Korean J. Org. Agric.
Volume 32, Number 1: 107-125, February 2024
http://dx.doi.org/10.11625/KJOA.2024.32.1.107

ISSN 1229-3571 (Print)
ISSN 2287-819X (Online)

농업용수 관개방법에 따른 축산용 항생제의 토양중 잔류와 적상추와 열무 작물로의 흡수·이행*

박영재** · 전희수*** · 조재영****

Soil Residues and Absorption-translocation into Red Lettuce and Young Radish Crops of Veterinary Antibiotics According to Agricultural Water Irrigation Method

Park, Young-Jae · Jeon, Hee-Su · Cho, Jae-Young

Three types of veterinary antibiotics, including oxytetracycline (OTC) and chlortetracycline (CTC) of tetracycline class and amoxicillin (AMX) of penicilline class, were artificially introduced into the irrigation water. The residue of veterinary antibiotics in the soil, the absorption-translocation of veterinary antibiotics into the red lettuce and young radish plant, and crops yield were investigated according to the agricultural water irrigation method (surface drip irrigation, underground drip irrigation, and sprinkler irrigation). There was no significant difference in the residue and translocation of veterinary antibiotics in the soils and crops according to the irrigation method and type of veterinary antibiotics ($p>0.05$). For the edible parts of red lettuce and young radish, all three types of veterinary antibiotics were found to be below the detection limit, indicating that the safety of the crops was secured. The translocation factor of red lettuce and young radish were found to be less than 0.3 and 0.2, respectively. However, continuous introduction of veterinary antibiotics in agricultural arable lands may have negative effects by affecting soil microbial activity and soil microbe species diversity, so continuous management is deemed necessary.

Key words : *amoxicillin, bioconcentration factor, chlorotetracycline, oxytetracycline, veterinary antibiotics*

* 본 연구는 농촌진흥청 국립농업과학원 연구비 지원(PJ015716032023)에 의해 수행되었습니다.
** 기전대학교 말산업복합센터 교수
*** 전북대학교 생물환경화학과 석사과정
**** Corresponding author, 전북대학교 생물환경화학과 교수(soilcosmos@jbnu.ac.kr)

Ⅰ. 서 론

축산용 항생제는 산업동물(소, 돼지, 닭)의 치료, 성장촉진 및 질병예방을 위해 광범위하게 사용되고 있다. 2010년 축산분야에서 사용한 동물용 의약품의 양은 총 63,151 MT (Metric ton)이며, 2030년 동물용 의약품 사용량은 2010년 대비 67% 증가한 105,596 MT에 이를 것으로 전망되고 있다(Van Boeckel et al., 2015). 우리나라의 경우 2011년 기준 소, 돼지, 닭 등 동물용 의약품의 사용량은 717 MT에서 2020년 기준 761 MT으로 약 10% 이상 증가할 것으로 추정하였다(Jo, 2013). 현재, 국내에서 사용되고 있는 약 27종의 동물용 의약품 가운데 마크로라이드(Macrolides), 페니실린(Penicillins), 그리고 테트라사이클린(Tetra- cyclines)이 가장 널리 사용되고 있다.

축산용 항생제 중 상당량이 환경 중으로 배출되어 인체 및 생태계에 유해화학물질로서 작용할 수 있다. 배합사료 제조용, 수의사 처방용, 자가치료 및 예방용도로 동물에 노출된 축산용 항생제의 70~80%가 가축배설물을 통해 배출되는 것으로 잘 알려져 있다(Tasho and Cho, 2016). 다른 연구에서는 축산용 항생제의 최대 90%가 모화합물(parents compound)로 배설될 수 있으며, 테트라사이클린의 경우 경구 투여량의 약 25%가 대변으로 배설되고, 약 50~60%가 모화합물 또는 활성 대사물질의 형태로 소변을 통해 배출되는 것으로 보고되어 있다(Kumar et al., 2005). 축산용 항생제는 가축배설물(분뇨)에 함유된 채로 퇴비화 공정을 거친 다음 농경지에 처리되고 있어 직접적으로, 비의도적으로 농업생태계에 유입되고 있다(Halling-Sorensen, 2000).

우리나라 하천에서 다빈도, 고농도로 검출되는 축산용 항생제는 테트라사이클린(tetracyclines, 2,096 ng/L), 옥시테트라사이클린(oxytetracyclines, 1,236 ng/L) 그리고 클로로테트라사이클린(chlorotetracyclines, 793 ng/L)으로 나타났으며, 수권 생태계로 유출된 각종 축산용 항생제가 직 · 간접적으로 인간이나 중요한 생물종(keystone species)에 영향을 끼쳐 생태계를 교란시킬 수 있으며, 대표적으로 항생제 내성균 문제도 심각하게 제기되고 있는 실정이다(Kim et al., 2008). 특히, 농경지에 잔류하는 축산용 항생제는 농작물에 의해 흡수되어 인간 건강에 악영향을 끼칠 수도 있다는 선행 연구가 다양하게 보고되어 있다(Wei et al., 2011; Pan et al., 2014). 토양중 항생제의 잔류는 토성(soil texture), 토양반응(soil pH), 토양 유기물(soil organic matter) 그리고 토양 양이온교환용량(CEC)에 영향을 받는 것으로 알려져 있다. 대표적으로, 테트라사이클린계 항생물질이 설파닐아미드나 퀴놀린계 등 다른 항생물질에 비해 토양과의 흡착이 높게 나타나는데 이는 테트라사이클린계 항생물질이 토양중 양이온(Ca^{2+}, Mg2 등)과의 흡착이 높았기 때문인 것으로 나타났다(Figueroa-Diva et al., 2010). 또한, 클로트테트라사이클린과 설파메타진을 상추작물에 처리하였을 때 상추 잎에서 설파메타진의 검출농도는 검출한계 미만~1.120 mg/kg의 높은 농도로 검출된 바 있다(Pan and Chu, 2017).

농경지 토양으로의 축산용 항생제의 유입 경로는 가축분뇨와 유기성 폐기물(슬러지)이

다. 농업생태계에 노출된 축산용 항생제는 용해된 상태로 이동되거나, 콜로이드 또는 토양 입자에 흡착되어 토양권 그리고 수권(지표수와 지하수) 생태계로 이동하게 된다. 따라서, 비의도적으로 가축분뇨, 부산물비료, 퇴비 등을 통해 농경지에 유입된 동물용 의약품의 농경지 토양중 거동, 작물체로의 흡수이행, 작물체내에서의 대사 및 독성 등에 대한 지속적인 환경영향평가가 필요하다.

