

우분 퇴비공장 주변 농경지 및 수계의 계절별 잔류 항생물질 모니터링

이상수 · 김성철 · 양재의 · 옥용식*

강원대학교 바이오자원환경학과

Seasonal Monitoring of Residual Antibiotics in Soil, Water, and Sediment adjacent to a Cattle Manure Composting Facility

Sang-Soo Lee, Sung-Chul Kim, Jae-E Yang, and Yong-Sik Ok*

Department of Biological Environment, Kangwon National University

Overuse of veterinary antibiotics threatens public health and surrounding environment due to the occurrence of antibiotic resistant bacteria. The objective of this study was to evaluate the antibiotic's concentrations of tetracycline (TC), chlortetracycline (CTC), and oxytetracycline (OTC) in a tetracycline group (TCs), sulfamethazine (SMT), sulfamethoxazole (SMX), and sulfathiazole (STZ) in a sulfonamide group, lasalocid (LSL), monensin (MNS), and salinomycin (SLM) in a ionophore (IPs), and tylosin (TYL) in a macrolide (MLs) group from soil, water, and sediment samples adjacent to a cattle manure composting facility. For all samples of soil, water, and sediment, the highest concentrations were detected in TCs among the tested antibiotics because of its higher annual consumption in veterinary farms, Korea and its higher cohesiveness with divalent or trivalent cations in soil. Moreover, the concentrations of residual antibiotics in September were generally higher than in June because of heavier rainfall in June. We suggest that continual monitoring and developing guideline of antibiotics are needed to control residual antibiotics in the environment.

Key words: Antibiotic monitoring, Residual antibiotics, Sediment, Soil, Veterinary antibiotics, Water

서 언

가축의 질병예방, 성장촉진 및 사료효율 증대를 목적으로 항생물질 (antibiotics)의 수요는 나날이 증가하고 있다 (Lee et al., 2009; Lim et al., 2009; Thiele-Bruhn, 2003). 그러나 생산성을 높이기 위해 항생물질의 오·남용이 빈번히 발생하고 있으며 환경 유입시 내성 박테리아 발생으로 인한 인간 및 주변 생태계에 직접적인 악영향이 우려된다. 국내의 경우 가축용으로 소비된 항생물질의 총량은 2006년 기준 1,458 ton으로 이 중 tetracycline 계열 (TCs)의 항생물질 소비량은 630 ton, sulfonamide 계열 (SAs)은 184 ton 및 macrolide 계열 (MLs)은 74 ton으로 총 소비량의 약 61%를 차지한다 (KFDA, 2007). 이는 선진국에 비해 과도한 양으로 덴마크 (116 ton, 2006년)와 비교해 약 13배 높은 것으로 보고된 바 있다 (DANMAP, 2006; VMD, 2007).

소비된 항생물질은 약 20%만 가축체내에서 활성화되

고 잔여량은 가축분뇨를 통해 주변 토양과 수계로 직접 유입되며, 분뇨퇴비의 농경지 시용을 통해 작물환경에 직접적으로 노출되거나 강우시 유거수에 의해 수계생태계로 유입된다 (Kim and Carlson, 2007a; Lim et al., 2009). 최근에는 환경 내 잔류 항생물질로 인한 내성 박테리아의 출현 문제가 전 세계적으로 주요한 관심사로 떠오르고 있으며, 항생물질의 오·남용에 대한 문제 제기와 사용량 감축 및 제한 등의 방안들이 제시되고 있다 (Ha et al., 2003). 또한 환경 중 잔류 항생물질의 지속적인 모니터링에 관한 연구도 광범위하게 이루어지고 있다. 미국의 경우 30개 주 139개 수계에 대한 항생물질 모니터링을 실시하여 tetracycline (TC), chlortetracycline (CTC), oxytetracycline (OTC), sulfamethazine (SMT), sulfamethoxazole (SMX) 및 sulfathiazole (STZ)을 포함한 다양한 항생물질의 잔류실태를 보고한 바 있다 (Kolpin et al., 2002). Pei et al. (2006)과 Kim (2006)은 미국 Colorado 주 (州) Cache La Poudre강의 저질토에서 TCs, SAs 및 ionophore 계열 (IPs)의 잔류 항생물질 총 7종을 모니터링한 결과 TC의 경우 최대 102.7 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 수준의 잔류량을 보고하였다. 프랑스에서는 남부 Arc강을 중심으로 한 수계 중 OCT 및

접수 : 2010. 10. 20 수리 : 2010. 10. 21

*연락처 : Phone: +82332506443

E-mail: soilok@kangwon.ac.kr

SMX 등 항생물질 잔류량을 조사하였으며 (Feitosa-Felizzola and Chiron, 2009), 호주에서는 서부지역 114개 지점에 대한 항생물질 모니터링을 실시하여 TC, CTC, OTC, SMX, STZ 및 tylosin (TYL) 등의 잔류실태를 보고한 바 있다 (Watkinson et al., 2009). Hamscher et al. (2002)은 액비 (liquid manure)가 지속적으로 투입된 독일 목축 농경지를 대상으로 모니터링한 결과 항생제 중 TC와 CTC가 인간과 환경에 유해한 수준으로 잔류하고 있음을 보고하였고, Karci and Balcioglu (2009)은 터키의 대규모 가축시설에 인접한 토양에서 CTC, OTC, SMX 및 STZ의 높은 잔류실태를 보고한 바 있다.

