최 종 보 고 서

(2006)년도 환경기술연구개발사업으로 완료한『 경기도내 축산물 항생제 사용에 의한 축산폐수의 처리효율에 미치는 영향 조사 』에 관한 연구의 최종보고서를 붙임과 같이 제출합니다.

붙임 : 1. 최종보고서 (20)부. (끝)

제출일 : 2007년 3월 9일

연 구 기 관 : 명지대학교 환경생명공학부

연구책임자 : 안 대 희 (인)

연구기관장 : 명지대학교 산학협력단장 직인

경기지역환경기술개발센터장 귀하

제 출 문

경기지역환경기술개발센터장 귀하

본 보고서를 “경기도내 축산물 항생제 사용에 의한 축산폐수의 처리효율에 미치는 영향 조사”에 관한 최종보고서로 제출합니다.

연구기관명 : 명지대학교

연구책임자 : 안 대 희 (명지대 환경생명공학부)

연 구 원 : 조 미 경 (명지대 환경생명공학부)

투안 트란홍 (명지대 환경생명공학부)

김 대 희 (명지대 환경생명공학부)

지아유홍 (명지대 환경생명공학부)

요 약 문

Ⅰ. 제목

“ 경기도내 축산물 항생제 사용에 의한 축산폐수의 처리효율에 미치는 영향 조사 ”

Ⅱ. 연구의 목적 및 필요성

항생제는 미생물이 원인이 되는 질병으로부터 인간을 비롯한 생물계를 구제하는 장점으로 인해 많이 사용되어 왔으나 항생제 오·남용은 내성률을 높여 급기야는 어떠한 항생제도 듣지 않는 슈퍼박테리아를 출현시키는 등의 사회문제를 야기하게 되었다. 의약분업 이후 의료기관의 항생제 사용은 어느 정도 규제가 이루어지고 있으며 사용량에 있어서도 다소 감소추세에 있다. 그러나 축수산업에 사용되는 항생제의 오남용이 또 다른 사회문제로 야기되고 있다. 전체 항생제 사용량의 50 %정도를 소비할 것으로 추정되는 축수산업에서는 년간 1,500톤 정도의 항생제가 가축의 질병치료뿐만 아니라 성장촉진 목적으로 무분별하게 사용되고 있다.

이처럼 축수산업에서 이루어지고 있는 항생제 과다사용은 항생제의 내성균을 발현시켜 가축의 질병치료를 어렵게 할 뿐만 아니라, 더 나아가 가축의 항생제 내성균이 그 내성을 인체에 전달하여 사람의 질병치료도 어렵게 만들 수 있는 등 심각한 피해를 초래 할 수도 있으며, 항생제의 과다사용으로 인해 축산 분뇨의 형태로 자연계에 배출될 경우에 심각한 수질오염의 원인 및 이차오염을 유발할 가능성이 높다.

환경부는 항생제로 인한 환경오염의 심각성을 인식하여 전자파 등 유해물질 노출실태 및 건강영향 조사(전자파, 항생제, 소음의 건강영향조사)를 통하여 하천에 대한 항생제와 진통제 등 의약물질 잔류 실태 조사에 착수한 바 있다. 현재, 선진각국의 축산물 생산량 및 항생제 사용량, 주요사용 항생제, 축종별 항생제 분석 등 항생제 사용에 관한 실태 분석에 대한 자료는 수집되고 있으나, 사용하는 항생제가 축산 폐수 내에 잔류하는 정도 및 이로 인한 축산폐수처리에 미치는 영향에 관한 구체적인 연구결과는 미흡한 실정이다. 또한 축산폐수 처리에 있어서 다수의 처리장이 특정시기(7월-9월)에 질소 · 인 제거

에 어려움을 겪고 있는데, 축산농가의 항생제, 소독제 사용과 연관성이 있는 것으로 추정된다. 따라서 대표적으로 사용되는 항생제가 축산폐수처리효율에 미치는 영향을 고찰하여 가축 분뇨 적정처리로 하천수질을 I-II 급수로 개선하는데 기여하고자 한다.

