J Appl Biol Chem (2014) 57(3), 189–196
http://dx.doi.org/10.3839/jabc.2014.031

Online ISSN 2234-7941
Print ISSN 1976-0442

Original Article: Soil/Pesticidal/Environmental Sciences

# Monitoring of Selected Veterinary Antibiotics in Animal Carcass Disposal Site and Adjacent Agricultural Soil

**Jung Eun Lim · Anushka Upamali Rajapaksha · Se Hee Jeong · Sung Chul Kim · Kye Hoon Kim · Sang Soo Lee · Yong Sik Ok***

# 가축매몰지 및 인근 농경지의 축산용 잔류 항생제 모니터링

**임정은 · 아누쉬카 라자팍샤 · 정세희 · 김성철 · 김계훈 · 이상수 · 옥용식***

Received: 20 October 2013 / Accepted: 23 December 2013 / Published Online: 30 September 2014
© The Korean Society for Applied Biological Chemistry 2014

**Abstract** In Korea, over 4,700 animal carcass disposal sites were installed until 2011 due to the outbreak of foot and mouth disease. Due to the putrefaction of buried animals, the leachate containing veterinary antibiotics may release into surrounding environments. Antibiotic residues in the environment cause the formation of antibiotic resistance bacteria threatening human and ecosystem health. This study reports the concentrations of five antibiotics, including tetracycline (TC), chlortetracycline (CTC), oxytetracycline (OTC), sulfamethazine (SMZ), and sulfamethoxazole (SMX), in soils from animal carcass disposal site and adjacent agricultural field. Concentrations of antibiotics at animal carcass disposal sites (TC: 144.26–350.73 μg/kg, SMZ: 17.72–44.94 μg/kg) were higher than those at agricultural field (TC: 134.16–320.73 μg/kg, SMZ: 6.48–8.85 μg/kg) whereas the concentrations of CTC, OTC, and SMX were below detection limit in both sites. Results showed that the antibiotics in animal carcass site might leach to the soil and possibly contaminating the groundwater. Future studies will focus on the transfer of antibiotics residues into food crops.

**Keywords** burying livestock mortality · emerging contaminant · pharmaceuticals · plant uptake · risk assessment

J. E. Lim and A. U. Rajapaksha contributed equally.

J. E. Lim · A. U. Rajapaksha · S. H. Jeong · S. S. Lee · Y. S. Ok
Korea Biochar Research Center & Department of Biological Environment, Kangwon National University, Chuncheon 200-701, Republic of Korea

S. C. Kim
Department of Bio Environmental Chemistry, Chungnam National University, Daejeon 305-764, Republic of Korea

K. H. Kim
Department of Environmental Horticulture, The University of Seoul, Seoul 130-743, Republic of Korea

*Corresponding author (Y. S. Ok: soilok@kangwon.ac.kr)

This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0/) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

## 서 론

2000년 이후 국내에서는 가축전염병인 구제역(FMD, Foot and mouth disease) 및 조류독감(AI, Avian influenza) 등의 발생으로 인한 전염병의 확산방지를 위해 가축의 대대적인 살처분을 실시하였고, 이 후 사체로부터 병원체가 확산되는 것을 막기 위해 대규모 매몰을 실시하였다. 이로 인해 전국에 조성된 가축 매몰지는 2011년 8월 말 기준 약 4,700여개소로 보고되었다(Kim과 Kim, 2013). 선행 연구결과에 의하면 가축 사체에는 병원균이 존재할 수 있고, 매몰 후 부패 과정에서 발생하는 침출수로 인해 이에 함유된 다양한 오염물질들이 주변 토양 및 수계로 유입될 수 있는 가능성이 있다(Kim 등, 2010a; Kim과 Kim, 2012).

실제로 매몰지 연구에서는 침출수나 인근 토양에 대한 오염사례가 보고되고 있다. Cho (2012)는 간이 가축 매몰 장치를 통한 구제역 바이러스 잔류 연구에서 매몰지 토양과 침출수로부터 바이러스의 지속적인 검출을 보고한 바 있다. 또한 Kim 등(2010a)은 매몰지 주변 토양과 지하수에 대한 현장연구를 통해 가축사체에서 유래된 영양염류에 의한 토양과 지하수 오염 가능성을 보고하였다. 이와 함께 매몰지 및 주변

환경에서는 축산용 항생제의 잔류에 의한 오염이 심화될 수 있다. Cho와 Kim (2012)은 긴급 살처분으로 인해 항생제 안전성이 확보되지 않은 가축들이 매몰됨에 따라 가축 매몰지의 침출수에 항생제가 포함될 가능성이 높을 것으로 보고하였다. 특히 항생제의 경우 가축의 성장촉진 및 질병예방을 목적으로 다량 사용되어 왔으므로 매몰된 가축이 부패될 때 침출수를 통해 토양과 지하수를 오염시킬 수 있는 가능성이 높을 것으로 판단된다.

