

Short communication

<https://doi.org/10.7745/KJSSF.2017.50.4.285>

pISSN : 0367-6315 eISSN : 2288-2162

Monitoring of Antibiotics in the Soil and Sediment Near at the Animal Feeding Operation and Wastewater Treatment Plant

Hye Ri Kim, Saet Byul Park, and Sung Chul Kim*

Department of Bio-Environmental Chemistry, Chungnam National University, Daejeon 34134, Korea

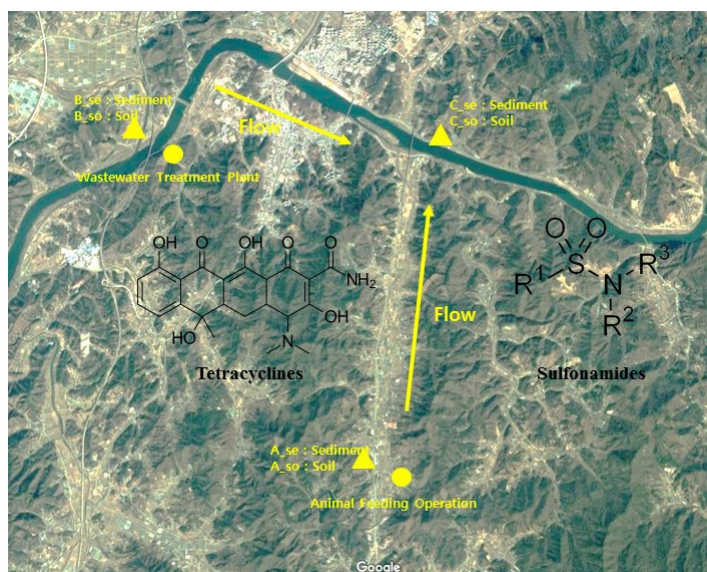
*Corresponding author: sekim@cnu.ac.kr

ABSTRACT

Received: August 25, 2017**Revised:** August 31, 2017**Accepted:** August 31, 2017

Antibiotics have been used for treating human and animal disease and enhancing growth of cattle, swine, and poultry. However, overused antibiotics can be released into the environment and produce antibiotic resistance genes (ARGs) in the environment. Main objective of this research was to monitor residual of antibiotics in solid matrix such as manure, wastewater sludge, soil and sediment. Total of six antibiotics, Chlortetracycline (CTC), Oxytetracycline (OTC), Tetracycline (TC), Sulfamethazine (SMT), Sulfamethoxazole (SMX), Sulfathiazole (STZ), used for both human and animal was monitored. Result showed that the detection frequency of 6 antibiotics was ordered SMT (100%) > TC = CTC (75%) > OTC (38%) > STZ (13%) > SMZ (0%) and the highest concentration ($309.83 \mu\text{g kg}^{-1}$, SMT) was observed in manure. Comparing residual concentration of antibiotics (TC, CTC, and OTC) in soil and sediment, higher concentration was observed in sediment indicating that dissolved forms of antibiotics are released into river and sorbed into sediment particle. In conclusion, monitoring for residual of antibiotics in the environment is necessary and more research should be conducted to verify the source of antibiotic release.

Keywords: Antibiotics, Manure, Sludge, Soil, Sediment



Antibiotic residuals in soil, sediment, manure, and sludge and its transport in the environment.



Introduction

항생제는 오랫동안 인간 뿐만 아니라 동물의 질병 예방 및 가축의 성장을 촉진하는 목적으로 사용되어 왔다 (Seo et al., 2007; Kim et al., 2014). 하지만 최근 항생제의 오남용에 따른 항생제 저항 박테리아의 발생 (Kwon et al., 2015) 및 작물로의 흡수에 따른 농산물 안전성 문제 (Seo et al., 2010; Park et al., 2016) 등이 사회적 문제로 대두되고 있는 실정이다. 특히 항생제의 경우 종류에 따라 투여량의 10~20% 만이 생체 내에서 활용되고 나머지 80~90%가 체외로 배출되는 특성이 있어 항생제의 오남용에 따라 많은 양의 항생제가 환경에 유입될 수 있는 가능성은 매우 높다 (Kim et al., 2007; Kim et al., 2011).

