

# 가축분 퇴액비 위험분석 체계 확립

- 최종 보고서 -

2013.05

연구기관 : 충남대학교

농 립 축 산 식 품 부

## 제 출 문

농림축산식품부 장관 귀하

본 보고서를 “가축분 퇴액비 위험분석 체계 확립”  
의 최종보고서로 제출합니다.

2013. 05

충남대학교 산학협력단

주관연구기관: 충남대학교

연구책임자: 김성철

공동연구원: 이규승

정덕영

박미숙

연구보조원: 박재훈

윤지영

보 조 원: 이병주

김주희

## 목 차

1. 서론 .....	1
2. 국내외 연구동향 .....	2
3. 연구 방법 .....	6
3.1 시료 채취 .....	6
3.2 시료 분석 .....	7
3.2.1 가축분 퇴액비의 화학적 특성 및 중금속 분석 .....	7
3.2.2 항생제 분석 .....	7
3.3 항생제의 작물전이 평가 .....	9
4. 연구결과 .....	11
4.1 가축분 퇴액비의 화학적 특성 .....	11
4.2 가축분 퇴액비 내 중금속 함량 분석 .....	15
4.3 가축분 퇴액비 내 잔류 항생제 농도 .....	18
4.4 항생제의 작물전이 평가 .....	22
5. 결론 .....	25
6. 정책적 제언 .....	27
7. 참고문헌 .....	29

# 제 1장 서론

## 1. 연구의 배경과 필요성

최근 농산물에 대한 국민의 관심이 수량 및 품질에서 안전성 및 기능성으로 전환되고 있으며 특히 안전한 먹거리를 생산하기 위한 농업 자재의 안전성에 대한 관심이 증대되고 있는 실정이다. 농산물 생산에 사용되는 국내 농업 자재 중 화학 비료는 2004년도에 정부 지원이 중단된 이후 사용량이 감소하고 있으며 가축분 퇴비를 포함한 유기질 비료는 정부 및 지자체 보조지원이 증가하고 있어 농가에서의 사용량이 증대되고 있다. 하지만 현재 가축분 퇴비를 포함한 유기질 비료에 대한 안전성 문제는 연구가 미흡한 실정이다.

현재 우리나라의 가축분뇨 발생량이 2010년 기준으로 연간 46,500 천톤이며 이 중 양돈 분뇨가 전체 38%를 차지하고 있다. 가축 분뇨는 80% 정도가 퇴비로 재활용되어 유기물과 질소의 급원으로 이용되고 있고 약 6.1%인 265만톤이 액비로 활용되고 있다 (권 등, 2010). 국내에서는 이러한 부산물 퇴비와 액비에 대한 유해물질(중금속)의 기준을 제시하고 있으나 OECD 국가 중에서 가장 완화된 규격을 운영하고 있으며( Cd 7.3qo, Cr과 Cu 6.7배, Hg 4배, Ni 2.2배, Pb 2배, Zn 5배 등) 또한 외국에서는 병원성 대장균, 살모넬라, 부속도, 병원성 미생물을 공정규격에 포함한 경우가 많으나 채소의 생식이 많은 국내에서는 부속도를 제외하고 이와 관련된 규격이 설정되어 있지 않다. 따라서 향후 안전성에 대한 보장이 어려워 국제 수준에 맞는 유통 유기질 및 부산물비료에 대한 공정규격의 설정이 필요한 시점이다. 작물재배환경에서 발생 가능한 유해물질 중 가축분 퇴비에 잔류하는 항생제에 대한 문제점은 국내·외에서 대두되고 있으나 이에 대한 기준 설정 및 관리 방안은 미흡한 실정이다. 특히 가축분 퇴비 중의 항생제 잔류문제 뿐만 아니라 폐목재를 사용한 가축분 퇴비의 사회 문제 및 멜라민 등 유해물질의 혼입 등에 대한 문제가 제기되고 있어 이에 대한 연구 및 관리체계 확립이 필요하다.

현재 농산물 안전성에 대한 기준은 국외의 경우 CODEX(Codex Alimentarius Commission)에서 주로 설정하고 있으며 국내의 경우 식품의약품안전처 또는 농촌진흥청에서 규제하고 있다. 하지만 현재 가축분뇨를 원료로 이용한 부산물 퇴비의 항생제에 대한 기준은 국내·외 모두 설정되어 있지 않다. 따라서, 가축분 퇴액비에 잔류하는 항생제에 대한 기준설정 및 저감방안, 그리고 잔류 항생제의 환경 유입을 최소화 할 수 있는 관리방안 등에 대한 모색이 필요한 실정이다.

## 2. 국내외 연구동향

최근 농산물 및 농업환경에 대한 안전성 문제가 대두되면서 유기 농자재인 퇴액비의 안전성에 대한 관심이 증대되고 있다. 퇴액비에 함유 가능성이 있는 여러 가지 유해물질 가운데 특히 중금속과 항생제에 대한 연구는 국내외에서 활발히 진행되고 있다. 중금속의 경우 미국 농무성(USDA-ARS)에서는 농식품내 중금속 함량에 대한 위해성 평가의 연구 (“농식품 Cd 위해성 평가”, “과원과 채소재배에서 Pb와 As의 잠재적 축적”)를 수행하고 있으며 토양 오염 및 생태학적 독성에 대한 환경 위험성 평가에 대한 연구가 진행되고 있다 (김 등, 2012). 일본의 경우 농업환경기술연구소 (NIAES)에서 중금속 및 방사성 물질의 동태 연구로서 “현미 내 카드뮴 신속 분석을 위한 면역학적 방법”, “중금속 위험성 관리”, 및 “중금속 오염 농경지 세척법” 등에 대한 연구가 진행되고 있다. 국내 역시 농산물의 안전성과 소비자의 건강을 위한 안전한 먹거리 생산을 목표로 연구가 진행되고 있으며 1999년부터 농업환경 및 농산물의 중금속 함량에 대한 모니터링이 지속적으로 실시되고 있다.

항생제에 대한 연구는 1980년 말부터 신중 오염물질로 간주하여 환경에 잔류하는 항생제에 대한 연구가 시작되었고 그 후 항생제 잔류량 분석과 이동 및 저감에 대한 연구가 활발히 진행되고 있다. 항생물질은 1940년대에 페니실린으로 처음 발견된 이후 인간과 가축의 질병 치료에 널리 사용되어 왔으나 1980년대 후반에 이르러 항생제의 오남용에 대한 문제점이 제기되면서 전 세계적으로 관심이 증대되었다. 항생제의 연구는 축산업이 성행하였던 유럽에서 먼저 시작하여 문제점을 제시하였고 유럽의 경우 1999년부터 성장촉진의 목적으로 사용되는 항생제에 대한 판매를 금지시켰다. 미국은 주로 미국환경청 (US. EPA)과 미국 농무성 (USDA)에서 주관하여 항생제의 환경오염 및 안전성에 대한 연구를 진행하고 있다. 국내의 경우 2008년도에 “항생제의 안전성에 대한 평가” 연구가 진행되었으나 가축분 퇴액비의 유해물질에 대한 안전성 평가 연구는 미흡한 실정이다.

국내 항생제의 사용량에 대한 자료를 살펴보면 2010년 한국 수의과학 검역원이 발표한 우리나라 축산업의 항생제 사용량은 2009년 기준으로 총 998톤이며 이 중 배합사료제조용 236톤, 수의사처방 93톤, 자가치료·예방 669톤인 것으로 보고되고 있다. 이는 선진국에 비해 약 1.5배 - 16배에 달하는 양으로 평가되어 항생제의 오남용에 대한 문제가 심각한 수준이다 (표 1).

표 1. 국내외 축종별 항생물질 사용량 비교

국가	가축수 (x 1,000)			항생물질 사용량 (ton)				단위사용량(g/head)		
	소	돼지	가금류	소	돼지	가금류	계	소	돼지	가금류
한국	2,949	8,170	162,246	57	459	199	715	19	56	1.2
미국	29,000	92,600	780,000	1,675	4,694	4,779	11,148	58	51	6.1
영국	10,378	4,851	159,323	7	281	20	390	0.7	58	0.1
덴마크	1,107	25,785	121,735	11	93	0.4	104	10	3.6	0.003
노르웨이	930	802	3,646	-	-	-	6			
호주	4,500	700	80,700	-	-	-	932			
스웨덴	-	-	-	-	-	-	16			

- 국외의 자료는 2005년 통계를 기준으로 함

항생물질의 종류별로 살펴보면 2005년 기준으로 소, 돼지, 닭의 사육에 많이 사용되고 있는 항생물질은 테트라사이클린 계열의 클로르테트라사이클린, 옥시테트라사이클린, 설피아마이드 계열의 설피아메타진, 설피아치아졸, 페니실린 계열의 아목시실린 등이다(표 2). 따라서 이들에 대한 환경 부하가 클 것으로 예상되며 이들 물질에 대한 관리가 우선되어야 할 것으로 판단된다. 2008년 서 등은 우리나라에서 사용되는 항생물질의 연간 사용량, 이들의 체외 배출율, 환경 위해성 등을 기초로 하여 10여 가지의 관리 우선 순위 항생물질 종류를 발표하였으며, 위에 기술하고 있는 항생물질외에 마크로라이드 계열의 타이로신 등을 포함하고 있다(서 등 2008).

항생제는 사용 특성상 투여한 양 중 10-20%만이 동물의 몸에서 병 치료나 성장촉진제로 사용되고 나머지는 배설되기 때문에 우리나라 항생제의 사용량을 고려할 때 배설된 항생제의 양은 적지 않을 것으로 사료된다. 항생물질의 체외 배출율은 대부분이 50%를 넘는 수치로 경구 투여된 항생물질의 대부분이 분뇨를 통해서 배출됨을 보여주고 있다. 우리나라 동물용 항생물질 중 관리 우선순위로 생각되는 테트라사이클린 계열의 체외 배출율은 약 70-80% 수준이며, 설피아마이드 계열은 15-90%까지 종류별로 다양한 배출율을 나타내고 있다. 마크로라이드 계열의 타이로신도 28-100%까지 넓은 범위의 배출율을 나타내고 있다(표 3). 기본적으로 항생물질의 사용량과 배출율을 이용하여

분뇨 중 항생물질의 잔류 농도를 예상할 수 있다. 하지만 배출물에서 다양한 수치를 보이는 항생물질에 대해서는 환경 관리 측면에서 실측 잔류 농도 수치를 정확히 측정할 필요가 있다.

표 2. 축종별 항생제 사용량

주성분	계 열	사용량, Mg yr <sup>-1</sup>		
		소	돼지	닭
Amoxicillin	Penicillin	12.7	79.0	14.3
Bacitracin	Polypeptide	0.7	5.7	12.2
Chlortetracycline	Tetracycline	16.1	306.5	62.1
Clopidol	—	1.5	3.3	25.1
Enrofloxacin	Quinolone	2.1	4.6	24.5
Florfenicol	Chloramphenicos	1.6	18.3	3.0
Monensin	—	—	—	13.6
Neomycin	Aminoglycoside	7.6	26.5	5.8
Oxytetracycline	Tetracycline	26.3	59.5	42.4
Penicillin	Penicillin	9.7	47.4	6.9
Salinomycin	—	0.5	0.5	34.9
Sulfamethazine	Sulfonamide	6.3	20.1	1.9
Sulfathiazole	Sulfonamide	2.7	114.6	4.8
Tiamulin	—	0.7	14.9	2.5
Tylosin	Macrolide	2.5	30.1	5.4
Sum (selected)		78.7	716.9	229.1
Total (83 antibiotics)		112.0	831.3	334.9

표 3. 동물용 항생제 체외 배출율 범위(Capleton et al., 2006; 서, 2008)

주성분	배출율(%)	주성분	배출율(%)
Amoxicillin	80~90	Lincomycin	28~38
Ampicillin	30~60	Neomycin	>80
Carbadox	70~90	<b>Oxytetracycline</b>	>80
<b>Chlortetracycline</b>	>70	Penicillin G	50~70
Dihydrostreptomycin	>60	Streptomycin	>66
Doxycycline	>70	Sulfamethoxazole	<15
Erythromycin	>60	Trimethoprim	<60
Florfenicol	<20	<b>Tylosin</b>	28~76

항생제의 추출법은 매체에 따라 상이하여 액체에서의 항생제 추출은 주로 고형 액상 추출(SPE, Solid Phase Extraction) 방법을 사용하고 고형상에서의 항생제는 유기용매나 버퍼용액을 사용하여 추출하고 있다. 추출된 항생제의 분석법은 Radioimmunoassay나 ELISA 방법 등을 사용하는데, 이는 분석이 간편하다는 이점은 있으나 최저 측정 가능 농도가 높고 반정량적(Semiquantification)이라는 단점 때문에 주로 고성능 액체 크로마토그래피(HPLC, High Performance Liquid Chromatography) 탠덤 질량분석법(MS/MS)을 사용하여 분석하고 있다. 하지만 항생제의 다양한 물리 화학적 특성과, 복잡한 매체에서의 추출 등 어려움 때문에 아직은 표준 분석법이 없는 실정이지만 여러 학자들이 정확한 분석법을 개발하기 위해 노력하고 있다.