항생제는 미생물에 의해 생성된 물질로 세균 및 타 미생물의 성장과 활동을 억제함으로써 인간 및 동물의 질병예방 및 치료, 성장촉진에 사용되는 물질이다(Thiele-Bruhn, 2003; Seo 등, 2007; Kwon 등, 2011). 농림축산식품부(MAFRA)에 따르면 국내에서 축산용으로 사용된 항생제 판매량은 2012년 기준 936톤으로 조사되었으며, 이 중 tetracycline계열 및 sulfonamide 계열 항생제의 사용량이 각각 282톤, 102톤으로 전체 사용량의 약 41%에 달하는 것으로 조사되었다(MAFRA, 2013). 항생제는 동물에 투여 시 대사특성상 체내에서 일부만이 사용되며 나머지는 체외로 배출된다(Pei 등, 2006; Kim 등, 2011). 배출된 항생제는 다양한 경로를 통해 환경 중으로 유입되며 내성박테리아 생성 등을 통해 인간과 생태계에 위협을 초래한다(Kim 등, 2010a; Kim 등, 2012). 특히, 항생제는 신흥 오염물질로서 최근 들어 국가별로 분석법 개발과 함께 다양한 모니터링 연구가 진행되고 있으며 국내에서도 농경지, 퇴비, 수계 등에 대한 잔류 항생제 모니터링 결과가 보고된 바 있다(Choi 등, 2008; Lim 등, 2009; Lee 등, 2010; Ok 등, 2011; Kim 등, 2012). 그러나 현재까지 매몰지 및 주변 농경지 토양 등에 대한 항생제 잔류 연구는 부족한 실정이다.

본 연구에서는 국내 가축 매몰지 중 2개소를 선정하여 매몰지 및 인근 농경지로부터 항생제 모니터링을 실시하여 이에 대한 잔류 수준을 평가하였다. 또한 연구결과를 통해 잔류 항생제의 작물전이 가능성 등의 생태계 위험성을 고찰하였으며, 향후 매몰지로 인한 항생제 오염을 완화하기 위한 최적관리방안 수립의 기초자료로 사용하고자 하였다.

## 재료 및 방법

**조사 대상 항생제 선정.** 본 연구에서는 국내에서 축산용 항생제로 다량 사용되고 있는 tetracycline 계열의 tetracycline (TC), chlortetracycline (CTC), oxytetracycline (OTC)와 sulfonamide 계열의 sulfamethazine (SMZ), sulfamethoxazole (SMX)을 조사 대상 물질로 선정하였다. 선정된 항생제들의 특성은 Table 1과 같다.

**조사 대상 지역 일반 현황 및 시료채취.** 가축 매몰지 및 인근 농경지에 대한 항생제 잔류 조사는 경기도 이천시 소재 매몰지 2개소에서 실시하였다(36°11'42"N lat., 127°51'24"E long.) (Fig. 1). 첫 번째 지역(S1, site 1)은 2011년 1월 24일경 돼지 1,235두를 매몰한 지점으로 총 4개의 매몰지가 조성되어 있었으며 이곳에서 약 8 m 이격된 지점에 총각무를 재배하는 농경지가 위치하고 있었다. 두 번째 지역(S2, site 2)은 2011년 1월 22일경 돼지 1,587두를 매몰한 지점으로 매몰지에서 약 4 m 떨어진 지점에 벼를 재배하는 농경지가 위치하고 있었다. 매몰지 2개소 모두 훼손이나 침출수의 누출이 관찰되지는 않았으나 인근에 농경지가 위치하고 있어 장마철 호우 등으로 인해 매몰지가 유실되는 경우 침출수 및 오염된 매몰지 토양의 농경지 유입이 우려되었다(Fig. 1). 토양 시료의 채취는 2012년 10월 9일경에 매몰지 2개소의 매몰지 봉분 상단부(S1 car. soil, S2 car. soil)와 인근 농경지(S1 agr. soil, S2 agr. soil)에서 실시하였다. 채취한 토양 시료는 암실에서 풍건하고 분석에 사용하였다.

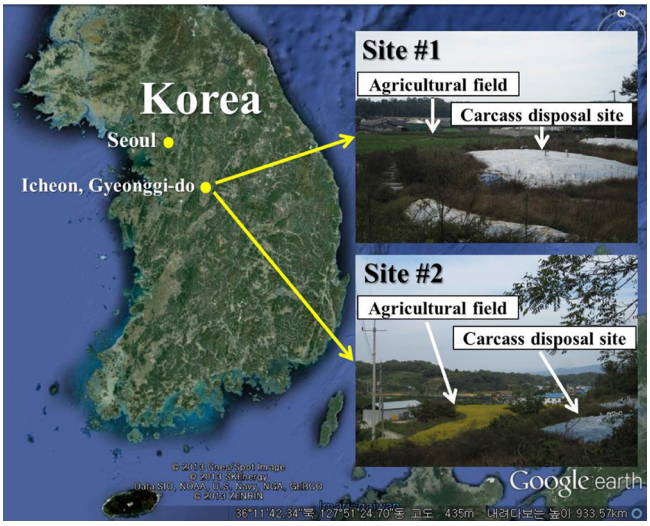


**Fig. 1** Selected monitoring sites located in Icheon, Korea.

**토양 이화학성 분석.** 이화학성 분석을 위한 토양 시료는 풍건 후 식물잔사 등을 제거하고 2 mm 이하로 체거름하여 사용하였다. 토성은 비중계법, pH와 EC는 1:5법, 유기물함량은 Tyurin 법, 치환성 양이온은 1M-$NH_4OAc$ (pH 7.0)로 침출하여 유도결합 플라즈마 발광광도계(ICP-OES, GBC Integra XL, Australia)로 분석하였다(NIAST, 2000).