국내에서는 Lee et al. (2010)이 계분퇴비공장 인근의 농경지 및 수계에서 총 4개 계열 (TCs, SAs, IPs 및 MLs) 10종 (TC, CTC, OTC, SMX, STZ, SMT, lasalocid (LSL), monensin (MNS), salinomycin (SLM), TYL)의 항생물질 모니터링을 실시하여 국내 항생물질 잔류량이 위험수위임을 보고한 바 있다. 국내에서는 외국에 비해 많은 양의 가축용 항생물질이 소비됨에도 불구하고 환경 중 잔류 항생물질의 지속적인 모니터링 및 이에 대한 연구는 매우 미흡한 실정이다. 본 연구에서는 국내 소재의 우분 퇴비공장 인근 농경지 및 수계의 시기별 (2008년 6월과 9월) 잔류항생물질의 농도를 모니터링하였다.

재료 및 방법

항생물질 및 시약 본 연구에서는 항생물질 계열 중 TCs의 TC, CTC 및 OTC, SAs의 SMT, SMX 및 STZ, IPs의 LSL, MNS 및 SLM, MLs의 TYL 등 총 4개 계열 10종의 항생물질을 선정하여 모니터링하였다. 선정된 항생물질은 Dr. Ehrenstorfer GmbH (Germany)에서 제조한 표준물질을 사용하였으며, methanol을 이용하여 100 mg L⁻¹로 제조한 후 4℃에서 냉장보관하고 변질 방지를 위해 30일 단위로 제조하여 분석시 희석하여 사용하였다 (Kim and Carlson, 2007b; Lim et al., 2009). 항생물질 농도분석을 위해 본 실험에서는 Sigma-Aldrich社 시약 및 HPLC (high-performance liquid chromatography) grade 용액을 사용하였다.

시료의 채취 본 연구는 충청북도 괴산군에 위치한 우분 퇴비공장 (36°46'23" N lat., 128°00'26" W long.) 인근 농경지와 그 주변 수계에서 2008년 6월과 9월에 채취된 시료로 수행되었다 (Fig. 1). 토양 시료는 논토양 1개 지점 (토양 시료 채취 지점 1)과 과수원 토양 2개 지점 (토양 시료 채취 지점 2, 3)에서 채취하였으며, 과

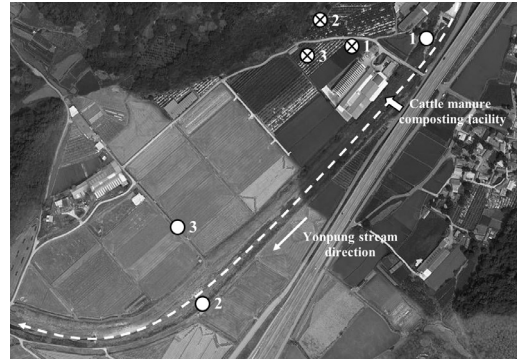


Fig. 1. Sampling sites along the Yonpung stream, Chungbuk Province, Korea (⊗: sites for soil sample, ○: sites for water and sediment samples).

수원 토양 시료 2점의 경우 시료 채취 시 우분퇴비의 시용흔적을 육안으로도 확인할 수 있었다. 수질 시료는 우분 퇴비공장에서부터 항생물질의 유입이 추정되는 인접한 하천 (Yonpung stream, 연풍천)에서 3점 (수질 시료 채취 지점 1, 2 및 3)이 채취되었다 (Fig. 1). 하천으로 유입된 항생물질의 저질토 축적특성을 알아보기 위하여 수질 시료를 채취한 지점 1 및 2에서 저질토를 채취하였으며 수질 시료의 채취 지점 3의 경우 농업용수로 저질토 채취가 불가하였다. 채취한 토양 및 수질, 저질토 시료의 이화학적 특성은 Table 1와 같다.

