J Appl Biol Chem (2012) 55(4), 241–246
http://dx.doi.org/10.3839/jabc.2012.038

Online ISSN 2234-7941
Print ISSN 1976-0442

ORIGINAL ARTICLE

Mobility Characteristics of Veterinary Antibiotics in Soil Column

Sun-Young Hwang · Man-Hye Han · Jae-Young Cho*

토주실험에서 동물용 의약품의 이동 특성

황선영 · 한만희 · 조재영*

Received: 16 August 2012 / Accepted: 27 August 2012 / Published Online: 31 December 2012
© The Korean Society for Applied Biological Chemistry 2012

Abstract Veterinary antibiotics can enter the soil ecosystem and then may be transported into groundwater via leaching process. The main aim of this study is to investigate the distribution and mobility of tetracycline, amoxicillin and sulfathiazole in soil. The adsorption of veterinary antibiotics were applied to the Freundlich adsorption isotherms. Adsorption coefficient (K_F) was indicated oxytetracycline > amoxicillin > sulfathiazole. Oxytetracycline concentration was highly detected in soil than in leachate. It is assumed that oxytetracycline was strongly absorbed by divalent cations such as Ca^{2+} in soil. However, amoxicillin and sulfathiazole were shown higher mobility due to the lower distribution coefficient.

Keywords amoxicillin · oxytetracycline · soil column · sulfathiazole · veterinary antibiotics

서 론

동물용 의약품(veterinary antibiotics)은 가축 질병의 예방, 치료 그리고 성장촉진과 사료의 이용효율 증대 목적으로 이용되고 있다(Seo 등, 2007). 국내 동물용 의약품의 연간 사용량은 2001년 1,594톤에서 2009년에는 998톤으로 감소추세에 있으며, tetracycline 계열, sulfonamide 계열, 그리고 penicillin 계열이 주로 사용되고 있다(Rural Development Administration, 2010). 그러나 우리나라의 동물용 의약품 사용량은 영국의 2배 그리고 덴마크의 11배로 외국에 비해 상대적으로 많은 양이 사용되고 있다(Lim 등, 2009).

일반적으로 동물용 의약품은 체내에 흡수된 후 가수분해, 분열 또는 glucuronide 반응과 같은 대사를 통해 분해 또는 다른 물질로 전환된다. 그러나 상당수 동물용 의약품은 동물 체내에서 대사에 의해 변형되지 못한 채 투여된 원래 모화합물 형태로 동물의 뇨 또는 배설물을 통해 체외로 배출되고 있다. 실제적으로, amoxicillin 80–90%, penicillin G 50–70%, chlortetracycline 70% 그리고 tetracycline 80–90%가 체내에서 다른 물질로 변환되지 못한 채 그대로 방출되는 것으로 보고되고 있다(Sarmah 등, 2006).

축산활동에서 배출된 동물용 의약품은 혐기성 소화공정을 거쳐 슬러지 또는 퇴비 자원으로 이용되고 있다. 두 가지 경로로 환경에 노출된 동물용 항생제는 농경지에서 유거수를 통한 하천생태계로의 이동, 용탈을 통한 지하수로의 이동, 토양 중 흡착 및 고정 그리고 최종적으로 식물체로의 흡수이행 경로를 거치게 된다. 일반적으로 동물용 의약품이 농업생태계 및 환경에 끼치는 영향은 다음과 같이 설명할 수 있다. 첫째, 환경 중에 노출된 동물용 의약품은 항생제 내성균주를 생성함으로써 공중보건에 심각한 영향을 끼칠 수가 있다. 혐기성 가축분뇨 발효처리시설에서 95% 이상의 콜로니 형성 균주들이 제거되는 것으로 알려져 있지만, 여전히 남은 5% 이상이 항생제 내성균으로 존재하고 있다(Grabow 등, 1976; Bell, 1978; Radtke와 Gist, 1989; Malik와 Ahmad, 1994). 둘째, 가축분뇨에 함유되어 있는 동물용 의약품은 혐기성 발효공정에서 메탄생성균의 생장에 커다란 장애를 가져올 수 있다. Hilpert 등(1981)은 28종의 항생제를 대상으로 메탄형성균 10균주에 대한 항생제 민감도를 조사하였는데 그 결과, 일부 항생제가 메탄생성균의 활성을 크

S.-Y. Hwang
Department of Bio-environmental Chemistry, Chonbuk National University, Jeonju 561-756, Republic of Korea

M.-H. Han
R&D Coordination Division, Rural Development Administration, Suwon 441-707, Republic of Korea

J.-Y. Cho
Department of Bio-environmental Chemistry, Chonbuk National University, Jeonju 561-756, Republic of Korea

*Corresponding author (J.-Y. Cho: soilcosmos@jbnu.ac.kr)

게 저해한 것으로 보고하였다. 그밖에도 돈분뇨의 혐기적 소화 공정에서 생물학적 활성도는 lincoycin의 존재하에 급속히 감소하였고(Varel과 Hashimoto, 1982; Poels 등, 1984), 우분의 경우 carbadox, lasalocid 및 monesin이 혐기성 소화공정에 부정적인 영향을 끼친 것으로 보고되어 있다(Tomei 등, 1988). 마지막으로, 가축분뇨를 통해 농경지를 비롯한 생태계에 노출된 동물용 의약품은 토양권내에서 토양효소의 활성도 저하, 토양미생물을 비롯한 수생생태계 미생물상 교란 그리고 식물체로의 흡수이행에 따른 작물 안전성 문제를 야기할 수 있다. Migliore 등(1995)은 sulfamethoxine이 함유된 가축분뇨의 농경지처리 시 식물체의 뿌리와 줄기에서 기준치 이상의 sulfamethoxine이 검출되었다고 보고한 바 있고, 줄기에서 보다 뿌리에서 bioaccumulation이 높았다.