**항생제 추출 및 분석.** 토양으로부터의 항생제 추출방법은 다음과 같다. 풍건된 토양을 75 μm 이하로 체거름한 후 토양 1 g에 McIlvaine 완충용액(pH 4.0) 20 mL와 5% (w/v) $Na_2EDTA$

**Table 1** Chemical properties of selected antibiotics (modified from Lim et al., 2009)

| Chemical group | Compound (Acronym) | M.W. (g/mol) | Solubility in water (g/L) | Log $K_{ow}$ | Primary usage |
|---|---|---|---|---|---|
| Tetracyclines | Tetracycline (TC) | 444.43[1)] | 1.7[1)] | -1.19[1)] | Animal and human[2)] |
| | Chlortetracycline (CTC) | 478.89[3)] | 0.6[3)] | -0.62[3)] | Animal[3)] |
| | Oxytetracycline (OTC) | 460.44[1)] | 1.0[1)] | -1.22[1)] | Animal[3)] |
| Sulfonamides | Sulfamethazine (SMZ) | 278.32[1)] | 1.5[1)] | 0.89[1)] | Animal[3)] |
| | Sulfamethoxazole (SMX) | 253.28[3)] | 0.39[4)] | 0.89[3)] | Animal[3)] |

1) Tolls, 2001; 2) Kim and Carlson, 2007b; 3) KEI, 2006; 4) Loftsson and Hreinsdóttir, 2006.

**Table 2** LC/MS condition for antibiotics analysis

| Instrument | | LC/MS (TSQ Quantum Ultra, Thermo, USA) |
|---|---|---|
| LC condition | Injection volume | 20 μL |
| | Column | XTerra MS C18, Waters, USA (2.1 mm×50 mm, 2.5 μm) |
| | Mobile phase | A: 0.1% formic acid in water, B: 0.1% formic acid in acetonitrile |
| | Gradient program | 0 min: A/B=96/4, 19 min: A/B=70/30, 20 min: A/B=96/4, 30 min: A/B=96/4 |
| MS condition | Ion source | ESI (Electron spray ionization), positive |
| | Spray voltage | 4500 V |
| | Vaporizer temperature | 320°C |
| | Sheath gas pressure | 45 psi |
| | Aux gas pressure | 20 psi |
| | Capillary temperature | 350°C |
| | Tube lens offset value | 131 |

200 μL를 가한 후 400 rpm에서 15분간 교반하였다. 이 후 5,000 rpm에서 15분간 원심분리를 실시하고 0.2-μm membrane filter (Sartorius Stedim Biotech, Germany)를 이용하여 감압여과한 후 고형상 추출(SPE, solid phase extraction)을 수행하였다(Kim과 Carlson, 2007a). 고형상 추출은 HLB (hydrophilic-lipophilic balance) cartridge (OASIS®)를 이용하여 MeOH (methanol)로 추출한 후 내부표준물질인 simeton을 첨가하였다. 이 후 추출액을 질소농축기(MG-2200, EYELA®, JAPAN)로 50°C에서 농축하였다(Kim과 Carlson, 2007a; Ok 등, 2011; Awad 등, 2014).

항생제 분석은 LC/MS (Liquid chromatograph/mass spectrometry, TSQ Quantum Ultra, Thermo, USA)로 실시하였다. 시료 중 개별 항생제의 분리를 위한 컬럼은 pore size가 2.5 μm이며 내경이 2.1 mm×50 mm인 XTerra MS C18 역상컬럼(Waters, USA)을 사용하였으며, 용매 조건은 기울기 용리(gradient)방식으로 이동상 A는 99.9%의 D.I. water +0.1%의 formic acid, B는 99.9%의 acetonitrile (ACN) +0.1%의 formic acid를 사용하였다. 항생제는 LC/MS를 이용하여 질량 대 전하비(m/z)를 193.00–484.00의 범위에서 scan하였고, 이 중 TC은 $[M+H]^+$가 445 m/z, OTC이 461 m/z, CTC이 479 m/z, SMX이 254 m/z를 정량이온으로 선정하였다. SMZ는 m/z를 193.00–284.00 범위에서 scan하여 279 m/z를 정량이온으로 선정하였다. 기타 LC/MS 조건은 Table 2에 명시하였으며, 이를 통해 얻어진 표준물질의 크로마토그램(chromatogram)과 질량스펙트럼(mass spectrum)은 Fig. 2 및 Fig. 3과 같다. 본 분석방법에 대한 항생제의 회수율(recovery)은 tetracycline 계열 항생제(TC, CTC, OTC)와 sulfonamide 계열 항생제(SMZ, SMT)가 각각 40.5–91.2%, 80.2–107.9%이며, 정량한계(LOQ, Limit of quantification)는 tetracycline 계열 항생제와 sulfonamide 계열 항생제가 각각 0.5–1.9, 0.5–1.8 μg/kg로 조사되었다(Kim과 Carlson, 2007a).

**통계분석.** 매몰지 및 인근 농경지 토양에서 검출된 항생제 농도의 비교평가를 위한 통계분석은 SAS program (ver. 9.2)을 이용하여 ANOVA 검정을 실시하였다. ANOVA 검정은 각 항생제 농도를 기준으로 시료채취 지점간의 유의성($p$ <0.05)을 평가하였다.

## 결과 및 고찰

매몰지 및 인근 농경지 토양의 이화학성 분석결과는 Table 3과 같다. 분석결과 토양 내에서 항생제의 잔류에 영향을 미치는 주요 인자인 pH, 점토 함량, 유기물 함량, 치환성 양이온 함량 등은 조사 대상 지역 2개소 모두 매몰지 토양이 농경지 토양에 비해 높게 나타났다. 특히 pH와 치환성 칼슘함량은 매몰지가 농경지보다 상대적으로 높은 수준이었는데 이는 매몰지 조성 시 알칼리화 살균을 위해 성토부 표면 및 주변에 살포된 생석회(CaO)의 영향에 기인한 것으로 판단되었다(MoE, 2010; Cho와 Kim, 2012; Kim과 Kim, 2013).