### 3. 연구방법

#### 3.1 시료 채취

본 연구에 사용된 가축분 퇴비는 농촌진흥청에서 제공을 받아 사용하였으며 액비의 경우 충남 공주시 (2곳)와 논산시 (1곳)에 위치해 있는 공동 자원화 시설에서 시료를 채취하였다. 액비의 시료 채취는 2013년 3월 - 4월 기간 동안 2주 간격으로 시료를 채취하였으며 액비 처리 공정에 따라 원수, 폭기조, 액비 저장조에서 각각 시료를 채취하였다. 액비 시료는 채취 직후 얼음이 담긴 아이스박스(4℃)에 보관 후 실험실로 옮겨와 냉장실(4℃)에 보관하였다. 퇴비의 경우 채취된 시료는 2mm체로 체거름을 하여 불순물을 제거한 후 2mm체를 통과한 시료를 이용하여 분석을 실시하였다.

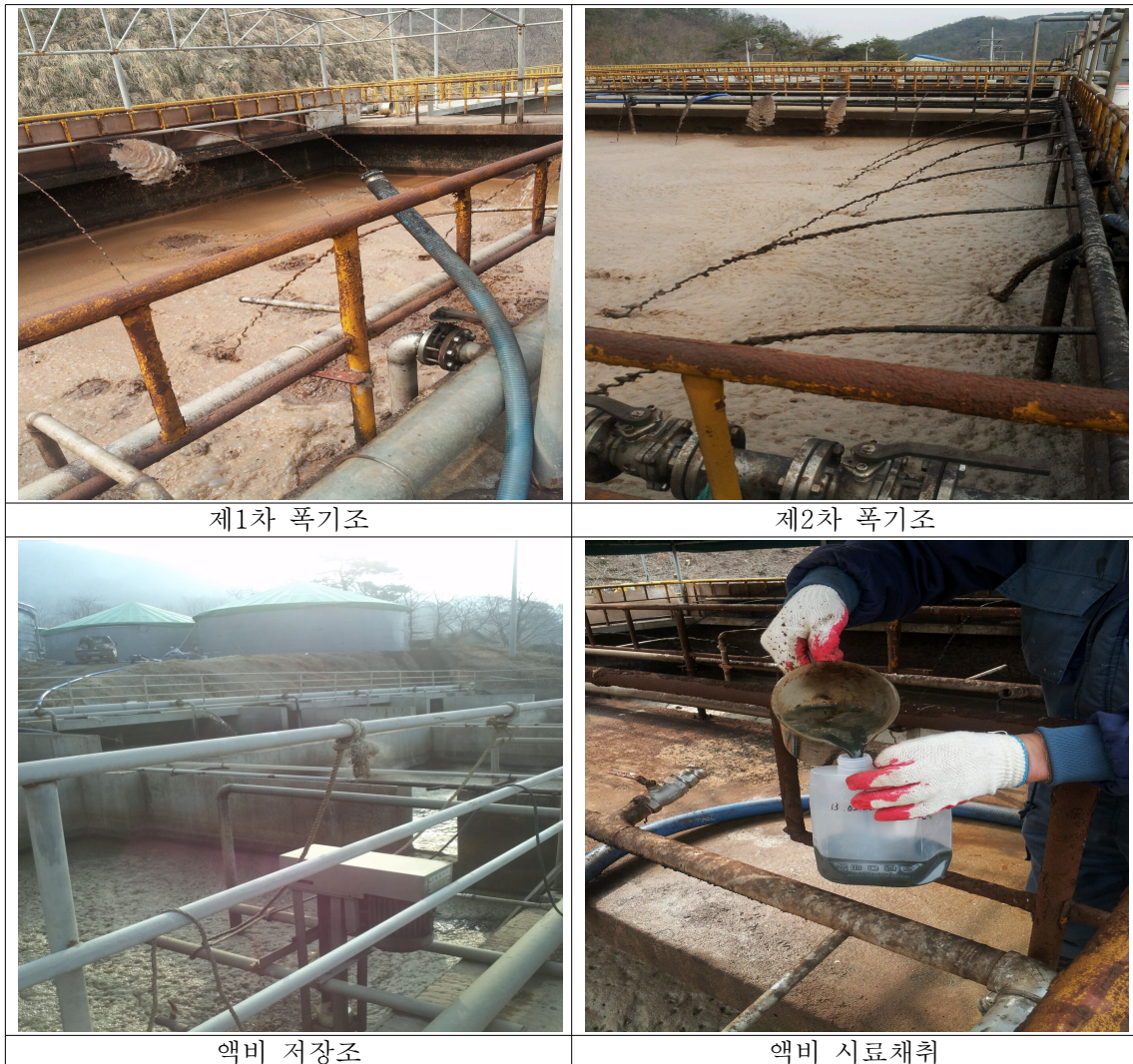


그림 1. 공동 자원화시설의 액비 시료 채취전경

## 3.2 시료 분석

### 3.2.1 가축분 퇴액비의 화학적 특성 및 중금속 분석

가축분 퇴액비의 화학적 특성을 평가하기 위해 총질소(Total Nitrogen), 총인(Total phosphorus), 양이온 (Ca, Mg, K, Na)의 함량을 분석하였다. 퇴비와 액비 각각 1g과 1mL을 킬달 플라스크에 평량하고 황산 ( $H_2SO_4$ )과 과산화수소 ( $H_2O_2$ , 촉매제)를 가하여 색이 무색 또는 옅은 청색이 될 때까지  $200^\circ C$ 에서 가열분해 하였다. 총질소의 경우 분해액을 취하여 Kjeldahl analyzer (Kjeltec 2300 Analyzer, Foss Tecator AB, Höganäs, Sweden)로 측정하였으며 총인은 Vanadate법을 이용하여 분해액 10mL와 Ammonium meta vanadate 10mL를 가하여 UV-Vis. Spectrophotometer (UV-2401PC, Shimadzu, Japan)로 파장 470nm에서 비색 측정하였다. 양이온과 중금속은 분해액을 적당히 희석하여 Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy (iCAP 6000, Thermo Fisher Scientific, England)로 측정하였다.

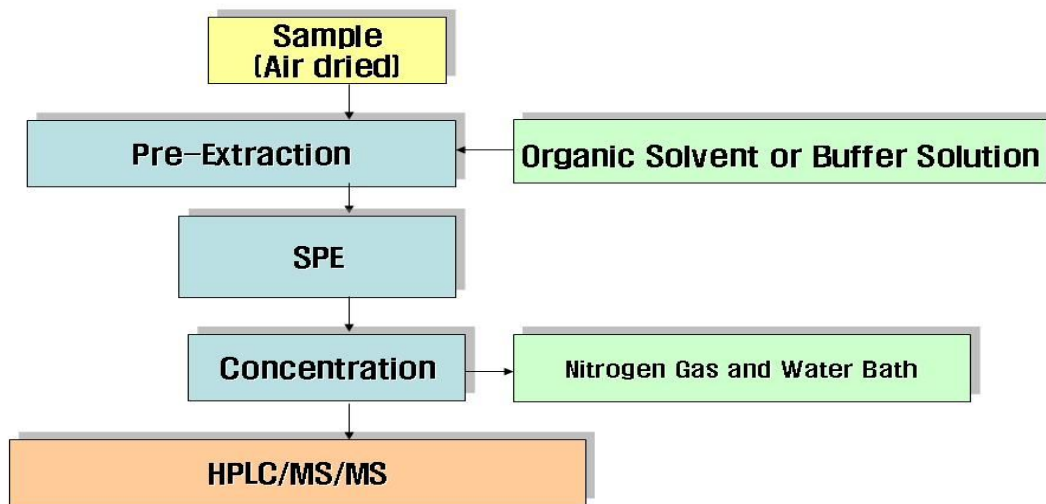
### 3.2.2 항생제 분석

본 연구에 사용된 항생제의 종류는 동물용 의약품으로 가장 많이 사용되는 테트라사이클라인(Tetracyclines), 설펜아마이드(Sulfonamides), 매크로라이드(Macrolides) 계열의 항생제 중 총 7종류를 선정하여 분석하였다 (표 4).

표 4. 국내 다소비 항생물질의 물리·화학적 특성

그룹	항생물질	M.W	Log $K_{ow}$	$K_d$ (L/kg)
Tetracyclines (TCs)	Tetracycline(TC)	444.44	-1.2	1140 - 1620
	Chlortetracycline(CTC)	478.89	-0.6	22 - 164,973
	Oxytetracycline(OTC)	460.44	-1.2	78 - 3020
Sulfonamides (SAs)	Sulfathiazole(STZ)	255.32	0.1	3 - 5
	Sulfamethazine(SMT)	278.33	0.9	1 - 3
Macrolides (MLs)	Tylosin(TYL)	915.45	3.5	8 - 128

퇴액비에 잔류하는 항생제의 추출은 미국환경청 (US EPA)에서 제공한 추출방법 "Method 1694: Pharmaceuticals and personal care products in water, soil, sediment, and biosolids by HPLC/MS/MS" 에 따라 시행하였다. 퇴비의 경우 2mm 로 체거름한 시료 1g에 대해 유기용매 (Acetonitrile)와 완충용액 (인산염완충용액) 을 사용하여 항생제를 추출한 후 고형상 추출법 (solid phase extraction)을 이용하여 시료를 정제하였다. 정제한 시료는 고성능 액체크로마토그래피-질량분석기 (HPLC/MS/MS)를 이용하여 분석하였다 (표 5). 액비의 경우 시료를 0.45 $\mu$ m 유리 섬유 필터(Glass fiber filter)로 여과한 후 1mL를 취하여 증류수 119 mL와 혼합한 후 Method 1694에서 제시한 추출방법에 따라 분석을 시행하였다.



(a)



(b)



(c)

그림 2. 가축분 퇴비 중 잔류 항생물질 추출법의 모식도 및 (a)SPE (b)질소농축기 (c)HPLC/MS/MS

표 5. 향생물질 분석을 위한 HPLC/MS의 최적조건

	컬럼온도(°C)	유속 (mL/min)	이동상조건
HPLC 최적화 조건	15	0.32	A:96% + B:4% (1min) A:70% + B:30% (29min) A:96% + B:4% (30min)
MS 최적화 조건	Spray voltage - 4.5 V Capillary voltage - 21 V Capillary temperature - 165 °C		
이동상 A: 99.9% DI + 0.1% formic acid, B: 99.9% acetonitrile + 0.1% formic acid			

### 3.3 향생제의 작물전이 평가

향생제의 작물전이를 평가하기 위해 새싹채소인 적양 (*Brassica oleracea* L. var. *capitata* f. *rubra*)과 적무(*Raphanus sativus*)를 대상으로 작물 흡수량을 평가하였다. 작물 재배는 Growth chamber에서 실시하였으며 총 재배기간 8일중 처음 3일 동안은 암조건을 유지하여 발아를 시킨 후 4 - 8일 동안은 광조건과 암조건을 각각 16시간, 8시간으로 유지하였다. 재배 온도는 22-23°C로 유지하였으며 동물용 향생제의 농도는 재배 기간 동안 5mg L<sup>-1</sup>로 유지하였다. 식재 후 8일이 경과된 시료에 대해 침지에 잠겨있는 뿌리를 제거한 후 분석을 위한 시료는 동결건조 (Freeze drying) 하였으며 나머지 시료는 -80°C에 보관하였다. 동결 건조한 시료는 막자사발에서 분말한 후 향생제 분석에 사용하였다. 향생제 분석을 위해 작물 시료 0.1g을 이용하였으며 분석 방법은 퇴비 내 향생제 분석방법에 준하였다.



