 않으면 먹는물을 매일 마시는 소비자는 혼합된 의약품에 노출되게 되고 미량이지만 혼합된 의약품에 대한 부작용에 대한 우려가 보고된 바 있다.[8,9]

Ternes 등은 독일의 상수원에서 출현 빈도가 높은 의약품을 대상으로 응집 및 모래 여과 공정으로 처리한 결과 제거율이 낮았으나 오존 처리는 극성 의약품에 효과적이었다고 밝혔다. 그러나 베자피브레이트(bezafibrate)와 클로피브릭산(clofibric acid)은 높은 오존 농도에서도 안정적이었다. 따라

† Corresponding author
E-mail: phoh9676@hanmail.net
Tel: 81-3-5734-2597 Fax: 81-3-5734-3577

서 극성 의약품의 제거를 위해 오존 산화, 고도산화, 활성탄 흡착 및 막 여과 등의 고도처리공정이 필요하다고 제안하였다.[5] Westerhoff 등의 연구에서도 염소 처리를 포함한 기존 정수 처리 공정은 의약품의 제거율이 낮았지만 분말 활성탄 흡착과 오존 산화는 의약품의 제거를 향상시켰다고 하였다. 특히 비이온성 유기 화학물의 평가에 유용하게 사용되는 옥탄올 분배 계수를 이온성 의약품에 적용할 경우 이들이 지닌 산성 및 염기성의 성질에 따라 보정되어 사용해야 한다고 제시하였다.[10] 또한 방향족 에테르기를 지닌 의약품을 염소 처리할 경우 방향족 고리의 다른 치환기가 의약품 변형에 큰 영향을 미치고 아민기를 지닌 의약품은 차염소산과 빠른 반응을 통해 염소화 아민을 형성하게 되어 서서히 분해되는 것으로 밝혔다. 이와 같은 연구 사례를 바탕으로 기존 정수 처리 및 고도 정수 처리를 통해 제거가 어려운 의약품을 효과적으로 관리할 수 있는 방안이 요구되며 수처리 공정을 통한 의약품의 부산물 생성 및 반응 메카니즘을 규명할 필요가 있다.

따라서 본 연구에서는 수계에서 검출빈도가 높게 보고된 8개의 이온성 및 2개의 비이온성 의약품을 선정하여 현 정수장에서 이용되고 있는 고도 정수 처리인 입상 활성탄(GAC, granular activated carbon)에 의한 흡착 제거 특성을 평가하였다. 회분식 흡착 실험을 통해 각 의약품의 흡착능을 평가하고 연속식 흡착 컬럼 실험을 통해 대상 물질별 제거율 및 파과 특성을 조사하였다.

2. 실험재료 및 방법

2.1. 대상 의약품 및 분석방법

이온성 의약품으로는 클로피브릭산(CA, clofibric acid), 이부프로펜(IBP, ibuprofen), 겜피브로질(GFZ, gemfibrozil), 페노프로펜(FEP, fenoprofen), 케토프로펜(KEP, ketoprofen), 나프록센(NPX, naproxen), 디클로페낙(DCF, diclofenac) 및 인도메타신(IDM, indometacine)을, 비이온성 의약품으로는 프로피페나존(PPZ, propyphenazone)과 카바마제핀(CBZ, carbamazepine)을 선정하였다. 이들의 물리적 및 화학적 특성은 Table 1에 나타내었다. 의약품은 메탄올에 녹여 10종의 혼합 stock solution을 제조하여 회분식 흡착 실험에서는 10, 100 μg/L, 연속식 흡착 컬럼 실험에서는 10 μg/L가 되도록 희석하여 사용하였다.

