



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2012년01월16일
(11) 등록번호 10-1105349
(24) 등록일자 2012년01월05일

(51) Int. Cl.

C02F 1/32 (2006.01)

(21) 출원번호 10-2008-0101931

(22) 출원일자 2008년10월17일

심사청구일자 2008년12월10일

(65) 공개번호 10-2010-0042785

(43) 공개일자 2010년04월27일

(56) 선행기술조사문헌

논문1

KR1020000063389 A

(73) 특허권자

한국원자력연구원

대전광역시 유성구 대덕대로989번길 111 (덕진동)

(72) 발명자

김태훈

전라북도 정읍시 학산로 89-25, 105동 402호 (상동, 상동 엘드 수목토 아파트)

윤성환

부산광역시 수영구 수영로394번길 24 (남천동)

(뒷면에 계속)

(74) 대리인

이원희

전체 청구항 수 : 총 5 항

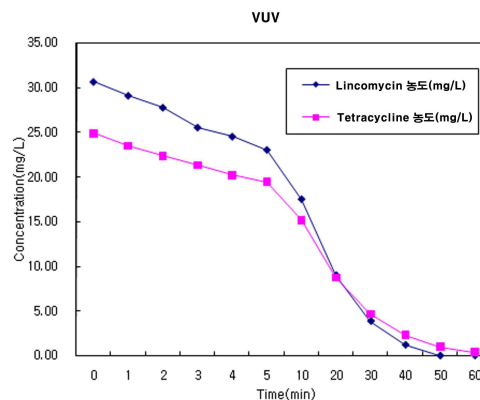
심사관 : 서상혁

(54) 진공자외선을 이용한 항생제의 분해방법

(57) 요약

본 발명은 진공자외선을 이용한 항생제의 분해방법에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 항생제가 함유된 하폐수, 하폐수 슬러지, 제약 폐수, 산업 폐수, 인분, 가축분뇨 및 음식물 쓰레기로 이루어지는 군으로부터 선택되는 환경오염처리 부산물에 진공자외선을 조사하는 단계를 포함하는 진공자외선을 이용한 항생제의 분해방법에 관한 것이다. 본 발명에 따른 항생제 분해방법은 항생제가 가지고 있는 독성뿐 아니라 생물체에 유발되는 내성을 제거할 수 있으며, 난분해성 유기독성물질로 알려진 항생제를 진공자외선 조사 기술을 이용하여 분해시킴으로써 하폐수, 제약폐수, 산업폐수의 생물학적 처리 효율을 극대화시킬 수 있으며, 또한 축산분뇨, 인분, 하폐수 슬러지 또는 음식물 쓰레기의 퇴비화 및 사료화 과정에서 생물학적 부숙을 가능하게 한다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

유승호

경기도 수원시 영통구 동탄원천로1109번길 37, 10
1동 308호 (매탄동, 한국아파트)

이면주

대전광역시 유성구 어은로 57, 105동 1304호 (어은
동, 한빛아파트)

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 57131-08

부처명 교육과학기술부

연구관리전문기관

연구사업명 방사선기술개발사업

연구과제명 방사선융합 오페수 위생화 기술개발

기여율

주관기관 한국원자력연구원

연구기간 2008년 03월 01일 ~ 2009년 2월 28일

특허청구의 범위

청구항 1

항생제가 함유된 하폐수, 하폐수 슬러지, 제약 폐수, 산업 폐수, 인분, 가축분뇨 및 음식물 쓰레기로 이루어지는 군으로부터 선택되는 환경 오염처리 부산물에 100~200 nm의 파장을 갖는 진공자외선(VUV)을 조사하여 환경 오염처리 부산물 내 클로로테트라사이클린, 트리메소프림 및 린코마이신으로 이루어지는 군으로부터 선택되는 항생제를 분해시키는 단계를 포함하는 진공자외선을 이용한 항생제의 분해방법.

청구항 2

삭제

청구항 3

제1항에 있어서, 상기 진공자외선은 수은으로부터 발생하는 것을 특징으로 하는 진공자외선을 이용한 항생제의 분해방법.