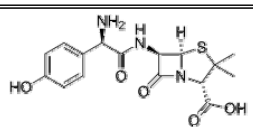
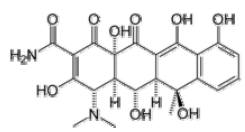
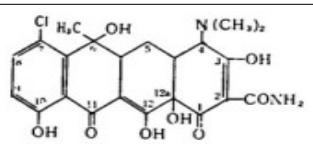
이에 본 연구에서는 국내 축산용 항생제의 사용량과 수권 생태계에서 검출빈도를 고려하여 tetracycline 계열 옥시테트라사이클린(OTC)과 클로르테트라사이클린(CTC) 및 penicillin 계열 아목시실린(AMX) 등 3종의 축산용 항생제를 관개수에 인위적으로 주입한 후 농업용수의 관개방법(지표점적관개, 지중점적관개, 스프링클러관개)에 따른 항생제의 토양중 잔류, 식물체로의 흡수이행량 그리고 작물생장지표 등을 조사하였다. 본 연구결과는 축산용 항생제를 비롯한 미량유기독성물질의 농업생태계 내 행방과 이들 물질의 식물독성을 평가하는 기초자료로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

Ⅱ. 재료 및 방법

1. 시약

실험에 사용된 축산용 항생제는 선행 연구(Seo et al., 2007) 결과와 국내 축산용 항생제의 사용량과 수계에서 검출빈도를 고려하여 tetracycline 계열 옥시테트라사이클린과 클로르테트라사이클린 및 penicillin 계열 아목시실린 등 3종의 항생제를 대상으로 하였다(Table 1).

Table 1. Characteristics of veterinary antibiotics

Antibotics	Molecular formula	Molecular weight (g/mol)	Structure
Amoxicillin	$C_{16}H_{19}N_3O_5S$	365.404	
Oxytetracycline	$C_{22}H_{24}N_2O_9$	461	
Chlorotetracycline	$C_{22}H_{23}ClN_2O_8$	479	

분석대상 항생제 표준물질은 Sigma-Aldrich (St. Louis, MO, USA)에서 구입하여 사용하였고, 내부 표준물질은 Accustandard (New Haven, CT, USA)사의 Simeton (P-5015, 100 μg/mL)을 사용하였다. 실험에 사용된 모든 유기용매는 HPLC 등급이었으며, Merck Corporation (Darmstadt, Germany)에서 구입하였다. 표준물질과 내부 표준물질은 메탄올로 10 mg/L로 희석한 다음 갈색 유리병에 담아 4℃에서 보관하면서 실험에 사용하였다.

2. 실험포장, 작물재배 및 관개방법

본 연구는 2022년 5월부터 8월까지 전라북도 장수군 천천면(35° 42' 46.26"N, 127° 31' 12.216"E) 소재 일반 농가에서 수행되었다. 대상작물은 적상추(Red lettuce, Lactuca sativa L., Asia Seed Korea, Seon Hong Jeok Chuk Myeon)와 열무(Young radish, Raphanus sativus L., KYOUNGSHIN SEEDS Co. LTD., Teun Teun)였으며, 정식, 시비관리, 병해충 및 잡초방제는 농촌진흥청 작물재배 매뉴얼(RDA, 2017)에 기준하였다. 본 연구에 사용된 토양은 송산통(松山統; Songsan series; coarse loamy, mesic family of Typic Dystrudepts)으로 사양질계 암쇄토에 속한다. 적상추와 열매 재배를 위한 시험구획은 5 m × 5 m (25 m^2) 크기로 난괴법 3반복으로 진행하였다.

축산용 항생제의 처리 농도는 선행연구(Kim et al., 2008)와 국내외 농업생태계에서 검출되는 농도를 기준으로 ① 자연함유량 수준은(background level) OTC 0.05 mg/L, AMX 0.1 mg/L 그리고 CTC 0.3 mg/L, ② 자연함유량의 10배 수준은(background level × 10배 농도) OTC 0.5 mg/L, AMX 1.0 mg/L 그리고 CTC 3.0 mg/L, ③ 자연함유량의 50배 수준은(background level × 50배 농도) OTC 2.5 mg/L, AMX 5 mg/L 그리고 CTC 15 mg/L을 기준으로 하였다.

농업용 관개용수 내 축산용 항생제의 농도가 자연함유량 수준, 자연함유량의 10배 수준, 자연함유량의 50배 수준이 되도록 대형 수조 내에서 용해시켰으며, 근권층의(토양 표면으로부터 10 cm 깊이) 토양수분 함량을 기준으로 관개시점의 수분함량을 30%로 설정하여, 이보다 낮으면 자동으로 관개되도록 하였다.

본 연구에서 관개방법은 3가지 형태를 적용하였다.

① 지표점적관개(surface drip irrigation): 가는 구멍이 뚫린 관을 땅위로 노출되게 매설한 후 작물 포기마다 물방울 형태로 관개

② 지중점적관개(sub-surface drip irrigation): 가는 구멍이 뚫린 관을 땅속에 매설한 후(토양표면으로부터 10 cm 깊이) 작물 포기마다 물방울 형태로 관개

③ 스프링클러관개(sprinkler irrigation): 스프링클러를 이용하여 살수관개.

적상추와 열무는 동일하게 5월 24일에 정식후 7월 5일에 수확하였다. 재배가 끝난 작물은 가식부위와 뿌리로 분리하여 분석에 사용하였고, 실험토양은 표토(0~10 cm)를 대상으로 채취한 다음, 암조건에서 풍건후 2 mm체로 체절한 후 분석에 사용하였다.

3. 실험토양의 토양특성 분석

토양의 이화학적 특성분석은 토양화학분석법(NIAST, 2000)에 기준하였다. 토양 pH는 토양과 증류수의 비율을 1:5로 희석한 현탁액에서 pH meter (TOA HM-20S)로 측정하였으며, 유기물은 Walkley & Black법, 총질소는 Kjeldahl법, 유효인산은 Bray No.1법, 토성은 미국농무성법에 기준하여 분석하였다(Table 2).

Table 2. Physical and chemical properties of the test plot soil

Item	Chemical properties	Particle size fraction (%)	
Soil organic matter (g $100g^{-1}$)	2.28	Sand	48.6
pH (1:5H_2O)	5.54	Silt	39.4
Total-N (mg kg^{-1})	789.6	Clay	12.0
Total-P (mg kg^{-1})	298.7		
CEC ($cmol^{+}$ kg^{-1})	9.0		
Electrical conductivity (μS cm^{-1})	0.2		
Ca^{++} ($cmol^{+}$ kg^{-1})	1.4		
Mg^{++} ($cmol^{+}$ kg^{-1})	1.0		
K^{+} ($cmol^{+}$ kg^{-1})	1.3		