Table 1. The chemical and physical properties of the target pharmaceuticals[a] and target mass numbers in GC/MS detection

Chemical name	Mol. Weight	pK_{ow}	pK_a	Water solubility (mg/L) at 25℃	SIM mass numbers	
					Target	Reference
Ionic pharmaceuticals						
Clofibric acid	214.7	2.57	n.a.	583	394	130
Ibuprofen	206.3	3.97	4.91	21	161	118
Gemfibrozil	250.3	4.77	n.a.	n.a.	309	83
Fenoprofen	242.3	3.9	7.3	n.a.	197	422
Naproxen	230.3	3.18	4.15	15.9	185	410
Ketoprofen	254.3	3.12	4.45	51[b]	209	105
Diclofenac	296.2	4.51	4.15	2.37	214	216
Indomethacin	357.8	4.27	4.50	0.937	139	141
Nonionic pharmaceuticals						
Propyphenazone	230.3	1.94		668.2	215	230
Carbamazepine	236.3	2.45		17.7	193	236

[a] Data was obtained from EPI Suite V 3.11(US EPA, 2003)
[b] Data was obtained at 22℃, n.a. ; not available

Table 3. Operation conditions of GC/MS for pharmaceutical analysis

Parameters	Conditions and specifications
Column	HP-5 MS capillary column, 30 m × 0.25 mm i.d. × d_f 0.25 μm
Carrier gas	Helium at 92.5 kPa
Splitless mode	2 μL of sample volume was injected at 290°C
Temp. of interface	300℃
Program of temp.	100°C(1 min) → 150°C(30°C/min) → 205°C (3°C/min) → 300°C (10°C/min) for 32 min
Temp. of ion source	230°C
MS Mode	Selective ion monitoring(SIM) mode

Table 2. Pretreatment procedures for pharmaceutical analysis

Procedure	Detailed method
Sample preparation	- Filter 100～500 mL of sample using GF/B filter - Control of pH less than 2 with HCl - Add surrogate standard(2,3-dichlorophenoxyacetic acid) and internal standard(chrysene-d_{12})
Solid phase extraction	- Condition C_{18}(Sep-Pak® plus, Waters Co., USA) cartridge filer by 10 mL of dichloromethane, 10 mL of methanol and 10 mL of Milli-Q(pH < 2) - Percolate pretreated sample with 10 mL/min of flow rate
Elution	- Elute adsorbed targets from C18 with 5 mL of dichlomethane
Evaporation	- Evaporate dichloromethane by nitrogen gas at 60℃
Derivatization	- Add 2% of pentafluorobenzyl bromide and triethylamine - Derivatize at 110℃ for 1 hr
Evaporation	- Evapotare the derivatized samples by nitrogen gas at 60℃ - Add 1 mL of toluene

의약품의 분석은 Koutsouba 등[6]의 분석법을 수정한 것으로 시료의 고상 농축 및 추출, 유도체화 과정을 거쳐 전처리하였고 이를 Table 2에 기술하였다. 최종 전처리된 시료는 Table 3에 따라 GC/MS(G1530A, Hewlett Packard, USA)로 정량 분석하였다.

2.2. 실험 방법 및 장치

본 실험에 이용된 입상 활성탄(Calgon Mitsubishi Chemical Corp., Japan)은 재질이 석탄계로 유효경이 1.2 mm, 요오드가는 1,020 mg/g이며 비표면적은 1,120 m^2/g이었다. 회분식 흡착 실험에서는 입상 활성탄 농도를 0~500 mg/L 범위로 조절하였고 의약품의 초기 농도는 10 μg/L 및 100 μg/L로 주입하였으며 인산 완충 용액을 이용해 pH를 7.2±0.05로 유지하였다. 이온성 의약품의 흡착에 대한 pH 영향을 평가하기 위한 회분식 흡착 실험에서는 0.1 N HCl과 0.1 N NaOH를 이용해 용액의 pH를 각각 3.5, 5, 6.5 및 8이 되도록 조절한 후 흡착 실험을 실시하였다. 모든 회분식 흡착 실험은 20℃에서 24시간 동안 교반을 통해 접촉 시킨 후 상징액을 유리 섬유 여과지(GF/B 또는 GF/F)로 여과한 후 Table 1과 Table 2에 기술한 전처리 및 분석 방법에 따랐다. 각 의약품에 대한 흡착 능력은 식 (1)의 Freundlich 등온 흡착식을 이용해 평가했다.