매몰지 및 인근 농경지 토양에 대한 항생제 분석결과는 Table 4 및 Fig. 4와 같다. S1의 경우 TC와 SMZ가 검출되었으며, 타 항생제(OTC, CTC, SMZ)들은 검출되지 않았다. TC와 SMZ의 농도는 매몰지(TC: 144.26 μg/kg; SMZ: 17.72 μg/kg)가 인근 농경지(TC: 134.16 μg/kg; SMZ: 8.85 μg/kg)에 비해 높았으나 통계적으로 유의한 수준의 차이는 없었다. S2에서도 TC와 SMZ가 검출되었으며, TC와 SMZ의 농도는 매몰지(TC: 350.73 μg/kg; SMZ: 44.94 μg/kg)가 인근 농경지(TC: 320.68 μg/kg; SMZ: 6.48 μg/kg)에 비해 높았다. 특히, SMZ의 경우에는 통계적으로 유의한 수준의 차이가 있는 것으로 나타났다. 국내 농경지를 대상으로 한 최근 연구에서 Lim 등(2009)은 우분 퇴비공장 인근 농경지에서 tetracycline 계열 항생제인 TC, OTC, CTC의 최대 잔류농도가 각각 9.71, 20.56, 1.72 μg/kg, sulfonamide 계열의 SMZ, SMX는 각각 119.48, 41.33 μg/kg까지 검출됨을 보고한 바 있으며, Ok 등(2011)은 돈분 퇴비공장 인근 농경지에서 TC, OTC, CTC가 각각 2.94, 3.77, 0.89 μg/kg까지, SMZ, SMX가 각각 28.38, 5.43 μg/kg까지 검출됨을 보고한 바 있다. 국외 연구의 경우 Hamscher 등(2002)은 액비(liquid manure)가 투입된 독일 농경지 토양(0–30 cm)에서 TC와 CTC가 각각 198.8, 7.1 μg/kg까지 검출됨을 보고한 바 있으며, Zheng 등(2012)은 돈사 인근 농경지 토양(0–30 cm)에서 TC, OTC, CTC가 각각 21.7, 42.4, 17.1 μg/kg까지 검출됨을 보고하였다. 이들 선행연구에서는 검출되는 항생제의 기원이 축분 퇴비에 의한 것임을 보고하였으며 환경 중 잔류하는 항생제에 대한 지속적인 연구조사가 필요함을 주장하였다(Lim 등, 2009; Ok 등, 2011; Hamscher 등, 2002). 한편, 본 연구에서 도출된 잔류항생제의 농도는 국내외 선행연구에서 보고된 수치와 비교할 때 비교적 높은 수준으로써 이에 대한 보다 면밀한 검토가 필요한 것으로 판단된다(Cho와 Kim, 2012). 본 연구결과에서는 현재까지 단정할 수는 없으나 매몰된 가축사체 내에 함유된 항생제가 여러 가지 요인들에 의해