	
<p>배양기 안 실험전경</p>	<p>재배가 끝난 새싹채소</p>
	
<p>동결 건조 후 분말</p>	<p>분말된 작물 시료</p>
	
<p>항생제 추출</p>	<p>고형상 추출법에 의한 항생제 추출</p>

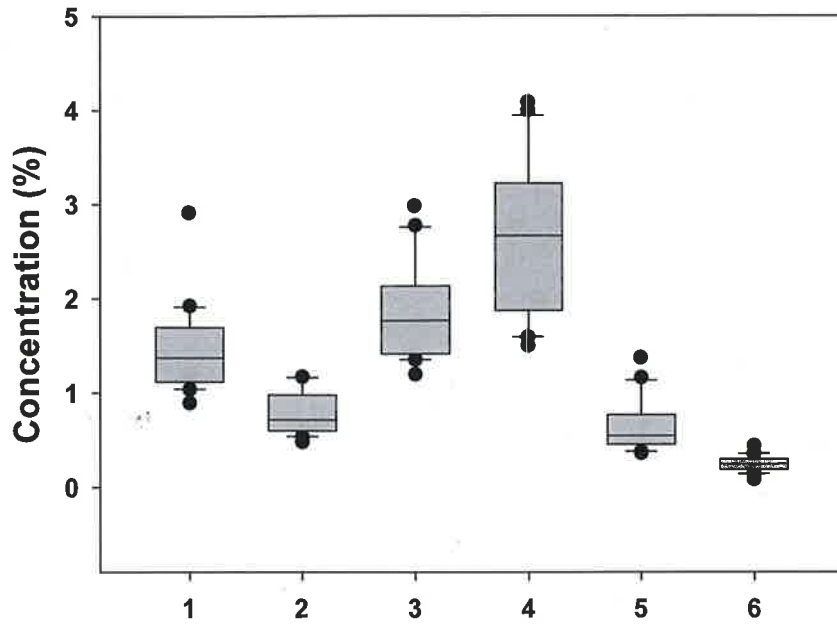
그림 3. 작물체 내 항생제 흡수량 분석을 위한 실험 및 추출 방법

## 4. 연구결과

### 4.1 가축분 퇴액비의 화학적 특성

- 가축분 퇴액비의 이화학적 특성을 평가하기 위해 퇴비 20점과 액비 20점의 화학적 특성을 분석하였으며 분석 항목은 총질소, 총인, 양이온함량 (칼슘, 마그네슘, 나트륨,加里)에 대해 분석을 실시함.
- 가축분 퇴비의 경우 총질소와 총인의 평균 함량이 약 1.44%, 0.79% 였으며 액비의 경우 총질소, 총인, 총칼리의 평균 함량이 각각 0.23%, 0.05%, 0.23%인 것으로 조사됨 (그림 4, 5)
- 비료 공정 규격에 의해 액비의 경우 질소, 인산, 칼리의 총함량 합이 0.3% 이하야 하며 이에 대해 모든 액비가 기준에 적합하였음
- 액비의 제조 공정에 따른 화학적 특성을 분석한 결과 총질소의 경우 원액에서는 약 0.57-0.69% 인 반면 폭기조에서는 약 0.07-0.32%로 54-88% 감소하였음. 이는 폭기에 의해 암모니아태 질소가 휘산된 것으로 사료됨 (그림 5)
- 총인과 총칼리의 경우에는 액비 제조 공정에 따른 양분 손실은 미비하였음

(A)



(B)

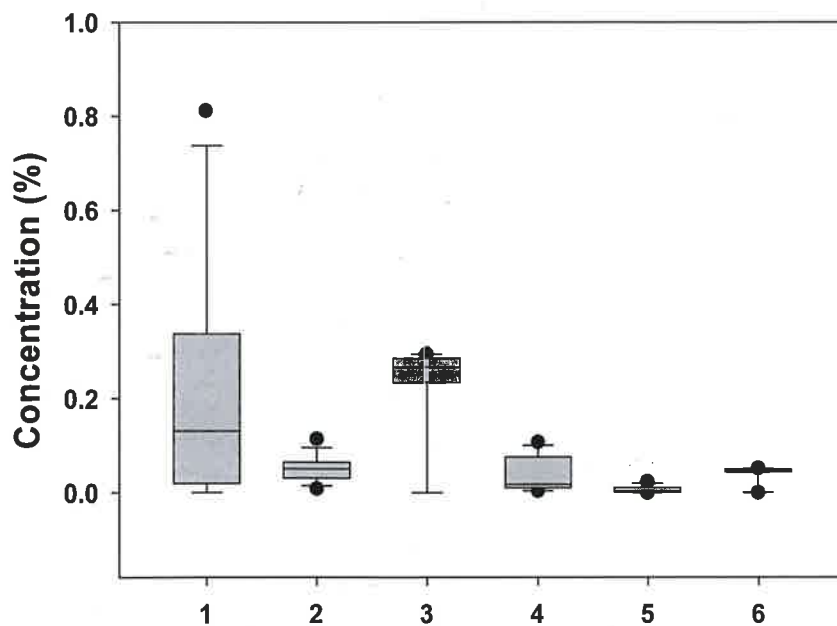
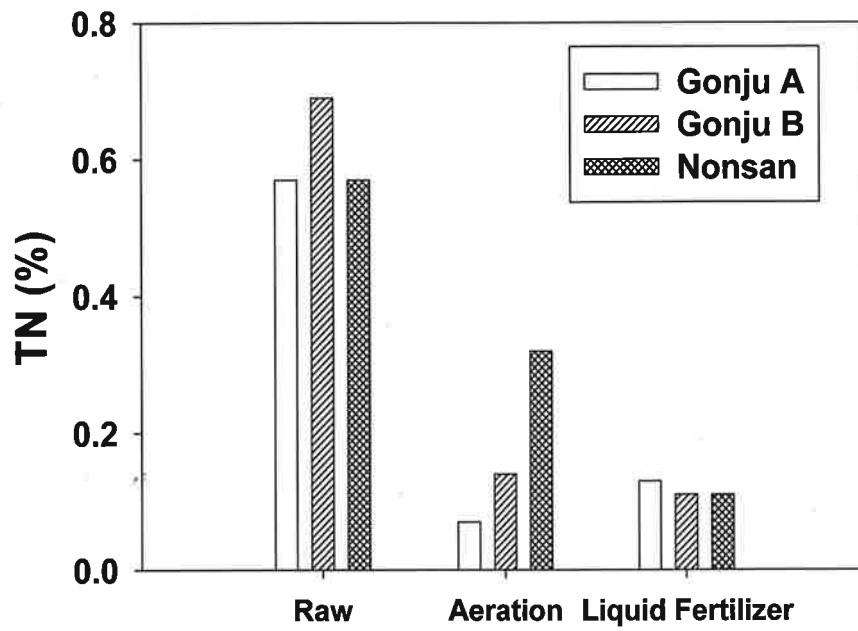
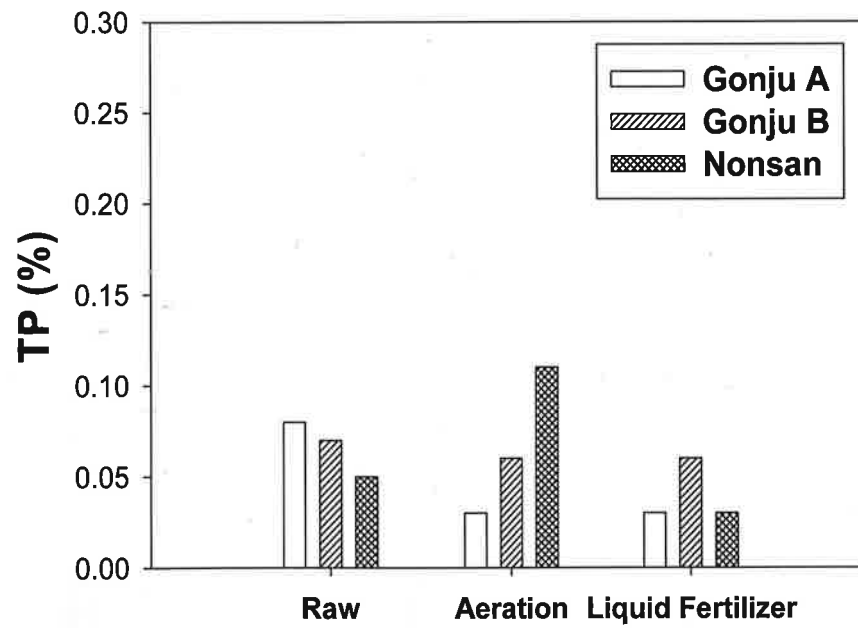


그림 4. 가축분 퇴액비의 화학적 특성 (A) 가축분 퇴비, (B)액비 : X축의 1-총질소, 2-총인, 3-칼륨, 4-칼슘, 5-마그네슘, 6-나트륨.

