

Research Article



CrossMark

Open Access

토양 pH와 온도 조건이 농업용 항생제 옥솔린산의 생물학적 분해에 미치는 영향

김선희¹, 김가은², 조은혜^{2*}

¹전남대학교 일반대학원 농화학과, ²전남대학교 농업생명과학대학 농생명화학과

Effect of Soil pH and Temperature on the Biodegradation of an Agricultural Antibiotic Oxolinic Acid

Seon Hui Kim¹, Ga Eun Kim² and Eun Hea Jho^{2*} (¹Department of Agricultural Chemistry, Graduate School, Chonnam National University, Gwangju 61186, Korea, ²Department of Agricultural and Biological Chemistry, College of Agriculture and Life Sciences, Chonnam National University, Gwangju 61186, Korea)

Received: 15 March 2023/ Revised: 21 March 2023/ Accepted: 22 March 2023

Copyright © 2023 The Korean Society of Environmental Agriculture

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.

ORCID

Seon Hui Kim

<https://orcid.org/0000-0002-5856-6264>

Ga Eun Kim

<https://orcid.org/0000-0001-9993-0715>

Eun Hea Jho

<https://orcid.org/0000-0003-0098-7338>

Abstract

Biodegradation of antibiotics in soil can be affected by various environmental factors. This study was set to investigate the effect of environmental conditions such as soil pH and temperature on the degradation of oxolinic acid (OA), one of the agricultural antibiotics used in South Korea, in soil. Rice paddy soil (RS) and field soil (FS) were contaminated with OA and the soil pH was adjusted to 5.7±0.2, 6.8±0.2, and 7.6±0.1. The soil samples were kept at different temperatures (2.3±0.2, 23.0±0.6, 30.5±0.3°C) for 30 d. The changes in the OA concentrations were determined at selected times. With the RS and FS, the OA removal was not affected by the soil pH used in this study; however, at pH 7.6, the OA removal in the RS was greater than that in the FS, which can be attributed to the different soil properties. The OA removal was similar at 23.0 and 30.5°C in both soils, but was lower at 2.3°C. The information on the effect of different environmental conditions on the degradation of antibiotics in soil is very limited. Therefore, further studies are needed to better

manage the residual antibiotics in the agricultural environment.

Key words: Agricultural antibiotics, Biodegradation, Oxolinic acid, pH, Temperature

서론

퀴놀론계 항생제인 옥솔린산(oxolinic acid; OA)은 박테리아 디옥시리보핵산(deoxyribonucleic acid; DNA) 자이레이스(gyrase)를 억제하여 감초 세균점무늬병, 갓 무름병, 강활 췌양병 등 다양한 농작물의 병해방제용으로 사용되고 있는 항균성 물질로 가축, 양어 양식에도 널리 사용되고 있어, 배설물을 통해 환경으로 유입될 가능성이 있다[1-3]. 또한 옥솔린산은 국내에서 농업용 항생제로 사용되고 있는 물질로 기존에 알려진 옥시테트라사이클린, 시프로플록사신과 같이 토양 환경으로 유입되어 잔류할 가능성이 있다[4,5]. 농·축산업 분야에서 사용되고 있는 옥솔린산과 같은 항생제 물질이 환경으로 유입되면 환경 중 미생물 군집에 영향을 미치거나 내성균의 출현 등과 같은 환경적 문제를 일으킬 수 있다[6-8].