수질 시료 채취 지점 2 및 3에서 전질소 (T-N)와 전인 (T-P) 함량은 수질 시료 채취 지점 1에 비하여 상대적으로 높은 것으로 나타났다. 이는 인접한 농경지 및 우분퇴비공장에서 유출되어 연풍천의 수계 흐름 방향으로 이동하였을 거라 판단된다. 저질토 시료 또한 채취 지점 1에 비해 채취 지점 2에서 높은 전질소 및 유기물 함량이 검출되었다. 토양의 경우 논토양 채취 지점에 비해 과수원 토양 채취 지점에서 높은 함량의 전질소 및 유기물이 검출되었다.

항생물질 추출 및 분석 본 연구진의 선행 논문 Kim and Carlson (2007b)에 제시된 내용에 준하여 항생물질의 추출과 분석이 수행되었다. 고상 시료인 토양 및 저질토의 경우 압조건에서 풍건한 후 75 μm로 체거름한 시료 1 g을 50 mL 폴리프로필렌 (polypropylene) 원심분리관에서 pH 4.0의 McIlvaine 완충용액 (TCs 및 SAs 추출용) 또는 pH 10.0의 ammonium hydroxyl 완충용액 (MLs 및 IPs계열 추출용) 20 mL를 첨가하였다. 이후 5% (w/v) Na₂EDTA 200 μL를 첨가한 후 항온수조에서 400 rpm으로 15분 간 교반하였으며, 5000 rpm에서 15분간 원심분리 후 0.2 μm membrane filter (Sartorius stedim biotech, Germany)를 이용하여 감압여과를 실시하였다. 추출효율을 높이기 위해 동일하게 추출을 1회

Table 1. Physicochemical properties of water, soil, and sediment.

Sample	location	pH	EC	T-N	T-P	SS [†]	NTU [‡]
		1:5	10 ⁻⁴ S m ⁻¹	----- mg L ⁻¹ -----			
Water	1	7.89	85.00	4.71	6.73	2.17	2.89
	2	8.40	109.00	5.18	7.17	0.50	0.76
	3	8.37	243.00	5.53	7.26	4.25	5.65
Sample	location	pH	EC	T-N	OM [§]	CEC	Soil Texture
		1:5	10 ⁻¹ S m ⁻¹	g kg ⁻¹	g kg ⁻¹	cmol _c kg ⁻¹	
Soil	1	6.49	0.13	1.05	14.46	12.14	Loam
	2	6.96	0.78	3.25	40.82	20.84	Sandy clay loam
	3	6.38	0.78	2.62	18.51	21.66	Sandy loam
Sediment	1	7.57	0.05	0.28	2.53	>4.52	-
	2	7.48	0.05	0.20	0.71	>4.42	-

[†]Suspended solid.

[‡]Nephelometric Turbidity Unit.

[§]Organic matter.

Table 2. Optimized HPLC/MS (from Kim and Carlson, 2007b).

Compounds	Precursor ion	Fragment ions	Isolation width	Collision energy
	[M+H] ⁺ (m/z)			%
Simeton	198	-	-	-
Tetracycline	445	427	2.0	26
Chlortetracycline	479	462	2.0	32
Oxytetracycline	461	443	2.0	28
Sulfathiazole	256	156	2.0	32
Sulfamethazine	279	204	2.0	38
Sulfamethoxazole	254	188	2.0	36
Tylosin	916	772	3.0	30
Monensin	693a	675	2.0	28
Salinomycin	773a	755	2.0	30
Lasalocid	787	769	2.0	30

반복한 후 추출한 시료와 혼합, 고형상추출 (SPE, Solid phase extraction)을 실시하였다. 수질 시료의 경우 1.2 µm pore-size GF/C filter (Whatman[®])로 여과한 120 mL의 시료 (TCs, SAs 추출용 시료는 40% H₂SO₄ 사용하여 pH 2.5로 조절)에 5% (w/v) Na₂EDTA 500 µL를 가하고 150 rpm에서 15분간 교반 후 고형상 추출을 하였다. 고형상 추출은 methanol 3 mL, 0.5N HCl 3 mL, HPLC-grade 용액 3 mL를 순차적으로 통과시켜 HLB (hydrophilic-lipophilic balance) 카트리지 (OASIS[®])를 활성화하였으며, vacuum manifolds (Phenomenex[®])에 Teflon tube (Supelco[®])를 이용하여 2 mL min⁻¹의 속도로 시료를 카트리지로 이동, 흡착시켰다. 항생물질 분리는 내부표준물질 (simeton 0.24 mg L⁻¹) 50 µL이 함유된 vial을 vacuum manifolds 내부에 설치하고 methanol을 2.5 mL 씩 총 2회 첨가하여 카트리지에서 분리하였다. 이후 질

소농축기 (MG-2200, EYELA[®], Japan)를 이용하여 50°C에서 농축한 후 mobile phase A (99.9% D.W. + 0.1% formic acid)를 가하여 HPLC/MS (TSQ Quantum Ultra, Thermo)로 분석하였다. 모든 항생물질의 분석에 사용된 컬럼은 pore size 2.5 µm, 내경 2.1 mm x 50 mm인 MS C₁₈ 역상컬럼 (Waters, USA)으로 SIM (selected ion monitoring) 정량분석 모드로 분석하였다. 개별 항생물질의 precursor ion과 fragment ion은 Table 2에 나타내었으며 HPLC/MS 조건은 Table 3에 나타내었다. 결과의 정도보증 (quality assurance)을 위한 회수율과 정량한계는 본 연구진의 선행연구논문(에 근거하였다 (Kim and Carlson, 2007b; Lee et al., 2009; Lim et al., 2009).