III. 연구의 내용 및 범위

본 연구에서는 항생제 사용에 의한 축산폐수의 처리효율을 알아보기 위하여 동물의 질병 치료 뿐만 아니라 사료 배합용으로 가장 많이 사용되는 테트라싸이클린계 항생제를 사용하였다. 회분식 시험을 통하여 항생제가 생물학적 처리시설에 미치는 영향을 알아보고자 하였다. 실험을 위하여 아크릴로 제작된, 가로 70mm, 세로 70mm, 높이 200mm의 크기를 갖는 직사각형의 반응기를 7개 연결하여 동일 조건 하에서 실험하였다. 각 반응기의 총 부피는 1 L이며, 운전체적은 800 ml로 반응기의 하단의 동일한 위치에 산기관을 설치하였으며, DO의 농도는 2 L/min로 일정하게 유지하였다.

또한 정상 운전 중인 Lab Scale의 A_2/O System을 이용하여 시판용 항생제인 테라마이신(Terramicin)을 원수에 주입하여 실제 축산폐수 처리공정에 미치는 영향을 알아보고자 하였다. 반응기는 무산소조1,2 (Anoxic1,2)와 호기조 (Oxic)조로 이루어져 있으며, 각각의 유효용적은 3 L, 2.28 L, 8 L의 아크릴로 제작하였다. 침전조를 대신하여 호기성 반응조에 MF막(Microfiltration membrane)을 침지시켰으며, 반응기의 하단 중앙에 산소의 공급과 반응기내의 완전혼합 및 MF막의 Fouling을 막기 위하여 산기관을 설치하여 4 L/min로 산소를 공급해주었다.

MLSS는 2000 mg/L 으로 유지 시켜주었으며, 초기 기질의 농도변화가 크다고 판단하여 실험을 시작하고 12 시간 동안은 2 시간 간격으로 시료를 채취하여 분석하였으며, 이후에는 4~8 시간으로 늘려가며 채취하여 회분식 시험 동안의 축산폐수의 처리효율을 알아보았다.

IV. 연구결과 및 향후연구계획

테트라사이클린 항생제가 축산폐수의 처리효율에 미치는 영향을 알아보기 위하여 각각 인공폐수와 축산폐수를 이용하여 테트라싸이클린계열의 항생제 중 옥시테트라싸이클린(OTC)과 테트라싸이클린(TC)의 두 종류의 항생제를 이용하였다. 축산 폐수내에 존재하는

기타 여러 물질의 방해를 피하기 위하여 인공폐수를 제조하여 옥시테트라사이클린 항생제의 농도에 따른 처리효율의 변화를 알아보았다. 옥시테트라사이클린 항생제의 주입결과 1~200 ppm의 농도사이에서 항생제의 농도가 증가할수록 NH_4^+-N 제거율이 감소되는 결과를 나타냈으며, $SCOD_{Cr}$의 제거율도 감소하였다.

축산폐수에 옥시테트라사이클린 항생제를 주입한 회분식 시험에서 NH_4^+-N의 농도를 살펴보면 항생제를 넣지 않은 Control은 항생제 농도가 100 mg/L 일 때와 다소 차이가 났으며, 이는 옥시테트라싸이클린과 테트라싸이클린 모두 비슷한 변화를 나타냈다. SCOD의 측정결과에서도 항생제의 농도가 높을수록 유기물의 분해가 잘 이루지지 않았다. 질소 제거효율과 유기물 제거효율의 비교를 통한 축산폐수 처리효율의 비교 시험결과, 유사한 구조를 갖는 테트라사이클린 계열의 항생제인 옥시테트라싸이클린과 테트라싸이클린은 서로 비슷한 영향을 나타내는 것으로 나타났다.