청구항 4

삭제

청구항 5

삭제

청구항 6

제1항에 있어서, 상기 항생제의 농도는 100 ppm 이하인 것을 특징으로 하는 진공자외선을 이용한 항생제의 분해방법.

청구항 7

항생제가 함유된 하폐수, 하폐수 슬러지, 제약 폐수, 산업 폐수, 인분, 가축분뇨 및 음식물 쓰레기로 이루어지는 군으로부터 선택되는 환경 오염처리 부산물을 제1항에 따른 항생제의 분해방법에 의해 처리하고, 호기성 처리 또는 혐기성 처리에 의하여 퇴비화 및 사료화하는 방법.

청구항 8

제7항의 방법에 의해 제조된 퇴비 또는 사료.

명세서

발명의 상세한 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 자연생태계 및 환경오염물질 처리 부산물 중에 존재하는 다양한 항생제를 진공자외선 조사를 통하여 분해하는 방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 최근 항생제는 인체에 투여하는 것뿐만 아니라 가축 사료 등에 포함되어 다량이 공급되고 있어서, 항생제가 함유된 하폐수, 하폐수 슬러지, 인분, 가축분뇨 또는 음식물 쓰레기들이 자연 생태계에 그대로 노출되고 있으며, 특히 노출된 항생제에 의해서 유발된 항생제 내성 유전자가 각종 미생물에 전이가 되어 결과적으로 인간에게 치

명적인 위협이 되기 때문에 사회적 문제로 대두되고 있는 상황이다.

[0003] 그러나 자연생태계에 최종 배출되는 항생제는 국내외에서 방류수 기준항목에 포함되어 있지 않은바, 그 제거 기술의 개발은 극히 미미한 수준이며, 또한 항생제 등은 그 화학적 구조가 안정하여 분해하기도 어려울 뿐만 아니라 분해한다 하더라도 각종 독성 물질로 전환될 가능성이 있기 때문에 분해의 어려움이 있다.

[0004] 특히 국내에서는 특정 항생제 처리에 관한 연구는 거의 이루어 지지 않고 있으며, 국외에서도 자연생태계에 잔류하는 항생제를 측정하고 기존 하수처리장의 생물학적 분해에 미치는 영향과 자연적인 광화학반응을 연구하는 정도이며, 특히 인분, 가축분뇨 또는 음식물 쓰레기 등은 퇴비화 및 사료화 과정에서 항생제의 독성으로 인하여 생물학적 부속이 어렵기 때문에 자원의 재활용이라는 측면에서도 한계가 있는 상황이다.

[0005] 종래 항생제 또는 항균제 분해방법에 있어서는 일본공개공보 제2004-74119호에서 의약품 및 의약외품에 오염된 물에 방사선을 오존의 존재하에 직접 조사하는 것에 의하여 이들을 분해 처리하는 것을 특징으로 하는 방법이 개시되어 있으나, 상기 방법은 방사선에 의하여 발생한 라디칼이 항균제를 무해한 화합물로 분해하기 보다는 라디칼이 화학결합을 촉진하여 올리고머 또는 고분자량의 폴리머를 형성하는 반응이 더 우세하게 진행되는 단점이 있어 상용화에는 한계가 있다.

[0006] 이를 개선하기 위하여, 대한민국 특허등록 제601113호에서는 항균제가 함유된 환경오염물질 처리 부산물에 N_2O 를 첨가한 후 방사선을 조사하여 항균제를 분해하는 방법이 개시되어 있다. 그러나 방사선 기술을 사용하기 위해서는 차폐를 해야 하는데, 이때 초기 설치비용이 많이 들며 설치가 용이하지 않은 문제가 있다.

[0007] 이에, 본 발명자들은 자연생태계 및 환경오염물질 처리 부산물 중에 존재하는 항생제를 용이하게 분해시킬 수 있으며, 설치가 용이하고 경제적인 방법을 연구하던 중, 진공자외선 조사를 이용할 때 상기 문제를 해결할 수 있음을 알아내고 본 발명을 완성하였다.