$$q = Kc^{1/n} \quad (1)$$

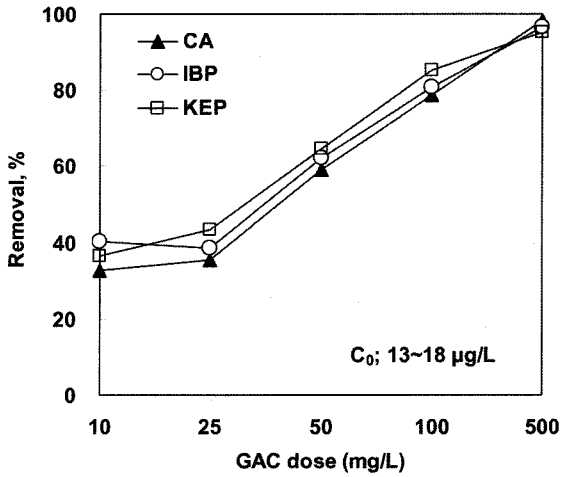
여기서 K와 $1/n$은 실험상수로 전자는 흡착제와 흡착질간의 상호작용 크기를 나타내고 q(μg/g)는 활성탄 1 g당의 평형 흡착량이며 c(μg/L)는 흡착질의 평형 농도이다.

입상 활성탄 흡착 컬럼 실험에서는 20 mm 내경의 투명 아크릴관을 이용하였고 입상 활성탄은 100 cm 높이로 충진하였다. 선속도는 100 m/day가 되도록 유량을 조정하였고 하향류 흐름의 여과를 실시하였다. EBCT는 각각 3, 7.5 및 15분이 되도록 컬럼의 다른 위치에서 유출수를 샘플링하였다. 원수의 조제에는 수도수를 이용하였고 잔류 염소에 의한 의약품의 산화를 방지하기 위해 아스코르빈산을 주입하여 염소를 제거한 후 의약품 농도가 10 μg/L이 되도록 주입하였다. 운전 중 입상 활성탄은 물과 공기를 이용하여 1주 간격으로 상향류 흐름의 방향으로 역세척을 실시하였다.