실제 농가에서 사용하는 테트라싸이클린 계열의 항생제를 사용하여 축산폐수의 처리효율을 알아보았다. 테트라싸이클린 계열의 항생제인 옥시테트라싸이클린이 50 mg/1ml 이 포함되어 있는 주사용 항생제를 구입하여 실험에 사용하였으며, 일반적으로 동물에 3 회에 걸쳐 처방되는 점을 고려하여 동일한 슬러지에 같은 농도를 가지고 3 회에 걸쳐 항생제를 투입하였다. 처음 시판용 항생제가 주입되었을 때는 항생제 농도에 따른 NH_4^+-N의 제거율이 다소 큰 차이가 없었다. 하지만 시판용 항생제를 3회째 투입하였을 때는 항생제의 농도가 50 mg/L 이상부터 질소의 제거 효율이 크게 떨어졌다. 이는 항생제의 반복적인 투입으로 인하여 미생물들이 영향을 받은 것으로 사료된다. $SCOD_{cr}$의 경우 처음 항생제가 투입되었을 때부터 영향을 미치기 시작하였으며, 투입횟수가 늘어날수록, 시판용 항생제의 농도가 50 mg/L 이상부터 제거 효율이 크게 떨어지기 시작했다.

시판용 항생제를 가지고 실험을 수행할 때 주목할 점은 많은 거품의 발생이었다. 특히 항생제의 농도가 높을수록 항생제 주입 횟수가 늘어날수록 많은 양의 거품이 반응 초기부터 나타나기 시작했다. 축산 폐수 내 존재하는 화학 물질인 항생제는 미생물의 대사활성에 영향을 미치는 소독제와 마찬가지로 과도한 거품을 발생시켜 축산폐수처리 효율을 저하를 가져올 수 있다고 사료된다.

항생제가 실제 축산폐수 처리공정에서 미치는 영향을 알아보기 위하여 정상 운전 중인 A_2/O system에 시판용 항생제인 테라마이신을 10, 50 100 ppm으로 단계적으로 주입한 결과 낮은 농도인 10 ppm에서 질산화에 저해작용을 나타냈다. 특히 NH_4^+-N의 제거율에 영향을 주는 것으로 나타났으며, $SCOD_{Cr}$의 경우 연속식 실험에서 항생제 주입에 따른 제거효율의 변화가 나타나지 않았다.

본 연구 결과 같은 계열의 항생제는 축산폐수의 처리에 유사한 영향을 미치며, 회분식 실험 결과 항생제의 투입 횟수가 증가할수록, 농도가 높을수록 축산폐수의 질산화 및 유기물의 저하를 가져오는 것으로 판단된다. 그러나 연속식 실험에서 질산화 반응의 저해 현상을 나타냈으나, 유기물 제거에는 별다른 영향을 미치지 않는 것으로 반응기 내부의 미생물 군집에 관한 조사가 추가적으로 필요하다고 판단된다.

ⅴ. 연구결과의 활용계획

본 연구결과는 축산폐수 처리 시설에서 질소제거 효율의 저하 등의 비정상적인 운전이 일어날 경우, 원인규명의 수단으로 항생제의 영향을 고찰할 수 있는 이론적 근거로 활용되어질 계획이다.

현재 국내의 관계당국은 식품의 안정성을 높이고, 항생제 사용량을 감소시키려 하고 있으나 성장촉진 목적의 항생제 사용을 금지하고 있는 EU와 비교해보면 여전히 많은 항생제가 배합사료제조용으로 허용되어 있고, 또한 수의사처방에 의해 항생제 사용을 엄격히 규제하고 있는 선진국들과 달리 수의사 처방 없이도 자유롭게 항생제 구입이 가능한 우리나라 현실에서 항생제수 감축만으로 항생제 사용량이 감소할지는 명확하지 않은 상황에서 항생제수 감축과 더불어 축산분뇨의 처리효율에 미치는 영향을 고찰하고 그 결과를 바탕으로 항생제 사용량 감소의 필요성을 환기시키므로써 항생제 사용량 감소 유도 및 규제를 위한 정책 자료로 활용할 수 있을 것으로 사료된다.