4. 항생제 추출 및 정제

풍건후 전처리된 토양과 동결 건조 후 분말화한 작물체 시료를 대상으로 항생제 분석을 실시하였다. 시료를(토양 1 g, 작물체 0.5 g) 50 mL SPL-Conical Tube에 담은 후 Mcllvain Buffer 20 mL, 5% EDTA 250 μL를 넣은 후 진탕기에서 250 rpm으로 30분 동안 진탕하였다. 그 후 10분 동안 초음파 처리한 후, 12,000 × g에서 10분 동안 원심분리를 수행하였다. 원심분리 후 여과지(0.45 μm)로 감압 여과하여 250 mL 삼각플라스크로 추출시료를 옮겼다. 상등액을 분리한 후 남은 시료는 위의 추출방법을 1회 반복하여 동일한 플라스크에 수집 후 상등액 약 40 mL에 증류수 80 mL를 추가하여 총 120 mL가 되도록 한 후 최종적으로 0.2 μm Cellulose Acetate Membrane Filter (Adventec, Japan)를 이용하여 감압여과하고 그 여과액은 고상추출법으로 정제하였다. 고상추출법은 Oasis HLB 추출 카트리지(500 mg, 6 mL, Waters, Milford, MA, USA)를 사용하였다. 카트리지를 활성화시킨 다음 시료를 테프론 튜브와 연결하여 추출 카트리지에 항생물질을 전이시킨 다음 초순수를 5 mL씩 3회 흘리면서 카트리지를 세척하였다. 세척 후 튜브에 내부표준물질 simeton (0.24 mg/L)을 50 μL 넣어 준 후 카트

리지에 메탄올을 2.5 mL씩 3번 가하여 항생물질을 튜브에 모았다. 튜브에 모아진 항생물질은 질소농축기를 이용하여 50 μL까지 농축한 후, 이동상 A [0.1 formic acid + 99.9% HPLC grade water (v/v)]를 70 μL 넣은 후 0.22 μm Nylon filter가 포함된 1.5 mL centrifuge에 넣고 12,000 × g로 5분 동안 원심분리하였다. 원심분리 여과액을 갈색 바이알에 옮겨 담은 후 -20℃ 냉동고에 보관하면서 분석시료로 사용하였다(Ryu et al., 2023).

5. 기기분석 조건

분석에 사용된 기기는 액체크로마토그래피 질량분석기(1200 HPLC; Agilent Technologies, Santa Clara, CA, USA)로, 이동상 A는 99.9% HPLC grade water + 0.1% formic acid (v/v), 이동상 B는 99.9% acetonitrile + 0.1% formic acid (v/v)를 사용하였다. 컬럼은 Kinetex 컬럼(2.6 μm C_{18}, 50 × 2.1 mm; Phenomenex, Torrance, CA, USA)을 사용하였다. 항생제 분석을 위한 기기분석 조건은 Table 3에 나타내었다. 항생제 종류별로 표준용액(1 mg/L)을 조제하여 사용하였다.

Table 3. LC-MS/MS conditions for the instrumental analysis of veterinary antibiotics (Ryu et al., 2023)

HPLC	Column	Zorbax Eclipse Plus-C18 3.5 μm (4.6 × 150 mm)
	Guard column	Security Guard catridge Kit
	Column temperature	25℃
	Mobile phase	A: 99.9% HPLC grade water + 0.1% formic acid (v/v)
		B: 99.9% acetonitrile + 0.1% formic acid (v/v)
	Flow rate	0.7 mL//min
	Inject volume	5 μL
	Gradient condition	0 min: A 90% + B 10%
		2 min: A 90% + B 10%
		8 min: A 50% + B 50%
		10 min: A 100% + B 0%
		11 min: A 0% + B 100%
		11.1 min: A 90% + B 10%
		15 min: A 90% + B 10%
MS/MS	Mode	Eletro spray ionization (ESI)
	Drying and nebulizer gas	10.0 L/min
	Drying gas temperature	350℃
	Capillary voltage	5,500 V

6. 회수율

회수율 실험시료는 SPE 전과 후에 0.1 mg/L과 1.0 mg/L spiking하는 시료 3개씩 6개, 바탕시료 1개를 포함한 7개를 대상으로 하였다. 검량선 작성을 위한 항생제의 표준 용액은 0.01, 0.02, 0.04, 0.08, 0.16, 0.4, 0.8 mg/L의 농도로 제조하였으며 모든 분석은 3반복으로 실시하였다(Table 4).

Table 4. Recovery ratio, method detection limit (MDL) and limit of quantification (LOQ) of selected antibiotics in soils and plants

Classification	Recovery (%)			MDL (μg L^{-1})			LOQ (μg L^{-1})		
	Soil	Red lettuce	Young radish	Soil	Red lettuce	Young radish	Soil	Red lettuce	Young radish
Chlortetracycline	86.5	78.2	1.8	0.024	0.018	0.025	0.029	0.029	0.024
Oxytetracycline	92.4	89.6	90.1	0.018	0.020	0.012	0.034	0.031	0.026
Amoxicillin	85.1	90.2	79.8	0.018	0.018	0.019	0.029	0.031	0.029

7. 생물농축계수(bioconcentration factor, BCF)

식물 조직에 축적하는 항생물질의 생물농축계수는 Zayed 등(1998)이 제시한 방법에 따라 평가하였다.

$$BCF = \frac{\text{수확기 식물조직 중 항생물질의 농도}(mg/kg)}{\text{토양 중 초기 항생물질의 농도}(mg/kg)} \quad (1)$$

8. 통계처리

유의성 분석은 평균간 분산분석으로 SAS 프로그램(SAS version 9.3, Cary, USA, 2001)으로 95% 수준에서 Duncan's multiple range test로 수행하였다.

Ⅲ. 결 과

1. 농업용수 관개방법에 따른 축산용 항생제의 적상추와 열무 작물 재배토양중 잔류특성

적상추 작물 재배지에 6월 7일 총 1회 관개수에 주입된 축산용 항생제가 처리된 토양을 대상으로 처리대상 축산용 항생제의 잔류량을 조사한 결과, 자연함유량 수준의(background level) 처리농도에서는 수확기 직전까지(처리후 28일차) 처리된 3종의 축산용 항생제 모두 검출되지 않았으나, 자연함유량 수준의 10배 농도 처리구에서는 처리후 7일차에서 미량 검출되었다. 처리대상 축산용 항생제의 종류별로는 AMX 2.26~2.91 μg/kg, OTC 5.94~6.58 μg/kg 그리고 CTC 8.09~8.76 μg/kg 수준으로 나타났다. 자연함유량 수준의 50배 농도 처리구에서는 처리후 14일차부터 검출되었는데 처리대상 축산용 항생제의 종류별로는 AMX 2.11~3.06 μg/kg, OTC 5.81~7.55 μg/kg 그리고 CTC 7.13~13.53 μg/kg 수준으로 나타났다 (Table 5).