발명의 내용

해결 하고자하는 과제

[0008] 본 발명의 목적은 진공자외선 조사방법을 이용하여 자연 생태계에 잔류하거나 기존의 환경처리기술 적용 후 존재할 수 있는 항생제를 분해 및 무기화(無機化, mineralization) 시키거나 독성을 제거하여 기존 하폐수 처리 시설의 생물학적 분해 효율을 극대화 시키는 방법을 제공하는 데 있다.

[0009] 본 발명의 다른 목적은 진공자외선 조사에 의하여 항생제를 분해함으로써 하폐수, 제약폐수 및 여타 산업폐수의 생물학적 분해공정과, 축산분뇨, 인분, 하폐수 슬러지 및 음식물 쓰레기의 퇴비화 및 사료화 과정에서 생물학적 부속이 가능하도록 하는 방법을 제공하는 데 있다.

[0010] 본 발명의 또 다른 목적은 상기 항생제의 분해방법에 의해 처리된 퇴비 및 사료를 제공하는 데 있다.

과제 해결수단

[0011] 상기 목적을 달성하기 위하여 본 발명은 항생제가 함유된 하폐수, 하폐수 슬러지, 인분, 가축분뇨 또는 음식물 쓰레기에 진공자외선(VUV)을 조사하는 단계를 포함하는 진공자외선을 이용한 항생제의 분해방법을 제공한다.

[0012] 또한 본 발명은 하폐수, 하폐수 슬러지, 인분, 가축분뇨 또는 음식물 쓰레기를 상기 항생제의 분해방법에 의해 처리하고, 생물학적 처리에 의하여 퇴비화 및 사료화하는 방법을 제공한다.

[0013] 나아가, 본 발명은 상기 항생제의 분해방법에 의해 처리된 퇴비 및 사료를 제공한다.

효 과

[0014] 본 발명에 따른 항생제 분해방법은 항생제가 가지고 있는 독성뿐 아니라 생물체에 유발되는 내성을 제거할 수 있으며, 난분해성 유기독성물질로 알려진 항생제를 진공자외선 조사 기술을 이용하여 분해시킴으로써 하폐수,

제약폐수, 산업폐수의 생물학적 처리 효율을 극대화시킬 수 있으며, 또한 축산분뇨, 인분, 하폐수 슬러지 또는 음식물 쓰레기의 퇴비화 및 사료화 과정에서 생물학적 부숙을 가능하게 한다.