우리나라 환경부에서 4대강 유역 하천수와 축산폐수처리장의 유입수와 방류수 등 40개 지점을 대상으로 의약물질 27종을 조사한 결과, 하천수에서 조사대상 의약물질 27종 중 15종이 검출되었고, 오염 수준은 미국 등 다른 나라와 같거나 약간 높게 나타났다. Chlorotetracycline 최고 5.404 μg/L, sulfathiazole 최고 1.882 μg/L으로 상대적으로 다른 의약품보다 높게 검출되었다. 축산폐수처리장 방류수에서 sulfathiazole(최고 241.7 μg/L) 등 16종이 검출되었다.

부산물비료 자원으로서 가축분뇨의 농경지 처리가 많은 나라에서 일반화되어 있다 보니 가축분뇨 유래 동물용 의약품의 농업생태계에서 행방에 대해 전 세계적인 관심이 집중되고 있다. 동물의 분뇨를 통해 체외로 배출된 동물용 의약품은 최종적으로 혐기성 소화공정 또는 퇴비화시설로 이송되며 이들 물질의 최종 처분지는 다름 아닌 우리의 먹거리를 생산하는 농경지 토양이기 때문이다. 최근 들어 세계 각국에서는 환경 중 동물용 의약품의 잔류 농도 및 토양 중 동태에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있다(Lindsey 등, 2001; Boxall 등, 2002; Hamscher 등, 2002; Christian 등, 2003; Lim 등, 2009). 국내에서는 동물용 의약품의 가축분뇨 중 잔류량, 환경생태계에 끼치는 영향, 농경지 토양에서 항생제의 분포를 비롯한 제반 연구가 그다지 활발하게 이루어지지 못한 측면이 있다. 이에 본 연구에서는 우리나라 논토양을 대상으로 tetracycline 계열의 oxytetracycline, sulfonamide 계열의 sulfathiazole, 그리고 penicillin 계열의 amoxicillin 등 3종의 동물용 의약품의 흡·탈착 특성과 토주실험을 이용한 동물용 의약품의 이동 특성을 조사하였다.

재료 및 방법

동물용 의약품. 본 연구에서는 우리나라에서 사용량이 가장 많고 비교적 환경적인 영향이 큰 것으로 평가되는 tetracycline 계열의 oxytetracycline, sulfonamide 계열의 sulfathiazole, 그리고 penicillin 계열의 amoxicillin 등 3종의 동물용 의약품을 연구재료로 사용하였다(Seo 등, 2007). 동물용 의약품 표준물질은 Dr. Ehrenstorfer GmbH (Germany)로부터 분양 받았으며, 구조 및 특성은 Table 1에 나타나 있다. 동물용 의약품 저장용 표준용액은 0.01 M $CaCl_2$를 이용하여 100 mg/L로 조제하였으며, 갈색병에 담아 4°C에서 냉장보관 하였다.

실험토양. 전라북도 부안군 인근 논토양을 풍건 후 2 mm 체를 통과시켜 실험토양으로 사용하였다. pH는 토양과 증류수를 1:5로 하여 pH meter (Mettler Toledo)법, 유기물은 Walkley-black법, 양이온치환용량은 1M-NH_4OAc법 그리고 입도분석은 미국 농무성법에 기준하여 5% sodium hexametaphosphate 분산에 의한 pipette법으로 측정하였다. 실험 토양의 물리·화학적 특성은 Table 2에 나타나 있다.

동물용 의약품 흡·탈착실험. 50 mL 원심분리관에 실험토양 5 g을 넣고 동물용 의약품의 광분해를 방지하기 위해 알루미늄 호일로 랩핑 처리하였다. 0.01 M $CaCl_2$로 용해시킨 동물용 의약품 표준용액을 토양에 1, 2, 5, 10, 20, 40 mg/kg 수준으로 처리한 후 24시간 동안 진탕처리하였다. 시료를 3,000 rpm에서 10분간 원심분리(Hanil science industrial Co. Ltd., Korea) 한 후 상등액 2 mL를 0.45 μm membrane filter (Chrom Tech, USA)로 여과하여 HPLC (Hitachi L-2000 series, Japan)로 분석하였다. 동물용 의약품의 토양으로부터 탈착특성을 조사하기 위해 흡착 실험이 완료된 토양에 20 mL의 0.01 M $CaCl_2$를 처리하였다. 24시간 진탕 후 흡착 실험과 동일하게 원심분리 및 여과 후 HPLC로 분석하였다. 최종적으로 동물용 의약품의 흡·탈착 특성은 Freundlich와 Langmuir 등온식을 적용하였다.