인간 또는 동물의 체외로 배출되는 항생제는 하수 처리장 또는 가축 축사에서 폐수 또는 슬러지와 가축 분뇨 같은 고형상에 흡착되어 환경에 유입된 후 그대로 하천에 유입되거나 또는 강우에 의해 주변 토양 및 하천 그리고 지하수 등으로 이동하게 된다 (Wang and Wang, 2015; Thiele-Bruhn and Beck, 2005). 하지만 환경에 유입된 항생제는 항생제의 종류에 따라 이동 및 거동이 서로 상이하다. 테트라사이클라인 (Tetracyclines, TCs) 계열의 항생제는 극성이 매우 크고 이온의 특성이 강한 작용기를 가지고 있어 정전기적 인력 (electrostatic interaction) 또는 이온 교환 반응 (ion-exchange interaction)에 의해 고형 물질과 결합한다. 특히 TCs의 경우 2가 양이온과 결합이 강하게 일어나 토양 또는 저니토 입자와의 흡착이 강하다 (Wang and Wang, 2015). 반면 설펜아미드 (Sulfonamides, SAs) 계열의 항생제는 anile 또는 amide의 작용기만을 가지고 있어 토양 또는 저니토 입자와의 흡착이 약하다. 따라서 SAs의 경우 결합이 약한 반데르발스 (Van der Waals force) 또는 수소결합 (hydrogen bonding)에 의해 고형상과의 흡착이 발생한다 (Wang and Wang, 2015; Kahle and Stamm, 2007).

항생제의 환경 잔류에 대한 연구는 국내의 경우 주로 하천수를 중심으로 조사되었으며 계열에 따라 0.88~1.43 $\mu\text{g L}^{-1}$ (TCs) 또는 0.66~1.67 $\mu\text{g L}^{-1}$ (SAs) 수준의 항생제가 검출되었다. 하지만 가축 분뇨 또는 토양 및 저니토와 같은 고형상 내 항생제의 잔류 특성에 대한 연구는 미미한 실정이다. 따라서 본 연구의 목적은 하천 주변의 하수처리장 내 하수 슬러지 및 가축 분뇨 등과 같은 항생제 발생원과 하천 주변의 토양 및 하천수 내 저니토에서의 항생제 잔류 특성을 평가하여 항생제의 종류에 따른 잔류 특성 및 이동을 평가하는 것이다.

Materials and Methods

시약 및 재료 본 연구에서는 총 2개열 6종류의 항생제, Chlortetracycline (CTC), Oxytetracycline (OTC), Tetracycline (TC)과 Sulfamethazine (SMT), Sulfamethoxazole (SMX), Sulfathiazole (STZ)를 대상으로 조사 하였으며 (Table 1) STZ (72-14-0 \geq 98%), SMX (723-46-6 \geq 97%)은 FLUKA (USA)사의 제품을 사용하였고, SMT (57-68-1 \geq 99%), TC-hydrochloride (64-75-5 \geq 98%), CTC-hydrochloride (64-72-2 \geq 90%), OTC-hydrochloride (2058-46-0 \geq 95%)는 Sigma Aldrich 사의 제품을 구매하여 표준 용액으로 사용하였다. 시료의 추출 용매인 메탄올 (Methanol, MeOH), 아세토나이트릴 (Acetonitrile, CAN)은 HPLC급을 사용하였다.

고형상 추출법 (Solid phase extraction, SPE)에 사용된 카트리지는 Oasis HLB Cartridge (3 cc, 60 mg, Waters, USA)이며 내부 표준 물질로는 Accustandard 사의 Simeton (673-04-1, 100 $\mu\text{g mL}^{-1}$, USA)을 사용하였다. 실험에 사용된 증류수는 Fisher 사의 HPLC급을 사용하였다.

고형상에 잔류하는 항생제를 추출하기 위한 추출 용액인 McIlvain buffer는 28.41 g의 Na_2PO_4 을 넣고 1 L로 한 용

Table 1. Selected chemical properties of veterinary antibiotics used in this study (Tolls et al., 2001; Thiele-Bruhn et al., 2005).