사용 중 또는 사용 후 환경으로 유입된 농업용 항생제는 환경에서 물리·화학적 반응(예: 가수분해, 광분해) 또는 생물학적 반응에 의해 자연적으로 분해될 수 있다[9-14]. 특히, 대부

* Corresponding author: Eun Hea Jho
Phone: +82-62-830-2134; Fax: +82-62-530-2139;
E-mail: ejho001@jnu.ac.kr

분의 기존 연구들이 수중 항생제 분해에 대해 보고하고 있다. 예를 들어, 폐수 내 시프로플록사신, 아목실린, 설파메톡사졸과 같은 항생제 물질이 광분해에 의해 빠르게 분해(반감기가 25분 이내)될 수 있음을 확인하였다[9]. 수중 옥시테트라사이클린의 경우 광 종류에 따라 광분해 반감기가 달랐고, 가시광선, UV-A, UV-C 중 높은 광에너지를 가진 UV-C에 의한 분해 반감기가 가장 짧았다[10]. 또한 세팔렉신, 테트라사이클린, 아목실린, 암피실린, 오픈록사신, 플로르페니콜, 설파디아진과 같은 항생제 물질이 수중에서 가수분해에 의해 분해될 수 있음도 확인하였다[11]. 뿐만 아니라 수중에서 옥시테트라사이클린, 티로신, 모네신, 설파메톡사졸이 생물학적으로도 분해될 수 있음이 보고되었다[12]. 미생물에 의한 옥시테트라사이클린의 분해는 미생물이 생산하는 망간퍼옥시데이즈(manganese peroxidase)와 라케이스(laccase)와 같은 효소와 관련이 있다고 알려진 바 있고[13], 살충제인 다이아지논의 경우도 미생물에 의해 생성된 모노옥시제네이스(monooxygenase) 및 에스테라아제(esterase)와 같은 효소에 의해 분해가 촉진될 수 있다[14].

환경 중 항생제의 미생물에 의한 분해는 다양한 환경 인자(예: 온도, pH) 및 오염특성(항생제 종류, 농도 등)에 의해 영향을 받을 수 있다[15]. 예를 들어, 돼지 거름의 pH를 중성(7.4)에서 산성(5.4)으로 조정 후 설폰아미이드의 제거율이 43% 증가하였으며 중성 돼지 거름의 경우 프로테오박테리아(Proteobacteria)가 51.4%로 우세하였으나 산성 돼지 거름의 경우 후벽균(Firmicutes)이 87%로 우세하였고, 증가한 설폰아미이드의 제거율과 pH 변화에 따른 우점종의 변화 사이에 관련이 있을 것으로 예측한 바 있다[16]. 또한, 낮은 온도(7.5°C)에서 설파메톡사졸의 생물학적 분해 반감기(degradation time for 50%, DT 50)는 높은 온도(25°C)에서 보다 약 1.5-5배 증가하여 분해속도가 느려졌다[17].

환경 중 항생제 분해 관련 기존 연구들은 대부분 수중 광분해에 치우쳐져 있고, 토양 중 항생제 분해에 대한 연구, 특히, 생물학적 분해에 대한 연구가 부족하다. 옥솔린산의 경우도 초순수와 자연수(예: 양식장 물)에서 옥솔린산의 광분해 정도를 비교하고, 유기물과 염도와 같은 환경적 요인이 광분해에 미치는 영향을 알아보는 등 수계 내 광분해에 대한 연구들은 수행된 바 있으나, 토양 중 옥솔린산의 분해, 특히, 생물학적 분해에 대한 연구는 매우 미흡한 실정이다[18,19]. 옥솔린산은 기존에 알려진 미생물 유래 농업용 항생제들과 달리 화학적 합성으로 만들어진 물질이므로 이 물질을 본 연구의 대상물질로 선정하였다[1]. 따라서 본 연구에서는 토양 환경 요인 중 pH와 온도 조건이 토양 중 옥솔린산의 생물학적 분해에 미치는 영향을 알아보기 위해 수행되었다.

