

Monitoring of Veterinary Antibiotics in Animal Compost and Organic Fertilizer with CHARM II System

Ki-Hyun Kim, Young Kyu Hong, Saet Byul Park, Soon IK Kwon¹, and Sung-Chul Kim*

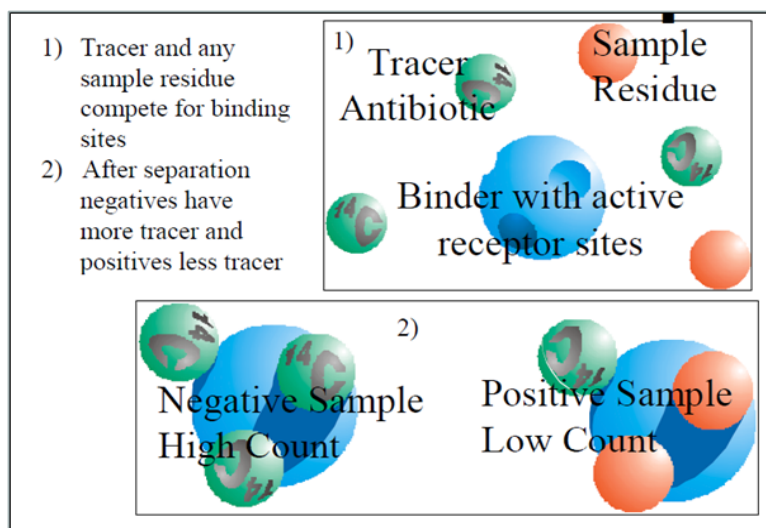
Department of Bio Environmental Chemistry, Chungnam National University, Daejeon, 305-764, Korea

¹*Climate Change and Agroecology division, National Academy of Agricultural Science, RDA, Suwon 441-707, Korea*

(Received: April 4 2014, Accepted: April 16 2014)

Veterinary antibiotics (VAs) in animal compost and organic fertilizer can have adverse effect on ecosystem and eventually human health. The main purpose of this research was to evaluate feasibility of Charm II system for monitoring residuals of VAs in animal compost and organic fertilizer. Four different VAs (Tetracyclines: TCs, Sulfonamides: SAs, Macrolides: MLs, and β -lactams: β -LTs) were analyzed and total of 100 samples were monitored. Results revealed that SAs in animal compost showed the highest detection frequency (64%) with exceeded concentration of criteria. However, very low detection frequency (0-12%) for β -LTs was observed in animal compost and organic fertilizer. Depending on physicochemical properties of each VAs, detection frequency of VAs was determined. In conclusion, charm II system can be utilized to screen if residual of VAs is in animal compost and organic fertilizer. Also, more research is necessary to establish standard method for analysis of VAs in complex matrix and to minimize adverse effect of VAs from source to environment.

Key words: Veterinary Antibiotics, Charm II system, Animal compost, Organic fertilizer



Principle of Charm II System: Use H³ and C¹⁴ tagged drug tracers with broadly specific binding agents

*Corresponding author : Phone: +82428216737, Fax: +82428216731, E-mail: sckim@cnu.ac.kr

§Acknowledgement: This study was financially supported by research fund of Chungnam National University in 2012.

Introduction

최근 가축분뇨의 해상배출 금지에 따라 가축분뇨의 안전한 관리가 중요시 되고 있으며 이에 따른 가축분 퇴비의 안전성에 대한 관심이 증대되고 있다. 가축분뇨 발생량은 2012년 기준 약 4,650만톤 정도가 발생되었으며 이중 약 80%가 퇴비로 재활용 되었다. 국내 가축분 퇴비의 생산량은 2001년 약 182만톤 정도였으며 꾸준히 증가하여 2009년에는 약 252만톤으로 35%정도 증가하였다. 또한 친환경농업 육성 정책에 의해 정부의 지원이 확대되면서 가축분 퇴비의 농가 보급이 매년 증가하고 있다. 이러한 가축분 퇴비의 사용 증가에 따라 가축분 퇴비를 안전하게 사용할 수 있는 유해물질 관리가 필요한 가운데 퇴비에 의해 작물재배환경에서 발생 가능한 유해물질 중 가축분 퇴비에 잔류하는 가축용 항생제 (Veterinary Antibiotics, VAs)에 대한 문제점이 국내 외에서 대두되고 있다.

항생제는 본래 미생물의 발육을 억제하여 가축질병을 예방, 치료 또는 성장촉진을 위한 목적으로 넓은 범위에서 사용되어진다 또한 항생제는 사용 특성상 투여한 양 중 약 10-20%만이 동물의 몸에서 병 치료나 성장촉진제로 사용되고 나머지는 배설되는 것을 고려할 때 배출된 항생제의 양은 적지 않을 것으로 사료된다 (Aust et al., 2008). 예를 들면 경구 투여된 테트라사이클린계의 항생제가 체외로 약 72% 정도 배출된다는 보고가 있다 (Winckler and Grafe, 2001). 우리나라 항생제 사용량은 2005년부터 농림수산식품부에서 추진해온 배합사료 제조용 항생제 감축정책이후 전체 축산업의 항생제 사용량은 2005년 1,553톤에서 2011년 약 956톤으로 꾸준히 사용량이 줄어들고 있지만 여전히 많은 양의 항생제가 사용되어지고 있는 실정이다 (APFQIA, 2012).