발명의 실시를 위한 구체적인 내용

- [0015] 이하, 본 발명을 상세하게 설명한다.
- [0016] 본 발명은 자연생태계 및 환경오염물질 처리 부산물 중에 존재하는 다양한 항생제를 진공자외선 조사를 통하여 분해하는 방법을 제공한다.
- [0017] 본 발명에 따른 항생제 분해방법에 있어서, 상기 환경오염물질 처리 부산물로는 하폐수, 하폐수 슬러지, 제약 폐수, 산업 폐수, 인분, 가축분뇨, 음식물 쓰레기 등을 들 수 있으나, 이에 제한되지 않는다. 이러한 환경오염 물질 처리 부산물 내에 포함된 항생제는 진공자외선을 조사함으로써 분해 및 무기화(mineralization)되거나 독 성이 제거되어 생물학적 분해를 극대화시킬 수 있다.
- [0018] 본 발명에 따른 항생제 분해방법에 있어서, 사용되는 진공자외선은 200 nm 이하의 파장을 갖는 것이 바람직하 며, 100~200 nm의 파장을 갖는 것을 사용하는 것이 더욱 바람직하다.
- [0019] 자외선은 파장에 따라서 UV-A, UV-B, UV-C 및 진공자외선(VUV)로 나눌 수 있다. UV-A는 일반적으로 320~400 nm의 파장을 가지는 자외선을 말하며, 실내에서 선풍기를 하거나 푸른 조명을 할 때 사용된다. 또한 최근에는 TiO₂ 등의 광촉매가 활성화될 수 있는 에너지원으로 사용할 수 있어 광촉매를 이용한 수처리, 대기처리에 사용되 고 있다. UV-B는 일반적으로 280~320 nm의 파장을 가지는 자외선이며, 비타민 D를 형성하거나 피부에 홍반작용 을 일으키는 자외선이다. UV-C는 일반적으로 200~280 nm의 파장을 갖는 자외선으로서 살균자외선이라고도 하며, DNA, 단백질 및 오존이 잘 흡수하는 파장이다. 따라서 오존을 잘 분해하기 때문에 최근에는 오존파괴용 및 소독용으로 사용되고 있다.
- [0020] 진공자외선은 100~200 nm의 파장을 갖는 자외선으로서 공기에 의해 세게 흡수되기 때문에 진공 속에서만 취급할 수가 있어서 진공자외선이라 한다. 상기 진공자외선은 공기뿐만 아니라 거의 물질에 의해 강하게 흡수되어 물 질 속의 전자를 들뜨게 하거나 물질에서 전자를 방출시키기도 한다. 진공자외선을 수용액에 조사하였을 때 직 접적인 광산화 반응과 반응식 (1) 및 (2)와 같이 간접적인 수화학적 분해에 의하여 하이드록실 라디칼, 수소 원 자, 수산화자 등의 이온성 물질이 생성되게 되며, 상기 이온성 물질 가운데 하이드록실 라디칼이 처리대상 물질 을 무기화하는 데 매우 효과적인 것으로 알려져 있다.
- [0021]
$$(1) \text{H}_2\text{O}(1) + h\nu(\text{VUV}) \rightarrow [\text{e}^-, \text{H}_2\text{O}^+] + (\text{H}_2\text{O})$$
- [0022]
$$(2) [\text{e}^-, \text{H}_2\text{O}^+] + (\text{H}_2\text{O}) \rightarrow \text{e}_{\text{aq}}^- + \text{HO} \cdot + \text{H}_3\text{O}^+$$
- [0023] 본 발명에 따른 항생제 분해방법에 있어서, 방사선 조사 시간은 하폐수, 하폐수 슬러지, 제약 폐수, 산업 폐수, 인분, 가축분뇨, 음식물 쓰레기 등의 환경오염처리 부산물 내에 포함되어 있는 항생제의 함량에 따라 적절하게 조절할 수 있다. 항생제 농도가 낮고 조사선량을 스케일-업(scale-up)시키면 진공자외선에서 생성되는 에너지 가 커지므로 5분 이내에서도 항생제의 분해가 가능하다.
- [0024] 본 발명에 따른 항생제 분해방법에 있어서, 상기 진공자외선은 수은로부터 발생되는 것을 사용할 수 있다.
- [0025] 본 발명에 따른 항생제 분해방법에 있어서, 분해되는 항생제는 가축에 가장 많이 쓰이는 테트라사이클린 계열, 사람 및 가축에 많이 쓰이는 설파제 계열, 세팔로스포린 계열, 클로람페니콜 계열, 마크로라이드 계열 또는 아 미노글라이코사이드 계열 등을 포함하며, 구체적으로는 클로로테트라사이클린, 설파메톡사졸, 트리메소프림, 린 코마이신 등을 들 수 있다. 이때 항생제의 농도는 100 ppm 이하인 것이 바람직하다.
- [0026] 상기 진공자외선을 이용한 방법은 종래 방사선 이용에 필요한 차폐의 번거로움이 없고, 설치가 용이하며 설치 비용도 경제적이고 항생제 분해율도 우수하므로(표 1~3, 도 1~2 참조), 방사선을 대신하여 하폐수 슬러지, 인분, 가축분뇨, 음식물 쓰레기 등의 환경오염 물질 처리 부산물 내에 포함된 항생제를 효과적으로 분해시켜 생

물학적 부속을 극대화시킬 수 있다.

[0027] 또한, 본 발명은 하폐수, 하폐수 슬러지, 제약 폐수, 산업 폐수, 인분, 가축분뇨, 음식물 쓰레기 등으로 이루어지는 환경오염물질 처리 부산물을 상기 진공방사선을 이용한 항생제의 분해방법에 의해 처리하고, 생물학적 처리에 의하여 퇴비화 및 사료화하는 방법을 제공한다.