동물용 의약품 용탈 특성. 직경 5 cm × 길이 35 cm의 원통형 토양 컬럼에 30 cm 높이까지 실험 토양 700 g을 충진하였다. 컬럼 하층부와 상층부에 glass wool을 사용하여 토양의 유실을 방

Table 1 Structure and chemical properties of veterinary antibiotics

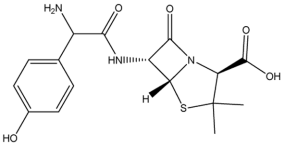
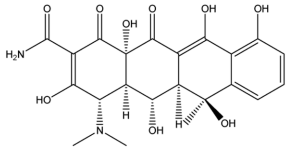
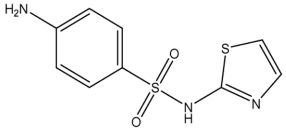
Compound	Amoxicillin	Oxytetracycline	Sulfathiazole
Chemical structure			
Molecular mass (g mol^{-1})	365.4	460.4	255.3
pK_a	2.4, 7.4	3.3, 7.3, 9.1	2.4, 7.1
Water solubility (g 100 L^{-1})	95.8	31.3	60

Table 2 Physico-chemical properties of experimental soil

pH (1:5 H_2O)	OM (g 100 g^{-1})	CEC ($cmol_c$ kg^{-1})	Sand (%)	Silt (%)	Clay (%)	Soil texture
6.1	0.85	5.1	55.7	39.8	4.5	Sandy loam

Table 3 HPLC conditions for 3 veterinary antibiotics analysis

Veterinary antibiotics	Amoxicillin	Oxytetracycline	Sulfathiazole
Mobile phase	A: 0.01 M potassium phosphate buffer (pH 4.8):acetonitrile (9:1)	A: 0.1% oxalic acid in water B: methanol	A: 0.1% formic acid in water B: methanol
Gradient	15 min - A: 100%	0.5 min - A: 100%, 3 min - A: 60% B: 40%, 7.5 min - A: 30% B: 70%, 9 min - A: 5% B: 95%, 11 min - A: 100%, 15 min - A: 100%	0.5 min - A: 100%, 3 min - A: 60% B: 40%, 7.5 min - A: 30% B: 70%, 9 min - A: 5% B: 95%, 11 min - A: 100%, 15 min - A: 100%
Flow rate	1 mL min^{-1}	1 mL min^{-1}	1 mL min^{-1}
Detector wavelength	230 nm	355 nm	290 nm
Injection volume	50 μL	50 μL	50 μL

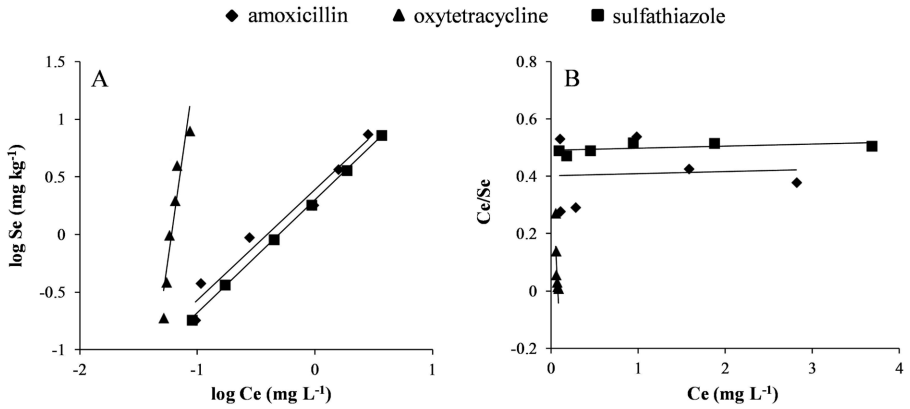


Fig. 1 Adsorption isotherm of 3 veterinary antibiotics (A) Freundlich adsorption isotherm (B) Langmuir adsorption isotherm

지하였고, 광분해를 방지하기 위해 알루미늄 호일로 랩핑 처리하였다. 동물용 의약품 표준용액을 10 mg/kg 수준으로 처리한 후 정량펌프를 이용하여 10 mL/day의 유속으로 용출시켰다. 용탈수는 10일 간격으로 총 10회 채취하였다. 채취한 용탈수는 0.45 μm membrane filter로 여과시킨 다음 HPLC로 분석하였다. 100일 동안 용탈 실험이 완료된 후 토양 중 동물용 의약품의 분포 실태를 조사하기 위해 토양을 5 cm 깊이로 나누어 채취하였다. 토주에서 깊이별로 채취한 토양은 Kim과 Carlson (2007) 및 Kakimoto 등(2007)의 방법에 준하여 진행하였다.