재료 및 방법

시약

본 연구에 사용된 옥솔린산(100%) 표준품은 Sigma-Aldrich(St. Louis, MO, USA)에서 구입하여 사용하였으며, 옥솔린산 약제 제품은(비천무; 20%) 태준아그로텍(경기도, 대

한민국)에서 구입하여 사용하였다. 옥솔린산 오염 토양에서 옥솔린산 추출에 사용한 포름산(85.0%)은 삼천 화학(서울, 대한민국)에서 구입하였으며, 버퍼는 10 mM 무수제이인산나트륨(Sodium phosphate dibasic, anhydrous, 99.0%)과 10 mM 제일인산나트륨 1수화물(Sodium phosphate, monobasic monohydrate, >98.0%)을 혼합하여 최종 부피 1 L에 용해 후 사용하였다. 기기분석에 사용된 아세토니트릴과 메탄올은 HPLC 등급으로 Honeywell Burdick & Jackson(Charlotte, USA)에서 구입하였으며, 물은 HPLC 등급으로 J.T.Baker(Phillipsburg, NJ, USA)에서 구입하여 사용하였다. 포름산은 LC/MS 등급으로 Thermo Fisher Scientific(Massachusetts, USA)에서 구입하여 사용하였다.

pH 및 온도 조건에 따른 토양 중 옥솔린산의 분해 실험

본 연구에서는 D시 밭 토양(Field soil, FS)과 G시 논 토양(Rice paddy soil, RS)을 채취하여 풍건 후 2 mm 체로 체 거름하여 사용하였다. 밭 토양의 pH와 총유기탄소 함량은 각각 6.7과 4.18%인 미사질 양토(silt loam)였고, 논 토양의 pH와 총유기탄소 함량은 각각 6.2와 2.47%인 양질토(loam)였다. 준비한 밭 토양과 논 토양을 옥솔린산 약제로 오염시켜 초기 농도를 6.4 ± 1.2 mg/kg로 준비하였다. 토양 pH가 옥솔린산 분해에 미치는 영향을 알아보기 위해 $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ 및 CaCO_3 를 이용하여 토양 pH를 5.7 ± 0.2 , 6.8 ± 0.2 , 7.6 ± 0.1 로 조절하였고, 온도가 옥솔린산 분해에 미치는 영향을 알아보기 위해 $2.3 \pm 0.2^\circ\text{C}$, $23.0 \pm 0.6^\circ\text{C}$, $30.5 \pm 0.3^\circ\text{C}$ 에서 실험을 수행하였다. 2.3°C 는 냉장고(C110AHB, LG전자, 대한민국)를 이용하여 유지하고, 30.5°C 는 진탕 배양기(ThermoStable TM IS-30, 대한과학, 대한민국)를 이용하여 유지하였다. 23.0°C 는 상온에서 실험하며 온도를 모니터링 하였다. 분해 실험 중 토양의 수분함량은 수분 보유량의 60% 정도로 유지하였고, 수분이 날아가는 것을 방지하기 위해 시료 용기를 파라필름으로 감싼 후 분해 실험을 30일간 수행하였다. 모든 실험은 3반복으로 진행하였다.

토양 중 옥솔린산의 추출, 정제 및 분석

토양 시료(2 g)를 증류수로 30분간 습윤화 한 후, 아세토니트릴/버퍼(80/20, v/v)와 포름산을 첨가하여 진탕 추출(700 rpm, 10분)하였다. 이후 아스코르브산, 염화나트륨, 포름산을 넣고 한 차례 더 진탕 추출(700 rpm, 10분)한 후 원심분리(3000 rpm, 10분, 4°C)하였다. QuEChERS dispersive kit E202(Korea Research Institute of Analytical Technology (KRIAT), 대전, 대한민국)를 이용하여 상등액을 정제한 후 0.2 mm 시린지 필터로 여과하였다.

옥솔린산 분석을 위해 액체 크로마토그래피(Liquid chromatography (LC), Exion LC™ AC, AB SCIEX, USA)와 질량분석기(tandem mass spectrometry (MS-MS), Triple Quad 4500, AB SCIEX, USA)를 사용하였다. 칼럼으로는 YMC-Pack Pro C18 RS column (3.0 mm I.D. x 100 mm L., 3 mm particle size)을 사용하였고, 이동상으로는 0.1% 포름산을 포함한 물과 0.1% 포름산을 포함한 아세토니트릴을 사용하였다.