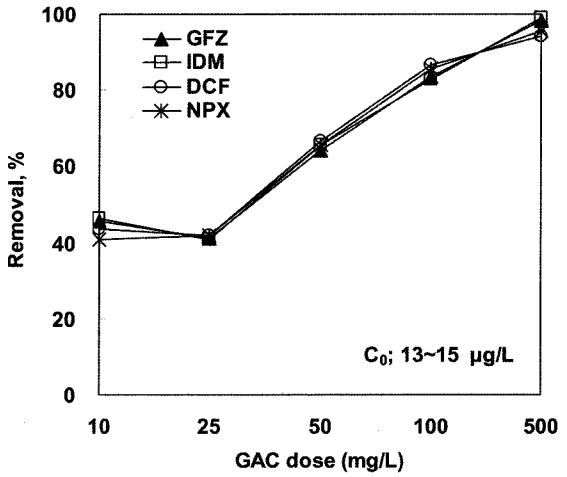
3. 결과 및 고찰

3.1. 회분식 흡착 실험에 의한 의약품의 흡착능 평가

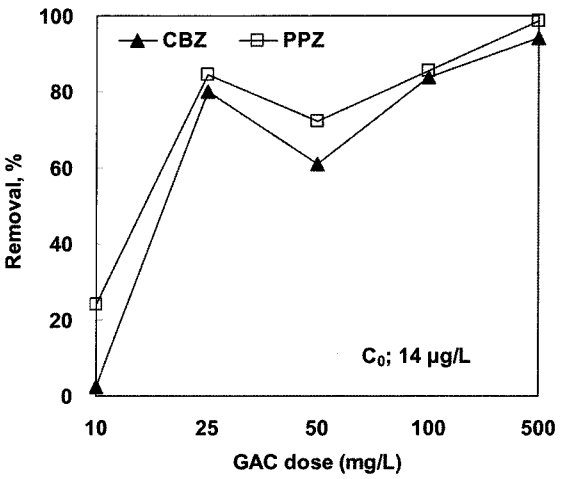
활성탄 주입농도를 500 mg/L로 하였을 때 모든 의약품은 94~98% 이상 제거되었으며 1 mg/L 이하의 오존 주입농도와 0.5 mg/L의 염소 주입농도에 의한 산화 제거율이 낮은 것으로 보고[5,11]된 CA, IBP 및 KEP도 효과적으로 제거되었다(Fig. 1). 의약품 초기 주입 농도 10 μg/L에서 24시간 등온 흡착 실험한 결과를 이용해 Freundlich 등온 흡착 상수를 계산하였다. 이온성 의약품의 경우 55~169(μgg^{-1})(μgL^{-1})$^{-1/n}$의 범위에서 흡착상수가 계산되었고 NPX가 가장 높은 흡착능을 보였으며 CA, IBP, KEP 및 GFZ가 다소 낮은 값을 나타냈다. 비이온성 의약품인 PPZ와 CBZ는 약 99~100(μgg^{-1})(μgg^{-1})$^{-1/n}$의 흡착능을 나타냈다. 또한 1/n의 값은 KEP(0.96)을 제외한 9종의 의약품이 0.18~0.60의 값을 나타내 저농도에서도 활성탄에 의해 효과적으로 제거될 것으로 기대되었다.



(a) Removal of ionic pharmaceuticals persistent to oxidation



(b) Removal of other ionic pharmaceuticals



(c) Removal of nonionic pharmaceuticals

Fig. 1. Removal of pharmaceuticals at different GAC dose in a mixed solution.

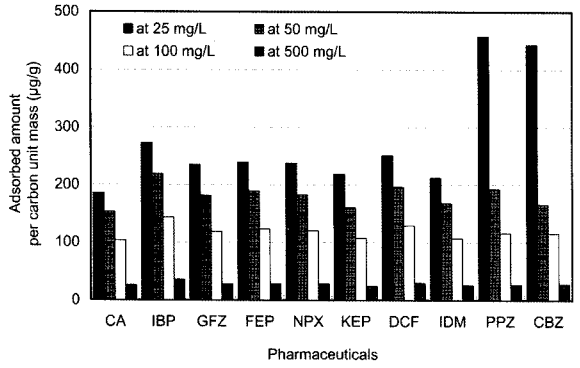
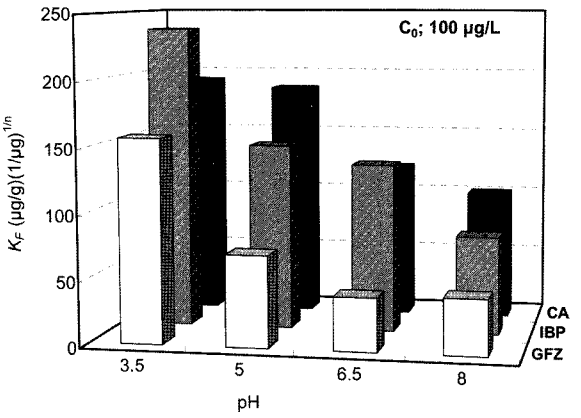


Fig. 2. Adsorbed amount of pharmaceuticals per unit mass of carbon(Initical concentrations of pharmaceuticals were between 13 and 18 μg/L).

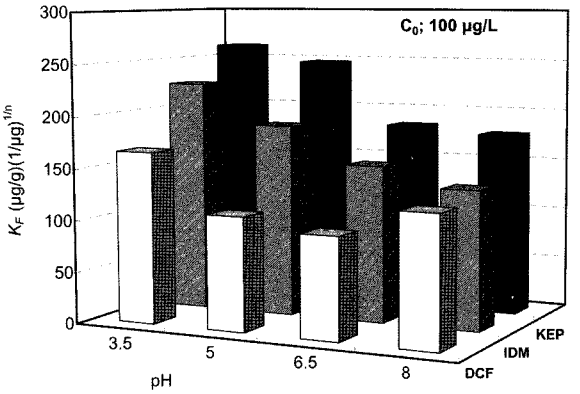
Fig. 2는 활성탄 주입량에 따른 활성탄 단위 질량당 의약품의 흡착량을 나타낸 것이다. 활성탄 주입량이 증가할수록 제거율은 증가하나 활성탄 단위 질량당 의약품의 흡착량은 급격히 감소하였다. 이는 저농도의 활성탄 주입량에서는 의약품의 초기 주입농도인 10 μg/L에서 약 40%를 흡착하여도 주입된 활성탄 단위 질량이 작기 때문에 흡착량이 높게 산출되나 높은 활성탄 주입량에서는 의약품의 높은 제거율에도 공급된 활성탄 단위 질량이 매우 크기 때문에 단위 활성탄 질량당 흡착량이 낮게 산출된 것이다. 따라서 활성탄 주입량에 따른 피흡착물질의 흡착량을 각각 비교해보면 고농도로 주입된 활성탄에서는 의약품의 흡착 가능한 여지가 충분히 남아 있음을 알 수 있었다.