가축에게 투여된 항생물질은 대부분 배설되어 직접적으로 토양 및 수계로 유입되거나 가축분 퇴비화 과정으로 농경지에 투입됨으로써 농업환경 중으로 유입된다. 항생물질의 자연계로의 유입은 자체의 독성뿐만 아니라 인간과 환경을 위협하는 항생물질의 강한 내성을 가지는 병원균이 생성될 심각한 위험을 가지고, 수계를 포함한 생태계 오염 등의 부작용을 유발한다 (Storteboom et al., 2007). 또한 배출된 가축분뇨나 이를 이용한 퇴비가 환경에 직접 유입될 시에 높은 농도의 항생제나 중금속이 토양과 수계에 직접 악영향을 미칠 수 있다.

환경에 잔류하는 항생물질을 분석하는 방법에는 고성능 액체 크로마토그래피 (High Performance Liquid Chromatography, HPLC)를 활용하여 다양한 검출기 (Diode Array Detector (DAD), UV, and Mass spectrometry)를 이용한 방법이 주로 사용되고 있다 (Diaz-Cruz et al., 2008; Kim et al., 2005). 하지만 HPLC를 활용한 분석방법은 고가의 장비가 필요하며 분석을 하기 위한 전처리 과정이 복잡하다는 단점이 있

다 (Dolliver et al., 2008; Kwon et al., 2011). Charm II 분석법은 방사선 동위원소를 이용하는 표지검정법 (방사성 동위원소로 표시된 항원 또는 항체를 사용하여 항체 또는 항원을 측정하는 방법)으로 시료에 antibody를 넣고 미지의 항생물질을 반응시킨 후 남은 공간을 ^3H 혹은 ^{14}C 를 포함하는 동일 항생물질로 반응시켜, 반응한 ^3H 및 ^{14}C 의 양을 Charm II 로 CPM (Count Per Minute)값을 측정하여 미지의 항생물질을 간접적으로 측정하는 것이다. 이 방법은 항생제 계열에 대해 총량을 분석하는 방법으로 HPLC를 활용한 분석법에 비해 민감도나 정확성은 떨어지나 전처리 방법이 간단하며 짧은 시간 내에 분석을 마칠 수 있다는 장점이 있다 (Kim et al., 2011).

Charm II 방법을 이용하여 항생제의 잔류성분을 분석한 연구는 주로 우유, 육류고기, 꿀 등과 같은 식품 및 사료를 대상으로 진행되었다 (Meyer et al., 2000; Mor et al., 2012). 따라서 본 연구의 목적은 Charm II 분석방법을 이용하여 가축분 퇴비 및 유기질 퇴비에 잔류하는 동물용 항생제를 검출하여 항생제 종류에 따른 퇴비 내 잔류 특성을 파악하는 것이다.

Materials and Methods

항생물질 종류 설정 퇴비 내에 잔류하는 항생제 중 사용량이 많고 환경에서 잠재적 위험이 크다고 판단되는 4계열의 항생제 - 테트라사이클라인(TCs), 설펜아미이드 (SAs), 매크로라이드 (MAs), 그리고 베타락탐 (β -LTs)를 선별하였다. 선행 연구에 의하면 이들 4계열의 소비량이 전체 동물 항생제의 약 80%를 차지하고 있으며 특히 TCs의 사용량이 전체 사용량의 약 51%를 차지한다고 보고되었다 (Seo et al., 2007). 테트라사이클라인 항생제는 폴리케다이트와 나프다센 고리구조로 구성되어있으며 세가지 pK_a 값에 의해 양쪽성 화합물이라는 특징이 나타난다. 특히 TCs는 2가 양이온 금속, 베타디케톤, 단백질과 실라놀릭 그룹과 킬레이트를 형성하며 광분해에 민감한 특징이 있다 (Sassman et al., 2005; O'connor and Aga, 2007). 설펜아미이드 계열의 항생제는 가축 사료에 주로 첨가되는 항생제로서 저항성 박테리아를 생성할 수 있으며 발암물질로 작용할 수 있다 (Mor et al., 2012). 매크로라이드 계열의 항생제는 락톤 구조로 되어있으며 토양 내 흡착계수가 약 8.31 - 240 L/kg으로 입자에 흡착하는 성질이 강하며 이동성이 적은 물질이다. 또한 소수성 결합 (hydrophobic binding)에 의해 영향을 받아 log Kow 값의 범위가 2.5 - 3.5 수준인 것으로 조사되었다 (Kolz et al., 2005). 베타락탐 계열의 항생제 중 페니실린은 발견된 이후 가장 널리 사용되어진 항생제 이다. 페니실린은 β -Lactam 고리에 thiazolidine 고리가 연결된 구조를 가지고 있으며 6-aminopenicillanic acid 에서 파생되었다

(Lara et al., 2012).