## Total Nitrogen

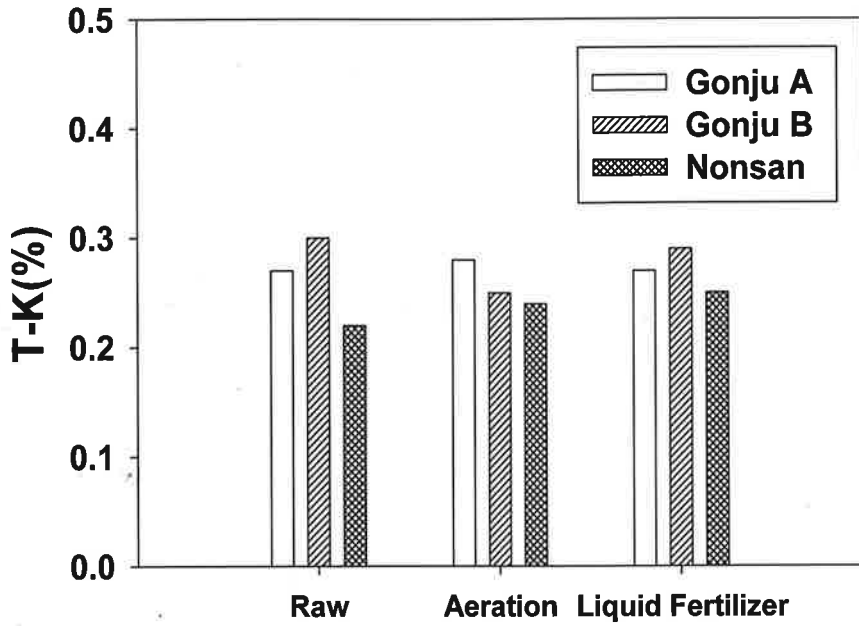


## Total Phosphorus





### Total Potassium



### Total Cations

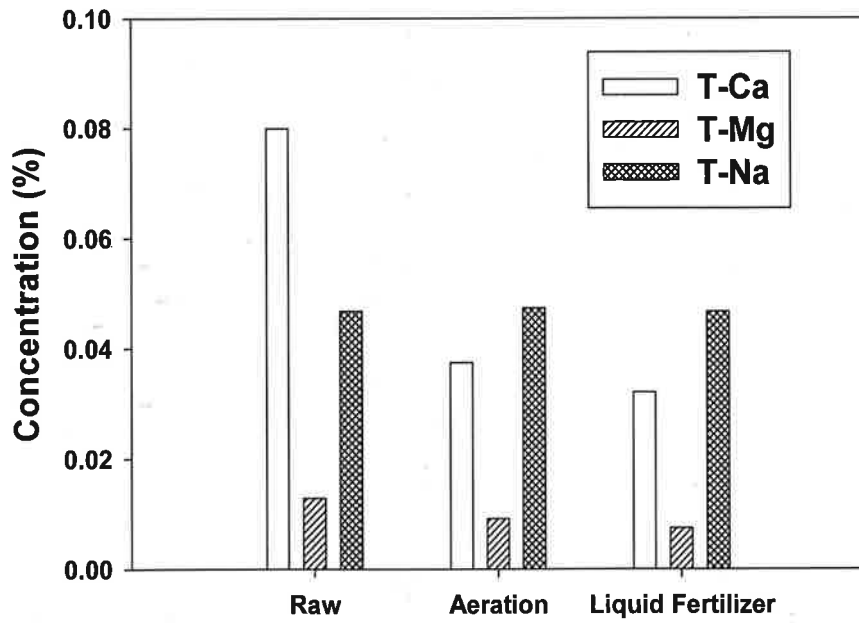
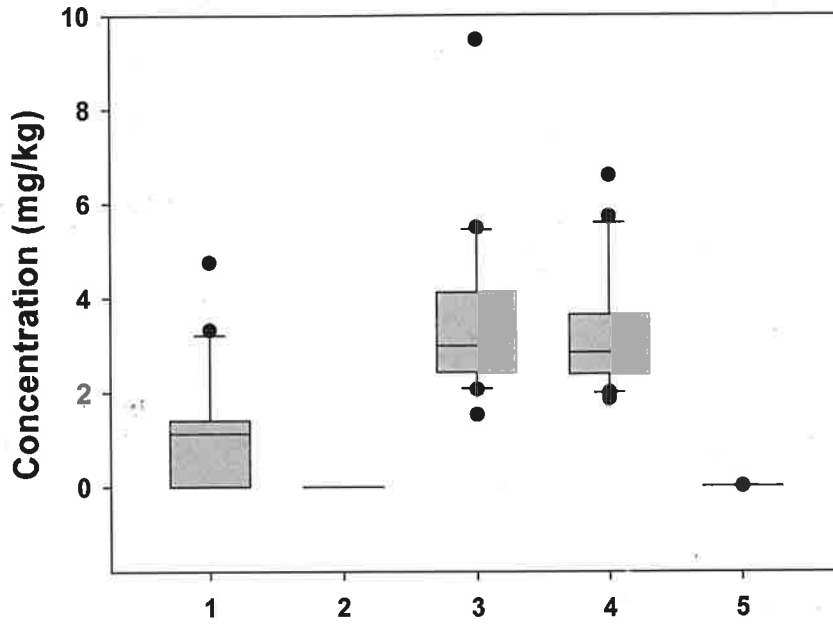


그림 5. 액비 제조 공정에 따른 화학적 특성

## 4.2 가축분 퇴액비 내 중금속 함량 분석

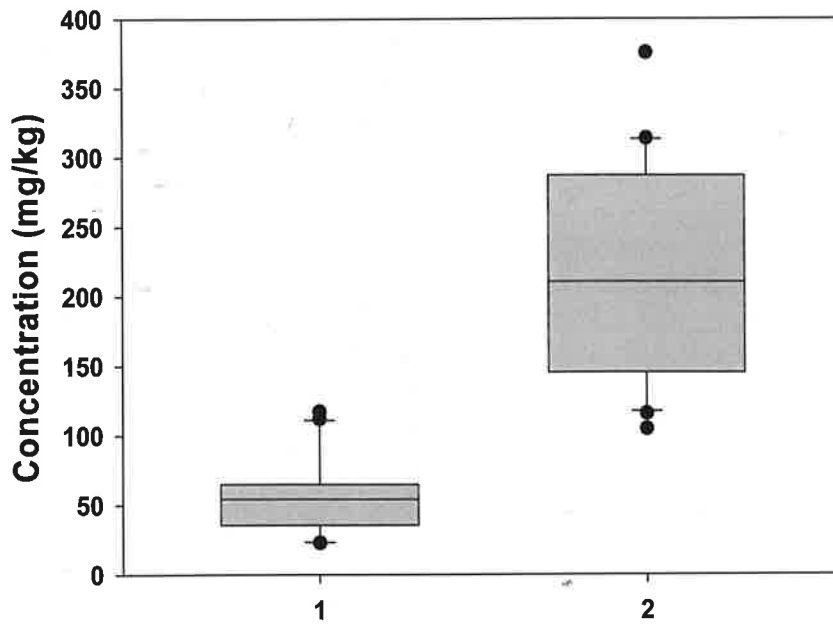
- 가축분 퇴액비 내 중금속 함량은 그림 6,7에 정리하였음
- 가축분 퇴액비의 경우 As, Cd, Ni, Pb, Hg와 같은 유해 중금속은 모두 비료공정 규격 기준보다 낮았음.
- 가축분 퇴비 내 유해 중금속의 평균 함량은 As, Cd, Ni, Pb, Hg에 대해 각각 1.07, 불검출, 3.55, 3.18, 0.02 mg/kg 이었으며 액비의 경우 각각 1.85, 불검출, 불검출, 불검출, 0.02 mg/L 인 것으로 조사됨
- 미량 요소인 Cu와 Zn의 경우 퇴비 내 평균 함량은 56.63, 214.31 mg/kg 이었으며 액비의 경우 평균 함량은 9.78, 42.72 mg/L로 비료공정규격 기준에 비해서는 모두 낮았음.
- 하지만 가축분 퇴액비 내 Cu와 Zn의 함량이 과거에 비해 점점 증가하고 있는 추세를 보이고 있어 이에 대한 관리가 필요한 실정임

### Compost



(1-As, 2-Cd, 3-Ni, 4-Pb, 5-Hg)

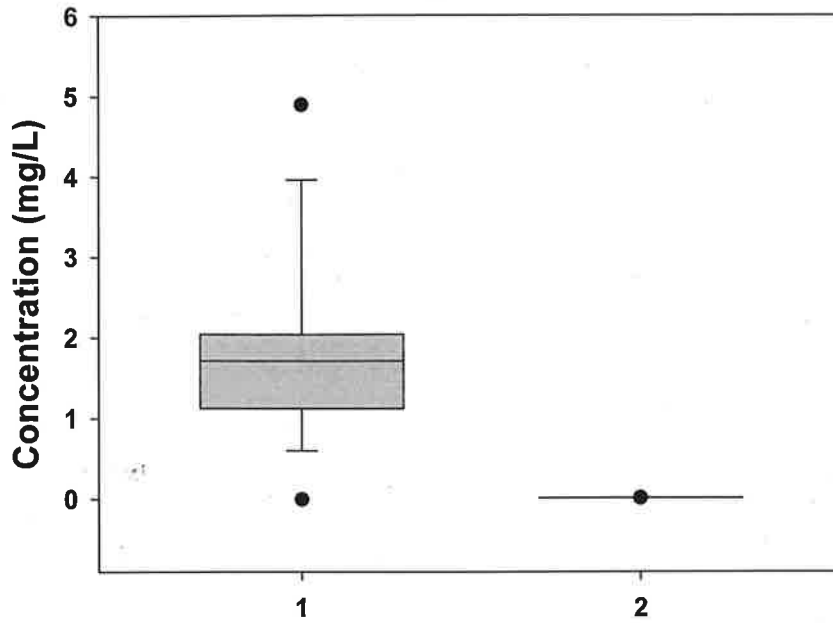
### Compost (Cu and Zn)



(1-Cu, 2-Zn)

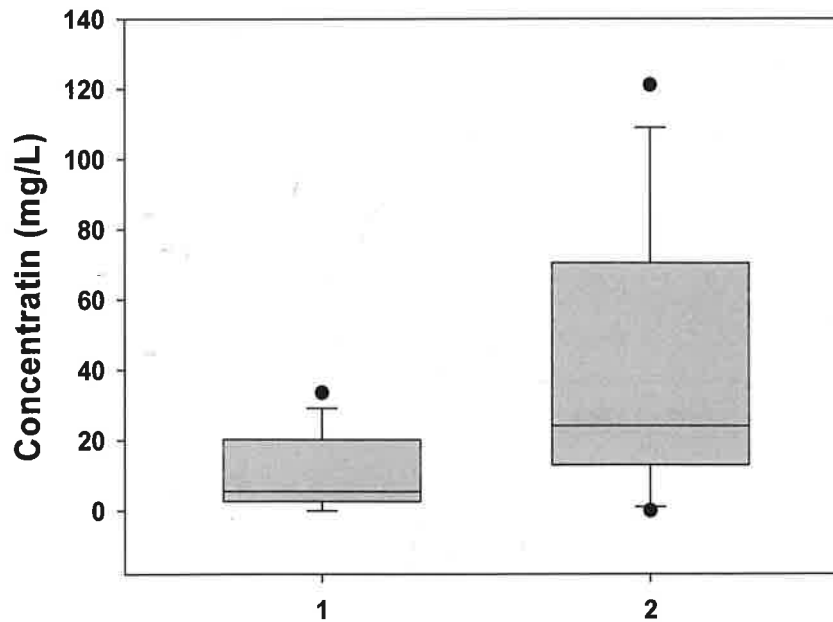
그림 6. 가축분 퇴비 내 중금속 함량 결과

### Liquid Fertilizer (As and Hg)



(1-As, 2-Hg)

### Liquid Fertilizer (Cu and Zn)



(1-Cu, 2-Zn)

그림 7. 액비 내 중금속 함량 분석 결과

### 4.3 가축분 퇴액비 내 잔류 항생제 농도

- 가축분 퇴비 내 잔류 항생제 농도는 그림 8에 정리하였음.
- 가축분 퇴비 내 항생제의 평균 잔류 농도는 테트라사이클라인 계열의 TC(197.2  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ), CTC (1,458.3 $\mu\text{g}/\text{kg}$ ), OTC (89.3  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ) 였으며 설피온아미드 계열의 STZ (268.1  $\mu\text{g}/\text{kg}$ )인 것으로 조사됨
- 매크로라이드 계열의 TYL은 가축분 퇴비 내 평균 함량이 209.0  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 인 것으로 조사됨
- 총 7종류의 항생제 중 CTC의 함량이 가장 높았으며 SMX와 SMT는 검출되지 않았음