기기분석. 동물용 의약품은 HPLC (Hitachi L-2000 series)로 분석하였으며, detecter는 diode array detecter (Hitachi D-2000 Elite)를 이용하였고, column은 TOSOH TSKgel ODS-100V (5 μm, 4.6 mm I.D. × 15 cm; TOSOH Co. Ltd., Japan)을 사용하였다. 기기 분석 조건은 Table 3에 제시되어 있다. 검량선은 농도에 따른 동물용 의약품의 peak 면적으로 나타내었으며, R^2 > 0.99 이었다. 토양 시료에 대한 회수율은 5 mg/kg 수준으로 처리하여 amoxicillin, oxytetracycline, 그리고 sulfathiazole이 각각 91.48±1.78, 76.62±3.16, 그리고 93.23±2.89%를 나타내었고, 검출한계는 0.04, 0.02, 및 0.02 mg/kg 로 나타나 기기분석 조건에 부합하였다.

결과 및 고찰

동물용 의약품 흡탈착 특성. 0.01 M $CaCl_2$로 용해시킨 동물용 의약품을 토양 5 g에 1, 2, 5, 10, 20, 40 mg/kg 수준으로 처리하여 동물용 의약품의 평형농도와 흡착량의 관계를 Freundlich 흡착등온식과 Langmuir 흡착등온식에 적용하였다.

Freundlich 흡착등온식: $Se=K_FCe^{1/n}$

Langmuir 흡착등온식: $Se=bkCe/(1+kCe)$

Se: 단위 토양무게 당 흡착된 동물용 의약품의 양(mg/kg)
Ce: 토양용액의 평형 시 동물용 의약품 농도(mg/L)
K_F, n: Freundlich 상수
b: 토양에 단분자층으로 흡착이 일어날 때의 최대흡착량 (mg/kg)
k: 토양에 대한 동물용 의약품의 결합에너지를 나타내는 Langmuir 상수

Freundlich 흡착등온식과 Langmuir 흡착등온식에 적용시킨 결과는 Fig. 1에 나타내었으며, 상수는 Table 4에 나타내었다. 일반적으로 흡착상수 K_F 값이 클수록 흡착이 잘 되는 것으로 알려져 있으며, 본 실험에서는 oxytetracycline > amoxicillin > sulfathiazole 순으로 동물용 의약품의 토양표면 내 흡착력이 높게 나타났다. 대체적으로 Freundlich식의 상수 1/n이 0.1–0.5일 경우 토양 내 흡착이 비교적 잘 일어나며, 2 이상일 경우에는 흡착이 어려운 것으로 알려져 있다(Kim, 2002). Fig. 1에 제시된 바와 같이 본 연구에서 사용한 3종의 동물용 의약품은 단분자층 흡착현상을 설명하는 Langmuir 흡착등온식에서는 결정계수(r^2)가 0.5 이하로 낮게 나타난 반면, 다분자층 흡착현상을 설

Table 4 Adsorption and desorption coefficients of 3 veterinary antibiotics in experimental soil

Compound	Adsorption				Desorption			
	Freundlich		Langmuir		Freundlich		Langmuir	
	K_F[1)]	n[2)]	b[3)]	k[4)]	K_{Fd}[5)]	n_d[6)]	b_d[7)]	k_d[8)]
Amoxicillin	2.45	1.05	142.86	0.02	61.94	1.00	58.82	1.06
Oxytetracycline	6.41E+8	0.14	-0.17	-12.72	5.37E+33	0.04	-0.05	-16.17
Sulfathiazole	1.99	1.02	142.85	0.01	16.90	1.10	30.30	0.79

[1)]Freundlich distribution coefficient
[2)]Constant of Freundlich adsorption isotherm
[3)]Maximum adsorption amount
[4)]Constant of adsorption bond energy
[5)]Freundlich distribution coefficient
[6)]Constant of Freundlich desorption isotherm
[7)]Maximum desorption amount
[8)]Constant of desorption bond energy

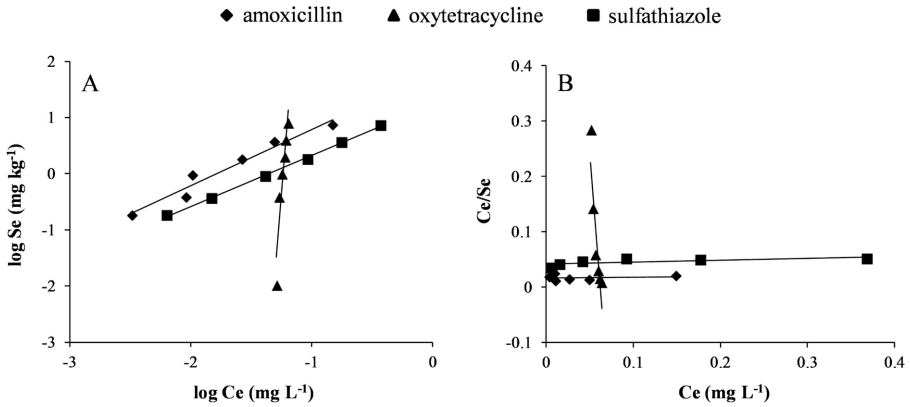


Fig. 2 Desorption isothermal of 3 veterinary antibiotics (A) Freundlich desorption isotherm (B) Langmuir desorption isotherm

명하는 Freundlich 흡착등온식에서는 결정계수(r^2)가 0.8 이상으로 비교적 높게 나타났다. 흡착상수 K_F는 pH가 증가할수록 감소하고(Boxall 등, 2002), 유기물 함량이 많을수록 증가하는 것으로 알려져 있다(Thiele-Bruhn과 Aust, 2004). Xu과 Li(2010)은 tetracycline의 토양흡착은 pH가 증가할수록, 이온 세기가 클수록 감소하며, Freundlich 등온식에 부합한다고 보고하였다.