Fig. 3은 용액의 pH변화에 따른 이온성 의약품의 흡착상수, K_F를 나타낸 것이다. 용액의 pH가 감소할수록 이온성 의약품의 흡착능은 증가하였으나(Fig. 3(a), (b)) 비이온성 의약품의 흡착능(Fig. 3(c))에는 큰 변화가 없었다. 이온성 의약품은 Table 1에 나타낸 이온화 상수 pKa값 이하에서는 분자구조가 대부분 비이온성을 나타내지만 자연수 영역인 pKa값 이상의 pH에서는 H^+가 이온화된 상태의 카르복실기(COO^-)를 지닌 이온 상태로 존재하게 된다. 즉 pH가 감소할수록 이온성 의약품이 지니는 카르복실기는 -COOH 형태로 상호 소수성 흡착반응으로 활성탄과의 결합이 용이하게 되고 그 결과 흡착상수, K_F가 증가하게 된다. 또한 pH의 감소에 따라 용액내 H^+증가 및 활성탄의 흡착표면의 양하전 증가는 용액으로부터 이온성 의약품을 이온성 결합으로 제거에 기여하게 되는 것으로 판단된다.

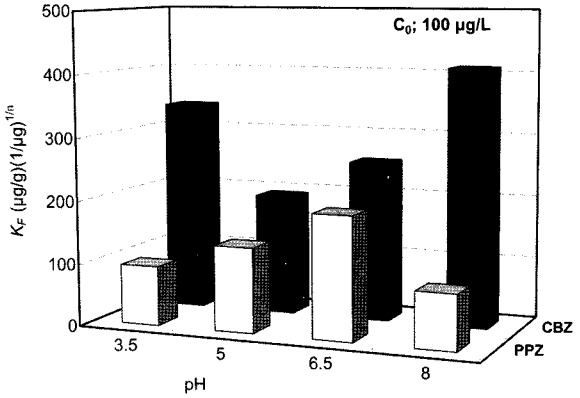
Fig. 4는 이온성 의약품을 대상으로 용액의 pH가 pKa 이상인 경우와 이하인 경우를 각각 구분하여 계산된 흡착상수 K_F의 상용 로그값, logK_F를 옥탄올 분배 계수, pK_{ow}와 함께 나타낸 것이다. 일반적으로 분자형태의 유기화합물의 경우 pK_{ow}가 높으면 소수성 증가로 활성탄 표면과의 소수성 결합 반응이 커져 흡착성이 증가한다. 따라서 이들의 흡착능 평가에 pK_{ow}가 효과적으로 이용될 수 있으나 이온성 유기화합물은 비이온성의 유기화합물과 달리 pK_{ow}와의 상관성이 매우 낮은 것으로 보고되고 있다.[10] 본 연구에서도 pH가 pKa 이상인 영역에서 이온성 의약품이 대부분 해리된 상태로 존재할 때 pK_{ow}와 logK_F간 매우 낮은 상관성을 보였다. 또한 pH가 pKa 이하인 영역에서 이온성 의약품이 대부분 비이온성의 분자형태로 존재하고 있지만 K_{ow}와 logK_F와의 상관성이 뚜렷하게 나타나지 않았다. 특히 pH가 pKa 이하인 조건에서 이온성의 의약품의 흡착상수가 큰 폭으로 변화하였는데 이는 활성탄과 의약품간의 소수성 결합 반응 이외의 복잡한 반응기작이 관여하였기 때문인 것으로 판단된다. 그러나 이온성 의약품의 경우에도 산성, 염기성 및 양쪽성의 작용기 형태에 따라 옥탄올 분배계수를 이용하여 흡착질에 대한 분배 계수를 계산할 수 있다는 보고[8]가 있기 때문에 이에 대한 연구가 필요하다고 사료된다.