옥솔린산 분해속도 및 반감기 산출

토양 내 옥솔린산의 분해속도와 반감기를 산출하기 위해 유사 1차 반응 속도식(Eq. 1)을 이용하였다[10,20].

$$\log\left(\frac{C_t}{C_0}\right) = -kt \quad (1)$$

여기에서 C_t 는 특정 시간에 측정된 옥솔린산 농도(mg/kg), C_0 는 초기 옥솔린산 농도(mg/kg), k 는 유사 1차 분해상수 (1/d), t 는 시간(d)이다.

결과 및 고찰

토양 pH가 토양 중 옥솔린산 분해에 미치는 영향

Fig. 1은 토양 pH가 옥솔린산 분해율에 미치는 영향을 보여준다. 밭 토양(FS)에서 옥솔린산의 평균 저감율은 pH 5.7, 6.8, 7.6에서 각각 23%, 24%, 12%로, pH 7.6에서 평균 분해율이 낮았지만, pH별에 따른 분해율 차이는 유의하지 않았고, 분해속도도 비슷한 수준이었다(Fig. 1, Table 1). 논 토양(RS)의 경우도 30일 후 옥솔린산 분해율이 30-35%로 pH의 영향을 받지 않았고, 분해속도도 비슷한 수준이었다(Fig. 1, Table 1). 밭 토양과 논 토양에서 옥솔린산의 분해 반감기를 비교하

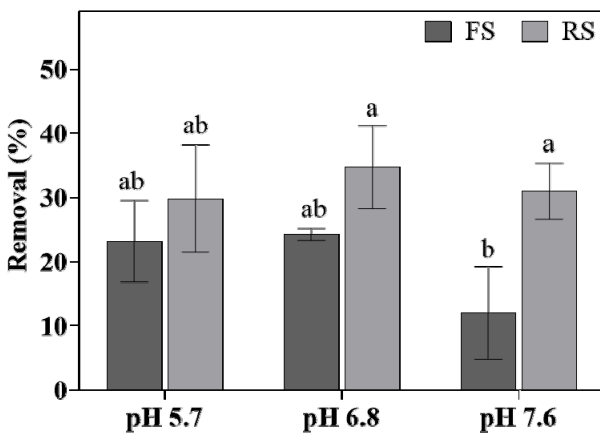


Fig. 1. Oxolinic acid removal (%) in the field soil (FS) and rice paddy soil (RS) at different pH conditions at 23.0±0.6°C after 30 d-degradation period.

면, pH 7.6일 때 밭 토양보다 논 토양에서 분해가 더 빨랐고 (Table 1), 분해율도 높았다(Fig. 1).

본 연구에서 사용한 논 토양(pH 6.2)과 밭 토양(pH 6.7)의 초기 pH는 비슷한 수준이었으나, 총유기탄소 함량은 밭 토양(4.18%)이 논 토양(2.47%)에 비해 높은 편이었다. 밭 토양의 높은 유기탄소함량은 옥솔린산의 흡착 정도가 밭 토양에서 더 크다는 것을 의미할 수 있고, 이는 밭 토양에서 더 긴 옥솔린산의 분해 반감기를 일부 설명할 수 있다. 이와 유사하게 기존 연구에서 설파메타진의 분배계수(K_d) 값이 토양 내 유기탄소함량에 비례하여 증가하였고, 이는 유기탄소함량이 설파메타진 흡착에 영향을 미침을 의미한다[21]. 또한, 수중 부유물질의 입자 크기가 옥솔린산의 거동에 영향을 미칠 수 있다[22]. 부유물질의 입자크기가 클 때(예: 모래)보다 부유물질의 입자크기가 작을 때(예: 점토) 부유물질에 대한 옥솔린산의 흡착이 증가하여 옥솔린산의 거동에 영향을 미칠 수 있다[22]. 반면 기존 한 연구에서 토양 특성이 다른 두 토양에서 옥솔린산의 분해 반감기를 비교하였으나 유의한 차이를 보이지 않았다[23]. 토양 유기물 함량이 2.3%이고 pH가 5.8인 양질토(loam)와 토양 유기물 함량이 2.8%이고 pH가 4.7인 미사질양토(silt loam)에서 옥솔린산의 반감기는 각각 25.2일과 26.2일이었고, 통계적으로 유의한 차이를 나타내지 않았다[23]. 따라서 밭 토양과 논 토양에서의 옥솔린산의 분해를 보았을 때, 토양 중 옥솔린산의 분해는 토양의 pH뿐 아니라 토양의 다른 특성(유기물 함량, 토성 등)에도 영향을 받을 수 있음을 알 수 있다[24].