흡착 실험이 완료된 토양에 20 mL의 0.01 M $CaCl_2$를 처리하여 동물용 의약품의 평형농도와 탈착량의 관계를 Freundlich 탈착등온식 및 Langmuir 탈착등온식에 적용시킨 결과는 Fig. 2에 나타내었으며, 상수는 Table 4에 나타내었다. Freundlich 탈착등온식의 결정계수(r^2)가 0.8 이상으로 Freundlich 흡착등온식을 적용하였다. 분배계수(K_d)는 지하수의 용탈과 지표수의 이동을 조사하는데 중요한 요소이다(Laak 등, 2006). 일반적으로 분배계수 K_d값이 클수록 토양표면과의 흡착력이 높아서 탈착이 잘 되지 않은 것으로 알려져 있다. 분배계수(L/kg)는 아래와 같이 나타낼 수 있다.

$$K_d = C_{soil}/C_{solution}$$

C_{soil}: 토양에 흡착된 동물용 의약품 농도
$C_{solution}$: 토양용액의 평형 시 동물용 의약품 농도

본 연구에서는 amoxicillin, oxytetracycline, 그리고 sulfathiazole의 분배계수 K_d값이 1.52, 92.81, 그리고 1.81를 나타내어 oxytetracycline > sulfathiazole > amoxicillin 순으로 분배계수가 높게 나타났다. 결론적으로 조사대상 3가지 항생제 가운데 oxytetracycline이 토양표면과의 흡착력이 가장 높아 탈착되기 어려운 것으로 평가되었다. Rabølle와 Spliid (2000)에 의하면, oxytetracycline의 분배계수 값이 양질사토에서 417 L/kg 그리고 사양토에서 1,026 L/kg으로 나타났다. 또한 Thiele-Bruhn (2003)은 토양 중 동물용 의약품의 분배계수 값이 sulfonamide 계열, tetracycline 계열, 그리고 macrolide 계열에서 각각 0.6–4.9, 290–1620, 그리고 8.3–240 L/kg로 나타난 것으로 보고하였다. Kahle 와 Stamm (2007)은 점토광물에서 sulfathiazole의 분배계수 값은 pH가 감소할수록 증가하며, Thiele-Bruhn과 Aust (2004)에 의하면, sulfonamide 계열의 동물용 의약품은 유기물이 많으면 분배계수 값이 증가한다고 보고하였다. Kim (2011)은 토양의 유기물 함량이 증가할수록 oxytetracycline, amoxicillin, 그리고 sulfathiazole의 분배계수 값이 증가하며, 이는 유기물이 흡착제로서 역할을 담당할 뿐만 아니라 분자간 인력을 일으키는 반데르발스 힘 때문인 것으로 보고하였다. 선행 연구자들의 토양 중 동물용 의약품 분배계수 값보다 본 연구에서 얻어진 분배계수 값이 약간 낮게 나타났는데 이는 실험토양의 물리화학적 특성차이에 기인한 것으로 평가되었다. 본 연구에서는 동물용 의약품의 토양 내 흡착현상을 조사하는데 있어 토양의 물리화학적 특성을 고려하지 않은 기초실험을 진행하였으나, 동물용 의약품의 토양 내 동태를 보다 명확하게 구명하기 위해서는

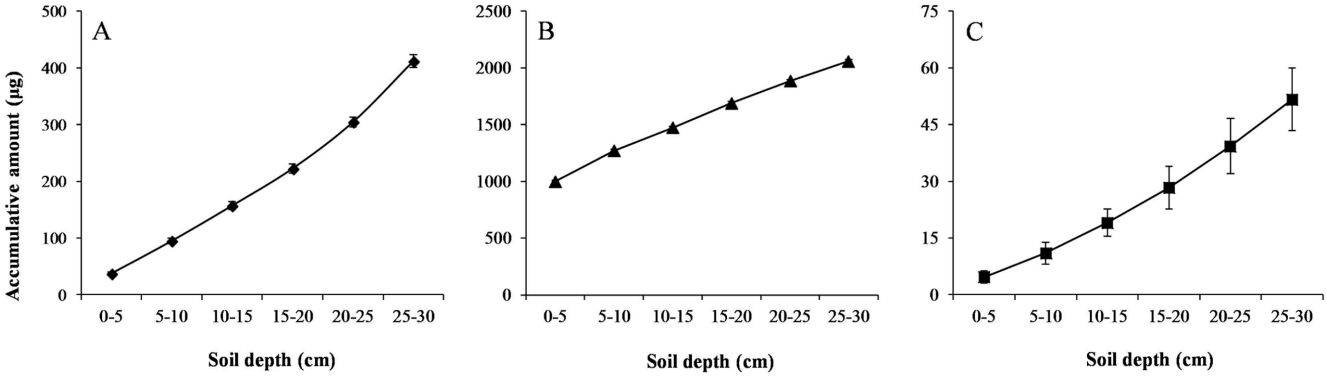


Fig. 3 Accumulative amount of 3 veterinary antibiotics with soil depth of soil column (A) amoxicillin (B) oxytetracycline (C) sulfathiazole