Table 3. Condition of HPLC/MS setup (from Kim and Carlson, 2007b).

Equipment	LC MS/MS(TSQ Quantum Ultra, Thermo)			
LC	Column temperature	SAs, TCs, IPs 15°C	MLs 45°C	
	Column Flow rate	SAs, TCs, MLs 300 $\mu\text{L min}^{-1}$	IPs 250 $\mu\text{L min}^{-1}$	
	Injection volume	20 μL		
	Mobile phase	A: 99.9% Water + 0.1% formic acid B: 99.9% ACN + 0.1% formic acid		
	Gradient	<u>SAs, TCs</u>		<u>MLs, IPs</u>
		A: 96% + B: 4% (0 min)		A: 70% + B: 30% (0 min)
A: 70% + B: 30% (29 min)		A: 10% + B: 90% (26 min)		
	A: 96% + B: 4% (30 min)		A: 70% + B: 30% (29 min)	
MS	Ion source	ESI, positive		
	Spray voltage	4500V		
	Vaporizer temp.	320°C		
	Drying gas flow	10.0 L min ⁻¹		
	Drying and Nebulizer	Nitrogen gas		
	Sheath gas pressure	40 psig		
	Aux gas pressure	20 psig		

결과 및 고찰

토양 중 항생물질의 농도 토양 시료 분석결과 항생물질 중 TCs와 SAs의 농도가 다른 항생물질 계열보다 상대적으로 높게 검출되었다 (Fig. 2). TCs와 SAs는 국내에서 가축용 항생물질로 가장 많이 소비되는 계열로 퇴비의 형태로 농경지에 다량으로 유입되었을 거라 판단된다.

6월의 경우 TCs의 농도는 TC 17.43~90.45 $\mu\text{g kg}^{-1}$, CTC 0.02~0.21 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 OTC 0.34~0.87 $\mu\text{g kg}^{-1}$, 9월에는 TC 152.22~592.43 $\mu\text{g kg}^{-1}$, CTC 0.48~1.25 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 OTC 0.41~0.64 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 로 나타났다. SAs의 농도는 6월에 SMX 0.19~0.58 $\mu\text{g kg}^{-1}$, STZ 0.04~0.10 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 SMT 0.18~0.31 $\mu\text{g kg}^{-1}$, 9월에는 SMX 0.82~1.06 $\mu\text{g kg}^{-1}$, STZ 0.25~0.33 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 SMT 1.02~1.05 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 로 나타났다. IPs은 6월에 LSL 0.05~0.10 $\mu\text{g kg}^{-1}$, MNS 0.03~2.03 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 SLM 0.08~12.08 $\mu\text{g kg}^{-1}$, 9월에 LSL 0.01~0.07 $\mu\text{g kg}^{-1}$, MNS N.D. (not detected)~0.45 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 SLM 0.39~1.05 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 로 나타났다. MLs의 경우 TYL이 6월 0.70~1.14 $\mu\text{g kg}^{-1}$, 9월 0.14~0.49 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 로 나타났다. 전반적으로 6월에서 9월로 약 90일이 경과함에 따라 농도가 다소 증가하였는데 이는 6월 몬순지역인 우리나라의 집중강우가 시작됨 (6월 평균 강우량 136.7 mm, 9월 평균 강우량 52.7 mm; KMA, 2009)에 따라 토양

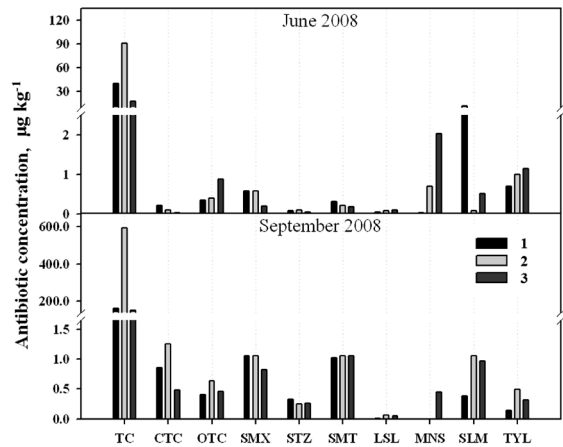


Fig. 2. Concentrations of antibiotics in soil samples (TC: tetracycline, CTC: chlortetracycline, OTC: oxytetracycline, SMX: sulfamethoxazole, STZ: sulfathiazole, SMT: sulfamethazine, LSL: lasalocid, MNS: monensin, SLM: salinomycin, TYL: tylosin).