온도가 토양 중 옥솔린산 분해에 미치는 영향

온도가 토양 중 옥솔린산 분해에 미치는 영향은 Fig. 2와 같다. 밭 토양과 논 토양에서 온도가 2.3°C에서 30.5°C로 증가함에 따라 옥솔린산의 평균 분해율도 각각 1.9-11%에서 28-40%로 증가하였다(Fig. 2). 온도에 따른 옥솔린산의 분해 증가는 반감기의 감소로도 확인할 수 있다(Table 2). 밭 토양과 논 토양 각각에서 23.0°C와 30.5°C에서의 옥솔린산 분해는 통계적으로 유의한 차이를 나타내지 않았으나(p -value > 0.05), 2.3°C에서는 두 토양 모두에서 분해가 느리게 일어났다(Fig. 2, Table 2). 밭 토양과 논 토양을 비교했을 때, 같은 온도에서 옥솔린산의 평균 분해율은 논 토양에서 더 높았으나, 이는 통계적으로 유의하지 않았다(Fig. 2).

기존 연구에서도 온도가 환경 매체 내 항생제 반감기에 미

Table 1. Degradation rate and half-life of oxolinic acid in the field soil (FS) and rice paddy soil (RS) at different pH conditions (23.0±0.6°C)

Soil	pH	Initial concentration (mg/kg)	Degradation rate (1/d)	Half-life (d)
FS	5.7±0.2	6.4±1.2	0.0049±0.0035	62.5
	6.8±0.2		0.0050±0.0025	69.7
	7.6±0.1		0.0036±0.0025	105.0
RS	5.7±0.2		0.0067±0.0027	55.4
	6.8±0.2		0.0085±0.0025	42.6
	7.6±0.1		0.0074±0.0026	51.0

Table 2. Degradation rate and half-life of oxolinic acid in the field soil (FS) and rice paddy soil (RS) at different temperatures (pH 6.8±0.2)

Soil	Temperature (°C)	Initial concentration (mg/kg)	Degradation rate (1/d)	Half-life (d)
FS	2.3±0.2	6.4±1.2	0.0014±0.0011	225.4
	23.0±0.6		0.0050±0.0025	69.7
	30.5±0.3		0.0060±0.0027	56.8
RS	2.3±0.2		0.0038±0.0028	86.9
	23.0±0.6		0.0085±0.0025	42.6
	30.5±0.3		0.0104±0.0028	29.4