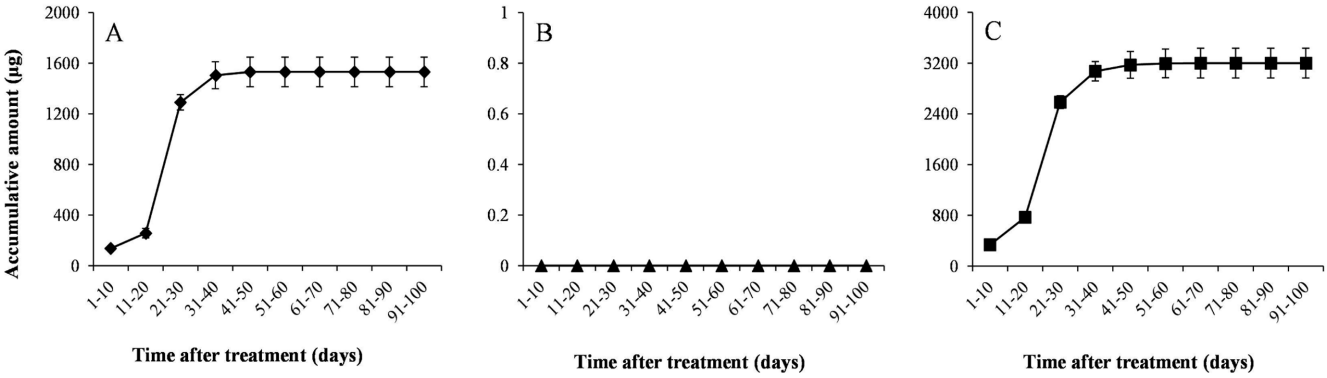


Fig. 4 Accumulative leaching amount of 3 veterinary antibiotics leachate (A) amoxicillin (B) oxytetracycline (C) sulfathiazole

다양한 토양의 물리화학적 특성과 같은 변수를 적용한 연구를 추가적으로 진행하여 보고할 예정이다.

동물용 의약품의 토양중 이동 및 용탈 특성. 100일 동안의 용탈실험이 끝난 후 토주를 5 cm 깊이 별로 분할하여 동물용 의약품의 토양 중 이동실태를 조사한 결과는 Fig. 3과 4에 나타냈다. 토주 깊이 0–5 cm에서는 oxytetracycline이 998.9 μg으로 최대값을 나타내었다. 이는 oxytetracycline의 처리량 가운데 약 15% 정도가 중력수에 의해 지하로의 이동이 되지 않고 머물러 있는 것으로 나타났다. oxytetracycline의 토양 30 cm까지의 총 잔류량은 약 2,000 μg 수준으로 처리량 가운데 약 30% 정도로 평가되었다. 용탈수중에서는 oxytetracycline이 모두 검출한계 미만으로 나타났다. 이와 같은 결과는 약 100일 동안의 용탈실험을 통해 처리된 oxytetracycline의 70% 정도가 토양 내에서 미생물에 의한 분해, 수중 분해 및 다른 대사물로의 전환이 이루어지고, 30% 정도가 토양에 잔류하며, 지하수로의 이동량은 매우 미미한 것으로 나타났다. Oxytetracycline은 토양에 흡착력이 높아 심토로 이동이 매우 낮다고 하였는데(Rabølle 와 Spliid, 2000; Kay 등, 2005; Blackwell 등, 2007), 본 실험 결과와 일치하는 경향이었다. 이는 oxytetracycline이 토양 중 존재하는 2가 양이온(Ca^{2+} 등)과 복합체를 형성하여 대부분 강하게 흡착하기 때문으로 평가된다. 또한 Li 등(2010)은 tetracycline 계열 흡착의 주요 메커니즘으로 여러 carboxyl 및 phenolic groups과 tetracycline 계열의 극성 그룹의 상호작용, 양이온간 복합체 형성, 그리고 유기물질의 acidic groups에서 생기는 수소결합 때문이라고 보고하였다. 반면에, amoxicillin과 sulfathiazole은 토양표면 분포량이 매우 낮게 나타났다. 토주깊이 0–5 cm에서 amoxicillin과 sulfathiazole의 분포량은 각각 32과 29 μg 수준으로 처리된 물질의 약 0.3–0.4% 수준으로 나타났다. amoxicillin과 sulfathiazole의 토주 30 cm까지의 총 잔류량은 각각 400 과 50 μg 수준으로 나타나 각각 5.7와 0.7%로 평가되었다. 용탈수중에서 amoxicillin의 누적검출량은 약 1,460 μg 그리고 sulfathiazole의 누적검출량은 3,200 μg으로 나타났다. 처리된 amoxicillin의 약 20% 그리고 sulfathiazole의 46% 정도가 중력수에 의해 지하로 용탈된 것으로 나타났다. 이와 같은 결과는 약 100일 동안의 용탈실험을 통해 처리된 amoxicillin의 80% 정도가 토양 내에서 미생물에 의한 분해, 수중 분해 및 다른 대사물로의 전환이 이루어지고, 20% 정도가 지하수로 이동하며, 토양 잔류량은 매우 미미한 것으로 평가되었다. 유사하게 sulfathiazole의 경우 처리량 기준 약 55%가 토양 및 수중에서 분해가 이루어지며 약 46%가 지하수로 이동하며 토양잔류량은 매우 미미한 것으로 평가되었다. Amoxicillin과 sulfathiazole의 분배계수는 1.52와 1.81로 oxytetracycline 보다 상대적으로 낮아 토양에 흡착이 잘 이루어지지 않고 이동성이 크기 때문에 용탈수에서 많이 검출되었을 것으로 판단된다. Lee 등(2009)은 sulfathiazole이 oxytetracycline에 배해 분배계수가 상대적으로 낮아 대부분이 표토에 흡착되지 않고 심토까지 이동하는 것으로 보고하였다. Karci와 Balcioglu (2009)는 sulfonamide 계열은 토양 중 이동성이 높아 유거수를 통해 지표수로 쉽게 이동하며, 토양보다 지표수에서 높게 검출된다고 보고하였다. Lindsey 등(2001)은 미국 6 주 지표수 및 지하수 중 동물용 의약품의 분포를 조사하