시료 퇴비 내 잔류 항생제를 분석하기 위해 가축분 퇴비와 유기질 퇴비 각 50점을 농촌진흥청에서 제공 받아 분석을 실시하였다. 실온 (15°C)에서 보관 중이었던 시료를 아이스박스 (4°C)에 담아 실험실로 운반하였으며 운반 직후 시료를 암조건에서 풍건하였다. 풍건이 완료된 시료는 다시 냉장 보관한 후(4°C) 분석을 실시하였다.

시약 및 측정기기 가축분 퇴비 및 유기질 비료 내에 잔류하는 항생물질을 분석하기 위해 Charm II 분석 방법을 이용하여 분석하였다. 사용된 기기는 Charm II system 6600 (Charm Inc., MA, USA)으로 Charm II analyzer, Incubator, 그리고 원심분리기 등으로 구성되어 있다. 실험에 사용된 메탄올, 1% 인산완충용액, 그리고 0.1M 염산 등은 모두 분석용 등급 (analytical grade)을 사용하였다. 모든 표준용액 (standard solution)은 초순수 증류수 (Pure lab option-Q, ELGA, Woodridge, IL, USA)를 사용하여 조제하였다. Charm II 분석 중 양성 대조값을 산출하기 위한 표준 용액은 클로로테트라사이클라인 (Chlortetracycline), 에트로마이신 (Erythromycine), 설파메타진 (Sulfamethazine), 및 페니실린 G (Penicilline G)을 sigma-aldrich korea에서 구입하여 사용하였다. 표준 용액은 각 항생제 10 mg을 100 mL의 메탄올에 용해하여 100 mg/L의 용액을 제조한 후 약 3개월 동안 4°C에서 냉장 보관하였다. 시험에 사용되는 분석 표준용액은 100 mg/L의 표준용액을 증류수로 희석하여 사용하였다.

시료 추출 및 전처리 Charm II 분석방법을 이용하여 퇴비 시료 내 잔류 항생제를 분석하기 위한 전처리 방법은 분석 매뉴얼에 의해 시행하였다. 시료의 추출방법으로는 시료 (가축분 및 퇴비) 10 g을 정량한 후 50 mL conical tube에 담은 후, 분석하고자 하는 항생제의 종류에 따른 추출용액 20 mL를 주입하였다. 추출용액은 TCs와 SAs의 경우 0.1M HCl과 메탄올을 1:1로 혼합한 추출용액을 사용하였으며 MLs의 경우 0.1M 인산염완충액 (pH 8.0)과 메탄올을 1:1로 혼합한 추출용액을 사용하였다. 베타락탐의 경우 1% 인산염완충액 (pH 6.0)과 메탄올을 1:1로 혼합한 추출용액을 사용하였다. 1% 인산염 완충액 (pH 6.0)은 8 g의 KH_2PO_4 와 2 g의 K_2HPO_4 를 증류수 1 L에 넣어 조제하였으며 0.1M 인산염완충액 (pH 8.0)은 0.523 g의 KH_2PO_4 와 16.73 g의 K_2HPO_4 를 증류수 1L에 넣어 조제하였다. 추출용액을 넣은 시료는 10분간 초음파세척기 (Branson 3210, Branson Ultrasonic Corporation, CT, USA)를 이용하여 추출한 후 vortex를 실시하였다. 완전 혼합된 시료는 다시 원심분리기를 사용하여 3,000 g에서 10분 동안 고액 분리를 실시하였다. 고액 분리된 시료 중 상등액은 0.2 μm 의 filter paper를 사용하여 걸

러낸 뒤 분석 전까지 냉장 보관 (4°C)하였다

시료의 항생물질 검사 전처리를 마친 시료의 침출액을 취하여 Charm II 매뉴얼에 따라 항생제 잔류검사를 시행하였다. 항생제 잔류검사 순서는 항생제 계열에 따라 항원과 항체 시약을 변화하였으며 시료 주입량과 가열온도 및 첨가시약의 양 등은 일정하게 실시하였다. 간단하게 정리하면 각 항생제 계열에 따라 증류수 300 μL 에 항원시약을 첨가하고 10초간 혼합한 후 완충액 5 mL를 첨가한다. 그 후 시료 추출액 200 μL 를 넣고 10초간 혼합한 후 55°C에서 2분간 배양한다. 배양된 시료에 항체시료를 넣고 10초간 혼합한 후 55°C에서 다시 2분간 배양한다. 배양이 끝난 시료는 3분간 3,000 g에서 원심분리한 후 상등액은 다시 0.2 μm filter paper로 체거름 하였다. 체거름된 시료에 증류수 300 μL 를 첨가한 후 scintillation 용액 3 mL를 첨가하여 10초간 혼합하여 측정을 실시한다. 측정된 잔류 항생제의 값은 CPM (Count Per Minute) 수치로 나타내어 측정하였다.