Table 5. Concentrations of amoxicillin, chlortetracycline, and oxytetracycline residues in soils of the red lettuce culture fields treated with veterinary antibiotics (June 7th, 1 times treatment)

Irrigation method		Amoxicillin			Oxytetracycline			Chlortetracycline		
		BL	BL× 10 fold	BL× 50 fold	BL	BL× 10 fold	BL× 50 fold	BL	BL× 10 fold	BL× 50 fold
7 DAT	Subsurface	-	2.91±0.11	2.81±0.13	-	5.94±0.11	6.76±0.11	-	8.09±0.13	13.53±0.14
	Surface	-	2.26±0.12	2.45±0.12	-	6.27±0.11	6.67±0.13	-	8.66±0.13	7.67±0.13
	Sprinkler	-	2.52±0.12	3.06±0.11	-	6.58±0.12	7.55±0.11	-	8.67±0.12	7.41±0.13
14 DAT	Subsurface	-	-	2.32±0.13	-	-	6.31±0.14	-	-	10.67±0.12
	Surface	-	-	2.12±0.13	-	-	5.81±0.14	-	-	7.13±0.12
	Sprinkler	-	-	2.11±0.11	-	-	5.85±0.13	-	-	7.36±0.12
28 DAT	Subsurface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-

DAT: days after transplanting, BL: background level, [-]: below detected level

적상추 작물 재배지에 6월 7일, 14일, 21일 총 3회 관개수에 주입된 축산용 항생제가 처리된 토양을 대상으로 처리대상 축산용 항생제의 잔류량을 조사한 결과, 자연함유량 수준

의 처리농도에서는 수확기 직전까지(처리후 28일차) 처리된 3종의 축산용 항생제 모두 검출되지 않았으나, 자연함유량 수준의 10배 농도 처리구에서는 처리후 7일차부터 수확기 직전까지 검출되었다. 처리대상 축산용 항생제의 종류별로는 AMX 2.31~2.92 μg/kg, OTC 5.91~6.64 μg/kg 그리고 CTC 7.21~11.93 μg/kg 수준으로 나타났다. 자연함유량 수준의 50배 농도 처리구에서는 처리후 7일차부터 수확기 직전까지 검출되었다. 처리대상 축산용 항생제의 종류별로는 AMX 2.03~2.96 μg/kg, OTC 6.19~6.77 μg/kg 그리고 CTC 7.15~15.46 μg/kg 수준으로 나타났다(Table 6).

Table 6. Concentrations of amoxicillin, chlortetracycline, and oxytetracycline residues in soils of the red lettuce culture fields treated with veterinary antibiotics (June 7th, 14th, 21st, 3 time treatment)

(Unit: μg/kg)

Irrigation method		Amoxicillin			Oxytetracycline			Chlortetracycline		
		BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold
7 DAT	Subsurface	-	2.92±0.09	3.02±0.15	-	6.29±0.15	6.49±0.15	-	8.55±0.03	13.53±0.12
	Surface	-	2.32±0.01	2.41±0.37	-	6.21±0.18	6.46±0.16	-	8.25±0.11	7.61±0.12
	Sprinkler	-	2.71±0.02	2.96±0.13	-	6.48±0.14	6.65±0.32	-	7.33±0.13	8.33±0.14
14 DAT	Subsurface	-	2.65±0.17	2.06±0.11	-	5.91±0.12	6.19±0.15	-	8.02±0.02	10.8±0.12
	Surface	-	2.26±0.16	2.81±0.09	-	6.19±0.15	6.49±0.12	-	7.35±0.17	8.61±0.16
	Sprinkler	-	2.36±0.22	2.03±0.09	-	6.06±0.11	6.21±0.13	-	7.21±0.16	7.15±0.15
28 DAT	Subsurface	-	2.34±0.17	2.65±0.12	-	6.58±0.11	6.66±0.13	-	11.93±0.14	15.46±0.19
	Surface	-	2.31±0.14	2.36±0.13	-	6.38±0.12	6.38±0.13	-	8.02±0.16	13.33±0.16
	Sprinkler	-	2.40±0.16	2.81±0.12	-	6.64±0.13	6.77±0.12	-	9.05±0.15	11.43±0.13

DAT: days after transplanting, BL: background level, [-]: below detected level

열무작물 재배지에 6월 7일 총 1회 관개수에 주입된 항생제가 처리된 토양을 대상으로 처리대상 축산용 항생제의 잔류량을 조사한 결과, 자연함유량 수준의 처리농도에서는 수확기 직전까지(처리후 28일차) 처리된 3종의 축산용 항생제 모두 검출되지 않았으나, 자연함유량 수준의 10배 농도 처리구에서는 처리후 7일차에서 미량 검출되었다. 처리대상 축산용 항생제의 종류별로는 AMX 2.35~3.26 μg/kg, OTC 5.90~6.02 μg/kg 그리고 CTC 7.15~8.22 μg/kg 수준으로 나타났다. 자연함유량 수준의 50배 농도 처리구에서는 처리후 14일차까지 검출되었는데 처리대상 축산용 항생제의 종류별로는 AMX 2.21~3.41 μg/kg, OTC 5.62~7.05 μg/kg 그리고 CTC 6.94~9.59 μg/kg 수준으로 나타났다(Table 7).

Table 7. Concentrations of amoxicillin, chlortetracycline, and oxytetracycline residues in soils of the young radish culture fields treated with veterinary antibiotics (June 7th, 1 times treatment)

(Unit: μg/kg)

Irrigation method		Amoxicillin			Oxytetracycline			Chlortetracycline		
		BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL× 10 fold	BL× 50 fold	BL	BL× 10 fold	BL× 50 fold
7 DAT	Subsurface	-	2.41±0.05	2.91±0.03	-	5.99±0.04	5.62±0.06	-	7.23±0.04	7.32±0.03
	Surface	-	3.26±0.08	2.21±0.03	-	5.90±0.07	5.92±0.08	-	7.15±0.04	6.94±0.03
	Sprinkler	-	2.35±0.06	2.75±0.04	-	6.02±0.04	5.65±0.04	-	8.22±0.03	6.96±0.04
14 DAT	Subsurface	-	-	3.23±0.03	-	-	7.05±0.04	-	-	7.12±0.04
	Surface	-	-	3.41±0.06	-	-	6.82±0.04	-	-	9.59±0.05
	Sprinkler	-	-	2.23±0.08	-	-	6.82±0.04	-	-	7.35±0.04
28 DAT	Subsurface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-

DAT: days after transplanting, BL: background level, [-]: not detected

열무작물 재배지에 6월 7일, 14일, 21일 총 3회 관개수에 주입된 항생제가 처리된 토양을 대상으로 처리대상 축산용 항생제의 잔류량을 조사한 결과, 자연함유량 수준의 처리농도에서는 수확기 직전까지(처리후 28일차) 처리된 3종의 축산용 항생제 모두 검출되지 않았으나, 자연함유량 수준의 10배 농도 처리구에서는 처리후 7일차부터 수확기 직전까지 검출되었다. 처리대상 축산용 항생제의 종류별로는 AMX 2.12~3.82 μg/kg, OTC 5.91~7.59 μg/kg 그리고 CTC 6.98~14.26 μg/kg 수준으로 나타났다. 자연함유량 수준의 50배 농도 처리구에서는 처리후 7일차부터 수확기 직전까지 검출되었다. 처리대상 축산용 항생제의 종류별로는 AMX 2.23~4.82 μg/kg, OTC 5.92~12.51 μg/kg 그리고 CTC 7.46~14.26 μg/kg 수준으로 나타났다(Table 8).