였는데 지하수에서 tetracycline 계열의 동물용 의약품은 검출되지 않았으나 sulfonamide 계열의 sulfamethoxazole이 0.22 μg/L까지 검출되었음을 보고하였는데 본 실험결과는 이와 같은 선행 연구결과를 뒷받침해 주는 유용한 결과를 제시하고 있다. 결론적으로 tetracycline 계열의 oxytetracycline은 토양 내 흡착력이 강해 지하로의 이동이 거의 이루어지지 않는 반면, sulfonamide 계열의 sulfamethoxazole은 토양 흡착은 거의 이루어지지 않고 대부분 중력수를 통한 지하로의 이동량이 매우 높게 나타났다. 향후 농경지 토양과 지하수중 동물용 의약품으로 인한 환경문제를 최소화하기 위해서는 지속적인 모니터링과 농업생태계로의 유입을 최소화 할 수 있는 시스템이 필요할 것으로 판단된다.

초 록

본 연구에서는 토양에 대한 동물용 의약품의 흡·탈착 특성과 토주 실험을 이용한 동물용 의약품의 이동 특성을 조사하였다. 토양 중에서 동물용 의약품 흡·탈착은 Freundlich 흡·탈착등온식에 부합하였다. 흡착상수(K_F) 값은 oxytetracycline > amoxicillin > sulfathiazole 순으로 나타났다. 100일 동안의 토주실험을 진행한 결과, tetracycline 계열의 oxytetracycline은 토양 내 흡착력이 강해 지하로의 이동이 거의 이루어지지 않는 반면, sulfonamide 계열의 sulfamethoxazole은 토양 흡착은 거의 이루어지지 않고 대부분 중력수를 통한 지하로의 이동량이 매우 높게 나타났다. 이는 oxytetracycline은 토양 중 존재하는 2가 양이온 Ca^{2+} 등과 강하게 흡착되어 토양내 잔류량이 높게 나타날 것이며, amoxicillin과 sulfathiazole은 환경중 유거수나 지하수로 용탈가능성이 높음을 보여주는 지표이다.

Keywords amoxicillin · oxytetracycline · soil column · sulfathiazole · veterinary antibiotics

감사의 글 본 연구는 농촌진흥청(PJ007824)의 연구비 지원에 의해 수행되었습니다.

참고문헌

Bell RB (1978) Antibiotic resistance patterns of fecal coliforms isolated from domestic sewage before and after treatment in an aerobic lagoon. *Can J Microbiol* **24**, 886–8.

Blackwell P, Kay P, and Boxall ABA (2007) The dissipation and transport of veterinary antibiotics in a sandy loam soil. *Chemosphere* **67**, 292–9.

Boxall ABA, Blackwell P, Cavallo R, Kay P, and Tolls J (2002) The sorption and transport of a sulphonamide antibiotic in soil systems. *Toxicol Lett* **131**, 19–28.

Christian T, Schneider RJ, Frber HA, Skutlarek D, Meyer MT, and Goldbach HE (2003) Determination of antibiotics residues in manure, soil, and surface waters. *Acta hydrochim hydrobiol* **31**, 36–44.

Grabowa WOK, Zyla M, and Prozesky OW (1976) Behaviour in conventional sewage purification processes of coliform bacteria with transferable or non-transferable drug-resistance. Water Res **10**, 717–23.