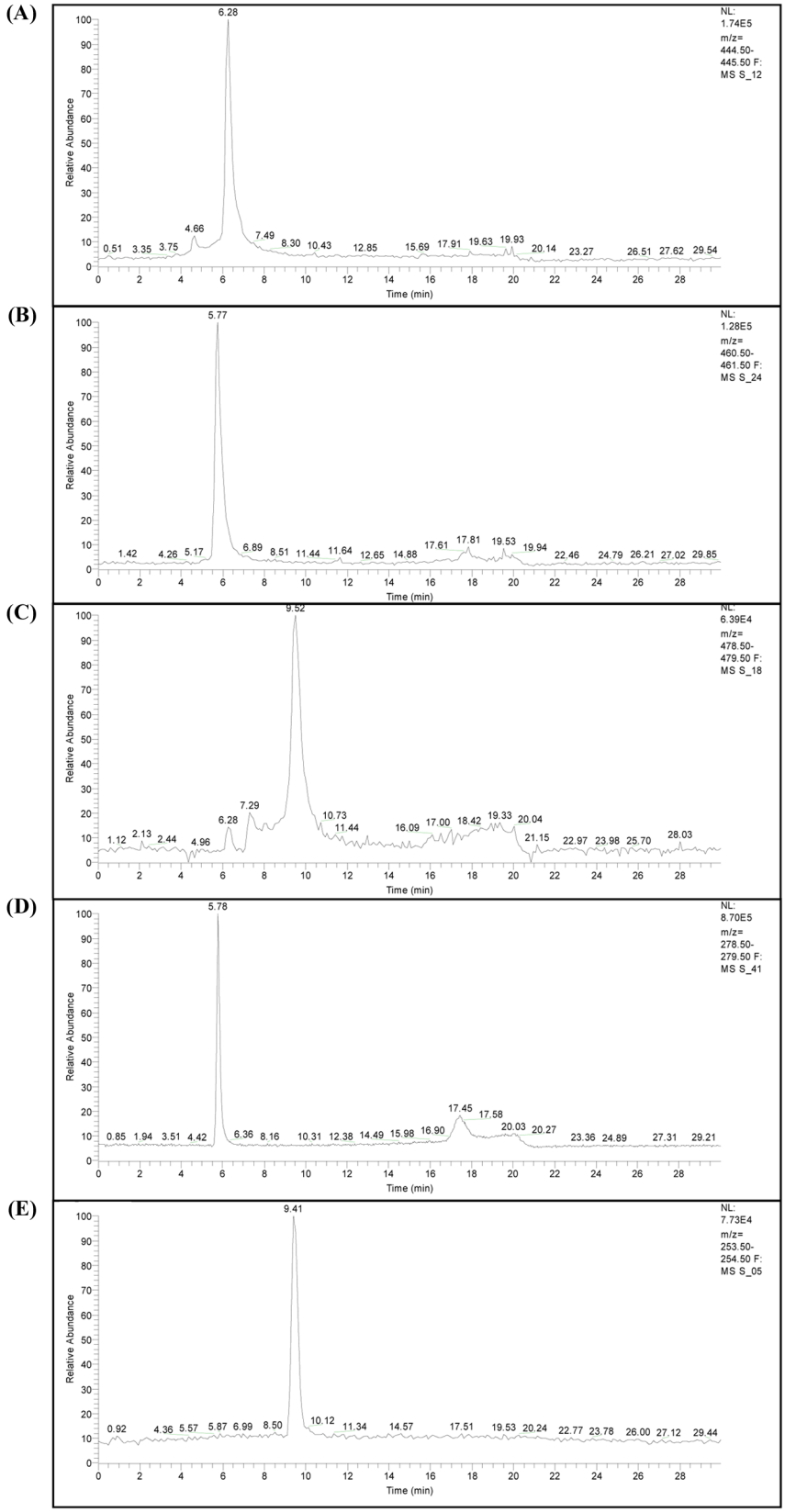


**Fig. 2** Chromatograms for standard solution (0.8 mg/L) of selected antibiotics (A: tetracycline; B: oxytetracycline; C: chlortetracycline; D: sulfamethazine; E: sulfamethoxazole).

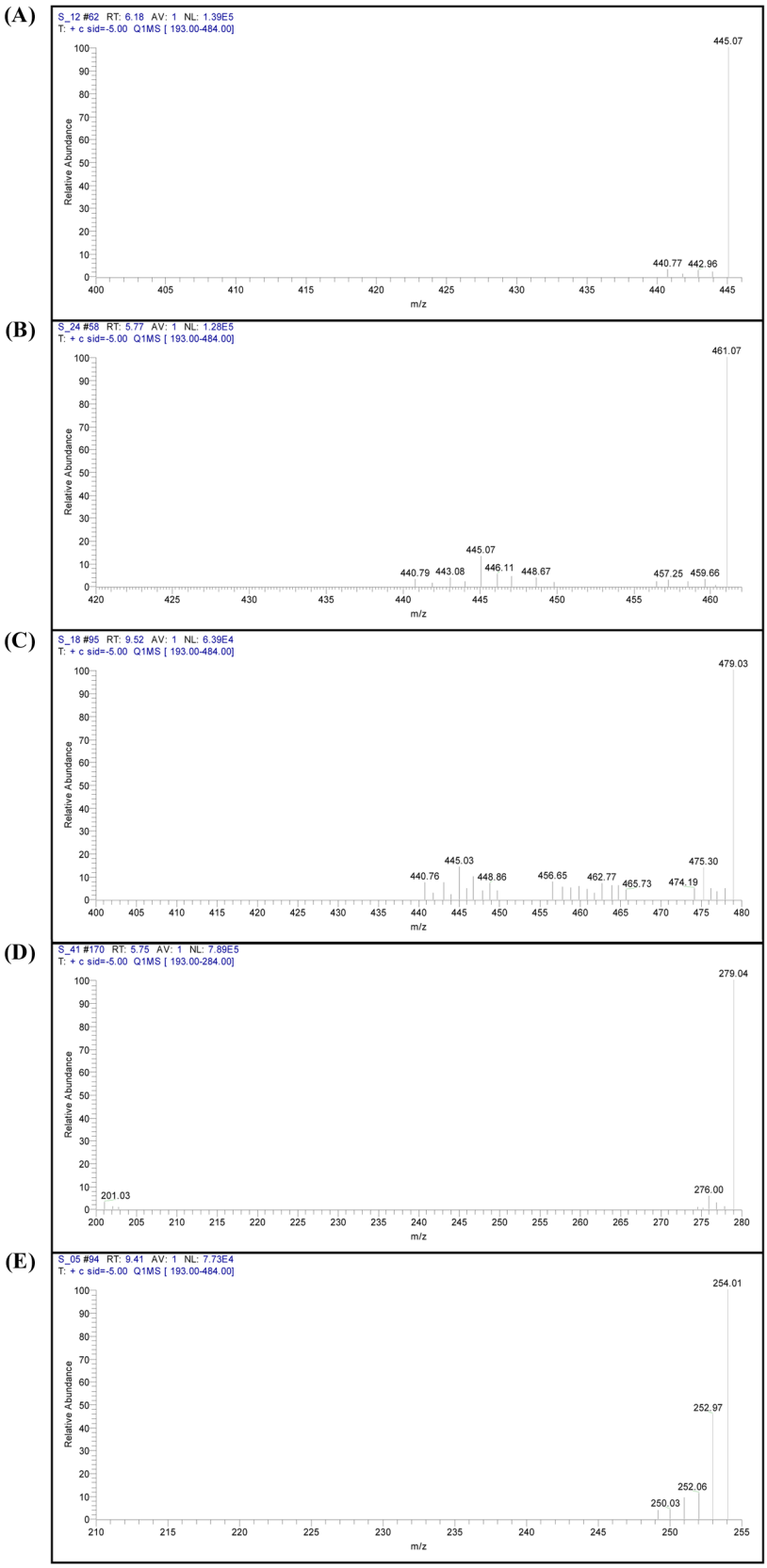


**Fig. 3** Mass spectra of selected antibiotics (A: tetracycline; B: oxytetracycline; C: chlortetracycline; D: sulfamethazine; E: sulfamethoxazole).