작물의 종류별로 열무와 적상추 재배지역 토양중 축산용 항생제의 잔류농도는 큰 차이가 나타나지 않았으며($P>0.05$), 축산용 항생제의 처리농도별로는 처리농도가 증가함에 따라 토양중 잔류농도도 유의성 있게 증가하는 경향이었다($P<0.05$). 6월 7일 1회 처리구와 6월 7일, 14일, 21일 3회 처리에 따른 토양중 축산용 항생제 잔류농도를 비교한 결과, 자연함유량 수준에서는 1회 처리구와 3회 처리구간에 차이가 나타나지 않았으나, 자연함유량 수준 농도의 10배 처리시 1회 처리구는 처리후 7일차까지에서만 3종의 축산용 항생제가 미량으로 검출되었으나, 3회 처리구에서는 처리후 28일차에서도(수확 직전) 3종의 축산용 항생제가 모두 검출되었다. 자연함유량 수준 농도의 50배 처리시 1회 처리구는 처리후 14일차

Table 8. Concentrations of amoxicillin, chlortetracycline, and oxytetracycline residues in soils of the young radish culture fields treated with veterinary antibiotics (June 7th, 14th, 21st, 3 time treatment)

(Unit: μg/kg)

Irrigation method		Amoxicillin			Oxytetracycline			Chlortetracycline		
		BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold
7 DAT	Subsurface	-	3.71±0.19	4.82±0.18	-	6.07±0.17	5.92±0.24	-	7.44±0.19	7.71±0.09
	Surface	-	2.95±0.18	4.21±0.16	-	5.91±0.18	6.43±0.18	-	6.82±0.19	6.98±0.11
	Sprinkler	-	3.82±0.16	4.41±0.17	-	6.04±0.18	5.87±0.18	-	7.12±0.18	8.83±0.12
14 DAT	Subsurface	-	2.12±0.19	2.23±0.16	-	7.59±0.18	9.78±0.16	-	7.21±0.21	12.99±0.12
	Surface	-	2.23±0.19	3.01±0.19	-	6.41±0.17	9.18±0.18	-	9.61±0.23	14.26±0.11
	Sprinkler	-	2.36±0.17	2.51±0.16	-	7.38±0.19	7.64±0.17	-	7.9±0.18	10.62±0.09
28 DAT	Subsurface	-	3.12±0.15	2.62±0.20	-	6.44±0.21	12.51±0.18	-	7.45±0.20	10.45±0.09
	Surface	-	2.51±0.16	2.61±0.22	-	6.77±0.25	6.06±0.18	-	7.32±0.18	11.73±0.08
	Sprinkler	-	2.61±0.15	2.36±0.19	-	6.13±0.24	6.03±0.18	-	8.54±0.17	7.46±0.09

DAT: days after transplanting, BL: background level, [-]: not detected

까지에서만 3종의 항생제가 미량으로 검출되었으나, 3회 처리구에서는 처리후 28일차에서도(수확 직전) 3종의 축산용 항생제가 모두 검출되었다. 관개방법별 즉, 지중점적관개, 지표점적관개 그리고 스프링클러관개 처리구간에 유의성있는 차이가 나타나지 않았다($P>0.05$). 일반적으로는 지표점적관개 또는 스프링클러관개 처리구가 지중점적관개보다 토양중 잔류량이 더 낮을 것으로 예상되었지만, 본 연구에서는 3가지 처리구에서 차이가 나타나지 않았다. 마지막으로, 처리대상 축산용 항생제의 종류별로 CTC > OTC > AMX의 순으로 토양중 잔류농도가 높게 나타났다. 토양중 항생제의 잔류는 토성(soil texture), 토양반응(soil pH), 토양유기물(soil organic matter) 그리고 토양 양이온교환용량(CEC, cation exchangeable capacity)에 영향을 받는 것으로 알려져 있다. CTC 및 OTC와 같은 테트라사이클린계 항생물질은 다른 종류의 항생물질에 비해 비교적 토양에 잘 흡착되는 것으로 나타났다. 토양층에 테트라사이클린계 물질이 설파닐아미드나 퀴놀린계 등 다른 항생물질에 비해 흡착 더 잘 되는 것으로 보고한 바 있으며, 이는 테트라사이클린계 물질이 토양중 이가 양이온과의 흡착이 높았기 때문인 것으로 나타났다(Kulshrestha et al., 2004; Figueroa-Diva et al., 2010). Pan와 Chu (2016)에 의하면, 테트라사이클린계 물질이 다른 항생물질에 비해 토양중 흡착량이 높은 것으로 보고되어 있다. 본 연구에서도 선행연구와 유사하게 테트라사이클린계 항생물질이 페니실린계 항생물질에 비해 토양중 흡착 및 잔류량이 더 높게 나타났다.

2. 농업용수 관개방법에 따른 축산용 항생제의 적상추와 열무 작물중 잔류특성

적상추 작물 재배지에 6월 7일 총 1회 관개수에 주입된 축산용 항생제가 처리된 적상추 잎과 뿌리를 대상으로 처리대상 축산용 항생제의 작물체중 잔류량을 조사한 결과, 적상추 잎에서는 3종의 축산용 항생제 모두 검출한계미만으로 나타났다. 다만, 적상추 뿌리에서는 아목시실린(AMX)만이 자연함유량 수준의 50배 농도를 처리하였을 때 처리후 14일차에서 지중점적관개 0.63±0.02 μg/kg, 지표점적관개 0.71±0.02 μg/kg 수준으로 검출되었다. 옥시테트라사이클린(OTC)과 클로르테트라사이클린(CTC)은 적상추 뿌리에서 검출한계 미만으로 나타났다(Table 9).

Table 9. Concentration of amoxicillin, chlortetracycline, and oxytetracycline detected in roots of red lettuce plants grown in the experimental plots (June 7th, 1 times treatment)

(Unit: μg/kg)

Irrigation method		Amoxicillin			Oxytetracycline			Chlortetracycline		
		BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold
7 DAT	Subsurface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-
14 DAT	Subsurface	-	-	0.63±0.02	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	0.71±0.02	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-
28 DAT	Subsurface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-

DAT: days after transplanting, BL: background level, [-]: below detected level

적상추 작물 재배지에 6월 7일, 14일, 21일 총 3회 관개수에 주입된 축산용 항생제가 처리된 적상추 잎과 뿌리를 대상으로 처리대상 축산용 항생제의 작물체중 잔류량을 조사한 결과, 적상추 잎에서는 3종의 축산용 항생제 모두 검출한계미만으로 나타났다. 다만, 적상추 뿌리에서는 아목시실린(AMX)만이 자연함유량 수준의 10배와 50배 농도를 처리하였을 때 처리후 14일차에서 지중점적관개 0.71~0.83 μg/kg, 지표점적관개 0.67~0.73 μg/kg 수준으로 검출되었다. 옥시테트라사이클린(OTC)과 클로르테트라사이클린(CTC)은 적상추 뿌리에서 검출한계 미만으로 나타났다. 지표점적관개와 지중점적관개 처리구간에 작물체중 조사

대상 축산용 항생제의 잔류량은 차이가 나타나지 않았다. 아목시실린(AMX)의 처리농도가 높아짐에 따라 농도의존적으로 작물체중 잔류량이 높게 나타났다(Table 10).