에 축적된 잔류항생물질이 용탈 및 토사와 함께 토양표면에서 이동하면서 감소한 것으로 판단된다.

항생제별로는 TCs의 경우 분석된 항생물질 중 가장 높은 농도로 검출되었는데 이는 TCs 항생물질내에 케톤기 (ketone group)와 토양에 존재하는 2가 및 3가의 양이온들과의 높은 결합력으로 기인한 것으로 판단된다 (Diaz-Cruz and Barcelo, 2006). Lee et al. (2009)은 토양으로 충전된 컬럼을 이용하여 TCs 및 SAs의 이동특성을 평가하였는데 TCs는 표토 (0~5cm)에서 대부분

분 흡착되었으나 SAs의 경우 TCs에 비하여 상대적으로 낮은 흡착계수 (K_d)로 인해 심토층까지 이동하는 것으로 보고하였다. 상대적으로 소비량이 적은 IPs과 MLs의 경우 TCs 및 SAs에 비해 토양내의 검출농도가 낮은 것으로 나타났다.

수질 중 항생물질의 농도 수질 시료의 경우 6월에서 9월로 약 90일이 경과함에 따라 잔류항생물질의 농도가 다소 증가하는 것으로 분석되었다. 이는 6월의 강우로 인한 유량의 증가로 수질내의 잔류항생물질의 농도가 희석, 감소한 것으로 판단된다 (Fig. 3). 유사한 결과로 Arikan et al. (2008)은 미국 Maryland 주 (州) 농업지역에 인접한 Choptank강 7개 지점과 합류하는 주변 소하천 15개 지점의 TCs 및 SAs을 모니터링한 결과에서 높은 유량으로 인한 희석효과로 Choptank강의 항생물질 농도가 상대적으로 유량이 적은 주변 소하천의 농도보다 낮음을 보고한 바 있다.

가장 높은 농도가 검출된 TCs은 6월 TC 1.5~33.03 $\mu\text{g L}^{-1}$, CTC N.D.~0.01 $\mu\text{g L}^{-1}$ 및 OTC N.D.~0.06 $\mu\text{g L}^{-1}$, 9월 TC 18.00~93.19 $\mu\text{g L}^{-1}$, CTC 0.19~0.23 $\mu\text{g L}^{-1}$ 및 OTC 0.11~0.48 $\mu\text{g L}^{-1}$ 로 나타났으며, SAs의 농도는 6월 SMX 0.08~3.01 $\mu\text{g L}^{-1}$, STZ N.D.~0.01 $\mu\text{g L}^{-1}$ 및 SMT 0.01~0.05 $\mu\text{g L}^{-1}$, 9월 SMX 0.20~1.04 $\mu\text{g L}^{-1}$, STZ 0.03~0.05 $\mu\text{g L}^{-1}$ 및 SMT 0.15~0.26 $\mu\text{g L}^{-1}$ 수준으로 검출되었다. IPs의 경우 6월 LSL N.D.~0.02 $\mu\text{g L}^{-1}$, MNS N.D. 및 SLM 0.06~0.66 $\mu\text{g L}^{-1}$, 9월 LSL N.D.~0.01 $\mu\text{g L}^{-1}$, MNS N.D. 및 SLM N.D.~0.02 $\mu\text{g L}^{-1}$ 수준이었으며, MLs은 6월 TYL 0.01~0.04 $\mu\text{g L}^{-1}$, 9월 0.03~0.11 $\mu\text{g L}^{-1}$ 수준으로 검출되었다. 전반적으

로 SAs, IPs 및 MLs의 잔류항생물질 농도는 TCs보다 상대적으로 낮게 검출되었는데 이는 항생물질의 투입량이 환경 중 항생물질의 잔류농도에 절대적인 영향을 미치는 것으로 판단된다. 유사한 결과로 Arikan et al. (2008)은 TCs (TC, CTC 및 OTC)이 다른 항생물질보다 검출빈도 및 잔류농도가 높은 것으로 보고하였으며, Kolpin et al. (2002)의 연구결과 미국 139개 수계내의 TC가 0.11 $\mu\text{g L}^{-1}$, CTC 0.42 $\mu\text{g L}^{-1}$, OTC 0.34 $\mu\text{g L}^{-1}$, SMX 0.07 $\mu\text{g L}^{-1}$, SMT 0.22 $\mu\text{g L}^{-1}$, STZ N.D. 및 TYL 0.04 $\mu\text{g L}^{-1}$ 수준으로 검출됨을 보고하였다. 프랑스에서는 Feitosa-Felizzola and Chiron (2009) 연구에서 Arc강내의 OTC가 N.D.~0.68 $\mu\text{g L}^{-1}$ 수준으로 검출됨을 보고하였다. 지리적 제약과 우분공장 인근지역임을 감안할 때 전술한 연구들과 정량적 비교는 불가하나 본 연구를 통하여 국내 수질의 높은 잔류항생물질 농도를 확인하였다.