[0028] 나아가, 본 발명은 하폐수, 하폐수 슬러지, 제약 폐수, 산업 폐수, 인분, 가축분뇨, 음식물 쓰레기 등으로 이루어지는 환경오염물질 처리 부산물을 상기 진공자외선을 이용한 항생제의 분해방법에 의해 처리하고, 생물학적 처리함으로써 제조된 퇴비 또는 사료를 제공한다.

[0029] 이하, 본 발명을 실시예에 의해 더욱 상세히 설명한다. 단, 하기의 실시예는 본 발명의 내용을 예시하는 것일 뿐, 본 발명의 내용의 하기의 실시예에 의해 한정되는 것은 아니다.

[0030] <실시예 1> 진공자외선을 이용한 항생제 분해

[0031] 본 발명에 따른 진공자외선을 이용한 항생제 분해효과를 알아보기 위하여 다음과 같은 실험을 수행하였다.

[0032] 인간과 가축에 많이 투여되는 항생제인 클로로테트라사이클린(chlorotetracycline), 설파메톡사졸(sulfamethoxazole) 또는 트리메소프림(trimethoprim)을 30 mg/L 농도의 수용액으로 제조한 후 상기 수용액에 진공자외선(파장: 185 nm + 254 nm)을 5분, 10분, 15분, 20분, 30분, 50분, 70분, 90분 및 120분 동안 조사하여 항생제 분해를 변화를 수용액 중 항생제 농도(mg/L)의 변화량으로 측정하고, 그 결과를 표 1에 나타내었다.

표 1

[0033]

시간 (분)	클로로테트라사이클린		설파메톡사졸		트리메소프림	
	농도(mg/L)	C/C ₀	농도(mg/L)	C/C ₀	농도(mg/L)	C/C ₀
0	34.43	1	32.39	1	33.33	1
5	16.69	0.48	2.58	0.07	32.92	0.98
10	12.51	0.36	0.09	0.003	31.30	0.93
15	9.65	0.28	0.00	0.00	31.79	0.95
20	7.44	0.21	0.00	0.00	30.53	0.91
30	3.25	0.09	0.00	0.00	27.90	0.83
50	0.82	0.02	0.00	0.00	21.38	0.64
70	0.00	0.00	0.00	0.00	14.94	0.44
90	0.00	0.00	0.00	0.00	9.37	0.28
120	0.00	0.00	0.00	0.00	4.17	0.12

C: 조사후 농도
C₀: 조사전 농도

[0034] 표 1에 나타난 바와 같이, 클로로테트라사이클린의 경우 5분 동안 진공자외선을 조사하였을 경우 50% 이상이 제거되고, 설파메톡사졸은 90% 이상이 제거되며, 70분 후에는 두 물질 모두 완전하게 분해되는 것을 알 수 있다. 또한 트리메소프림은 70분 후에 50% 이상 분해됨을 알 수 있다.

[0035] 따라서, 본 발명에 따라 진공자외선을 조사함으로써 하폐수 내의 항생제를 유의하게 분해시킬 수 있다.

[0036] <실시예 2> 자외선 종류에 따른 항생제 분해효율

[0037] 자외선 종류에 따른 항생제 분해효율을 알아보기 위하여 다음과 같은 실험을 수행하였다.

[0038] 항생제인 린코마이신(lincomycin) 또는 테트라사이클린(tetracycline)을 약 30 mg/L 농도의 수용액으로 제조한 후 상기 수용액에 진공자외선(파장: 185 nm + 254 nm) 또는 살균자외선(UV-C)(파장: 254 nm)을 1~60분 동안 조사하여 항생제 분해를 변화를 수용액 중 항생제 농도(mg/L)의 변화량으로 측정하고, 그 결과를 표 2~3 및 도

1~2에 나타내었다.

[0039] 상기 표 2 및 도 1은 진공자외선을 조사하였을 때의 항생제의 분해율 변화를 나타내며, 표 3 및 도 2는 살균자외선을 조사하였을 때의 항생제의 분해율 변화를 나타낸다.