Hamscher G, Sczesny S, Höper H, and Nau H (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**, 1509–18.

Hilpert R, Winter J, Hammes W, and Kandler O (1981) The sensitivity of archaebacteria to antibiotics. *Hyg* **1**, 211–20.

Kahle M and Stamm C (2007) Time and pH-dependent sorption of the veterinary antimicrobial sulfathiazole to clay minerals and ferrihydrite. *Chemosphere* **68**, 1224–31.

Kakimoto T, Osawa T, and Funamizu N (2007) Antibiotic effect of amoxicillin on the feces composting process and reactivation of bacteria by intermittent feeding of feces. *Bioresoure Technol* **98**, 3555–60.

Karci A and Balcioglu IA (2009) Investigation of the tetracycline, sulfonamide, and fluoroquinolone antimicrobial compounds in animal manure and agricultural soils in Turkey. *Sci Total Environ* **407**, 4652–64.

Kay P, Blackwell PK, and Boxall ABA (2005) Column studies to investigate the fate of veterinary antibiotics in clay soils following slurry application to agricultural land. *Chemosphere* **60**, 497–507.

Kim SC and Carlson K (2007) Quantification of human and veterinary antibiotics in water and sediment using SPE/LC/MS/MS. *Anal Bio Chem* **387**, 1301–15.

Kim SJ (2002) A study on the adsorption behavior of phosphorous in soils. MS Thesis, Sunchon National University, Sunchon, Korea.

Kim YK (2011) The adsorption of veterinary pharmaceuticals in two different soils. MS thesis, Chonbuk National University, Jeonju, Korea.

Laak TL, Gebbink WA, and Tolls J (2006) The effect of pH and ionic strength on the sorption of sulfachloropyridazine, tylosin, and oxytetracycline to soil. *Environ Toxicol Chem* **25**, 904–11.

Lee HY, Lim JE, Kim SC, Kim KR, Kwon OK, Yang JE et al. (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**, 1105–12.

Li LL, Huang LD, Chung RS, For KH, and Zhang YS (2010) Sorption and dissipation of tetracyclines in soils and compost. *Pedosphere* **20**, 807–16.

Lim JE, Kim SC, Lee HY, Kwon OK, Yang JE, and Ok YS (2009) Occurrence and distribution of selected veterinary antibiotics in soils, sediments and water adjacent to a cattle manure composting facility in Korea. *J Korean Soc Environ Eng* **31**, 845–54.

Lindsey ME, Meyer M, and Thurman EM (2001) Analysis of trace levels of sulfonamide and tetracycline antimicrobials in groundwater and surface water using solid-phase extraction and liquid chromatography/mass spectrometry. *Anal Chem* **73**, 4640–6.

Malik A and Ahmad M (1994) Incidence of drug and metal resistance in E. coli strains from sewage water and soil. *Chem Environ Res* **3**, 3–11.

Migliore L, Brambilla G, Cozzolino S, and Gaudio L (1995) Effect on plants of sulphadimethoxine used in intensive farming (*Panicum miliaceum*, *Pisum sativum* and *Zea mays*). *Agric Ecosys Environ* **52**, 103–10.

Poels J, Assche PV, and Verstraete W (1984) Effects of disinfectants and antibiotics on the anaerobic digestion of piggery waste. *Agri Wastes* **9**, 239–47

Rabølle M and Spliid NH (2000) Sorption and mobility of metronidazole, olaquindox, oxytetracycline and tylosin in soil. *Chemosphere* **40**, 715–22.

Radtke TM and Gist GL (1989) Wastewater sludge disposal - antibiotic resistant bacteria may pose health hazard. *J Environ Health* **52**, 102–5.

Rural Development Administration (2010) Treatment technology of livestock manure in Korea. Suwon, Korea.

Sarmah AK, Meyer MT, and Boxall ABA (2006) A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment. *Chemosphere* **65**, 725–59.

Seo YH, Choi JK, Kim SK, Min HK, and Jung YS (2007) Prioritizing environmental risks of veterinary antibiotics based on the use and the potential to reach environment. *Korean J Soil Sci Fert* **40**, 43–50.

Thiele-Bruhn S (2003) Pharmaceutical antibiotic compounds in soils-a review. *J Plant Nutr Soil Sci* **166**, 145–67.

Thiele-Bruhn S and Aust MO (2004) Effects of pig slurry on the sorption of sulfonamide antibiotics in soil. *Arch Environ Contam Toxicol* **47**, 31–9.

Tomei FA, James DW, Maki S, and Mitchell R (1988) Presence of an unusual methanogenic bacterium in coal gasification waste. *Appl Environ Microbiol* **54**, 2964–70.

Varel VH and Hashimoto AG (1982) Methane production by fermentor cultures acclimated to waste from cattle fed monensin, lasalocid, salinomycin, or avoparcin. *Appl Environ Microbiol* **44**, 29–34.

Xu XR and Li XY (2010) Sorption and desorption of antibiotic tetracycline on marine sediments. *Chemosphere* **78**, 430–6.