Table 10. Concentration of amoxicillin, chlortetracycline, and oxytetracycline detected in roots of red lettuce plants grown in the experimental plots (June 7th, 14th, 21st, 3 time treatment)

(Unit: μg/kg)

Irrigation method		Amoxicillin			Oxytetracycline			Chlortetracycline		
		BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold
7 DAT	Subsurface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-
14 DAT	Subsurface	-	0.71±0.02	0.83±0.02	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	0.73±0.02	0.67±0.01	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-
28 DAT	Subsurface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-

DAT: days after transplanting, BL: background level, [-]: below detected level

열무 작물의 경우에도 적상추 작물과 거의 유사한 경향을 나타내었다. 열무작물의 잎에서는 조사대상 3종의 축산용 항생제 모두 검출한계미만으로 나타났으며, 열무작물의 뿌리에서는 아목시실린(AMX)만이 자연함유량 수준의 50배 농도를 처리하였을 때 처리후 14일차에서 적상추 작물과 유사한 수준으로 검출되었다. 옥시테트라사이클린(OTC)과 클로르테트라사이클린(CTC)은 열무 작물 뿌리에서 검출한계 미만으로 나타났다(Table 11).

열무작물 재배지에 6월 7일, 14일, 21일 총 3회 관개수에 주입된 축산용 항생제가 처리된 열무작물의 잎에서는 3종의 축산용 항생제 모두 검출한계미만으로 나타났다. 열무 뿌리에서는 아목시실린(AMX)만이 자연함유량 수준의 10배와 50배 농도를 처리하였을 때 처리후 14일차에서 지중점적관개 0.45~0.53 μg/kg, 지표점적관개 0.58~0.63 μg/kg 수준으로 검출되었다. 옥시테트라사이클린(OTC)과 클로르테트라사이클린(CTC)은 적상추 뿌리에서 검출한계 미만으로 나타났다. 지표점적관개와 지중점적관개 처리구간에 열무 작물체중 조사대상 축산용 항생제의 잔류량은 차이가 나타나지 않았다($P>0.05$). 아목시실린(AMX)의 처리농도가 높아짐에 따라 작물체중 잔류량이 약간 높게 나타났다($P<0.05$)(Table 12).

Table 11. Concentration of amoxicillin, chlortetracycline, and oxytetracycline detected in roots of young radish plants grown in the experimental plots (June 7th, 1 times treatment)

(Unit: μg/kg)

Irrigation method		Amoxicillin			Oxytetracycline			Chlortetracycline		
		BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold
7 DAT	Subsurface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-
14 DAT	Subsurface	-	-	0.32±0.18	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	0.55±0.03	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-
28 DAT	Subsurface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-

DAT: days after transplanting, BL: background level, [-]: below detected level

Table 12. Concentration of amoxicillin, chlortetracycline, and oxytetracycline detected in roots of young radish plants grown in the experimental plots (June 7th, 14th, 21st, 3 time treatment)

(Unit: μg/kg)

Irrigation method		Amoxicillin			Oxytetracycline			Chlortetracycline		
		BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold	BL	BL × 10 fold	BL × 50 fold
7 DAT	Subsurface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-
14 DAT	Subsurface	-	0.45±0.03	0.53±0.04	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	0.58±0.02	0.63±0.01	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-
28 DAT	Subsurface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Surface	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Sprinkler	-	-	-	-	-	-	-	-	-

DAT: days after transplanting, BL: background level, [-]: below detected level

적상추와 열무의 가식부위(잎) 중 처리대상 3종의 축산용 항생제 모두 검출한계미만으로 나타나 어느 정도 작물의 안전성은 확보된 것으로 나타났다. 처리대상 3종의 축산용 항생제 가운데 옥시테트라사이클린(OTC)과 클로르테트라사이클린(CTC)은 토양중 2가 양이온(Ca^{2+}, Mg^{2+} 등)과 흡착량이 높기 때문에 토양중 잔류량이 높게 나타나고, 작물체로의 이행이 거의 나타나지 않은 것으로 추정된다.

적상추와 열무 작물체로의 흡수이행된 항생제를 대상으로 TF (translocation factor) 값을 조사한 결과, 토양으로부터 적상추 뿌리까지의 전이계수는 0.3 미만으로 나타났고, 토양으로부터 열무뿌리까지의 전이계수는 0.2이하로 나타났다(Fig. 1).

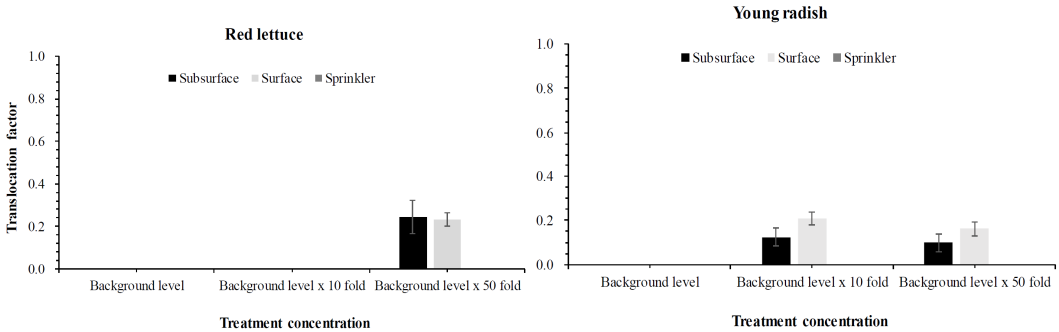


Fig. 1. Biocentration factor (BCF) values of red lettuce and young radish plants grown in the experimental plots (mean ± SD, n = 3). The bars represent standard error.