**Antibiotic Concentration in Compost**

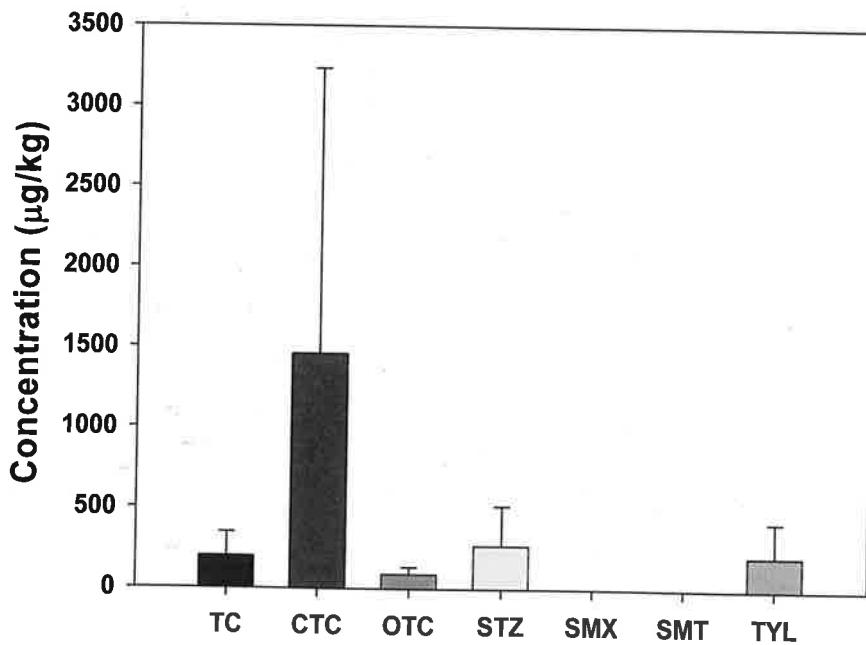
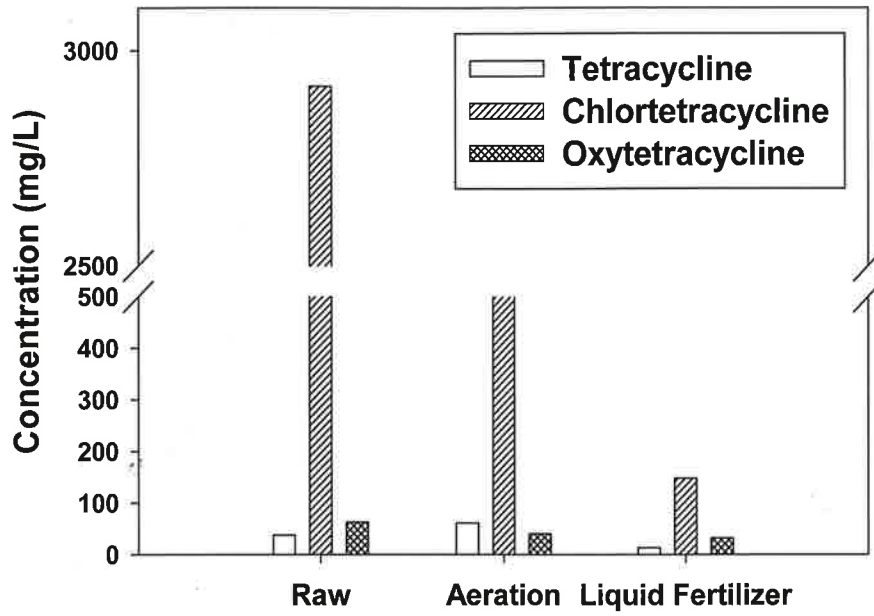


그림 8. 가축분 퇴비 내 항생제의 평균 함량

(TC-Tetracycline, CTC-Chlortetracycline, OTC-Oxytetracycline, STZ-Sulfathiazole, SMX-Sulfamethoxazole, SMT-Sulfamethazine, TYL-Tylosin)

- 액비의 경우 잔류 항생제의 농도는 원수에서 가장 높았으며 제조 공정에 따라 항생제의 농도가 감소하였음
- 공주(그림 9)와 논산(그림 10)의 자원공동화시설에서 채취한 액비 시료 내 항생제의 평균 잔류 농도는 항생제의 종류에 따라 상이하였으며 테트라사이클라인 (TCs) 계열의 항생제에 대한 원수 내 잔류 농도는 약 0.03 - 3.4 mg/L인 것으로 조사됨.
- 총 3종류의 TCs 계열 항생제 중에서는 논산 지역의 원수 시료 내 클로로테트라 사이클라인 (CTC)의 농도가 3.4 mg/L로 가장 높았으며 테트라사이클라인 (TC)의 농도가 약 0.03 mg/L인 것으로 조사됨
- 원수 내 설펜아마이드(SAs) 계열의 항생제 평균 농도는 0.04-4.4 mg/L 정도였으며 논산 지역의 원수 내 설펜메타진 (SMT)의 평균 농도가 약 4.4 mg/L로 가장 높았음
- 타이로신의 경우 공주와 논산의 원수 내 평균 농도가 약 0.03 mg/L로 항생제 종류 중에서는 가장 낮은 것으로 조사되었음
- 액비 제조 공정에 따라 항생제의 농도는 점차 감소하였으며 공주 지역의 경우 TCs의 감소 효율은 49-95% 였으며 SAs의 경우 69-99% 정도 감소하는 것으로 조사되었음.
- 하지만 타이로신(TYL)의 경우 액비 제조 공정에 따른 항생제 감소는 미비한 것으로 조사됨

## Tetracyclines



## Sulfonamides and Tylosine

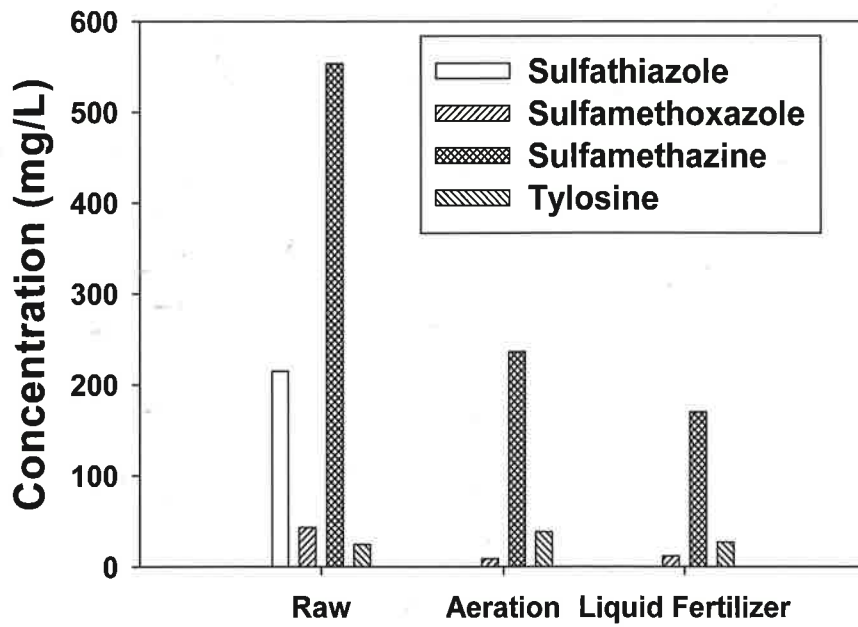
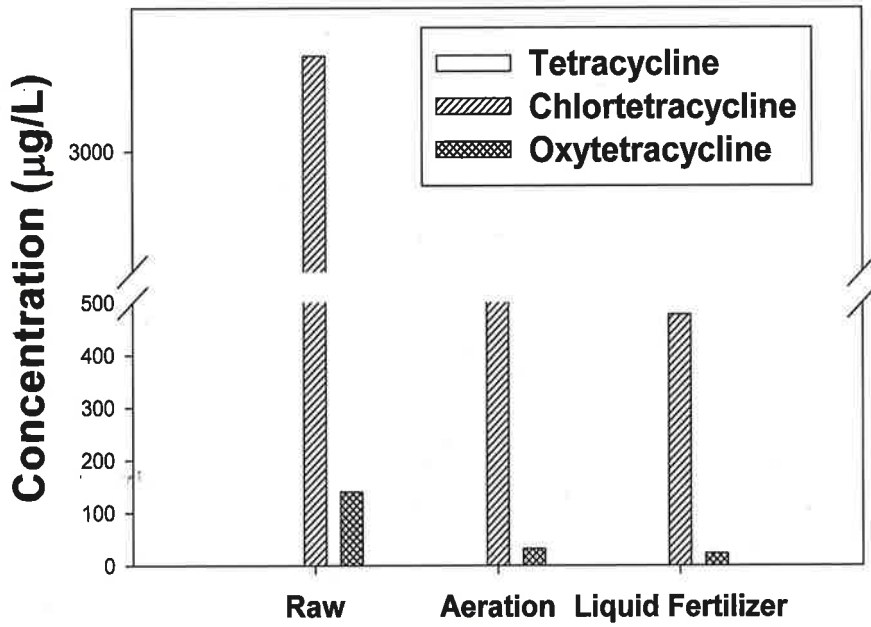


그림 9. 공주 지역의 액비 제조 공정에 따른 항생제 농도 분석 결과

### Tetracyclines



### Sulfonamides and Tylosine

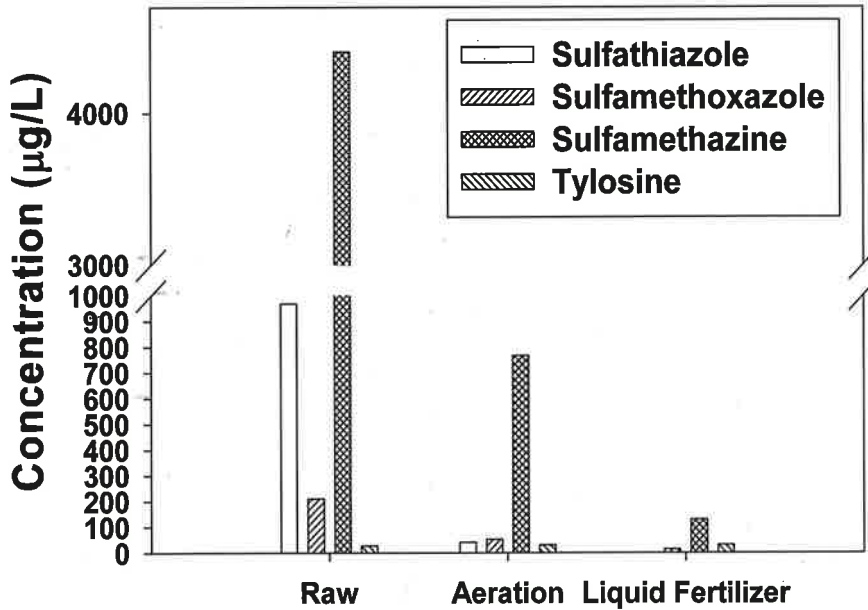


그림 10. 논산 지역의 액비 제조 공정에 따른 항생제 농도 분석 결과



#### 4.4 항생제의 작물전이 평가

- 항생제의 작물전이를 평가하기 위해 새싹채소인 적양 (*Brassica oleracea* L. var. *capitata* f. *rubra*)과 적무(*Raphanus sativus*)를 대상으로 작물의 생육 및 흡수량을 평가하였음.
- 작물의 생육 조사 결과 적무와 적양 모두 대조구에 비해 항생제 처리구에서 생육이 저조한 것으로 조사됨(그림 11)
- 적무의 경우 대조구의 평균 길이가 6.5cm 인 반면 항생제 처리구의 경우 4.8-5.1 cm로 약 23% 정도 생장이 저하되었음. 적양의 경우 대조구의 평균 길이는 2.9cm였으며 항생제 처리구의 평균 길이 2.1-2.2cm로 대조구에 비해 약 27% 저하됨
- 작물의 생중량 역시 적무의 경우 대조구 (17.7g/plot)에 비해 항생제 처리구 (12.4 - 14.9g/plot)가 낮았으며 테트라사이클라인(18.5g/plot)의 경우 대조구보다 무게가 높았음
- 적양에서는 작물의 생중량이 대조구 (6.8g/plot)에 비해 항생제 처리구 (4.9-6.3g/plot)에서 낮은 것으로 조사됨
- 두 가지 새싹 채소 내 항생제의 작물 전이 농도를 평가한 결과 적무와 적양의 경우 테트라사이클라인(TCs) 계열의 항생제는 약 0.47-0.64, 1.9-4.1 mg/kg였으며 설폰아마이드 (SAs) 계열의 항생제는 0.04-0.08, 0.04-7.7 mg/kg 인 것으로 조사됨 (그림 12)
- 타이로신 (TYL) 계열의 항생제 평균 잔류 농도는 적무와 적양에서 각각 13.1, 8.3 mg/kg인 것으로 조사됨
- 적무와 적양을 비교하였을 경우 적무에 비해 적양에서의 항생제 잔류 농도가 높았으며 항생제 종류에 대한 비교에서는 타이로신의 잔류 농도가 가장 높았음
- 항생제의 작물 전이율은 약 0.00-54.27%로 항생제의 종류에 따라 상이하였음