저질토 중 항생물질의 농도 저질토 시료의 분석 결과 토양 및 수질시료와 유사하게 TCs의 TC의 농도가 가장 높은 것으로 나타났다 (Fig. 4). 6월의 경우 TCs 농도는 TC 16.25~18.15 $\mu\text{g kg}^{-1}$, CTC 0.03~0.06 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 OTC N.D.~1.15 $\mu\text{g kg}^{-1}$, 9월에는 TC 46.73~82.97 $\mu\text{g kg}^{-1}$, CTC 0.09~0.89 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 OTC 0.33~0.54 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 수준으로 검출되었다. SAs 농도는 6월에 SMX N.D.~0.85 $\mu\text{g kg}^{-1}$, STZ N.D.~0.01 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 SMT 0.07~0.27 $\mu\text{g kg}^{-1}$, 9월에 SMX 0.27~0.65 $\mu\text{g kg}^{-1}$, STZ 0.16~0.21 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 SMT 0.36~0.91 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 수준으로 검출되었다. IPs의 경우 6월에 LSL 0.17~0.31 $\mu\text{g kg}^{-1}$, MNS N.D. 및 SLM 0.05~0.06 $\mu\text{g kg}^{-1}$, 9월에

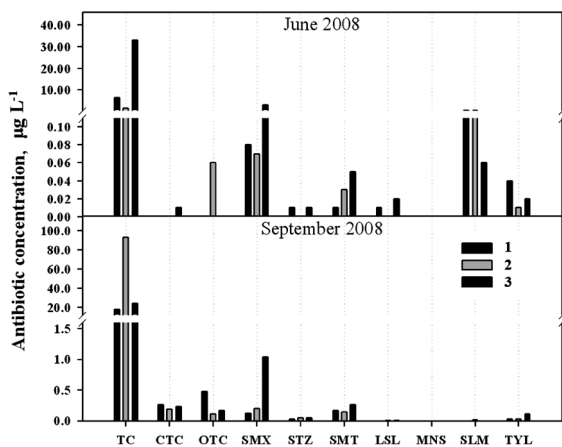


Fig. 3. Concentrations of antibiotics in water samples (TC: tetracycline, CTC: chlortetracycline, OTC: oxytetracycline, SMX: sulfamethoxazole, STZ: sulfathiazole, SMT: sulfamethazine, LSL: lasalocid, MNS: monensin, SLM: salinomycin, TYL: tylosin).

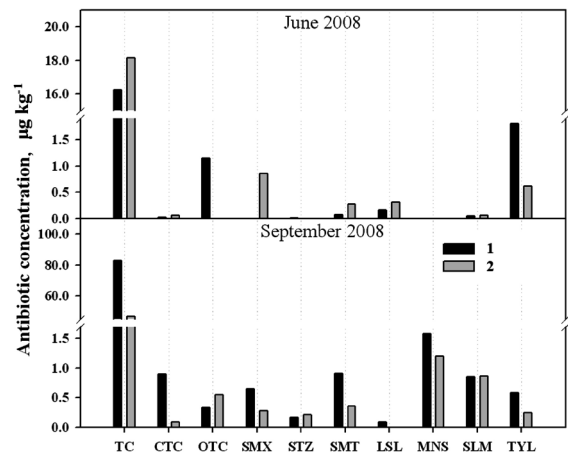


Fig. 4. Concentrations of antibiotics in sediment samples (TC: tetracycline, CTC: chlortetracycline, OTC: oxytetracycline, SMX: sulfamethoxazole, STZ: sulfathiazole, SMT: sulfamethazine, LSL: lasalocid, MNS: monensin, SLM: salinomycin, TYL: tylosin).

Table 4. Frequency, minimum, and maximum concentrations of tested antibiotics.