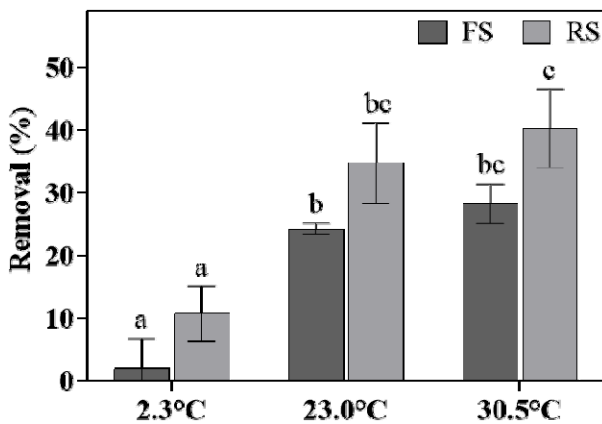


Fig. 2. Oxolinic acid removal (%) in the field soil (FS) and rice paddy soil (RS) at different temperatures at pH 6.8±0.2°C after 30 d-degradation period.

치는 영향을 보고한 바 있다. 예를 들어, 수중 옥시테트라사이클린, 설파메톡사졸, 티로신 및 모넨신의 반감기가 4°C에서 46-204일에서 20°C에서 6.5-16일로 감소하였다[12]. 또한 토양 중 설파메톡사졸의 반감기도 7.5°C에서 19.69-29.88일에서 25°C에서 4.31-14.15일로 감소하였다[17]. 이와 같이 환경 매체 중 항생제의 분해가 온도가 낮을 때보다 높을 때 더 빠르게 일어나는 것을 알 수 있다. 이는 환경 매체 중 항생제의 분해에 관여하는 생물학적 활성이 온도에 영향을 받기 때문이라고 볼 수 있다[17].

본 연구 결과에 따르면 논 토양과 밭 토양에서 30일 후 옥솔린산의 생물학적 분해 정도는 23.0°C에서 각각 30-35%와 12-24% 정도이고(Fig. 1), 반감기는 각각 42.6-55.4일과 62.5-105.0일 정도였다(Table 1). 기존 옥솔린산의 토양 중 생물학적 분해 관련 연구는 매우 제한적이다. 한 연구에서는 양식장 퇴적물 내 옥솔린산의 반감기를 98.7일로 보고한 바 있고[19], 국내 포장조건에서 토양 중 옥솔린산의 반감기는 적용한 모델에 따라 2.8-42.7일의 범위를 가지고 있다고 보고한 바 있다[25]. 기존 연구 및 본 연구에서 도출된 반감기 범위를 볼 때 토양 중에서 옥솔린산은 매우 느리게 분해되는 것을 알 수 있다. 토양뿐 아니라 수중 옥솔린산의 생물학적 분해도 거의 되지 않는다고 보고되고 있다[26]. 광이 없는 암조건에서는 5개월이 지난 후에도 80% 정도의 옥솔린산이 수중에 잔류한다고 보고된 바 있다[26]. 옥솔린산의 생물학적 분해 관련 연구는 매우

소수이고, 이들 연구 중 옥솔린산의 생물학적 분해에 관여하는 미생물이나 생물학적 분해 기작 관련 연구는 없다. 이는 앞으로 환경 중 옥솔린산의 생물학적 분해에 관여하는 미생물이나 생물학적 분해 기작 관련 연구가 필요함을 시사한다.

본 연구에서는 토양 환경 요인 중 pH (pH 5.7, 6.8, 7.6)와 온도(2.3, 23.0, 30.5°C) 조건이 토양 중 옥솔린산의 생물학적 분해에 미치는 영향을 알아보기 위해 수행되었다. 실험에 사용한 밭 토양과 논 토양에서 옥솔린산의 분해는 실험에 사용한 pH 조건에 영향을 받지 않았다. 밭 토양과 논 토양의 경우 논 토양에서 pH 7.6일 때 분해율이 더 높았고, 이는 밭 토양과 논 토양의 특성 차이로 인한 것으로 볼 수 있다. 온도 조건에 따른 옥솔린산의 분해는 밭 토양 및 논 토양 모두에서 온도가 23.0°C와 30.5°C일 때는 비슷하였으나, 온도가 2.3°C일 때 분해율이 현저히 감소하는 것을 확인하였다. 토양 중 옥솔린산과 같은 항생제의 생물학적 분해는 토양 특성 및 환경 조건에 영향을 받을 수 있고, 사계절이 있는 우리나라 같은 경우 농경지로 유입되어 잔류하는 항생제의 관리를 위해 이러한 환경 조건들이 항생제 분해에 미치는 영향을 이해하는 것이 항생제의 관리에 있어 중요하다고 할 수 있다. 따라서 안전한 농업환경 및 농작물 관리를 위해 옥솔린산과 같은 항생제의 토양 중 거동에 대한 이해를 위한 연구가 지속적으로 필요하다.