Chemical groups	Compound	CAS number	M.W	Log Kow
Tetracyclines	Tetracycline (TC)	64-75-5	444.44	-1.19
	Oxytetracycline (OTC)	2508-46-0	460.44	-0.9
	Chlortetracycline (CTC)	64-72-2	478.89	-0.62
Sulfonamides	Sulfamethazine (SMT)	57-68-1	278.33	0.89
	Sulfamethoxazole (SMX)	723-46-6	253.27	0.89
	Sulfathiazole (STZ)	72-14-0	255.32	0.05

액 625 mL와 21.0 g 의 Citric acid을 넣고 1 L로 한 용액을 혼합하여 사용하였으며, 제조 후 상온 조건에서 3일 이내에 사용 하였다.

내부표준물질인 Simeton은 표준 용액 (100 mg L^{-1})을 HPLC급 증류수를 이용하여 10 mg L^{-1} 으로 희석한 후 냉장 보관 하였으며, 표준 용액 제조 시에는 1 mg L^{-1} , 항생제 정량을 위한 분석실험에서는 0.24 mg L^{-1} 의 용액으로 제조하여 사용하였다.

시료채취 장소 선정 및 시료 준비 가축축사와 하수 종말 처리장 인근 하천에서의 토양과 저니토 내의 항생물질 잔류량 측정을 위해 충남 공주 인근의 돼지 농장과 하수 종말 처리장의 토양 및 이에 인접한 금강의 저니토를 채취 하였다 (Fig. 1). 선정된 지점은 하수종말 처리장과 가축 사육 농가가 인근에 있는 하천으로 항생제의 발생원에 따른 항생제의 잔류 특성 및 이동을 모니터링하기 위해 시료채취 지역으로 선정하였다. 돼지 농장의 분뇨 시료는 분뇨 저장조 내의 시료를 채취하였으며 하수 종말 처리장의 슬러지는 최종 하수 처리 후 남은 슬러지를 채취하였다. 하천 주변 및 축사 주변 토양은 유기물을 제거한 후 hand auger를 이용하여 표토(0~15 cm)를 채취하였으며 하천의 저니토는 하천 가장자리에서 약 1 m 정도 지역의 수심 약 50 cm 지점에서 hand auger로 시료를 채취하였다. 모든 시료는 시료 채취 지점 인근의 3지점을 채취한 후 하나의 시료로 합하여 사용하였다.

**Fig. 1.** Schematic diagram of sampling sites.

시료 채취 후 토양과 저니토 시료는 암조건, 상온 (25°C)에서 수분이 완전 제거될 때까지 건조하였으며 가축분뇨와 슬러지는 -80°C에서 얼린 후 동결 건조 (freeze drying)하였다. 완전 건조된 시료는 2 mm로 체거름하여 항생제 분석에 사용하였다.

시료의 이화학적 특성 분석 하수 슬러지, 가축 분뇨, 토양 및 저니토에 대한 분석은 각각 폐기물 공정 시험 방법 (MOE, 2010), 비료 및 퇴비 공정 시험 방법 (RDA, 2010), 그리고 토양 및 식물체 분석법 (RDA, 2010)에 준하여 분석하였다. 분석 항목은 pH, 전기전도도 (Electrical conductivity, EC), 유기물 함량을 분석하였다.

완충 용액 (Buffer solution)을 이용한 항생제 추출 체거름한 토양, 저니토, 및 슬러지 시료는 1 g을 그리고 가축분뇨 시료는 0.1 g을 이용하여 항생제를 추출하였다. Polypropylene tube에 분석을 위한 시료를 취한 후 McIlvain buffer 용액 20 mL, 5% EDTA 250 µL를 가하여 150 rpm에서 15분간 교반 후, 원심분리기 (MF 80, Hanil, Korea)를 이용하여 4000 rpm에서 15분간 원심 분리하였다. 원심분리 후 상층액을 250 mL 삼각플라스크에 넣은 다음 냉장 보관하였으며 완충 용액을 이용한 추출 과정을 총 2번 반복하여 총 40 mL의 추출 용액을 포집하였다. 추출 후 상층액을 모아 둔 삼각플라스크에 80 mL의 증류수를 부어 총 120 mL이 되도록 한 후 0.45 µm 여과용지를 이용하여 감압 여과 후 고형상 추출 (solid phase extraction, SPE)을 실시 하였다.