(a) pH effect on adsorption of ionic pharmaceuticals



(b) pH effect on adsorption of other ionic pharmaceuticals



(c) pH effect on adsorption of non ionic pharmaceuticals

Fig. 3. Adsorption capacity of pharmaceuticals at different pH.

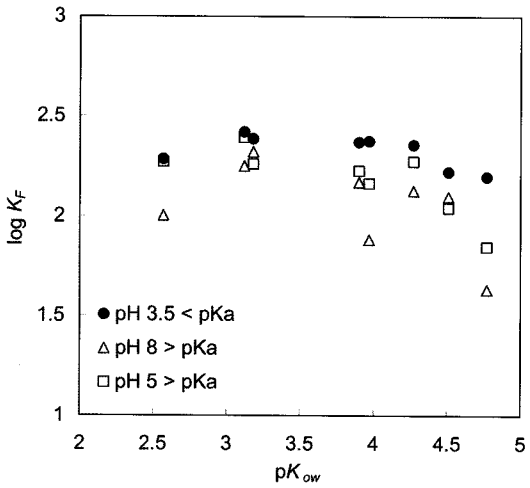


Fig. 4. Relationship between K_{ow} and logK_F.

3.2. 흡착 컬럼 실험에 의한 의약품의 제거 특성 평가

Fig. 5는 흡착 컬럼을 EBCT 15 min의 조건에서 약 40일간 연속 운전한 후 유출수의 농도를 나타낸 것이다. 활성탄의 충분한 흡착능으로 대상 의약품에 대해 93~99%의 효과적인 제거율을 얻을 수 있었다. 이와 같은 의약품의 높은 제거율은 새로운 활성탄의 흡착 기작에 의해 기인된 것이었다. 장기간 운전을 통한 생물학적 활성탄에 의한 의약품의 생물학적 분해 가능성도 고려가능할 것으로 판단된다. 특히 하수 처리 공정에서 IBP는 생물학적 분해가 가능한 것으로 보도된 바 있기 때문에 정수 처리 공정내에서도 생물학적 분해 가능한지에 대한 연구가 필요할 것이다. 유출수의 잔류 의약품 농도가운데 CA, IBP 및 GFZ가 다른 의약품에 비해 낮은 제거율을 나타냈고 이는 pH 7의 회분 흡착 실험에서 얻어진 등온 흡착 특성과 일치하였다. 따라서 정수 처리 공정에 있어 입상 활성탄 흡착공정은 의약품을 효과적으로 제거할 수 있음을 알 수 있었다. 그러나 실제 정수장에서 이용되고 있는 생물학적 입상 활성탄의 경우 주로 자연 유기물질에 의해 흡착 영역이 소모되었기 때문에 동일한 운전 조건에서 의약품에 대한 제거율을 낮아질 것으로 판단되며 반면 의약품에 대한 생물학적 분해 가능성은 새로운 입상 활성탄에 비해 기대 가능할 것으로 판단되므로 실제 운영중인 입상 활성탄에 의한 평가가 요구된다.

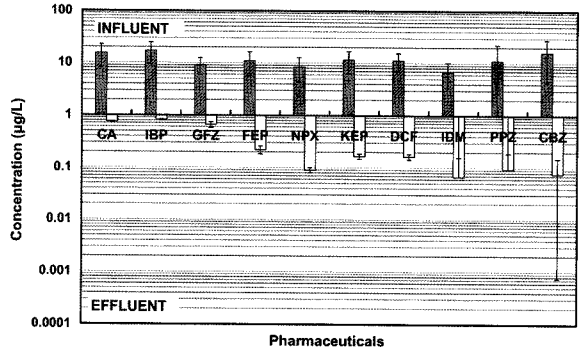


Fig. 5. Removal of pharmaceuticals through the continuous column test at 40 days operation.