Results and Discussion

시료의 이화학적 특성 가축분 퇴비와 유기질 비료의 이화학적 특성을 평가하기 위해 수분함량, pH, 전기전도도 (EC), 유기물함량을 분석하였다 (Table 1). 수분함량은 생중량의 시료 무게와 Dry oven에서 105°C으로 5시간 건조시킨 시료의 무게 차이를 생중량의 기준으로 표시하였다. pH와 EC는 퇴비 시료 5 g에 증류수 25 ml를 넣고 한시간 동안 교반한 후 pH 측정기와 EC측정기로 측정하였다. 유기물 함량은 무게를 잰 건조시료를 550°C 회화로에서 회화시킨 후 무게 차이를 건조시료의 기준으로 표시하였다. 가축분 퇴비와 유기질 비료의 수분함량은 각각 42%와 41%였으며 pH 역시 7.96, 7.43으로 큰 차이가 없었다. 또한 유기물 함량 역시 각각 76.04, 68.51%로 큰 차이가 없었다. 하지만 전기 전도도의 경우 가축분 퇴비의 평균 EC는 약 108.7 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 였으나 유기질 비료의 경우 약 40.4 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 로 큰 차이를 나타내었다. 퇴비 내 EC의 변화는 유기물 분해시 생성되는 이온과 밀접한 관계가 있으며 특히 질산태질소 (NO_3^-), 칼슘이온 (Ca^{2+}), 마그네슘 이온 (Mg^{2+}) 등에 의해 영향을 받는다 (Inbar et al., 1993). 가축분 퇴비와 유기질 비료의 EC 값을 비교

Table 1. Chemical properties of animal compost and organic fertilizer

	Animal compost	Organic fertilizer
Water Contents (%)	42.0±8.79	40.8±10.0
pH	7.96±0.90	7.44±0.96
EC($\mu\text{S}/\text{cm}$)	108.69±37.6	40.38±17.74
Organic matter (%)	76.04±7.71	68.51±7.93

한 결과 가축분 퇴비의 EC 값이 약 2.5배 정도 높았으며 이는 가축분 퇴비의 제조 과정에서 발생한 질산화에 의해 질산태 질소의 함량이 유기질 비료에 비해 높은 것에 기인한 것으로 사료된다.

기준점 (Control Point) 설정 Charm II 분석방법을 사용하여 퇴비 내 항생제의 잔류성을 판별하기 위해서는 기준점 (Control Point, CP)을 설정한다. 기준점은 실험결과가 음성인지 양성인지를 간편하게 결정하는 수치로서 기준점 설정은 각 계열의 대표가 되는 standard와 추출 버퍼를 사용한다. 우선 음성의 기준점은 추출물 대신 시료추출용 버퍼를 이용하여 항생제 분석 방법과 동일한 방법을 통해 값을 산출하였다. 양성 대조값은 테트라사이클린: 0.8 mg/kg, 설펜아미드: 0.1 mg/kg, 매크로라이드는 2.0 mg/kg, 베타락탐은 0.2 mg/kg의 농도로 기준점을 설정하였다. 추출

시료에 대한 잔류 항생제의 양성과 음성을 판별하는 기준은 시료의 측정 결과가 음성 기준점보다 높으면 음성으로 판별하고 음성 기준점보다 같거나 적으면 양성으로 판정한다. 만약 시료의 측정값이 양성 기준점보다 같거나 낮으면 기준치 이상의 양성이라고 판단한다. 항생제 계열에 따른 음성 및 양성 기준값은 Table 2에 나타내었다.

가축분 퇴비 내 항생제 잔류 특성 Charm II 분석방법을 이용하여 가축분 퇴비내 항생제 잔류 특성을 분석하였다 (Fig. 1). 테트라사이클라인의 경우 총 50점의 시료중에서 37점의 시료가 음성 기준점인 1,981보다 높은 CPM (Conut per minutes) 값을 나타내어 약 74%의 가축분 퇴비는 음성 시료인 것으로 판별되었다. 총 50점의 시료 중 13 점의 시료는 음성 기준점 보다는 낮은 CPM 값을 나타냈으나 양성 기준점인 618 보다는 낮은 값을 나타내어 약 26%의 시료는 테트라사이클라인 계열의 항생제가 잔류는 하지만 기준 보다는 낮은 농도로 잔류하고 있는 것으로 나타났다. 설펜아미드 계열의 항생제인 경우 총 50점의 시료 중 18점의 시료가 음성 기준점인 1,100 보다 낮은 값을 나타냈으나 양성 기준값인 601 보다는 높은 값을 나타내어 약 36%의 시료는 기준 보다는 낮은 농도로 잔류하는 것으로 조사되었다. 하지

Table 2. CPM value for control point of four different veterinary antibiotics with Charm II test

	Tetracyclines	Sulfonamides	Macrolides	β-lactams
Negative	1,981	1,100	1,426	1,298
Positive	618	601	606	335