고형상 추출법 (Solid Phase Extraction, SPE) 채취 한 시료 내 항생제 분석을 위해 사용한 고형상 추출법 (Solid Phase Extraciton, SPE)은 Kim and Calson (2007)의 논문을 참고 하였다. 항생물질의 포집은 OASIS® HLB Extraction Cartridge (3 cc, 60 mg, WAT094226, Waters, USA)를 사용하였다. 펌프 (DOA-P704-AC, GAST)의 압력은 40 psi 아래로 유지하며, 카트리지가 마르지 않도록 Methanol 3 mL, 0.5 N HCl 3 mL, 초순수 3 mL를 순차적으로 통과시켜 활성화 하였다. 준비된 시료는 감압 펌프를 사용하여 압력과 유속이 각각 40 psi, 2 mL min⁻¹가 되도록 설정하였다. 전처리 시료를 포집한 후 teflon tube를 제거하고, 초순수로 3 mL씩 3회 (총 9 mL) 세척하였다. 세척 후 항생물질을 추출하기 위해 15 mL Conical bottom Centrifuge tube를 이용하였으며, 이 때 내부표준물질인 simeton (0.24 mg L⁻¹) 50 µL를 tube에 넣고 카트리지에 methanol 2.5 mL씩 2회 (총 5 mL) 용리 (Elution)하였고, 용리된 항생물질은 질소 농축기 (N-EVAP-11, OASYS)를 사용하여 항온 수조 50°C에서 50 µL까지 농축 후 70 µL의 Mobil phase A (0.1% formic acid + 99.9% 초순수 증류수)를 넣고 진동 혼합 후 기기 분석에 사용하였다.

항생제 기기 분석 항생물질의 분석에 사용된 기기는 충남대학교 공동실험실습관의 High Performance Liquid Chromatography Tandem Mass Spectrometer (HPLC/MS/MS, 4000 Q TRAP, ABSCIEX, Canada)를 사용하였으며, 이동상 (Mobile phase) A는 99.9% D.I water + 0.1% formic acid, B는 99.9% acetonitrile + 0.1% formic acid를 사용하였다.

분석에 사용한 컬럼은 pore size가 3.5 µm이며, 내경이 4.6mm인 ZORBAX Eclipse Plus C18 컬럼을 사용하였다 (Table 2).

Table 2. Parameters of high performance liquid chromatography for quantification of veterinary antibiotics in samples.

Equipment	Agilent 1200 High performance Liquid Chromatograph API 4000 Liquid chromatogram Tandem Mass spectrometry	
	Column	Eclipse plus C18, 3.5 μ m, 4.6 \times 150 mm
	Guard Column	Security Guard Cartridges Kit
	Column temperature	25°C
	Mobile phase	A : 99.9% D.I water + 0.1% Formic acid (v/v) B : 99.9% ACN + 0.1% Formic acid (v/v)
LC condition	Flow rate	0.7 mL min ⁻¹
	Gradient condition	0 min : A : 90% + B : 10% 2 min : A : 90% + B : 10% 8 min : A : 50% + B : 50% 10 min : A : 0% + B : 100% 11 min : A : 0% + B : 100% 11.10 min : A : 90% + B : 10% 15.00 min : A : 90% + B : 10%
	Mode	MRM
MS/MS Condition	Drying gas and Nebulizer gas	Nitrogen gas
	Drying gas flow	10.0 L min ⁻¹
	Drying gas temperature	500°C
	Capillary Voltage	5.5 KV

분석의 정도 관리 시료 내 항생제의 정량은 표준 용액의 농도를 0.01, 0.05, 0.1, 0.5, 1.0, 5.0 mg kg⁻¹로 조제하여 작성한 검량 곡선을 이용하여 실시하였으며 항생제 종류별 r² 값은 0.96~0.99로 조사되었다. 각 환경 매체에 대한 항생제의 회수율 범위는 71~93% 였으며 정량한계 (Limit of detection, LOD)는 항생제에 따라 0.02~0.25 μ g kg⁻¹의 범위를 나타내었다 (Table 3).

Table 3. Summary of QA and QC for quantification of antibiotics (n = 3).

Antibiotics	Range of calibration curve (mg kg ⁻¹)	r ²	Recovery (%)				LOD (μ g kg ⁻¹)
			Soil	Sediment	Manure	Sludge	
TC	0.01 - 5.00	0.99	83	75	70	75	0.25
CTC	0.01 - 5.00	0.96	74	73	75	83	0.19
OTC	0.01 - 5.00	0.99	83	84	81	76	0.24
SMT	0.01 - 5.00	0.98	75	72	71	74	0.02
SMX	0.01 - 5.00	0.98	90	86	91	93	0.15
STZ	0.01 - 5.00	0.99	72	74	79	72	0.07

통계적 기법 모든 실험결과는 하나의 시료에 대해 3반복 후 평균값을 이용하였으며 유의성 검정을 위해 ANOVA 분석을 실시하여 유의수준 95% 수준 ($p < 0.05$)에서 유의성 검사를 실시하였다.