Antibiotics	June 2008			September 2008		
	Freq.	Min.	Max.	Freq.	Min.	Max.
	%	$\mu\text{g kg}^{-1}$ or $\mu\text{g L}^{-1}$		%	$\mu\text{g kg}^{-1}$ or $\mu\text{g L}^{-1}$	
Tetracycline	100	1.50	198.33	100	18.00	943.70
Chlortetracycline	70	N.D. [†]	0.34	100	0.09	2.63
Oxytetracycline	70	N.D.	1.52	100	0.11	1.14
Sulfamethoxazole	85	N.D.	3.01	100	0.07	2.01
Sulfathiazole	90	N.D.	0.13	100	0.03	0.62
Sulfamethazine	95	N.D.	0.43	100	0.15	1.87
Lasalocid	95	N.D.	0.31	60	N.D.	0.24
Monensin	70	N.D.	8.91	45	N.D.	1.58
Salinomycin	100	0.03	60.20	80	N.D.	1.94
Tylosin	100	0.01	1.80	100	0.03	1.12

[†]Not detected.

LSL N.D.~0.08 $\mu\text{g kg}^{-1}$, MNS 1.20~1.58 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 SLM 0.85~0.86 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 로 나타났으며, MLs은 TYL이 6월에 0.62~1.80 $\mu\text{g kg}^{-1}$, 9월에 0.24~0.58 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 수준으로 검출되었다. Pei et al. (2006) 연구에서 미국 Colorado 주 (州) Cache La Poudre강 저질토에서 TC N.D.~102.7 $\mu\text{g kg}^{-1}$, CTC N.D.~22.0 $\mu\text{g kg}^{-1}$, OTC N.D.~56.1 $\mu\text{g kg}^{-1}$, STZ N.D.~4.7 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 및 SMT N.D.~1.7 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 의 수준으로 검출되었으며 TCs 이 SAs에 비해 높은 농도로 잔류함을 보고한 바 있고, Kim (2006)은 인근 지역에서 MNS가 최대 31.5 $\mu\text{g kg}^{-1}$, SLM이 최대 30.1 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 로 잔류함을 보고하였다. 본 연구에서 분석된 저질토의 잔류항생물질 농도는 동일지점에서 채취된 수질시료에 비해 다소 높은 것으로 나타났는데 이는 주변 농경지로부터 강우로 인한 유거에 의해 하천으로 유입된 항생물질이 지속적으로 저질토에 축적되고 있음을 나타내는 결과이다. 근거로 Kim and Carlson (2007a) 연구에서 수질 중의 잔류 항생물질이 저질토에 지속적으로 축적되어 수질보다 높은 농도의 잔류항생물질이 존재함을 보고하였고 덧붙여 시간의 경과 혹은 자연조건에 따라 수질로 다시 방출되어 높은 이동성을 띠 수 있음을 보고하였다.

본 연구에서 2008년 6월과 9월에 채취된 토양, 수질 및 저질토 시료의 잔류항생물질의 검출빈도, 최소 및 최대 검출농도를 Table 4에 나타내었다. 분석결과 6월의 경우 잔류항생물질의 검출빈도, 최소 및 최대 검출농도가 9월에 비해 상대적으로 낮은 것으로 판단되었다. 전술한 바와 같이 6월의 높은 강우량에 의해 잔류항생물질이 토양 중 용탈 및 유거, 수질 중 희석에 의해 검출 농도가 낮아진 것으로 판단되며, TCs이 전반적으로 높은 농도를 나타내는 것은 다른 항생물질에 비해 상대적

으로 높은 소비량 때문인 것으로 판단된다.

결 론

가축의 질병예방 및 성장촉진의 목적으로 사용되는 국내 항생물질의 연간 소비량은 선진국에 비해 과도한 양으로 주변 환경으로 유입되어 내성 박테리아의 생성 등 인간 및 환경보건에 위협이 될 수 있다. 본 연구에서는 6월과 9월에 우분 퇴비공장에 인접한 지역내의 토양, 수질 및 저질토 시료를 채취하여 TCs, SAs, IPs 및 MLs의 잔류농도를 모니터링하였다. 토양, 수질 및 저질토 시료 모두에서 소비량이 가장 높은 TCs이 가장 높은 농도로 검출되었으며, 6월보다는 9월에 잔류항생물질의 농도가 높은 것으로 나타났다. 다른 항생물질에 비해 TCs의 농도가 높은 이유는 높은 소비량과 TCs의 케톤기와 토양내의 2가 및 3가의 양이온들간의 높은 결합력에 기인한 것으로 판단된다. 또한 환경내의 잔류항생물질의 농도는 강우량에 따라 변동성이 높았으며, 이는 토양내의 용탈 및 유거, 수질내의 희석 및 이동성 차이에 의한 것으로 판단된다. 본 연구결과 국내의 잔류항생물질의 농도는 다른 국가들에 비해 높은 수치라 사료되며, 이에 따른 대책마련 및 지속적인 모니터링이 요구된다.

사 사

본 연구는 2010년 농업과학기술 개발공동연구사업 “작물재배환경에서 중금속 및 항생물질의 안전성 평가”의 지원으로 수행되었습니다.