며 항생제 종류 중 타이로신의 평균 전이율이 적양과 적무에서 약 14.77, 54.27%로 가장 높았음 (표 6)

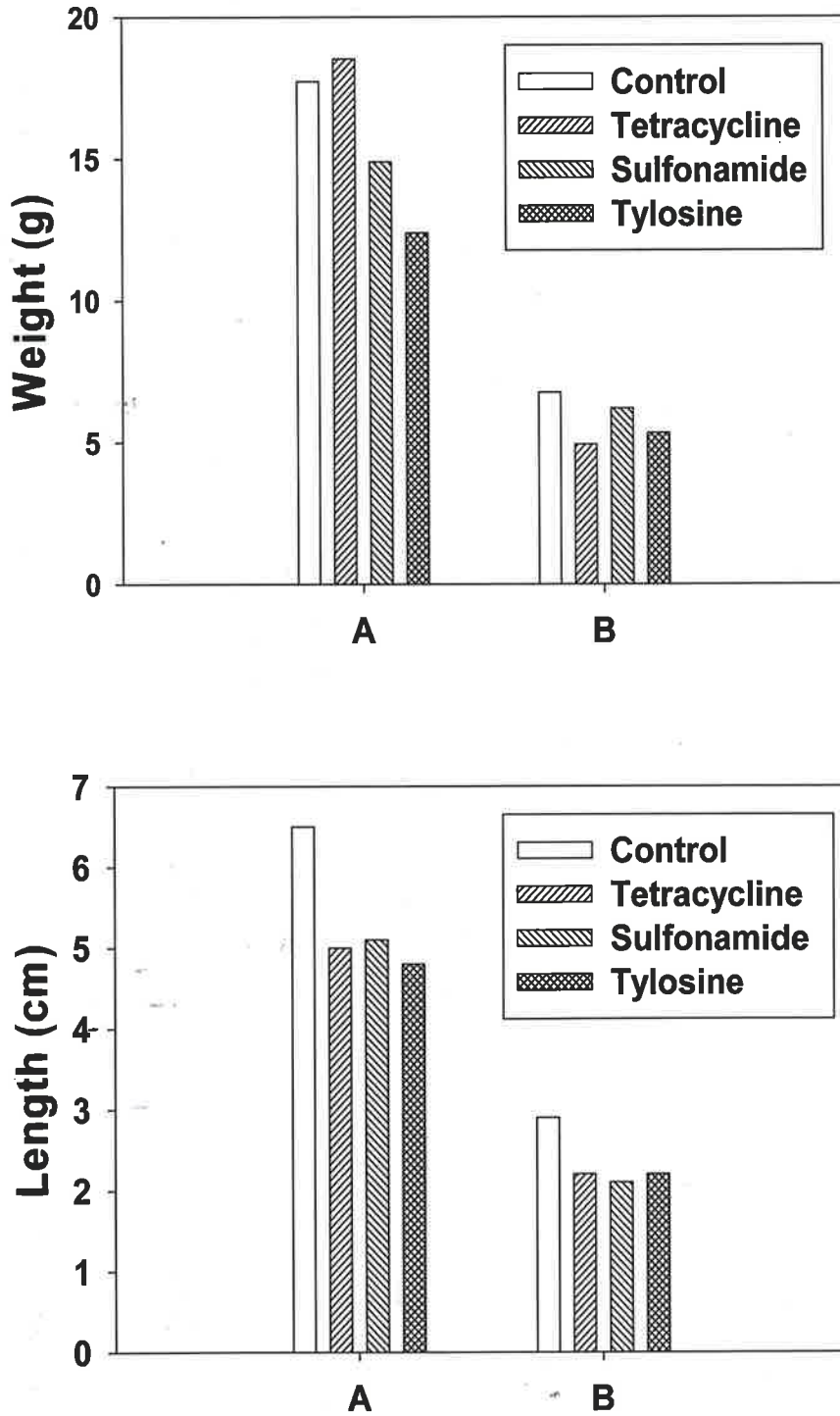


그림 11. 항생제 시용에 따른 작물의 생육 조사 결과: (A)-적무, (B)-적양

## Concentration of Antibiotics in Sprouts

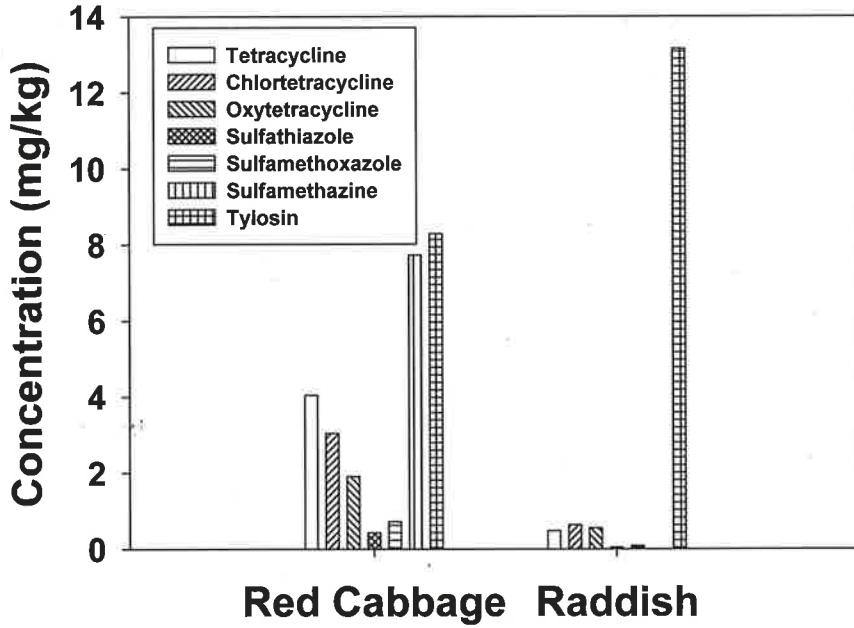


그림 12. 새싹 채소 내 항생제 잔류 농도

표 6. 항생제의 작물체 흡수율 (단위: %)

항생제 종류	적양	적무
Tetracycline (TC)	6.67	2.94
Chlortetracycline (CTC)	5.02	3.96
Oxytetracycline (OTC)	3.14	3.40
Sulfathiazole (STZ)	0.89	0.19
Sulfamethoxazole (SMX)	1.48	0.38
Sulfamethazine (SMT)	15.98	0.00
Tylosin (TYL)	14.77	54.27

## 5. 결론

- 가축분 퇴액비 내 유해물질의 안전성 평가를 위해 국내 퇴액비 내 중금속 및 항생물질의 잔류량을 파악함
- 가축분 퇴비의 경우 총질소와 총인의 평균 함량이 약 1.44%, 0.79% 였으며 액비의 경우 총질소, 총인, 총칼리의 평균 함량이 각각 0.23%, 0.05%, 0.23%인 것으로 조사됨
- 비료 공정 규격에 의해 액비의 경우 질소, 인산, 칼리의 총함량 합이 0.3% 이하 하며 이에 대해 모든 액비가 기준에 적합하였음
- 퇴비와 액비의 중금속 함량에 대한 분석 결과 퇴비와 액비 내 유해 중금속의 평균 함량은 모두 기준 보다 낮았으며 기준을 초과하는 시료는 없었음
- 퇴비와 액비 내 구리와 아연에 대한 평균 잔류 농도는 퇴비의 경우 각각 56.63, 214.31 mg/kg 이었으며 액비의 경우 각각 9.78, 42.72 mg/L로 비료공정규격 기준에 비해서는 모두 낮았음. 하지만 가축분 퇴액비 내 Cu와 Zn의 함량이 과거에 비해 점점 증가하고 있는 추세를 보이고 있어 이에 대한 관리가 필요한 실정임
- 가축분 퇴비 내 항생제의 평균 잔류 농도를 분석하기 위해 총 7종류의 항생제를 분석 하였으며 그 중 테트라사이클라인 계열의 클로로테트라사이클라인 (CTC-1,458.3 $\mu$ g/kg)의 농도가 가장 높았음
- 액비의 경우 잔류 항생제의 농도는 원수에서 가장 높았으며 제조 공정에 따라 항생제의 농도가 감소하였음
- 총 7종류의 항생제 중에서는 논산 지역의 원수 시료 내 클로로테트라사이클라인 (CTC)의 농도가 3.4 mg/L로 가장 높았으며 설파메타진 (SMT)의 평균 농도가 약 4.4 mg/L로 가장 높았음
- 타이로신의 경우 공주와 논산의 원수 내 평균 농도가 약 0.03 mg/L로 항생제

종류 중에서는 가장 낮은 것으로 조사되었음

- 액비 제조 공정에 따라 항생제의 농도는 점차 감소하였으며 공주 지역의 경우 TCs의 감소 효율은 49-95% 였으며 SAs의 경우 69-99% 정도 감소하는 것으로 조사되었음.
- 항생제의 작물전이를 평가하기 위해 새싹채소인 적양 (*Brassica oleracea* L. var. *capitata* f. *rubra*)과 적무(*Raphanus sativus*)를 대상으로 작물의 생육 및 흡수량을 평가한 결과 적무의 경우 대조구의 평균 길이가 6.5cm 인 반면 항생제 처리구의 경우 4.8-5.1 cm로 약 23% 정도 생장이 저하되었음. 적양의 경우 대조구의 평균 길이는 2.9cm였으며 항생제 처리구의 평균 길이 2.1-2.2cm로 대조구에 비해 약 27% 저하됨
- 작물의 생중량 역시 적무의 경우 대조구 (17.7g/plot)에 비해 항생제 처리구 (12.4 - 14.9g/plot)가 낮았으며 적양에서는 작물의 생중량이 대조구 (6.8g/plot)에 비해 항생제 처리구 (4.9-6.3g/plot)에서 낮은 것으로 조사됨
- 두 가지 새싹 채소 내 항생제의 작물 전이 농도를 평가한 결과 적무와 적양의 경우 테트라사이클라인(TCs) 계열의 항생제는 약 0.47-0.64, 1.9-4.1 mg/kg 였으며 설폰아마이드 (SAs) 계열의 항생제는 0.04-0.08, 0.04-7.7 mg/kg 인 것으로 조사됨. 타이로신 (TYL) 계열의 항생제 평균 잔류 농도는 적무와 적양에서 각각 13.1, 8.3 mg/kg인 것으로 조사됨
- 적무와 적양을 비교하였을 경우 적무에 비해 적양에서의 항생제 잔류 농도가 높았으며 항생제 종류에 대한 비교에서는 타이로신의 잔류 농도가 가장 높았음
- 항생제의 작물 전이율은 약 0.00-54.27%로 항생제의 종류에 따라 상이하였으며 항생제 종류 중 타이로신의 평균 전이율이 적양과 적무에서 약 14.77, 54.27%로 가장 높았음

## 6. 정책적 제언

- 가축분 퇴액비의 안전성 관리를 위한 중장기 로드맵 작성 필요
- 타부처인 환경부의 경우 항생제 내성관리를 위한 종합대책 1차년 (2008-2012) 완료 후 2차년 계획 (2013-2017)을 수립하여 시행 중
- 현 정부의 국정과제인 “안전한 먹거리 창출을 위한 관리 방안 수립”을 위해 안전한 먹거리 생산을 위한 농자재 관리 방안 구축 필요
- 가축분뇨의 최적관리방안을 관장하는 “가축분뇨의 처리 및 이용에 관한 법률”의 환경부 소관에 따른 업무의 불합리화 개정 방안 마련 시급