Note

The authors declare no conflict of interest.

Acknowledgement

This work was carried out with the support of "Cooperative Research Program for Agriculture Science and Technology Development (Project No. PJ01571602)" Rural Development Administration, Republic of Korea.

References

- Cardenas-Trivino G, Burgos M, von Plessing C (2018) Microencapsulation of oxolinic acid with chitosan beads. *Journal of the Chilean Chemical Society*, 63(4), 4229-4238. <https://doi.org/10.4067/S0717-97072018000404>

- 229.
2. Irgi EP, Geromichalos GD, Balala S, Kljun J, Kalogianis S, Papadopoulos A, Turel I, Psomas G (2015) Cobalt(II) complexes with the quinolone antimicrobial drug oxolinic acid: Structure and biological perspectives. *RSC Advances*, 5(46), 36353-36367. <https://doi.org/10.1039/C5RA05308K>.
 3. Rigos G, Nengas I, Alexis M, Troisi GM (2004) Potential drug (oxytetracycline and oxolinic acid) pollution from mediterranean sparid fish farms. *Aquatic Toxicology*, 69(3), 281-288. <https://doi.org/10.1016/j.aquatox.2004.05.009>.
 4. Pan M, Chu LM (2017) Fate of antibiotics in soil and their uptake by edible crops. *Science of the Total Environment*, 599-600, 500-512. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.04.214>.
 5. Seo YJ, Lee R, Jho EH (2022) Sorption characteristics of tetracycline in water on microplastics. *Korean Journal of Environmental Agriculture*, 41(4), 276-281. <https://doi.org/10.5338/KJEA.2022.41.4.33>.
 6. Grenni P, Ancona V, Barra Caracciolo A (2018) Ecological effects of antibiotics on natural ecosystems: A review. *Microchemical Journal*, 136, 25-39. <https://doi.org/10.1016/j.microc.2017.02.006>.
 7. Feng Y, Hu J, Chen Y, Xu J, Yang B, Jiang J (2022) Ecological effects of antibiotics on aquaculture ecosystems based on microbial community in sediments. *Ocean & Coastal Management*, 224(5), 106173. <https://doi.org/10.1016/j.ocecoaman.2022.106173>.
 8. Zhao R, Feng J, Liu J, Fu W, Li X, Li B (2019) Deciphering of microbial community and antibiotic resistance genes in activated sludge reactors under high selective pressure of different antibiotics. *Water Research*, 151(6), 388-402. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2018.12.034>.
 9. Rizzo L, Fiorentino A, Anselmo A (2013) Advanced treatment of urban wastewater by UV radiation: Effect on antibiotics and antibiotic-resistant *E. coli* strains. *Chemosphere*, 92(2), 171-176. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2013.03.021>.
 10. Lee YJ, Lee JM, Lee CG, Park SJ, Jho EH (2022) Photodegradation behavior of agricultural antibiotic oxytetracycline in water. *Water*, 14(21), 3379. <https://doi.org/10.3390/w14213379>.
 11. Ding Y, Jiang W, Liang B, Han J, Cheng H, Haider MR, Wang H, Liu W, Liu S, Wang A (2020) UV photolysis as an efficient pretreatment method for antibiotics decomposition and their antibacterial activity elimination. *Journal of Hazardous Materials*, 392, 122321. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2020.122321>.
 12. Cha J, Carlson KH (2019) Biodegradation of veterinary antibiotics in lagoon waters. *Process Safety and Environmental Protection*, 127, 306-313. <https://doi.org/10.1016/j.psep.2019.04.009>.