Results and Discussion

시료의 이화학적 특성 항생제 분석을 위한 가축분뇨, 하수슬러지, 토양, 및 저니토의 이화학적 특징은 각 시료의 전형적인 값을 나타내었다 (Table 4). 가축 분뇨와 하수 슬러지의 pH는 각각 7.31과 7.25로 약알칼리성의 특성을 나타내며 EC (dS m^{-1})는 각각 30.9와 0.62로 특히 가축 분뇨의 EC값이 다른 매체에 비해 높았다. 토양 및 저니토의 pH는 토양의 경우 5.75~6.50의 범위를 나타내며 약산성의 특성을 나타냈으며 저니토 pH (6.83~7.04)에 비해 낮은 것으로 조사되었다. 토양의 경우 표토를 채취하여 호기적 조건에 있는 반면 저니토의 경우 담수에 의해 pH가 토양에 비해 높은 것으로 사료되었다. 유기물 함량의 경우 가축 분뇨와 슬러지가 각각 41.3, 30.7%로 높았으며 토양 및 저니토의 경우 각각 2.38~2.98, 6.82~11.4%의 범위로 조사되었으며 토양에 비해 저니토의 유기물 함량이 더 높은 것으로 조사되었다.

Table 4. Chemical properties of samples.

Sample	pH	EC (dS m^{-1})	OM (%)
Manure	7.31 ± 0.52	30.9 ± 1.24	41.3 ± 2.78
A_se	6.83 ± 0.22	0.13 ± 0.01	11.4 ± 1.27
A_so	5.75 ± 0.30	0.10 ± 0.01	2.98 ± 0.17
Sludge	7.25 ± 0.31	0.62 ± 0.28	30.7 ± 1.82
B_se	7.04 ± 0.17	0.05 ± 0.02	6.82 ± 1.29
B_so	5.95 ± 0.20	0.08 ± 0.01	2.48 ± 0.70
C_se	7.01 ± 0.32	0.11 ± 0.02	9.53 ± 4.31
C_so	6.50 ± 0.20	0.08 ± 0.01	2.38 ± 0.19

시료 내 항생제 농도 가축 분뇨와 하수 슬러지 그리고 토양 및 하천 저니토 내 잔류하는 항생제의 농도는 Table 5에 정리하였다. 총 2 계열 6종류의 항생제를 분석한 결과 항생제별 검출 빈도는 SMT (100%) > TC = CTC (75%) > OTC (38%) > STZ (13%) > SMZ (0%)의 순이었다. 가장 높은 검출 빈도를 보인 SMT의 경우 가축분뇨 내 농도는 $309.83 \mu\text{g kg}^{-1}$ 로 분석 항생제 중 가장 높은 농도를 보였으며 하수 처리장 슬러지에서의 잔류 농도는 $5.48 \mu\text{g kg}^{-1}$ 로 조사되었다. 축사 주변 토양 및 저니토에서의 잔류 농도 범위는 $2.21\sim 3.02 \mu\text{g kg}^{-1}$ 로 가축 분뇨 및 하수 슬러지 내 잔류 농도에 비해 낮은 농도로 잔류함을 알 수 있었다. SMT 다음으로 검출 빈도가 높은 항생제는 TC와 CTC로 75% 정도의 검출 빈도를 나타내었다. 매체 별 잔류 농도를 살펴 보면 TC의 경우 하수처리장 슬러지 내 잔류 농도가 $29.32 \mu\text{g kg}^{-1}$ 로 가장 높았으며 하천의 저니토에서 $10.11 \mu\text{g kg}^{-1}$ 의 농도가 검출 되었다. 가축 분뇨의 경우 $3.79 \mu\text{g kg}^{-1}$ 으로 검출되어 하수 슬러지 또는 하천 저니토에 비해 낮은 농도가 검출되었다. 반면 CTC의 경우 가축 분뇨에서 $31.05 \mu\text{g kg}^{-1}$ 의 농도로 검출되어 가장 높은 농도가 검출되었으며 다음으로는 가축 축사 주변 하천의 저니토 내 농도가 $21.35 \mu\text{g kg}^{-1}$ 으로 높았고 하수 슬러지의 경우 $9.83 \mu\text{g kg}^{-1}$ 의 농도로 검출되었다. OTC의 경우 하수 처리장 슬러지 내 잔류 농도가 $32.59 \mu\text{g kg}^{-1}$ 으로 가장 높았으며 하천 내 저니토에서의 잔류 농도가 $10.86 \mu\text{g kg}^{-1}$ 으로 조사되었다. 가축 분뇨 내 OTC의 잔류 농도는 $3.60 \mu\text{g kg}^{-1}$ 으로 조사되었다. STZ의 경우 오직 가축 분뇨에서만 $15.68 \mu\text{g kg}^{-1}$ 의 잔류 농도가 검출 되었으며 SMZ의 경우 모든 매체에서 잔류 농도가 검출되지 않았다.