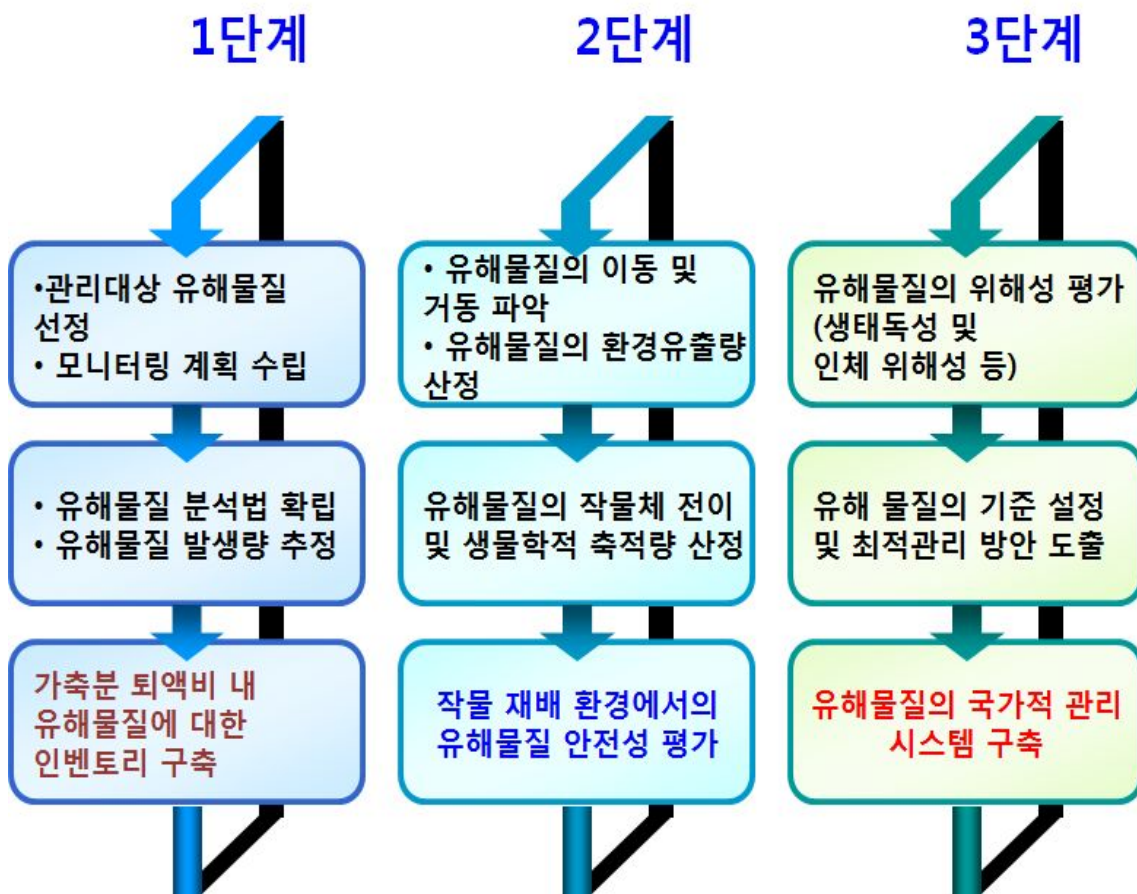


그림 12. 가축분 퇴액비 위험관리 체계 확립을 위한 중장기 로드맵

□ 연차별 연구계획

연차	연구 내용
1년차	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 가축분 퇴액비의 안전성 관리를 위한 유해물질의 우선순위 선정</li> <li>○ 가축분 퇴액비 내 유해물질 분석 방법 정립</li> <li>○ 가축분 퇴액비 유래 유해물질의 잔류성 모니터링</li> </ul>
2년차	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 가축분 퇴액비 처리 농경지 내 유해물질의 환경 거동 평가</li> <li>○ 유해물질의 환경 유입량 산정 및 환경유출 기여도 산정</li> <li>○ 가축분 퇴액비 내 유해물질의 환경관리 방안 모색</li> </ul>
3년차	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 유해물질의 발생 및 거동의 메커니즘 규명</li> <li>○ 유해물질의 작물 전이 및 흡수량 평가</li> <li>○ 작물 재배 환경에서의 유해물질 안전성 평가</li> </ul>
4년차	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 가축분 퇴액비의 잠재적 위해성 평가 (생태독성 및 위해성 평가)</li> <li>○ 가축분 퇴액비 내 유해물질(항생제)의 내성균 발현 가능성 모색</li> </ul>
5년차	<ul style="list-style-type: none"> <li>○ 가축분 퇴액비 내 유해물질의 기준설정 및 최적관리방안 모색</li> <li>○ 가축분 퇴액비의 체계적 관리를 위한 국가 시스템 구축</li> </ul>

## 참고문헌

- Arikan, O.A. (2008). Degradation and metabolization of chlortetracycline during the anaerobic digestion of manure from medicated calves. *Journal of Hazardous Materials*, 158:485-490.
- Arikan, O.A., Mulbry, W., Rice, C. (2009). Management of antibiotic residues from agricultural sources: Use of composting to reduce chlortetracycline residues in beef manure from treated animals. *Journal of Hazardous Materials*, 164:483-489.
- Aust, M-O., Godlinski, F., Travis, G.R., Hao, X., McAllister, T.A., Leinweber, P., Thiele-Bruhn, S. (2008). Distribution of sulfamethazine, chlortetracycline and tylosin in manure and soil of Canadian feedlots after subtherapeutic use in cattle. *Environmental Pollution*, 156:1243-1251.
- Baguer, A.J., Jensen, J., Krogh, P.H. (2000). Effects of the antibiotics oxytetracycline and tylosin on soil fauna. *Chemosphere*, 40:751-757.
- Bao, Y., Zhou, Q., Guan, L., Wang, Y. (2009) Depletion of chlortetracycline during composting of aged and spiked manures. *Waste Management*, 29:1416-1423.
- Benbrook, C.M. (2002). Antibiotic drug use in U.S. aquaculture. Available at <http://www.iatp.org>. Assessed 27 July 2009.
- Berger, K., Peterson, B., Buening-Pfaune, H. (1986). Persistence of drugs occurring in liquid manure in the food chain. *Arch. lebensmittelsh*, 37:99-102.
- Blackwell, P.A., Kay, P., Boxall, A.B.A. (2007). The dissipation and transport of veterinary antibiotics in a sandy loam soil. *Chemosphere*, 67:292-299.
- Blackwell, P.A., Kay, P., Ashauer, R., Boxall, A.B.A. (2009). Effects of agricultural conditions on the leaching behaviour of veterinary antibiotics in soils. *Chemosphere*, 75:13-19.
- Boxall, A.B.A., Kolpin, D.W., Halling-Sorensen, B., Tolls, J. (2003). Are veterinary medicines causing environmental risks? *Environmental Science and Technology*, 37:286-294.
- Boxall, A.B.A., Johnson, P., Smith, E.J., Sinclair, C.J., Stutt, E., Levy, L.S. (2006). Uptake of veterinary medicines from soils into plants. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 54:2288-2297.
- Burkhardt, M., Stamm, C., Waul, C., Singer, H., Muller, S. (2005). Surface



- runoff and transport of sulfonamide antibiotics and tracers on manured grassland. *Journal of Environmental Quality*, 34:1363-1371.
- CEC, (1998a). Council regulation 2788/98. Official Journal of the European Communities Legislation L347, 32.
- CEC, (1998b). Council Regulation 2821/98. Official Journal of the European Communities Legislation L351, 4.
- Chadwick, D.R., & Chen, S. (2002). Manures. In P. M. Haygarth and S. C. Jarris (Ed.), *Agriculture, Hydrology and Water Quality* (pp. 57-82). CABI Publishing, Wallington UK.
- DANMAP, (2005). DANMAP 2005-Use of antimicrobial agents and occurrence of antimicrobial resistance in bacteria from food animals, foods and humans in Denmark. Available at [http://www.danmap.org/pdfFiles/Danmap\\_2005.pdf](http://www.danmap.org/pdfFiles/Danmap_2005.pdf). Assessed 27 July 2009.
- De Liguoro, M., Cibin, V., Capolongo, F., Halling-Srensen, B., Montesissa, C. (2003). Use of oxytetracycline and tylosin in intensive calf farming: Evaluation of transfer to manure and soil. *Chemosphere*, 52:203-212.
- Dolliver, H., Gupta, S., Noll, S. (2008a). Antibiotic degradation during manure composting. *Journal of Environmental Quality*, 37:1245-1253.
- Dolliver, H., Kumar, K., Gupta, S. (2007). Sulfamethazine uptake by plants from manure-amended soil. *Journal of Environmental Quality*, 36:1224-1230.
- EMEA, (1994-2002). Tylosin summary report (Parts 1--5). Available from:
- Feinman, S.E., Matheson III, J.C. (1978). Draft environmental impact statement subtherapeutic antibacterial agents in animal feeds. Bureau of Veterinary Medicine. Food and Drug Administration, Rockville, MD, USA.
- Gartiser, S., Urich, E., Alexy, R., Kummerer, K. (2007). Anaerobic inhibition and biodegradation of antibiotics in ISO test schemes. *Chemosphere*, 66:1839-1848.
- Gavalchin, J., Katz, S.E. (1994). The persistence of fecal-borne antibiotics in soil. *Journal of AOAC International*, 77:481-485.
- Gonsalves, D., Tucker, D.P.H. (1977). Behavior of oxytetracycline in Florida citrus and soils. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 6:515-523.
- Gu, C., Karthikeyan, K.G., Sibley, S.D., Pedersen, J. A. (2007). Complexation of the antibiotic tetracycline with humic acid. *Chemosphere*, 66:1494-1501.

- Halling-Sørensen, B., Sengeløv, G., Tjørnelund, J. (2002). Toxicity of Tetracyclines and Tetracycline Degradation Products to Environmentally Relevant Bacteria, Including Selected Tetracycline-Resistant Bacteria. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 42:263-271.
- Halling-Sorensen, B., Jacobsen, A.M., Jensen, J., Sengelov, G., Vaclavik, E., Ingerslev, F. (2005). Dissipation and effects of chlortetracycline and tylosin in two agricultural soils: a field-scale study in Southern Denmark. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 24:802-810.
- Halling-Sorensen, B., Jensen, J., Tjornelund, J., Montforts, M.H.M.M. (2001). Worstcase estimations of predicted environmental soil concentrations (PEC) of selected veterinary antibiotics and residues used in Danish agriculture. In K. Kummerer (Ed.). *Pharmaceuticals in the Environment* (pp 143-157). Springer Verlag, Berlin, Germany.
- Halling-Sorensen, B., Nielsen, S.N., Lanzky, P.F., Ingerslev, F., Lutzhoft, H.C.H., Jorgensen, S.E. (1998). Occurrence, fate and effects of pharmaceutical substances in the environment - a review. *Chemosphere*, 36:357-393.
- Hamscher, G., Abu-Quare, A., Sczesny, S., Hoper, H., Nau, H. (2000). Determination of tetracyclines and tylosin in soil and water samples from agricultural areas in Lower Saxony. In L. A. van Ginkel and A. Ruiter (Ed.) *The Euroside IV Conference* (pp 522-526). National Institute of Public Health and the Environment (RIVM), Bilthoven, Netherlands.
- Hamscher, G., Sczesny, S., Hoper, H., 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. *Analytical Chemistry* 74:1509-1518.
- Hartlieb, N., Ertunc, T., Schaeffer, A., Klein, W. (2003). Mineralization, metabolism and formation of non-extractable residues of <sup>14</sup>C-labelled organic contaminants during pilot-scale composting of municipal biowaste. *Environmental Pollution*, 126:83-91.
- Hirsch, R., Ternes, T., Haberer, K., Kratz, K-L. (1999). Occurrence of antibiotics in the aquatic environment. *Science of the Total Environment*, 225:109-118.
- Hoper, H., Kues, J., Nau, H., Hamscher, G. (2002). Eintrag und Verbleib von Tierarzneimittelwirkstoffen in Boden. *Bodenschutz in Germany*, 4:141-148.
- JETACAR, (1999). The use of antibiotics in food-producing animals: antibiotic