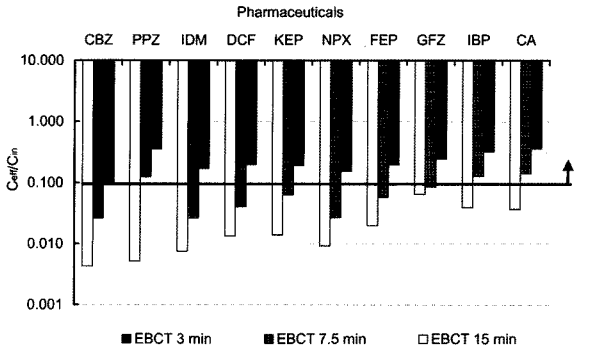


Fig. 6. Average concentration of residual pharmaceuticals in the GAC effluent at different EBCT.

Fig. 6은 EBCT가 각각 다른 조건에서 약 40일간의 운전을 통한 유출수의 의약품 잔류농도를 나타낸 것이다. EBCT를 3 min으로 짧게 운전한 경우 대부분의 의약품이 모두 초기 주입농도에 대한 유출수의 잔류농도의 비율, C_{eff}/C_{in}가 0.1 이상인 파과점에 도달하였다. 특히 오존 및 염소 산화에 강한 CA, IBP 및 GFZ가 다소 빠르게 파과점에 도달하였고 이는 회분식 흡착 실험과도 일치한 결과였다. EBCT의 변화에 따른 흡착성의 변화를 살펴본 결과 Fig. 6에 나타난 것처럼 비이온성 의약품인 CBZ와 PPZ가 이온성 의약품보다 큰 변화폭을 나타내 활성탄과 의약품간의 접촉시간이 제거율에 큰 영향을 미칠 것으로 판단되었다. 제거율이 낮은 이온성 의약품인 CA, IBP 및 GFZ는 EBCT에 따른 영향이 다른 이온성 의약품에 비해 다소 낮게 나타났다.

4. 결 론

수계에서 검출빈도가 높은 이온성 및 비이온성 의약품을 대상으로 입상 활성탄을 이용한 회분식 및 연속식 흡착 실험을 통해 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

1) 회분식 흡착실험에서 입상 활성탄을 500 mg/L로 주입하였을 때 모든 의약품은 94~98% 이상 제거되었고 산화공정으로 제거되기 어려운 CA, IBP, GFZ 및 KEP도 높은 GAC 주입량에서 효과적으로 제거되었다.

2) 의약품 흡착에 대한 pH의 영향을 살펴본 결과 이온성 의약품은 pH가 낮아질수록 흡착력이 증가되었으나 비이온성 의약품은 pH 변화에 영향을 받지 않았다. 이온성 의약품의 경우 중성의 pH 영역에서는 해리된 상태로 존재하지만 용액의 pH가 이온화 상수 이하로 낮아지는 경우 이온성 의약품이 지니고 있는 카르복실기가 -COOH 형태로 비이온화 및 소수화되어 활성탄에 흡착이 용이하게 되기 때문이었다.

3) 이온성 의약품의 흡착특성에 대한 옥탄을 분배 계수의 적용 가능성을 살펴본 결과 pH가 이온화 상수 이상인 경우와 이하인 경우에서 모두 낮은 상관성을 나타냈다. 이로 인해 이온성 의약품의 흡착 특성을 평가 및 예측하기 위해 옥탄을 분배 계수의 직접적인 이용은 어려운 것으로 판단되었다.

4) 연속 흡착 컬럼을 EBCT 15 min의 조건에서 40일간 운

전한 경우 새로운 활성탄의 충분한 흡착능으로 전 의약품은 93~99%의 효과적인 제거율을 나타냈다. 유출수의 잔류 의약품 농도가운데 CA, IBP 및 GFZ가 다른 의약품에 비해 낮은 제거율을 나타냈고 이는 pH 8의 회분식 흡착 실험에서 얻어진 등온 흡착 상수와 일치하였다.