Pan와 Chu (2017)의 연구에 따르면, 클로트테트라사이클린(CTC)과 설파메타진(SMZ)을 상추작물에 처리하였을 때 상추 잎에서 SMZ의 검출농도는 검출한계 미만~1.120 mg/kg의 높은 농도로 검출되었으며, 뿌리에서는 두 종류의 항생제 모두 검출되지 않았다. 작물체로의 항생제 흡수이행은 Kow (물-옥탄올 계수)와 Kd (분배계수)의 특성에 따라 Kow 값이 높을수록 세포의 지질층에 잔류되어 세포의 발달에 저해를 미치며, Kd 값이 높을수록 뿌리 입자에 흡착되어 뿌리의 생장을 저해하게 되는 것으로 보고되어 있다(Michelini et al., 2013). ‘Kow > 1’은 소수성(친유성)이 강한 물질이고, ‘Kow < 1’은 친수성이 강한 물질임을 나타내며, Kd값이 1보다 클 경우 그 물질은 흡착이 잘되며, 1보다 작을 경우 흡착이 덜 되어 용액에 남아 있는 농도가 높게 됨을 의미한다. 본 연구결과와 Pan와 Chu (2017)의 연구결과는 일부 차이를 나타내었는데 이는 처리대상 항생물질의 물리화학적 특성 차이에 기인한 것으로 판단된다.

우리나라 하천에서 검출되는 3종의 축산용 항생제의 최대 50배 수준까지 축산용 항생제가 유입된 경우 토양 내 잔류량은 지속적으로 증가할 것으로 예측되지만, 축산용 항생제의 물리화학적 특성상 작물체로의 전이는 크게 나타나지 않을 것으로 예측된다. 하지만, 축산

용 항생제의 농경지 토양내 지속적인 유입은 토양미생물상의 활성도, 종 다양성, 개체군에 영향을 끼쳐 장기적으로 바람직하지 못한 영향을 끼칠 수 있을 것이기에 지속적인 관리가 필요하다.

덧붙여서, 비의도적으로 농업생태계에 유입된 축산용 항생제로 오염된 토양에서 재배된 작물의 일일 또는 연간 소비를 통해 인간이 항생제에 노출될 가능성은 낮을 것으로 판단된다. 하지만, 토양에 노출된 테트라사이클린계 항생물질들은 epimer compound로 전환되어 모화합물(parents compound) 보다 독성이 강한 물질로 전환될 수도 있다(Kim et al., 2016). 따라서, 축산용 항생제의 토양 내 물리화학적, 생화화학적 변환, 식물체내 항생물질의 2차 대사물질에 대한 지속적인 평가 및 모니터링이 필요할 것으로 생각된다.

3. 축산용 항생제가 유입된 농업용수의 관개방법이 적상추와 고추 작물의 생산량에 끼치는 영향

적상추의 수확량은 대조구에서 2,359.5±254.5 kg/10a로 나타났으며, 적상추 작물 재배지에 6월 7일 총 1회 관개수에 주입된 축산용 항생제 처리시 적상추의 수확량은 2,386.6±69.0 kg/10a, 그리고 적상추 작물 재배지에 6월 7일, 14일, 21일 총 3회 관개수에 주입된 축산용

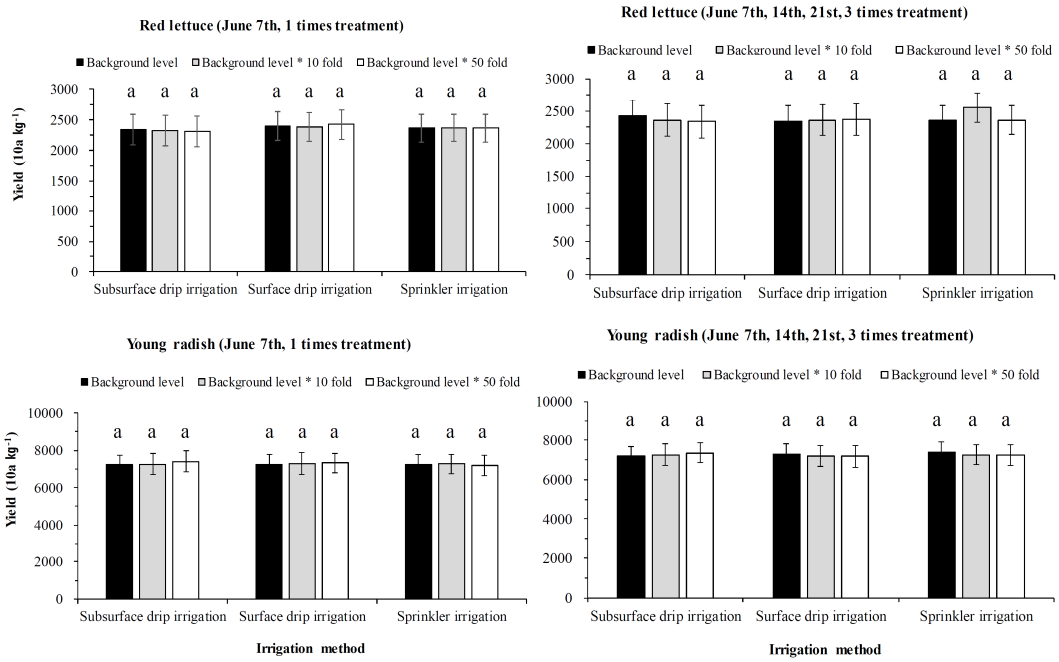


Fig. 2. Changes in yield of red lettuce and young radish by treatment (mean ± SD, n = 3). The bars represent standard error. Different letters in a column (a, b) are significantly ($p < 0.05$) different according to Duncan's multiple range test.

항생제 처리시 적상추의 수확량은 2,364.9±36.4 kg/10a로 나타났다. 열무의 수확량은 대조구에서 7,265.8±596.8 kg/10a로 나타났으며, 열무작물 재배지에 6월 7일 총 1회 관개수에 주입된 축산용 항생제 처리시 열무의 수확량은 7,273.8±65.6 kg/10a, 그리고 열무작물 재배지에 6월 7일, 14일, 21일 총 3회 관개수에 주입된 축산용 항생제 처리시 열무의 수확량은 7,273.8±65.6 kg/10a로 나타났다(Fig. 2).

앞서 논의한 바와 같이 자연함유량 수준의 50배 농도를 처리한 경우에도 아목시실린(AMX)만이 미량 작물체로 흡수이행되었을 뿐 테트라사이클린계(OTC와 CTC) 항생제는 작물체로 흡수이행이 나타나지 않았기에 항생제가 작물의 생육에 큰 영향을 끼치지 않았던 것으로 판단된다. Kim 등(2019)의 연구에 의하면 항생제의 처리농도에 따라 적상추의 생장이 유의성 있는 차이가 나타나지 않았다고 보고한 바 있다. 반면에 Michelini 등(2012)에 따르면, 설폰아마이드 계열의 항생제인 sulphadiazine 처리에 따라 클로로필의 함량이 13~30% 정도 감소하였고, 이에 따라 작물체 중량이 유의성 있게 감소하였다고 보고한 바 있다. 하지만, 본 연구에서는 관개방법(지중점적관개, 지표점적관개, 스프링클러관개)별 그리고 항생제의 종류별로 작물의 수확량 차이가 유의성 있게 나타나지 않았다($P > 0.05$).