 13. Kim JH, Rhee YH, Choi JW, Lee KS (1989) Microbial degradation of diazinon in submerged soil. *Korean Journal of Microbiology*, 27(2), 139-146.
 14. Suda T, Hata T, Kawai S, Okamura H, Nishida T (2012) Treatment of tetracycline antibiotics by laccase in the presence of 1-hydroxybenzotriazole. *Bioresource Technology*, 103(1), 498-501. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2011.10.041>.
 15. Yan ZY, Chen JF, Liu YY, Shao JH, Shu P, Wen SL (2017) Effects oxytetracycline on bacterial diversity in livestock wastewater. *Environmental Engineering Science*, 34(4), 265-271. <https://doi.org/10.1089/ees.2016.0425>.
 16. Lin H, Sun WC, Yu QG, Ma JW (2020) Acidic conditions enhance the removal of sulfonamide antibiotics and antibiotic resistance determinants in swine manure. *Environmental Pollution*, 263(Pt A), 114439. <https://doi.org/ARTN11443910.1016/j.envpol.2020.114439>.
 17. Srinivasan P, Sarmah AK (2014) Dissipation of sulfamethoxazole in pasture soils as affected by soil and environmental factors. *Science of the Total Environment*, 479-480(1), 284-291. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2014.02.014s>.
 18. Louros VLD, Silva CP, Nadais H, Otero M, Esteves VI, Lima DLD (2020) Oxolinic acid in aquaculture waters: Can natural attenuation through photodegradation decrease its concentration?. *Science of the Total Environment*, 749(4), 141661. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.141661>.
 19. Lai HT, Lin JJ (2009) Degradation of oxolinic acid and flumequine in aquaculture pond waters and sediments. *Chemosphere*, 75(4), 462-468. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2008.12.060>.
 20. Yun SH, Jho EH, Jeong S, Choi S, Kal Y, Cha S (2018) Photodegradation of tetracycline and sulfathiazole individually and in mixtures. *Food and Chemical Toxicology*, 116(Part B), 108-113. <https://doi.org/10.1016/j.fct.2018.03.037>.
 21. Lertpaitoonpan W, Ong SK, Moorman TB (2009) Effect of organic carbon and pH on soil sorption of sulfamethazine. *Chemosphere*, 76(4), 558-564. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2009.02.066>.

22. Yoon DH, Kim MC (2006) Effects of suspended solids, pH and salinity on the chemical fate of oxolinic acid in the aquatic environment. *Journal of the Korean Society of Marine Environment & Safety*, 12(25), 99-106.
23. Yang JE, Park DS, Han DS (1995) Comparative assessment of the half-lives of benfuresate and oxolinic acid estimated from kinetic models under field soil conditions. *Korean Journal of Environment Agriculture*, 14(3), 302-311.
24. Zhi D, Yang D, Zheng Y, Yang Y, He Y, Luo L, Zhou Y (2019) Current progress in the adsorption, transport and biodegradation of antibiotics in soil. *Journal of Environmental Management*, 251, 109598. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2019.109598>.
25. Yang JE, Park D-S, Han D-S (1995) Comparative assessment of the half-lives of benfuresate and oxolinic acid estimated from kinetic models under field soil conditions. *Korean Journal of Environmental Agriculture*, 14(3), 302-311.
26. Turiel E, Bordin G, Rodríguez AR (2005) Study of the evolution and degradation products of ciprofloxacin and oxolinic acid in river water samples by HPLC-UV/MS/MS-MS. *Journal of Environmental Monitoring*, 7(3), 189-195. <http://doi.org/10.1039/B413506G>.