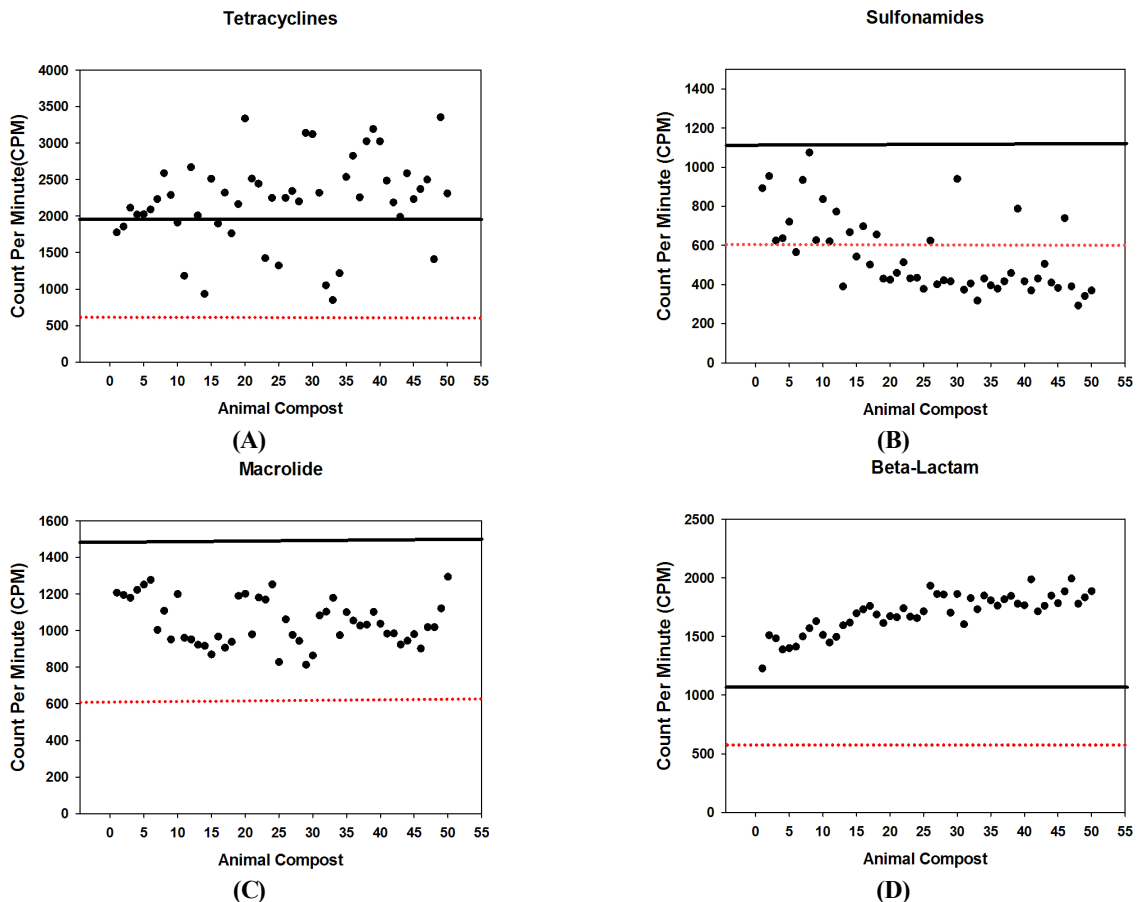


Fig. 1. Residual of veterinary antibiotics in animal compost. (A) Tetracyclines, (B)Sulfonamides, (C) Macrolides, (D) β-lactams. Solid line represents negative control point and dotted line represents positive control point.

만 테트라사이클라인과는 달리 총 50점의 시료 중 32점의 시료가 양성 기준값인 601 보다 낮은 CPM값을 나타내어 약 64%의 높은 비율을 나타내었다. 이는 두 계열의 항생제에 대한 물리화학적 특성에 기인한다. 테트라사이클라인의 경우 용해도가 약 0.4 – 1.7 g/L 인 반면 설펜아마이드 계열의 항생제는 3.9 – 20 g/L의 용해도를 가져 테트라사이클라이에 비해 보다 수용성이다 (Kim et al., 2013). 또한 두 계열의 항생제에 대한 흡착계수를 살펴보면 테트라사이클라인의 경우 토양에 대한 흡착계수 (Kd) 값이 290–1620 L/kg 정도로 높은 반면 설펜아마이드 계열의 항생제는 0.6–4.9 L/kg 정도의 흡착계수를 갖는 것으로 조사되었다 (Tolls, 2001). 특히 테트라사이클라인의 경우 2가 금속 이온과 결합이 잘 이루어져 고형물에 흡착이 잘 이루어진다 (Kim et al., 2007).