Ⅳ. 적 요

Tetracycline 계열 옥시테트라사이클린(OTC)과 클로르테트라사이클린(CTC) 그리고 penicillin 계열 아목시실린(AMX) 등 3종의 축산용 항생제를 관개수에 인위적으로 주입한 후 농업용수의 관개방법(지표점적관개, 지중점적관개, 스프링클러관개)에 따른 항생제의 토양중 잔류, 식물체로의 흡수이행량 그리고 작물생장지표 등을 조사하였다. 적상추와 열무 재배지역 토양중 축산용 항생제의 잔류농도는 큰 차이가 나타나지 않았으며, 축산용 항생제의 처리농도가 증가함에 따라 토양중 잔류농도도 유의성있게 증가하는 경향이었다($P < 0.05$). 관개방법에 따라서는 토양중 축산용 항생제의 잔류량이 유의성 있는 차이를 나타내지 않았다($P > 0.05$). 적상추와 열무의 가식부위(잎) 중 처리대상 3종의 축산용 항생제 모두 검출한계미만으로 나타나 작물의 안전성은 확보된 것으로 나타났다.

적상추와 열무 작물체로 흡수이행된 항생제를 대상으로 전이계수(translocation factor)를 조사한 결과, 토양으로부터 적상추 뿌리까지의 전이계수는 0.3 미만으로 나타났고, 토양으로부터 열무뿌리까지의 전이계수는 0.2이하로 나타났다. 관개방법별 그리고 축산용 항생제의 종류에 따라 전이계수가 유의성 있는 차이를 나타내지 않았다($P>0.05$). 마지막으로, 적상추와 열무의 수확량도 관개방법별 그리고 항생제의 종류별로 유의성 있는 차이가 나타나지 않았다($P>0.05$). 우리나라 하천에서 검출되는 축산용 항생제의 최대 50배 수준까지 유입될 경우 토양 내 잔류량은 지속적으로 증가할 것으로 평가되지만, 축산용 항생제의 작물

체로 전이는 크게 나타나지 않을 것으로 나타났다. 하지만, 축산용 항생제의 농경지 토양내 지속적인 유입은 토양미생물상의 활성도, 종 다양성, 개체군에 영향을 끼쳐 장기적으로 바람직하지 못한 영향을 끼칠 수 있을 것이기에 지속적인 관리가 필요할 것이다.

[Submitted, December. 04, 2023; Revised, December. 11, 2023; Accepted, December. 12, 2023]

References

1. Figueroa-Diva, R. A., D. Vasudevan, and A. A. MacKay. 2010. Trends in soil sorption coefficients within common antimicrobial families, Chemosphere. 79: 786-793.
2. Halling-Sorensen, B., G. Sengelov, and J. Tjornelund. 2002. Toxicity of tetracyclines and tetracycline degradation products to environmentally relevant bacteria including selected tetracycline resistant bacteria. Arch. Environ. Contam. Toxicol. 42: 263-271.
3. Jo, S. Y. 2023. Time series analysis of antibiotics use for livestock. M. S. Degree. Yeungnam University. Daegu, South Korea.
4. Kim, I. K., Y. M. Park, S. M. Kim, K. T. Shim, I. Y. Chung, K. S. Seok, and S. R. Hwang. 2016. Analysis of tetracycline antibiotics and their metabolites sampled from streams near concentrated livestock operations using LC/MS/MS. J. Kor. Soc. Environ. Anal. 19: 199-208.
5. Kim, J. H., C. K. Park, M. Y Kim, and S. G. Ahn. 2008. Contamination of veterinary antibiotics and antimicrobials in Han River Basin. J. Kor. Soc. Environ. Anal. 11: 109-118.
6. Kim, S. C., J. W. Kim, Y. K. Hong, W. I. Kim, and O. K. Kwon. 2019. Monitoring of veterinary antibiotics in the agro-environment. Korean J. Soil Sci. Fert. 52: 579-588.
7. Kulshrestha, P., R. F. Giese, and D. S. Aga. 2004. Investigating themolecular interactions of oxytetracycline in clay and organic matter: insights on factors affecting its mobility in soil. Environ. Sci. Tech. 38: 4097-4105.
8. Kumar, K., C. Satish, Y. C. Gupta, and A. K. Singh. 2005. Antibiotic use in agriculture and its impact on the terrestrial environment. Adv. Agron. 87: 1-54.
9. Michelini, L., F. Meggio, L. N. Rocca, S. Ferro, and R. Ghisi. 2012. Accumulation and effects of sulfamethoxine in Salix fragills L. plants: a preliminary study to phytoremediation purposes. Int. J. Phytorem. 14: 388-402.
10. Michelini, L., L. N. Rocca, N. Rascio, and R. Ghisi. 2013. Structural and functional

alternations induced by two sulfonamide antibiotics on barley plants. Plant Physiol. Biochem. 67: 55-62.

11. National Institute of Agricultural Science and Technology (NIAST). 2000. The analysis method of soil and plant. Suwon. South Korea.
12. Pan, M. and L. M. Chu. 2016. Phytotoxicity of veterinary antibiotics to seed germination and root elongation of crops. Ecoto. Environ. Safe. 126: 228-237.
13. Pan, M. and L. M. Chu. 2017. Fate of antibiotics in soil and their uptake by edible crops. Sci. Total Environ. 599: 500-512.
14. Pan, M., C. K. Wong, and L. M. Chu. 2014. Distribution of antibiotics in wastewater-irrigated soils and their accumulation in vegetable crops in the Pearl River Delta, southern China. J. Agric. Food Chem. 62: 11062-11069.
15. RDA (Rural Development Administration). 2017. Fertilization standard of crop plants. Jeonju, South Korea.
16. Ryu, S. H., J. W. Kim, Y. K. Hong, S. C. Kim, J. H. Lee, E. A. Jeong, C. G. Kim, Y. M. Yoon, and O. K. Kwon. 2023. Relationship assessment of the residual antibiotics and the amount of N component by different production stages of liquid fertilizer from livestock manure. J. Appl. Biol. Chem. 66: 258-265.
17. Seo, Y. H., S. K. Kim, 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.
18. Tasho, R. P. and J. Y. Cho. 2016. Veterinary antibiotics in animal waste, its distribution in soil and uptake by plants: A review. Sci. Total Environ. 563: 366-376.
19. Van Boeckel, T. P., C. Brower, M. Gilbert, B. T. Grenfell, S. A. Levin, T. P. Robinson, A. Teillant, and R. Laxminarayan, 2015. Global trends in antimicrobial use in food animals. Proc. Natl. Acad. Sci. 112: 5649-5654.
20. Wei, R. C., F. Ge, S. Y. Huang, M. Chen, and R. Wang. 2011. Occurrence of veterinary antibiotics in animal wastewater and surface water around farms in Jiangsu Province, China. Chemosphere. 82: 1408-1414.
21. Zayed, A., S. Gowthaman, and N. Terry. 1998. Phytoaccumulation of trace elements by wetland plants: I. Duckweed. J. Environ. Qual. 27: 715-721.