- resistance bacteria in animals and humans. Commonwealth department of health and aged care. Canberra, Australia.
- JEFCA, (2006). Summary of evaluations performed by the JEFCA (1956--2005) (1st through 65th meetings). Joint Food and Agriculture Organization of the United Nations and World Health Organization Expert Committee on Food Additives, Rome; WHO, Geneva, Switzerland.
- Jjemba, P.K. (2002). The potential impact of veterinary and human therapeutic agents in manure and biosolids on plants grown on arable land: a review. *Agriculture Ecosystems and Environment*, 93:267-278.
- Kay, P., Blackwell, P.A., Boxall, A.B.A. (2004). Fate of veterinary antibiotics in a macroporous tile drained clay soil. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 23:1136-1144.
- Kay, P., Blackwell, P.A., Boxall, A.B.A. (2005a). Column studies to investigate the fate of veterinary antibiotics in clay soils following slurry application to agricultural land. *Chemosphere*, 60:497-507.
- Kay, P., Blackwell, P.A., Boxall, A.B.A. (2005b). A lysimeter experiment to investigate the leaching of veterinary antibiotics through a clay soil and comparison with field data. *Environmental Pollution*, 134:333-341.
- Kay, P., Blackwell, P.A., Boxall, A.B.A. (2005c). Transport of veterinary antibiotics in overland flow following the application of slurry to arable land. *Chemosphere*, 59:951-959.
- KFDA, (2006). Annual report of NARMP vol. 4: 47-58.
- Khachatourians, G.G. (1998). Agricultural use of antibiotics and the evolution and transfer of antibiotic-resistant bacteria. *Canadian Medical Association Journal*, 159:1129-1136.
- Yong Sik Ok, Sung-Chul Kim, Kwon-Rae Kim, Sang Soo Lee, Deok Hyun Moon, Kyoung Jae Lim, Jwa-Kyung Sung, Soung-Oh Hur, Jae E Yang. 2011. Monitoring of Selected Veterinary Antibiotics in Environmental Compartments near a Composting Facility in Gangwon Province, Korea. *Environmental Monitoring and Assessment*. 174(1-4): 693-701
- Kwon-Rae Kim, Gary Owens, Yong Sik Ok, Woo-Kyun Park, D.B. Lee, Soon-Ik Kwon. 2012. Decline in extractable antibiotics in manure-based composts during composting. *Waste Management* 32,110-116
- Kolpin, D.W., Furlong, E.T., Meyer, M.T., Thurman, E.M., Zaugg, S.D., Barber,

- L.B., Buxton, H.T. (2002). Pharmaceuticals, hormones, and other organic wastewater contaminants in U.S. streams, 1999--2000: A national reconnaissance. *Environmental Science and Technology*, 36:1202-1211.
- Kolz, A.C. Moorman, T.B., Ong, S.K., Scoggin, K.D., Douglass, E.A. (2005). Degradation and metabolite production of tylosin in anaerobic and aerobic swine-manure lagoons. *Water Environment Research*, 77:49-56.
- Kreuzig, R., Holtge, S. (2005). Investigations on the fate of sulfadiazine in manured soil: laboratory experiments and test plot studies. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 24(4):771-776.
- Kreuzig, R., Holtge, S., Brunotte, J., Berenzen, N., Wogram, J., Schulz, R. (2005). Test-plot studies on runoff of sulfonamides from manured soils after sprinkler irrigation. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 24:777-781.
- Kuhne, M., Ihnen, D., Moller, G., Agthe, O. (2000). Stability of Tetracycline in Water and Liquid Manure. *Journal of Veterinary Medicine, Series A* 47:379-384.
- Kulshrestha, P., Giese Jr. R.F., Aga, D.S. (2004). Investigating the molecular interactions of oxytetracycline in clay and organic matter: Insights on factors affecting its mobility in soil. *Environmental Science and Technology*, 38:4097-4105.
- Kumar, K., Gupta, S.C., Baidoo, S.K., Chander, Y., Rosen. C.J. (2005a). Antibiotic uptake by plants from soil fertilized with animal manure. *Journal of Environmental Quality*, 34:2082-2085.
- Kumar, K., Gupta, S.C., Chander, Y., Singh, A.K. (2005b). Antibiotic use in agriculture and their impact on the terrestrial environment. *Advances in Agronomy*, 87:1-54.
- Kumar, K., Thompson, A., Singh, A.K., Chander, Y., Gupta, S.C. (2004). Enzyme-linked immunosorbent assay for ultratrace determination of antibiotics in aqueous samples. *Journal of Environmental Quality*, 33:797-797.
- Langhammer, J.P. (1989). Untersuchungen zum Verbleib antimikrobiell wirksamer Arzneistoffe als in Gulle und im landwirtschaftlichen Umfeld. Universitat Bonn, Germany. (In German)
- Loke, M-L., Tjornelund, J., Halling-Sorensen, B. (2002). Determination of the distribution coefficient (logK<sub>d</sub>) of oxytetracycline, tylosin A, olaquinox and

- metronidazole in manure. *Chemosphere*, 48:351-361.
- Lunestad, B.T., Goksoyr, J. (1990). Reduction in the antibacterial effect of oxytetracycline in sea water complex formation with magnesium and calcium. *Diseases of aquatic organisms*, 9:67-72.
- Martin, S.R. (1979). Equilibrium and kinetic studies on the interaction of tetracyclines with calcium and magnesium. *Biophysical Chemistry*,10:319-326.
- Martinez-Carballo, E., Gonzalez-Barreiro, C., Scharf, S., Gans, O. (2007). Environmental monitoring study of selected veterinary antibiotics in animal manure and soils in Austria. *Environmental Pollution*, 148:570-579.
- Migliore, L., Brambilla, G., Casoria, P., Civitareale, C., Cozzolino, S., Gaudio, L. (1996). Effect of sulphadimethoxine contamination on barley (*Hordeum distichum* L., Poaceae, Liliopsida). *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 60:121-128.
- Montforts, M.H. (1999). Environmental risk assessment for veterinary medicinal products. Part 1: Other than GMO-containing and immunological products. RIVM report 601300 001, N120. National Institute of Public Health and the Environment, Bithoven, The Netherlands.
- NORM/NORM-VET, (2005). Usage of antimicrobial agents and occurrence of antimicrobial resistance in Norway. *Tromsø/Oslo2006*.ISSN:1502-2307.
- Patterson, R., DeSwarte, R., Greenberger, P., Grammer, L., Brown, J., Choy, C.A. (1995). Drug allergy and protocols for management of drug allergies. OceanSide Publisher, RI, Providence.
- Pawelzick, H.T., Hoper, H., Nau, H., Hamscher, G. (2004). A survey of the occurrence of various tetracyclines and sulfamethazine in sandy soils in northwestern Germany fertilized with liquid manure. In SETAC Euro 14<sup>th</sup> Annual Meeting, pp18-22, Prague, Czech Republic.
- Rabolle, M., Spliid, N.H. (2000). Sorption and mobility of metronidazole, olaquinox, oxytetracycline and tylosin in soil. *Chemosphere*, 40:715-722.
- RDA, (2007). Treatment of livestock manures as resources. RDA. Suwon. Korea (in Korean)
- Renner, R. (2002). Do cattle growth hormones pose an environmental risk? *Environmental Science and Technology*, 36:194A-197A.
- Rose, M.D., Bygrave, W.H.H. (1996). The effect of cooking on veterinary drug residues in food: IV. Oxytetracycline. *Food Addit Contam*, 13:275-286.

- Sarmah, A.K., Meyer, M.T., Boxall, A.B.A. (2006). A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment. *Chemosphere*, 65:725-759.
- SAV, (2005). SVARM 2005 Swedish veterinary antimicrobial resistance monitoring. available at <http://www.sva.se/upload/pdf/Tj%c3%a4nster%20och%20produkter/Trycksaker/svarm2005.pdf>. Assessed 27 July 2009.
- Seborg, T., Ingerslev, F., Halling-Sorensen, B. (2004). Chemical stability of chlortetracycline and chlortetracycline degradation products and epimers in soil interstitial water. *Chemosphere*, 57:1515-1524.
- Seo, Y.H., Choi, J.K., Kim, S.K., Min, H.K., Jung, Y.S. (2007). Prioritizing environmental risks of veterinary antibiotics based on the use and the potential to reach environment. *Korean Journal of Soil Science and Fertilizer*, 40(1):43-50.
- Sithole, B.B., Guy, R.D. (1987). Models for tetracycline in aquatic environments. *Water, Air, & Soil Pollution*, 32:315-321.
- Soon-Ik Kwon, Gary Owens, Yong Sik Ok, D.B. Lee, W.-T. Jeon, Jeong-Gyu Kim, Kwon-Rae Kim. 2011. Applicability of the Charm II System for Monitoring Antibiotic Residues in Manure-Based Composts. *Waste Management*. 31, 39-44
- Spaepen, K.R.I., Van Leemput, L.J.J., Wislocki, P.G., Verschueren, C. (1997). A uniform procedure to estimate the predicted environmental concentration of the residues of veterinary medicines in soil. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 16:1977-1982.
- Thiele-Bruhn Soren. 2011. Veterinary antibiotics in agricultural soils - fates, effects and policy regulations. 한국응용생명화학학회
- Ter Laak, T.L., Gebbink, W.A., Tolls, J. (2006a). The effect of pH and ionic strength on the sorption of sulfachloropyridazine, tylosin, and oxytetracycline to soil. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 25(4):904-911.
- Ter Laak, T.L., Gebbink, W.A., Tolls, J. (2006b). Estimation of soil sorption coefficients of veterinary pharmaceuticals from soil properties. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 25(4):933-941.
- Thiele-Bruhn, S. (2003). Pharmaceutical antibiotic compounds in soils-a review. *Journal of Plant Nutrition and Soil Science*, 166:145-167.

- US Composting Council, (2000). Field guide to compost use. available via [http://www.compostingcouncil.org/pdf/FGCU\\_3.pdf](http://www.compostingcouncil.org/pdf/FGCU_3.pdf). Accessed 25 May 2009.
- VICH, (2000). Environmental impact assessment (EIAs) for veterinary medicinal products (VMPs)-Phase I at [http://www.vichsec.org/pdf/2000/G106\\_st7.pdf](http://www.vichsec.org/pdf/2000/G106_st7.pdf). Assessed 03 March 2010.
- VMD, (2006). Sales of antimicrobial products authorized for use as veterinary medicines, antiprotozoals, antifungals, growth promoters and coccidiostats, in the UK in 2005. available at <http://www.vmd.gov.uk/Publications/Antibiotic/salesanti05.pdf>. Assessed 27 July 2009.
- Watts, C.D., Crathorne, B., Fielding, M., Killops, S.D. (1982). Nonvolatile organic compounds in treated waters. *EnvironHealthPerspect*,46:87-89.
- Webb, K.E., Fontenot, J.P. (1975). Medicinal drug residues in broiler litter and tissues from cattle fed litter. *Journal of Animal Science*, 41:1212-1217.
- Winckler, C., Grafe, A. (2001). Use of veterinary drugs in intensive animal production. *Journal of Soil sand Sediments*, 1:66-70.
- Witte, W. (1998). Medical consequences of antibiotic use in agriculture. *Science*,279:996-996.
- Xian-Gang, H., Yi, L., Qi-xing, Z., Lin, X. (2008). Determination of thirteen antibiotics residues in manure by solid phase extraction and high performance liquid chromatography. *ChineseJ ournal of Analytical Chemistry*, 36(9):1162-1166.
- Yong Sik Ok. Sung-Chul Kim. Kwon-Rae Kim, Sang Soo Lee, Deok Hyun Moon, Kyoung Jae Lim, Jwa-Kyung Sung, Soung-Oh Hur, Jae E Yang. 2011. Monitoring of Selected Veterinary Antibiotics in Environmental Compartments near a Composting Facility in Gangwon Province, Korea. *Environmental Monitoring and Assessment*. 174(1-4): 693-701