매크로라이드 계열의 항생제에서는 총 50점의 시료 중 모든 시료가 음성 기준값인 1,426 보다 낮은 CPM값을 나타내었다. 매크로라이드 계열의 항생제 중 타이로신 계열은 소화기와 호흡기의 질병을 치료하기 위해 가축용 항생제로 많이 쓰이고 있는 항생제이며 주로 돼지에 많이 쓰이는 항생제이다 (Liguoro et al., 2003; Kolz et al., 2005). 국내 가축용 퇴비의 약 60% 이상

이 돈분을 이용한 퇴비를 생산함을 가정할 경우 타이로신의 잔류에 의한 높은 검출율을 예상할 수 있다. 베타락탐 계열의 항생제에 대한 Charm II 분석 결과는 모두 음성 기준값인 1,298보다 높은 값을 나타내어 잔류 항생제가 없는 것으로 조사되었다. 베타락탐 계열의 항생제는 환경에 유입된 후 락탐 고리의 가수분해에 의해 쉽게 분해되는 특성이 있다 (Mitchell et al., 2014). 따라서 베타락탐의 가축분 퇴비 내 잔류성은 낮은 것으로 사료된다.

유기질 비료 내 항생제 잔류 특성 유기질 퇴비 내 동물용 항생제의 잔류 특성은 Fig. 2에 나타내었다. 테트라사이클라인 계열의 항생제에 대한 잔류 분석 결과 총 50점의 시료 중 43점 (86%)의 시료가 음성 기준값보다 높은 CPM을 나타내었으며 나머지 14%인 7점은 음성 기준값보다는 CPM값이 낮으나 양성 기준값보다는 높은 CPM값을 나타내었다. 가축분 퇴비 내의 테트라사이클라인 잔류 특성과 비교했을 경우 약 12% 정도 가축분 퇴비에서 테트라사이클라인의 검출율이 높았다. 설펜아마이드의 잔류 항생제 분석 결과 총 50점 중 약 80%인 40점의 유기질 비료가 음성 기준값보다 높은 CPM값을 나타내 잔류 성분이 검출되지 않았으며 14%인 7점의 시료는 양성 기준값보다 낮은 CPM을 나타내

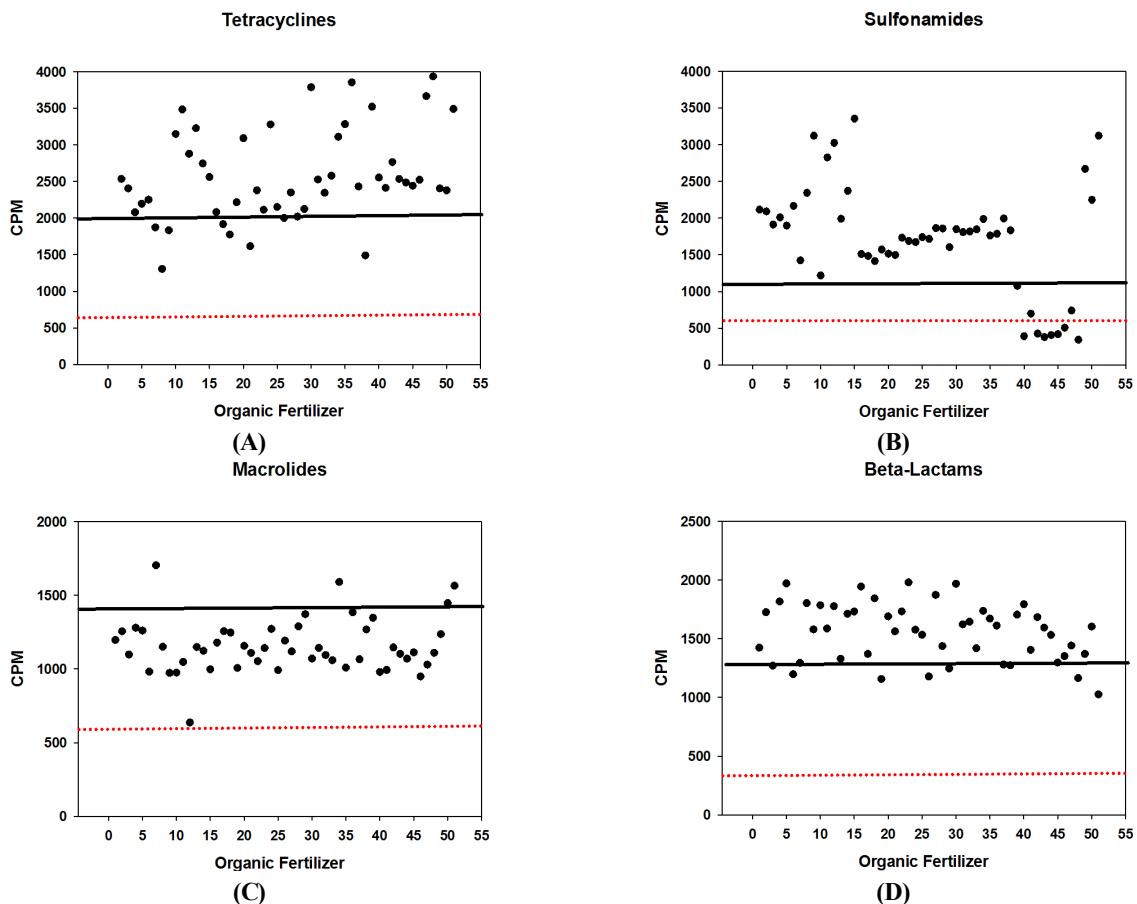


Fig. 2. Residual of veterinary antibiotics in organic fertilizer. (A) Tetracyclines, (B) Sulfonamides, (C) Macrolides, (D) β -lactams. Solid line represents negative control point and dotted line represents positive control point.