5) EBCT를 3 min으로 단축시킬 경우 40일 후 대부분의 의약품은 초기 주입농도에 대한 유출수의 잔류농도의 비율, C_{eff}/C_{in}가 0.1 이상인 파과점에 도달하였다. 특히 CA, IBP 및 GFZ의 이온성 의약품이 빠르게 파과점에 도달하였고 이는 배치식 흡착 실험과도 일치한 결과였다. EBCT의 변화에 따라 비이온성 의약품인 CBZ와 PPZ가 이온성 의약품보다 큰 변화폭을 나타내 활성탄과의 접촉시간이 이들의 제거율에 큰 영향을 미칠 것으로 판단되었다.

6) 기존 정수 처리공정에서 낮은 제거율을 보이는 의약품은 입상 활성탄의 흡착공정에 의해 효과적으로 제거될 수 있을 것으로 판단되나 실제 정수장에서 이용되고 있는 생물학적 입상 활성탄의 경우 장기간 소모된 흡착 영역으로 의약품에 대한 낮은 제거율이 예상되기 때문에 이에 대한 실험이 요구된다.

사 사

이 논문은 일본학술진흥재단(Japan Society for the Promotion of Science)의 지원과 일본 국립보건의료과학원(National Institute of Public Health)의 협력으로 수행되었습니다.

참 고 문 헌

1. Halling-Sørensen, B., Nors Nielsen, S., Lanzky, P. F., Ingerslev, F., Holten Lützhøft H. C., and Jørgensen S. E., "Occurrence, fate and effects of pharmaceutical substances in the environment- A review," *Chemosphere*, **36**(2), 357~393(1998).
2. Vieno, N. M., Tuhkanen, T., and Kronberg, L., "Seasonal variation in the occurrence of pharmaceuticals in effluents from a sewage treatment plant and in the recipient water," *Environ. Sci. Technol.*, **39**, 8220~8226 (2005).
3. Castiglioni, S., Bagnati, R., Fanelli, R., Pomati, F., Calamari, D., and Zuccato, E., "Removal of pharmaceuticals in sewage treatment plants in Italy," *Environ. Sci. Technol.*, **40**(1), 357~363(2006).
4. Loraine, G. A. and Pettigrove, M. E., "Seasonal Variations in Concentrations of Pharmaceuticals and Personal Care Products in Drinking Water and Reclaimed Wastewater in Southern California," *Environ. Sci. Technol.*, **40**(3), 687~695(2006).
5. Ternes, T. A., Meisenheimer, M., Mcdowell, D., Sacher, F., Brauch, H.J., Haist-Gulde, B., Preuss, G., Wilme, U., and Zulei-Seibert, N., "Removal of pharmaceuticals during drinking water treatment," *Environ. Sci. Technol.*, **36**, 3855~3863(2002).
6. Koutsouba, V., Heberer, Th., Fuhrmann, B., Schmidt-Baumler, K., Tsipi, D., and Hiskia, A., "Determination of polar pharmaceuticals in sewage water of Greece by gas chromatography-mass spectrometry," *Chemosphere*, **51**, 69~75(2003).
7. Lin, W. C., Chen, H. C., and Ding, W. H., "Determination of pharmaceutical residues in waters by solid-phase extraction and large-volume on-line derivatization with gas chromatography-mass spectrometry," *J. of Chromatography A*, **1065**, 279~285(2005).
8. Kümmerer, K., Pharmaceuticals in the Environment, Springer, 2nd Eds., pp. 3~90(2004).
9. 한국화, 김상돈, "방류수 내 잔류 의약품의 위해성 평가: 수서생물에 의한 독성평가와 GC/MS를 이용한 수질시료 분석," 대한환경공학회 춘계학술연구발표회, 389~393 (2004).
10. Westerhoff, P., Yoon, Y. M., Snyder, S., and Wert, E., "Fate of endocrine-disruptor, pharmaceutical, and personal care product chemicals during simulated drinking water treatment processes," *Environ. Sci. Technol.*, **39**, 6649~6663(2005).
11. AWWA Research Foundation, "Endocrine disruptors and pharmaceuticals in drinking water," AwwaRF 90849(2002).