표 2

[0040] 진공자외선(VUV) 조사시

시간 (분)	린코마이신		테트라사이클린	
	농도(mg/L)	C/C ₀	농도(mg/L)	C/C ₀
0	30.61	1.00	24.89	1.00
1	29.07	0.95	23.50	0.94
2	27.74	0.91	22.33	0.90
3	25.52	0.83	21.34	0.86
4	24.49	0.80	20.21	0.81
5	23.01	0.75	19.43	0.78
10	17.5	0.57	15.16	0.61
20	9.00	0.29	8.70	0.35
30	3.86	0.13	4.66	0.19
40	1.20	0.04	2.27	0.09
50	0.00	0.00	0.97	0.04
60	0.00	0.00	0.35	0.01
C: 조사후 농도 C ₀ : 조사전 농도				

표 3

[0041] 살균자외선(UV-C) 조사시

시간 (분)	린코마이신		테트라사이클린	
	농도(mg/L)	C/C ₀	농도(mg/L)	C/C ₀
0	30.15	1.00	27.67	1.00
1	29.96	0.99	27.02	0.98
2	29.89	0.99	26.74	0.97
3	29.61	0.98	25.89	0.94
4	29.34	0.97	24.95	0.90
5	29.44	0.98	25.21	0.91
10	29.52	0.98	25.24	0.91
20	29.36	0.97	23.35	0.84
30	29.13	0.97	23.46	0.85
40	28.88	0.96	20.19	0.73
50	28.79	0.95	18.18	0.66
60	28.53	0.95	16.58	0.60
C: 조사후 농도 C ₀ : 조사전 농도				

[0042] 표 2~3 및 도 1~2에 나타난 바와 같이, 진공자외선을 조사하였을 때에는 항생제가 분해되어 항생제의 농도가 유의적으로 감소하였으나, 살균자외선을 조사하였을 때에는 항생제의 분해 효과가 거의 나타나지 않았다.

[0043] 따라서 본 발명에 따른 항생제 분해방법은 진공자외선을 조사함으로써 하폐수 내의 항생제를 유의하게 분해시킬 수 있다.

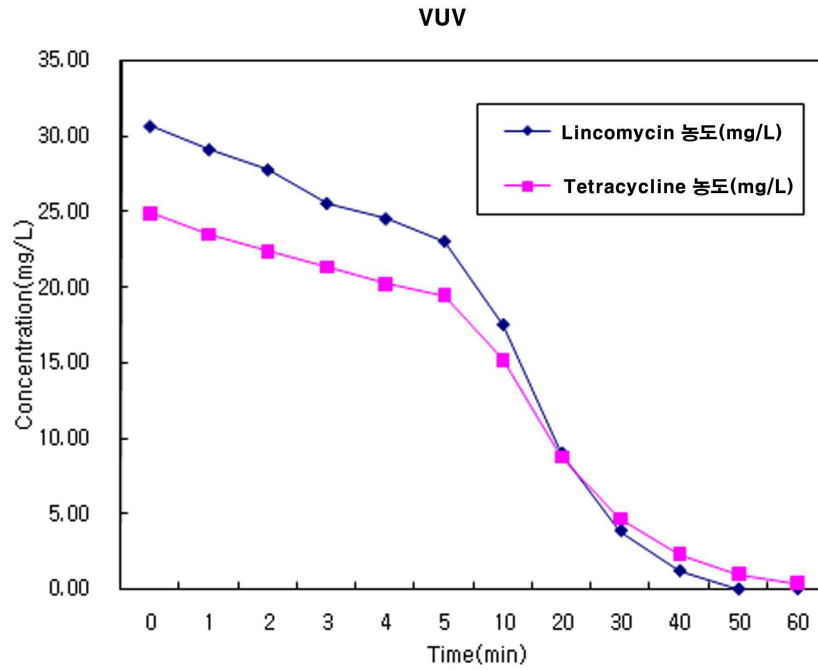
도면의 간단한 설명

[0044] 도 1은 본 발명의 일실시예에 따른 진공자외선(VUV)을 이용한 항생제 분해효과를 나타내는 그래프이다.

[0045] 도 2는 본 발명의 일실시예에 따른 살균자외선(UV-C)을 이용한 항생제 분해효과를 나타내는 그래프이다.

도면

도면1



도면2