기준 이상의 설펜아미이드 계열의 항생제가 검출되었다. 가축분 퇴비와 비교하였을 경우 양성 기준값을 초과하여 검출된 비율이 약 5배정도 낮았다. 이는 가축의 배설물을 50% 이상 사용하는 가축분 퇴비에 비해 유기질 비료는 주로 톱밥, 곡물껍질, 깻묵과 같은 유기물을 혼합하여 제조하므로 동물용 항생제의 유입 가능성은 줄어든다.

하지만 매크로라이드의 경우 가축분 퇴비와 비슷한 수준의 검출율을 나타냈으며 총 50점의 시료 중 약 92%인 46점의 시료가 음성 기준값보다는 CPM값이 낮지만 양성 기준값보다는 낮은 CPM 값을 나타내었다. 베타락탐의 경우도 가축분 퇴비와 유사한 검출율을 나타내었다. 총 50점의 시료 중 88%인 44점의 시료가 잔류 성분이 없는 것으로 분석되었다.

Conclusion

가축 분뇨의 해양 투기 금지에 따라 최근 가축분뇨의 효율적인 관리가 중요시되고 있다. 가축분뇨의 자원 재활용 방안으로 퇴비화가 권장되고 있으며 특히 퇴비 내 유해물질의 안전관리에 대한 관심이 높아지고 있는 실정이다. 퇴비 내 유해물질 중 잔류 항생제에 대한 연구가 진행되고 있으며 신속한 잔류 항생제 분석을 위해 Charm II 분석 방법을 활용한 가축분 퇴비 내 잔류 항생제 특성에 대해 연구를 진행하였다. 가축분 퇴비와 유기질 비료 각 50점에 대해 총 4 계열의 항생제 잔류 특성을 분석한 결과 테트라사이클라인의 경우 66-74%의 시료는 잔류 성분이 검출되지 않았으며 14-26%의 시료는 테트라사이클라인 계열의 항생제가 가축분 퇴비나 유기질 비료에 잔류하고 있으나 기준값은 초과하지 않은 것으로 조사되었다. 설펜아미이드 계열의 항생제는 가축분 퇴비에서 약 64%인 32점의 시료가 기준값을 초과하는 것으로 조사되었으나 유기질 비료에서는 오직 14%만이 기준을 초과하였다. 매크로라이드와 베타락탐의 잔류 특성은 가축분 퇴비와 유기질 비료가 유사하였으며 특히 베타락탐의 경우 락탐 고리의 가수분해에 의한 빠른 저감 특성 때문에 비검출 비율이 88 - 100%를 나타내었다. 결론적으로 가축분뇨를 50% 이상 사용하는 가축분 퇴비의 잔류 항생제 검출율이 유기질 비료에 비해 높았으며 각기 다른 계열의 항생제에 대한 물리화학적 특성에 의해 퇴비 또는 유기질 비료 내 잔류 특성이 달라짐을 알 수 있었다. 하지만 Charm II 분석 방법의 경우 계열의 잔류 여부를 판별할 수 있는 간이 분석법으로 보다 정밀한 분석을 하기 위해서는 HPLC를 활용한 분석이 수행되어야 한다. 이를 위해서는 가축분 퇴비 및 유기질 비료에 잔류하는 항생제에 대한 간이 분석법 뿐만 아니라 정밀 분석법에 대한 체계가 구축되어야 하며 이를 바탕으로 유기농자재에 대한 항생제의 기준설정 및 저감방안, 그리고 잔류 항생제의 환경유입을 최소화 할 수 있는 관리방안 등에 대한 모색이 필요하다.

