

## 농업용 멀티콥터를 이용한 항공살포에서 picarbutrazox와 대사체 TZ-1E의 쪽파 중 잔류특성

노현호 · 문병철\* · 김창조 · 권혜영<sup>1</sup> · 노진호 · 김단비 · 오민석 · 김병석 · 김흥태<sup>2</sup> · 경기성<sup>3</sup>

농촌진흥청 국립농업과학원 화학물질안전과, <sup>1</sup>농촌진흥청 기획조정관실, <sup>2</sup>충북대학교 농업생명환경대학 식물 의학과,  
<sup>3</sup>충북대학교 농업생명환경대학 환경생명화학과

### Residual Characteristics of Picarbutrazox and Its Metabolite TZ-1E by Aerial Spraying with Agricultural Multi-copter in Shallot

Hyun Ho Noh, Byeong-chul Moon\*, Chang Jo Kim, Hyeyoung Kwon<sup>1</sup>, Jin-ho Ro, Danbi Kim, Min-seok Oh,  
Byeong-seok Kim, Hueng Tae Kim<sup>2</sup> and Kee Sung Kyung<sup>3</sup>

Chemical Safety Division, National Institute of Agricultural Sciences, Rural Development Administration,  
Wanju 55365, Korea

<sup>1</sup>Planing and Coordination Bureau, Rural Development Administration, Jeonju 55365, Korea

<sup>2</sup>Department of Plant Medicine, College of Agriculture, Life and Environment Science, Chungbuk National University,  
Cheongju, 28644, Korea

<sup>3</sup>Department of Environmental and Biological Chemistry, College of Agriculture, Life and Environment Science,  
Chungbuk National University, Cheongju, 28644, Korea

(Received on August 29, 2019. Revised on September 16, 2019. Accepted on September 17, 2019)

**Abstract** This study was carried out to investigate time-dependent residual characteristics of picarbutrazox sprayed to shallots with different water volume and dilution time using multi-copter spraying system. Field trials were performed in a specialty cultivation complex of Cheongju, Chungbuk. The pesticide solution was prepared in multi-copter's reservoir at 16-fold diluted (i.e, recommended) concentration of the active ingredient for one-way application treatment and the 32-fold diluted concentration with doubled water volume for round-trip application treatment, and then sprayed onto shallot field of 400 m<sup>2</sup> at three times on a 7-day interval. The AWS (auto weather stations) was set to measure climatic conditions, such as wind direction and speed, during the application period. Samples for investigating time-dependent residual characteristics of picarbutrazox in shallots were collected 0 (after 3 hour), 1, 3, 5, 7, 10 and 13 days after the pesticide application from the center of tested field, which is expected to have highest residue concentration. At the harvest date (day 13), the tested field was separated into 18 plots, and samples were taken from each plot to analyze spatial distribution of picarbutrazox residues in the field. Analyzed residue concentrations of picarbutrazox in shallots decreased from 1.521 mg/kg (0 days) to 0.020 mg/kg (13 days) for one-way application treatment and from 1.696 mg/kg (0 days) to 0.029 mg/kg (13 days) for round-trip application treatment. Biological half-lives of picarbutrazox in shallots were approximately 3 days for both treatments. Additionally, the residual concentration was estimated to be below 0.01 mg/kg, which is permitting criterion of positive list system, after 14.9 days and 16.5 days for one-way and round-trip application treatments, respectively. The picarbutrazox residue concentration was higher in the round-trip application treatment sprayed with a doubled water volume than in the one-way application treatment and was below its maximum residue limit (3.0 mg/kg) for both treatments. However, there was a difference of about 22 times between the minimum and maximum residues depending on the sampling plot, which was considered to be a very important result of ensuring the representativeness of the sample in the aerial spray residual test.