**Table 3** Selected physicochemical properties of the monitored soils

| Contents | Soil texture | Sand | Silt | Clay | pH | EC | O.M.[1)] | Exchangeable cations | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | | | | | Ca | K | Mg | Na |
| | | ---------- % ---------- | | | 1:5 | dS/m | g/kg | ---------- $cmol_{(+)}$/kg ---------- | | | |
| S1 car. soil[2)] | Sandy Loam | 68.13 | 24.93 | 6.93 | 7.49 | 0.38 | 13.29 | 2.51 | 0.21 | 1.64 | 0.81 |
| S1 agr. soil[3)] | Sand | 97.47 | 0.60 | 2.00 | 6.44 | 0.23 | 2.82 | 1.09 | 0.28 | 0.24 | 0.29 |
| S2 car. soil[2)] | Loamy Sand | 78.87 | 17.13 | 3.97 | 6.42 | 5.56 | 10.91 | 6.65 | 0.14 | 0.86 | 1.32 |
| S2 agr. soil[3)] | Loamy sand | 84.67 | 13.77 | 1.57 | 6.32 | 0.11 | 12.11 | 1.65 | 0.07 | 0.23 | 0.32 |

1) Organic matter; 2) Soil from carcass disposal site; 3) Soil from agricultural field.

**Table 4** Detected concentrations for selected veterinary antibiotics in the soil

| Sampling locations | TC[1)] | OTC[2)] | CTC[3)] | SMZ[4)] | SMX[5)] | References |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | ---------- ìg/kg ---------- | | | | | |
| S1 car. soil[6)] | 144.26 | BDL[7)] | BDL[7)] | 17.72 | BDL[7)] | Present study |
| S1 agr. soil[8)] | 134.16 | BDL[7)] | BDL[7)] | 8.85 | BDL[7)] | Present study |
| S2 car. soil[6)] | 350.73 | BDL[7)] | BDL[7)] | 44.94 | BDL[7)] | Present study |
| S2 agr. soil[8)] | 320.68 | BDL[7)] | BDL[7)] | 6.48 | BDL[7)] | Present study |
| Agr. soil in Germany | 43.4-198.8[9)] | NE[10)] | 4.6-7.1[9)] | NE[10)] | NE[10)] | Hamscher et al., 2002 |
| Agr. soil in Turkey | NE[10)] | 500[11)] | 100[11)] | NE[10)] | 100[11)] | Karcı and Balcıoğlu, 2009 |
| Agr. soil in Korea | 2.05-9.71[9)] | 2.06-20.56[9)] | 0.12-1.72[9)] | 3.16-119.48[9)] | 0.76-41.33[9)] | Lim et al., 2009 |
| Agr. soil in Korea | 17.09-35.56[9)] | BDL-0.41[9)] | BDL-0.13[9)] | 0.04-0.12[9)] | BDL-0.62[9)] | Lee et al., 2010 |
| Agr. soil in Korea | 0.82-2.94[9)] | 1.68-3.77[9)] | 0.31-0.89[9)] | 20.30-28.38[9)] | 0.77-5.43[9)] | Ok et al., 2011 |
| Agr. soil in China | 2.8-21.7[9)] | BDL-42.4[9)] | BDL-17.1[9)] | NE[10)] | NE[10)] | Zheng et al., 2012 |

1) Tetracycline; 2) Oxytetracycline; 3) Chlortetracycline; 4) Sulfamethazine; 5) Sulfamethoxazole; 6) Soil from carcass disposal site; 7) Below detection limit; 8) Soil from agricultural field; 9) Range of concentration; 10) Not examined; 11) Approximate maximum value.

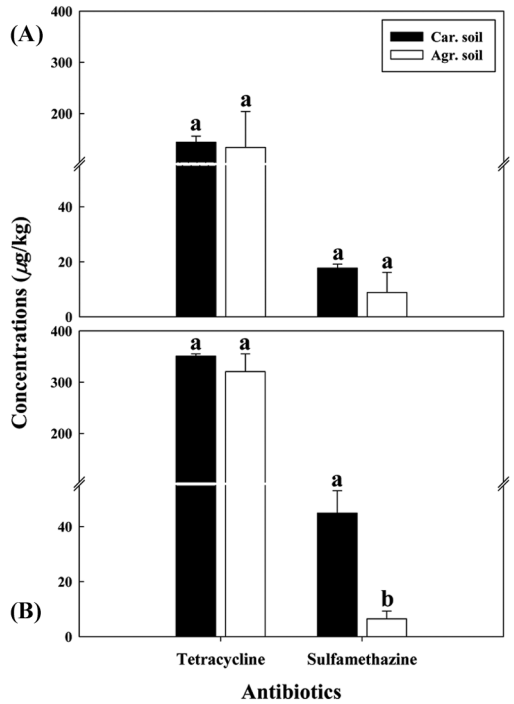


**Fig. 4.** Detected concentrations for selected veterinary antibiotics in the soils from (A) site 1 and (B) site 2 (car.: carcass disposal site; agr.: agricultural field). The concentrations of oxytetracycline, chlortetracycline and sulfamethoxazole were below detection limit. Error bars indicate the standard deviation ($n$ =3). Same letters on bars in the same antibiotics are not significantly different using Tukey's HSD test ($p$ <0.05).

매몰지 인근 토양에 축적될 수 있는 가능성이 있음을 시사하고 있어 이에 대한 대책과 주의가 요구된다.