References

- Aga, D.S., S. O'Connor, S. Ensley, J.O. Payero, D. Snow, and D. Tarkalson. 2005. Determination of the persistence of tetracycline antibiotics and their degradates in manure-amended soil using enzyme-linked immunosorbent assay and liquid chromatography-mass spectrometry. *J. Agric. Food Chem.* 53(18):7165-7171.
- Animal, Plant and Fisheries Quarantine and Inspection Agency. 2012. Livestock antibiotic usage survey. <http://www.qia.go.kr>
- Aust, M.O., F. Godlinski, G.R. Travis, X. Hao, T.A. McAllister, P. Leinweber, and S. Thiele-Bruhn. 2008. Distribution of sulfamethazine, chlortetracycline and tylosin in manure and soil of Canadian feedlots after subtherapeutic use in cattle. *Environ. Pollut.* 156(3):1243-1251.
- Braschi, I., S. Blasioli, C. Fellet, R. Lorenzini, A. Garelli, M. Pori, and D. Giacomini. 2013. Persistence and degradation of new β -lactam antibiotics in the soil and water environment. *Chemosphere.* 93:152-159.
- Diaz-Cruz, M.S., M.J. Garcia-Galan, and D. Barcelo. 2008. Highly sensitive simultaneous determination of sulfonamide antibiotics and one metabolite in environmental wastewater by liquid chromatography-quadrupole liner ion trap-mass spectrometry. *J. Chrom. A.* 1193:50-59.
- Dolliver, H. and S.N. Gupta. 2008. Antibiotic degradation during manure composting. *J. Environ. Qual.* 37:1245-1253.
- Halling-Sørensen, B., G. Sengeløv, and J. Tjørnelund. 2002. Toxicity of tetracyclines and tetracycline degradation products to environmentally relevant bacteria, including selected tetracycline-resistant bacteria. *Arch Environ Contam. Toxicol.* 42(3):263-271.
- Ingerslev, F., and B. Halling-Sørensen. 2000. Biodegradability properties of sulfonamides in activated sludge. *Environ. Toxicol. Chem.* 19(10):2467-2473.
- Kim, H., Y. Hong, J. Park, K. Sharma, K. and S. Cho. 2013. Sulfonamides and tetracyclines in livestock wastewater. *Chemosphere* 91:888-894.
- Kim, K. R., G. Owens, Y.S. Ok, W.K. Park, D.B. Lee, and S.I. Kwon. 2012. Decline in extractable antibiotics in manure-based composts during composting. *Waste Manage.* 32:110-116.
- Kim, S.C., and K. Carlson. 2005. LC-MS2 for quantifying trace amounts of pharmaceutical compounds in soil and sediment matrices. *TrAC, Trends Anal. Chem.* 24:635-644.
- Kim, S.C., and K. Carlson. 2007. Temporal and spatial trends in the occurrence of human and veterinary antibiotics in aqueous and river sediment matrices. *Environ. Sci. Technol.* 41:50-57.
- Kolz, A.C., S.K. Ong, and T.B. Moorman. 2005. Sorption of tylosin onto swine manure. *Chemosphere.* 60:284-289.
- Kwon, S.I.G. Owens, G.Y.S. Ok, D.B. Lee, W.T. Jeon, J.G. Kim, and K.R. Kim, 2011. Applicability of the charm II system for monitoring antibiotic residuals in manure-based compost. *Waste Manage.* 31:39-44.
- Lara, F.J., M. Olmo-Iruela, C. Cruces-Blanco, C. Quesada-Molina,

- and A.M. García-Campaña. 2012. Advances in the determination of β -lactam antibiotics by liquid chromatography. *TrAC, Trends Anal. Chem.* 38:52-66.
- Liguoro, M.D.V. Cibir, V.F. Capolongo, B. Halling-sorensen, and C. Montesissa. 2003. Use of oxytetracycline and tylosin in intensive calf farming: evaluation of transfer to manure and soil. *Chemosphere* 52:203-212.
- Meyer, M.T., J.E. Bumgarner, J.L. Varns, J.V. Daughtridge, E.M. Hurman, and K.A. Hostetler. 2000. Use of radioimmunoassay as a screen for antibiotics in confined animal feeding operations and confirmation by liquid chromatography/mass spectrometry. *Sci. Total Environ.* 248:181-187.
- Mitchell, S. M., J.L. Ullman, A.L. Teel, and R.J. Watts. 2014. pH and temperature effects on the hydrolysis of three β -lactam antibiotics: Ampicillin, cefalotin and ceftiofur. *Sci. Total Environ.* 466-467:547-555.
- Mor, F., F.S. Kocasari, G. Ozdemir, and B. Oz. 2012. Determination of sulfonamide residuals in cattle meats by the charm II system and validation with high performance liquid chromatography with fluorescence detection. *Food Chem.* 134:1645-1649.
- National Agricultural Cooperative Federation. 2006. survey of fertilizer business statistics. Korea Fertility Industry Association.
- O'Connor, S. and D.S. Aga. 2007. Analysis of tetracycline antibiotics in soil: Advances in extraction, clean-up, and quantification. *TrAC, Trends Anal. Chem.* 26:456-465.
- Oka, H., Ito, Y., and Matsumoto, H. 2000. Chromatographic analysis of tetracycline antibiotics in foods. *J Chromatogr. A.* 882(1):109-133.
- 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(1):43-50.
- Sassman, S. A., and L.S. Lee. 2005 Sorption of three tetracyclines by several soils: Assessing the role of pH and cation exchange. *Environ. Sci. Technol.* 39:7452-7459.
- Storteboom, H. N., S.C. Kim, K.C. Doesken, K.H. Carlson, J.G. Davis, and A. Pruden. 2007. Response of antibiotics and resistance genes to high-intensity and low-intensity manure management. *J. Environ. Qual.* 36:1695-1703.
- Tolls, J. 2001. Sorption of veterinary pharmaceuticals in soils: A review. *Environ. Sci. Technol.* 35:3397-3406.
- Winckler, C., and A. Grafe. 2001. Use of veterinary drugs in intensive animal production. *J. Soils Sedim.* 1(2): 66-70.