Table 5. Concentration of veterinary antibiotics in samples ($\mu\text{g kg}^{-1}$).

	SMX	STZ	SMT	TC	OTC	CTC
Manure	-	15.68	309.83	3.79	3.60	31.05
A_se	-	-	3.02	4.52	-	21.35
A_so	-	-	2.36	1.04	-	1.02
Sludge	-	-	5.48	29.32	32.59	9.83
B_se	-	-	2.21	1.02	-	2.04
B_so	-	-	2.77	-	-	-
C_se	-	-	2.58	10.11	10.86	3.96
C_so	-	-	2.34	-	-	-

매체별 항생제 농도에 따른 항생제 이동 예측 가축 분뇨와 하수 슬러지 내 잔류 항생제의 농도와 주변 토양 및 하천의 저니토 내 잔류 항생제의 농도를 비교하여 항생제의 이동을 예측하였다. 테트라사이클라인 (TCs) 계열의 항생제 경우 가축 축사와 하수 처리장 주변 토양에 비해 하천의 저니토에서 높은 농도로 검출되었다. TC와 CTC의 경우 축사 주변 하천 저니토 (A_se)의 잔류 농도 (각각 4.52, 21.35 $\mu\text{g kg}^{-1}$)가 토양 (A_so) 내 농도 (각각 1.04, 1.02 $\mu\text{g kg}^{-1}$)에 비해 약 4~20배 정도 높은 것으로 조사되었다. 하수 처리장 주변 토양 (B_so)과 하천 저니토 (B_se)에서의 잔류량을 비교한 결과 토양에서는 TC와 CTC가 검출한계 이하로 나타나는 반면 저니토에서는 각각 1.02, 2.04 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 의 수준으로 검출되었다. OTC의 경우 축사 또는 하수 처리장 인근 토양과 저니토에서 모두 검출 한계 이하로 조사되었다. 가축 축사와 하수 처리장이 합류하는 지점의 토양 (C_so)과 저니토 (C_se)의 검출 농도를 비교하였을 경우 토양에서는 TC, CTC, 그리고 OTC 모두 검출 한계 이하로 조사된 반면 저니토에서는 각각 10.11, 10.86, 3.96 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 의 농도로 검출되었다. TCs 계열의 항생제는 $\log K_{ow}$ 값의 범위가 -1.3~0.05 로 물에 잘 녹는 특성이 있으며 2가 양이온, 케톤, 그리고 silanolic group (Si-O-H)과 같은 이온성 물질과 결합을 잘하는 특성이 있다 (O'Connor and Aga, 2007; Wang and Wang, 2015). 이러한 특성을 감안하였을 경우 가축 폐수 또는 하수에 잔류하는 TCs 계열의 항생제가 하천에 용존 형태로 유입된 후 저니토 입자에 흡착된 것으로 사료된다.

SMT의 경우 가축분뇨와 하수 슬러지에서 각각 309.83, 5.48 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 의 높은 농도가 검출되었으나 하천 주변 토양과 저니토에서는 2.21~3.02 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 범위의 농도가 검출되었다. 설펜아미드 (SAs) 계열의 항생제는 TCs에 비해 비교적 물에 잘 녹지 않는 특성이 있으나 일반적인 SAs의 흡착 계수 (K_d)는 0.3~1.1으로 낮으며 컬럼을 이용한 지하수 유입 가능성을 평가한 결과 다른 항생제에 비해 지하수 유입 계수 (groundwater ubiquity scores: 5.26)가 높아 저니토에 흡착되기 보다는 심층수로 유입될 수 있는 가능성이 높을 것으로 사료된다 (Pan and Chu, 2017).