SUMMARY

I. Title

“ Investigation of the influence of present of antibiotics used to the efficiency of biological piggery wastewater treatment plant in Kyeonggi provice ”

II. Objectives and Importance

The growing amount and biological impact of antibiotics in the environment have been widely discussed. Antibiotics are used for the treatment of diseases of humans and animals, and are also commonly applied to livestock for preventing diseases and promote growth. Approximately, 50% of antibiotics product are used in livestock industry. However, the presence of antibiotics in the wastewater from livestock farm due to its over-application should be concerned because they could change microbial ecology, increase the proliferation of antibiotic resistant pathogens, provoke toxic effect on aquatic species. In addition, these antibiotics can cause negative effect on the performance of biological wastewater treatment plan due to its antibacterial properties. It has been well-known that nitrification in wastewater treatment plants is a most important and sensitive microbiological process, which can be disturbed by the widely spectrum of toxic substances. Therefore, the present of residue of antibacterial agents in piggery wastewater would inhibit activity of nitrifying bacteria, in particular, and of other microorganisms in the biological treatment process, in general.

In this investigation, our aim is to evaluate the effect of some common used antibiotic in Korean piggery farm such as oxytetracyclie (OTC) and tetracycline (TC) to nitrification rate and biological oxidation efficiency of organic compounds in aerobic reactor for treating piggery wastewater with the addition of different concentrations of those antibiotics.

III. Research scope

The experiment was conducted in aeration batch reactor and lab-scale A_2/O system. Inoculation microorganism was activated sludge collecting from Y wastewater treatment plant. For batch test, synthetic and diluted piggery wastewater were used, both were characterized as 400 mg $SCOD_{Cr}$/L and 90 mg NH_4^+-N/L. All reactors was operated as batch mode with MLSS concentration of 2000 mg/L.

The experiment was conducted by the used of seven aeration reactors. Each one was a total volume of 1 L, working volume of 800 mL and constructed from Plexiglas. The content of each reactor consisted of aeration diffuser and air flow meter for adjusting air flow rate of 2 L/min.

For each batch test, one reactor was operated without any addition of antibacterial agents as control one, while the performance of other six reactors was evaluated by the addition of different concentration of OTC or TC in the range from 1 to 500 ppm. All batch test was carried out and finished whenever conversion and oxidation rate of NH_4^+-N and organic compounds (as $SCOD_{Cr}$), respectively, have being constant.

Meanwhile, raw piggery wastewater was fed into A_2/O system during whole experiment period.

IV. Results

Firstly, the antibiotics used, Oxytetracycline (OTC) and Tetracycline (TC), were purchased from Sigma-Aldrich. Results from batch test showed that nitrification and SCOD removal rate declined when the addition of OTC was increased in range of 1-200 ppm. The similar behavior was observed when TC was used. It might be due to they are both in the same antibiotic chemical structure group. Additionally, Terramycin, as the commercial antibiotic product of OTC, was also used for evaluating long-term effect of commercial antibiotic on the activity of activated sludge by repeating three cycles with the same innoculated sludge. The significant

negative effect on the nitrification rate was observed after the third repeated cycle. It could be suggested that the long-term present of antibiotic in the reactor would result in the decrease of nitrifying bacteria.

With the addition of Terramycin in the influent of A_2/O system, the experiment results showed that the nitrification rate started to decrease when Terramycin concentration of 10 ppm was applied. However, there was not significant effect of Terramycin in concentration range of 10-100 ppm was observed.

VI. Application plan

From this study, it would be suggested that the piggery wastewater characterization should be examined in order to assess the fraction of common used antibiotics. The alternative treatment processes for high-strength antibiotics piggery wastewater might be suggested in the future work. In addition, the guideline for the usage of antibiotics in livestock farm should be regulated not only to avoid the over-application of antibiotic but also to stabilize the treatment system of such discharging source.

CONTENTS

목 차