토양 내에 잔류하는 항생제의 농도는 가축에게 사용된 항생제의 총량뿐만 아니라 항생제 고유의 물리화학적 특성에도 좌우될 수 있다. Tetracycline 계열 항생제는 분자구조 내에 2개의 케톤기(ketone group)를 보유하고 있어 2가 및 3가 이온과 결합하려는 경향을 보인다(Díaz-Cruz와 Barceló, 2006). 이와 같은 특성은 토양 내에 다량으로 존재하는 다가 양이온에 의해 tetracycline 계열의 항생제가 결합되어 잔류할 수 있음을 나타낸다. Lee 등(2009)은 토양컬럼을 이용한 항생제 이동성 연구보고에서 이와 같은 특성으로 인해 tetracycline 계열 항생제의 토양에 대한 흡착계수($K_d$)값이 sulfonamide 계열에 비해 상대적으로 높아 심토로 용출되지 않으며 표토에 흡착되어 잔류한다고 하였다. 또한 sulfonamide계열에 비해 tetracycline 계열의 항생제는 토양 및 유기물질에 대한 흡착친화력이 상대적으로 높아 토양에서의 잔류가능성이 높은 것으로 보고된 바 있다(Kim과 Carlson, 2007b; Kim 등, 2010b). 본 연구결과에서도 TC이 SMZ보다 높은 수준으로 검출되었으며 이는 이러한 항생제의 물리화학적 성질에 기인하는 것으로 판단된다.

본 연구결과에서 나타난 바와 같이 토양, 특히 농경지에 항생제가 잔류하는 경우 재배되는 농작물에 의해 항생제가 흡수될 수 있다. 일례로 Kumar 등(2005)은 CTC가 함유된 돈분을 처리한 토양에 옥수수, 파, 양배추를 6주간 재배한 후 작물 지상부를 분석한 결과 생체량 기준 2–17 ng/g의 CTC가 검출됨을 보고하였다. Grote 등(2007)도 CTC가 함유된 돈분뇨를 처리한 토양에서 추파소맥을 재배하여 분석한 결과 낟알에서 CTC가 생체량 기준 44 μg/kg까지 검출됨을 보고하였다.

Dolliver 등(2007)은 SMZ를 인위적으로 첨가한 돈분을 SMZ 량 기준 2.8, 5.6 kg/ha로 처리한 토양에서 옥수수, 상추, 감자를 재배한 후 분석한 결과 SMZ가 건물중 기준 0.1–1.2 mg/kg의 수준으로 검출됨을 보고하였다. 특히, 결과로 제시하지 않았으나 본 연구의 조사 대상 농경지에서 재배된 무의 뿌리와 벼의 낟알에서도 tetracycline 및 sulfonamide계열의 항생제가 소량 검출되었다(Ok 등, unpublished data). 이와 같이 토양에 잔류하는 항생제는 작물체로 흡수되며 이를 섭취하는 인간 건강에 심각한 악영향을 미치게 된다. 일례로 인체로 흡수된 항생제의 독성으로 인해 소아에게 알레르기(allergy)를 유발할 수 있으며, 항생제 내성박테리아의 생성을 야기하여 항생제를 통한 질병 치료 및 생태계 교란 등 여러 가지 악영향을 끼치는 것으로 알려져 있다(Kumar 등, 2005).

## 초 록

2010년 발생한 가축전염병인 구제역(FMD)으로 인해 전국에 약 4,700여개소에 가축 매몰지가 조성되었다. 매몰된 가축의 부패 과정에서 발생하는 침출수는 항생제와 같은 다양한 오염물질들을 함유하고 있어 주변 토양 및 수계로 유입되는 경우 환경에 악영향을 초래할 수 있다. 이와 같이 환경에 잔류하는 항생제는 내성박테리아 생성 등을 통해 인간건강 및 생태계 건전성을 위협할 수 있다. 이에 본 연구에서는 가축 매몰에 의한 항생제 오염수준을 평가하기 위해 가축 매몰지 및 인근 농경지 토양에서 항생제 모니터링을 실시하였다. 모니터링 대상 항생제로는 축산용 항생제로 사용량이 가장 많은 tetracycline 계열의 tetracycline (TC), chlortetracycline (CTC), oxytetracycline (OTC)와 sulfonamide 계열의 sulfamethazine (SMZ), sulfamethoxazole (SMX)을 선정하였다. 항생제의 잔류농도는 매몰지 (TC: 144.26–350.73 μg/kg, SMZ: 17.72–44.94 μg/kg)가 인근 농경지 (TC: 134.16–320.73 μg/kg, SMZ: 6.48–8.85 μg/kg)에 비해 높은 것으로 나타났으며 CTC, OTC, SMX는 검출되지 않았다. 연구결과를 통해 단정할 수는 없으나 매몰된 가축사체에 함유된 항생제가 매몰지 및 인근 토양에 축적될 수 있는 개연성이 있는 것으로 판단되었다. 특히, 농경지에 잔류하는 항생제는 농작물에 의해 흡수되어 인간 건강에 악영향을 미치므로 이에 대한 지속적인 모니터링이 요구된다.

**Keywords** burying livestock mortality · emerging contaminant · pharmaceuticals · plant uptake · risk assessment

**감사의 글** 본 연구는 환경부 "토양·지하수 오염방지 기술개발사업(G112-00056-0004-0)"으로 지원받은 과제임. 시료 제작은 2013년도 강원대학교 학술연구조성비로 연구하였음(관리번호-120140370). 시료의 기기분석은 한국기초과학지원연구원, 강원대학교 공동실험실습관 및 환경연구소에서 수행되었음.