Conclusion

항생제의 환경 유입에 따른 잔류 특성과 이동성을 평가하기 위해 가축 축사와 하수 처리장에서 가축 분뇨 및 하수 슬러지 내 항생제의 잔류 농도를 측정하였으며 인근 하천의 토양과 저니토에서의 잔류 항생제 분석을 실시하였다. 총 2계열 6 종류의 항생제를 분석한 결과 SMX를 제외한 5종류의 항생제가 가축 분뇨, 하수 슬러지, 토양 및 저니토에서 1.02~309.83 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 의 범위로 잔류하였다. 가축 분뇨 내 SMT의 농도가 309.83 $\mu\text{g kg}^{-1}$ 의 농도로 가장 높게 검출되었으며 토양 또는 저니토에 비해 가축 분뇨와 하수 슬러지에서의 잔류 항생제 농도가 높게 검출되었다.

토양과 하천 저니토 내 잔류 항생제의 농도를 비교하였을 경우 TCs 계열의 항생제는 토양에 비해 저니토에서 높게 검출되었다. 본 연구에서는 인체용과 동물용으로 사용되는 항생제의 발생원 추적이 불가하였으나 추후 연구를 통하여 하천 내 항생제의 발생원 추적에 대한 연구가 필요할 것으로 사료된다.

Acknowledgement

This study was financially supported by research fund of Chungnam National University in 2015.

References

- Kahle, M. and C. Stamm. 2007. Sorption of veterinary antimicrobial sulfathiazole to organic materials of different origin. *Environ. Sci. Environ.* 41:132-138.
- Kim, K.H., Y.K. Hong, S.B. Park, S.I. Kwon, and S.C. Kim. 2014. Monitoring of veterinary antibiotics in animal compost and organic fertilizer with Charm II system. *Korean J. Soil Sci. Fert.* 47:133-139.
- Kim, K.R., G. Owens, S.I. Kwon, K.H. So, D.B. Lee, and Y.S. Ok. 2011. Occurrence and environmental fate of veterinary antibiotics in the terrestrial environment. *Water Air Soil Pollut.* 214:163-174.
- Kim, S.C. and Carlson, K. 2007. Quantification of human and veterinary antibiotics in water and sediment using SPE/LC/MS/MS. *Anal. Bioanal. Chem.* 387:1301-1315.
- Kwon, A.Y. and S.C. Kim. 2015. Estimating predicted environmental concentration of veterinary antibiotics in manure and soil. *Korean J. Soil Sci. Fert.* 48:100-104.
- O'Connor, S. and D.S. Aga. 2007. Analysis of tetracycline antibiotics in soil: Advances in extraction, clean-up, and quantification. *Trends Anal. Chem.* 26:456-465.
- Pan, M. and L.M. Chu. 2017. Leaching behavior of veterinary antibiotics in animal manure-applied soils. *Sci. Total Environ.* 579:466-473.
- Park, S.B., S.J. Kim, and S.C. Kim. 2016. Evaluating plant uptake of veterinary antibiotics with hydroponic method. *Korean J. Soil Sci. Fert.* 49:242-250.
- Seo, Y.H., B.O. Cho, A.S. Kang, B.C. Jeong, and Y.S. Jung. 2010. Antibiotic uptake by plants from soil applied with antibiotic-treated animal manure. *Korean J. Soil Sci. Fert.* 43:466-470.
- Seo, Y.H., J.K. Choi, S.K. Kim, H.K. Min, and Y.S. Jung. 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. and I.C. Beck. 2005. Effects of sulfonamide and tetracycline antibiotics on soil microbial activity and microbial biomass. *Chemosphere* 59:457-465.
- Tolls, J. 2001. Sorption of veterinary pharmaceuticals in soils: a review. *Environ. Sci. Tech.* 35:3397-3406.
- Wang, S. and H. Wang. 2015. Adsorption behavior of antibiotic in soil environment: a critical review. *Front. Environ. Sci. Eng.* 9:565-574.