인 용 문 헌

- Arikan, O.A., C. Rice, and E. Codling. 2008. Occurrence of antibiotics and hormones in a major agricultural watershed. *Desalination* 226:121-133.
- DANMAP (Danish Integrated Antimicrobial Resistance Monitoring and Research Programme). 2006. Use of antimicrobial agents and occurrence of antimicrobial resistance in bacteria from food animals, foods and humans in Denmark. Danish Veterinary and Food Administration, Copenhagen, Denmark.
- Diaz-Cruz, M.S. and D. Barcelo. 2006. Determination of antimicrobial residues and metabolites in the aquatic environment by liquid chromatography tandem mass spectrometry. *Anal. Bioanal. Chem.* 386:973-985.
- Feitosa-Felizzola, J. and S. Chiron. 2009. Occurrence and distribution of selected antibiotics in a small Mediterranean stream (Arc river, Southern France). *J. Hydrol.* 364:50-57.
- Ha, J.I., K.S. Hong, S.W. Song, S.C. Jung, Y.S. Min, H.C. Shin, G.O. Lee, K.J. Lim, and J.M. Park. 2003. Survey of antimicrobial agents used in livestock and fishes. *Korean J. Vet. Public Health* 27:199-204.
- Hamscher, G., S. Sczesny, H. Höper, and H. Nau. 2002. Determination of persistent tetracycline residues in soil fertilized with liquid manure by high-performance liquid chromatography with electrospray ionization tandem mass spectrometry. *Anal. Chem.* 74:1509-1518.
- Karci, A. and I.A. Balcioglu. 2009. Investigation of the tetracycline, sulfonamide, and fluoroquinolone antimicrobial compounds in animal manure and agricultural soils in Turkey. *Sci. Total Environ.* 407:4652-4664.
- Kim, S.C. 2006. Occurrence, fate, and transport of human and veterinary antibiotics in the watershed. Ph.D. Thesis, Colorado State University, Fort Collins, Colorado, USA.
- Kim, S.C. and K.H. Carlson. 2007a. Temporal and spatial trends in the occurrence of human and veterinary antibiotics in aqueous and river sediment matrices. *Environ. Sci. Technol.* 41:50-57.
- Kim, S.C. and K.H. Carlson. 2007b. Quantification of human and veterinary antibiotics in water and sediment using SPE/LC/MS/MS. *Anal. Bioanal. Chem.* 387:1301-1315.
- Kolpin, D.W., E.T. Furlong, M.T. Meyer, E.M. Thurman, S.D. Zaugg, L.B. Barber, and H.T. Buxton. 2002. Pharmaceuticals, hormones, and other organic wastewater contaminants in U.S. streams, 1999-2000: A national reconnaissance. *Environ. Sci. Technol.* 36:1202-1211.
- KFDA. 2007. Monitoring of antimicrobial resistance on the food-animals and meats. National Veterinary Research & Quarantine Service, Korea Food and Drug Administration.
- KMA. 2009. World Best 365. Korea Meteorological Administration.
- Lee, H.Y., J.E. Lim, S.C. Kim, K.R. Kim, O.K. Kwon, J.E. Yang, and Y.S. Ok. 2009. Transport of selected veterinary antibiotics (tetracyclines and sulfonamides) in a sandy loam soil: laboratory-scale soil column experiments. *J. Korean Soc. Environ. Eng.* 31:941-948.
- Lee, H.Y., J.E. Lim, S.C. Kim, K.R. Kim, S.S. Lee, O.K. Kwon, J.E. Yang, and Y.S. Ok. 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.
- Lim, J.E., S.C. Kim, H.Y. Lee, O.K. Kwon, J.E. Yang, and Y.S. Ok. 2009. Occurrence and Distribution of Selected Veterinary Antibiotics in Soils, Sediments and Water Adjacent to a Cattle Manure Composting Facility in Korea. *Korean J. Environ. Agric.* 31:845-854.
- Pei, R., S.C. Kim, K.H. Carlson, and A. Pruden. 2006. Effects of river landscape on the sediment concentrations of antibiotics and corresponding antibiotic resistance genes (ARG). *Water Res.* 40:2427-2435.
- Thiele-Bruhn, S. 2003. Pharmaceutical antibiotic compounds in soils—a review. *J. Plant Nutr. Soil Sci.* 166:145-167.
- VMD (Veterinary Medicines Directorate). 2007. Sales of antimicrobial products authorized for use as veterinary medicines, antiprotozoals, antifungals, growth promoters and coccidiostats, in the UK in 2006. Woodham Lane, New Haw, UK.
- Watkinson, A.J., E.J. Murby, D.W. Kolpin, and S.D. Costanzo. 2009. The occurrence of antibiotics in an urban watershed: From wastewater to drinking water. *Sci. Total Environ.* 407:2711-2723.