## References

Awad YM, Kim SC, Abd El Azeem SAM, Kim KH, Kim KR, Kim K et al. (2014) Veterinary antibiotics contamination in water, sediment, and soil near a swine manure composting facility. *Environ Earth Sci* **71,** 1433–40.

Cho HS (2012) Detection of foot-and-mouth disease virus and coxsakievirus in the soil and leachate of modeled carcass burial site. *Korean J Vet Serv* **35**, 255–61.

Cho HS and Kim G (2012) Needs of biosecurity and protocols for the environmental management of carcasses burial. *J Korean Soc Water Environ* **28**, 305–12.

Choi K, Kim Y, Park J, Park CK, Kim M, Kim HS et al. (2008) Seasonal variations of several pharmaceutical residues in surface water and sewage treatment plants of Han River, Korea. *Sci Total Environ* **405,** 120–8.

Díaz-Cruz MS and Barceló D (2006) Determination of antimicrobial residues and metabolites in the aquatic environment by liquid chromatography tandem mass spectrometry. *Anal Bioanal Chem* **386**, 973–85.

Dolliver H, Kumar K, and Gupta S (2007) Sulfamethazine uptake by plants from manure-amended soil. *J Environ Qual* **36**, 1224–30.

Grote M, Schwake-Anduschus C, Michel R, Stevens H, Heyser W, Langenkämper G et al. (2007) Incorporation of veterinary antibiotics into crops from manured soil. *Landbauforsch Völk* **57**, 25–32.

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.

Karcı A and Balcıoğlu 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.

KEI (2006) An approach for developing aquatic environmental risk assessment framework for pharmaceuticals in Korea. Korea Environment Institute, Korea.

Kim HS and Kim K (2012) Microbial and chemical contamination of groundwater around livestock mortality burial sites in Korea - a review. *Geosci J* **16**, 479–89.

Kim KH, Kim KR, Kim HS, Lee GT, and Lee KH (2010a) Assessment of soil and groundwater contamination at two animal carcass disposal sites. *Korean J Soil Sci Fert* **43**, 384–9.

Kim KR, Owens G, Kwon SI, So KH, Lee DB, and Ok YS (2011) Occurrence and environmental fate of veterinary antibiotics in the terrestrial environment. *Water Air Soil Pollut* **214,** 163–74.

Kim KR, Owens G, Ok YS, Park WK, Lee DB, and Kwon SI (2012) Decline in extractable antibiotics in manure-based composts during composting. *Waste Manage* **32**, 110–6.

Kim M and Kim G (2013) Cost analysis for the carcass burial construction. *J Soil & Groundwater Env* **18**,137–47.

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

Kim SC and Carlson K (2007b) Temporal and spatial trends in the occurrence of human and veterinary antibiotics in aqueous and river sediment matrices. *Environ Sci Technol* **41**, 50–7.

Kim SC, Yang JE, Ok YS, and Carlson K (2010b) Dissolved and colloidal fraction transport of antibiotics in soil under biotic and abiotic conditions. *Water Qual Res J Can* **45**, 275–85.

Kumar K, Gupta SC, Baidoo SK, Chander Y, and Rosen CJ (2005) Antibiotics uptake by plants from soil fertilized with animal manure. *J Environ Qual* **34**, 2082–5.

Kwon SI, Owens G, Ok YS, Lee DB, Jeon WT, Kim JG et al. (2011) Applicability of the Charm II system monitoring antibiotic residues in manure-based composts. *Waste Manage* **31**, 39–44.

Lee HY, Lim JE, Kim SC, Kim KR, Kwon OK, Yang JE et al. (2009) Transport of selected veterinary antibiotics (tetracyclines and sulfonamies) in a sandy loam soil: Laboratory-scale soil column experiments. *J Korean Soc Environ Eng* **31**, 1105–12.

Lee HY, Lim JE, Kim SC, Kim KR, Lee SS, Kwon OK et al. (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**, 278–86.

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.

Loftsson T and Hreinsdóttir D (2006) Determination of aqueous solubility by heating and equilibration: a technical note. *AAPS Pharm Sci Tech* **7**,

E29–32.
MAFRA (2013) Press release: Consumption of veterinary antibiotics in Korea. Ministry of Agriculture, Food and Rural Affairs, Korea.
MoE (2010) Environmental management guideline of carcass burial sites. Ministry of Environment, Korea.
NIAST (2000) Method of soil and plant analysis. National Institute of Agricultural Science and Technology, Korea.
Ok YS, Kim SC, Kim KR, Lee SS, Moon DH, Lim KJ et al. (2011) Monitoring of selected veterinary antibiotics in environmental compartments near a composting facility in Gangwon Province, Korea. *Environ Monit Assess* **174**, 693–701.
Pei R, Kim SC, Carlson KH, and Pruden A (2006) Effect of river landscape on the sediment concentrations of antibiotics and corresponding antibiotic resistance genes (ARG). *Water Res* **40,** 2427–35.
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 Sc* **166,** 145–67.
Tolls J (2001) Sorption of veterinary pharmaceuticals in soils: a review. *Environ Sci Technol* **35**, 3397–406.
Zheng WL, Zhang LF, Zhang KY, Wang XY, and Xue FQ (2012) Determination of tetracycline and their epimers in agricultural soil fertilized with swine manure by ultra-high-performance liquid chromatography tandem mass spectrometry. *J Integr Agr* **11**, 1189–98.