**Key words** Picarbutrazox, Multi-copter, Aerial application, Pesticide residue, Shallot

\*Corresponding author  
E-mail: moonbc@korea.kr

## 서론

통계청 ([http://kosis.kr/statisticsList/statisticsListIndex.do?menuId=M\\_01\\_01&vwcd=MT\\_ZTITLE&parmTabId=M\\_01\\_01](http://kosis.kr/statisticsList/statisticsListIndex.do?menuId=M_01_01&vwcd=MT_ZTITLE&parmTabId=M_01_01)) 자료에 따르면 산업화와 도시화가 가속됨에 따라 우리나라 경지면적과 농업 종사 가구수는 점차 감소하고 있지만 가구당 경지면적은 1980년 1.02 ha에서 해마다 증가하여 2000년 1.37 ha으로 증가하였으며, 2015년에는 1.54 ha로 증가하였다. 또한 20세 이상 농업인의 연령대별 구성비는 20대부터 40대가 1970년에 약 21-24%이었지만 2009년에는 7-12%로 감소하였다. 반면에 60대와 70대 이상 고령자의 구성비는 1970년에 각각 약 11%와 6%에서 2009년에는 각각 25%와 26%로 증가하였다. 이와 같은 통계는 농업 종사자의 고령화가 가속되고 있음을 보여줌과 동시에 경지 면적이 증가하여 노동력이 부족할 것이라는 추측을 가능하게 한다.

이러한 문제를 해결하기 위하여 사물인터넷(Internet of things, IoT) 등의 기술을 이용하여 작물의 생육 환경을 PC, 태블릿, 스마트폰 등으로 조절하여 노동력을 감소시키면서 정밀 농업을 가능하게 하는 스마트 팜 기술을 개발하기 위하여 많은 연구가 진행되고 있다(Kang et al., 2015; Cha et al., 2016; Yi, 2017). 스마트 팜 기술은 지속적으로 발전하고 있지만 우리나라 원예 시설 중 현대화된 온실의 비중은 약 20%에 불과하다는 보고(Yeo et al., 2016)와 같이 투자비용 문제와 함께 상대적으로 IT 기기에 취약한 고령화된 농업 현장에 동시 다발적으로 적용하기 어려움이 있는 것이 사실이다. 하지만 농업 강국인 네덜란드는 첨단 농업 기술에 대한 지속적인 연구를 통해 노동력을 극복하고 토질을 개선하고 있으며, 농업용수가 매우 부족한 이스라엘의 경우 첨단 IT 기술을 접목한 농업 기술 개발로 작물의 생산량과 품질에 대한 경쟁력을 확보해나가고 있다(Yeo et al., 2016).

이와 같이 스마트 팜은 노동력을 절감하고 농업 생산성을 극대화 시킬 수 있는 대안이지만 대부분의 농가가 이러한 혜택을 받는 것은 무리가 있다. 하지만 항공살포로 인한 병해충 방제의 경우 스마트 팜에 비해 비교적 적은 비용과 노동력으로 농업 생산성을 극대화 시킬 수 있는 대안으로 판단된다. 병해충 방제를 위한 농약 살포는 벼의 경우 대부분 6월에서 8월의 고온다습한 계절에 주로 실시되기 때문에 고령화 및 부녀화된 농업 현장에서 가장 어려워하는 농작업 중 하나이다(Seong et al., 2014). 이를 극복하기 위하여 무인항공기를 이용한 방제가 도입되었다. 무인항공기는 사람이 탑승하지 않은 상태에서 기체 스스로 자율 비행하는 항공기를 말하는데(Park et al., 2015) 무인 헬기, 일반적으로 드론 또는 멀티콥터라고 불리는 초경량비행장치무인멀티콥터도 여기에 해당된다. 무인 헬기를 이용한 방제는 수도작을 중심으로 매년 방제 면적이 증가하여 노동력은 혁신적으로 감소시키면서 고품질의 농산물을 생산하는데 결정적인

역할을 했다(Jin et al., 2008). 하지만 수도작에 비하여 경작 규모가 작은 전작의 경우에 무인 헬기를 이용한 방제를 적용하기에는 무리가 있는 것이 사실이다. 이에 대한 대안으로 병충해 예찰, 작황 분석, 파종 등에 활용중인 농업용 멀티콥터를 이용한 병해충 방제가 4차산업혁명 시대와 결합되어 급부상하고 있다.

멀티콥터는 일반적으로 10 L 부피의 약통을 농업용 멀티콥터에 장착하여 짧은 시간(10분)에 넓은 면적(1 ha)을 살포할 수 있고 기체의 가격 또한 무인 헬기의 약 10% 이하로 경제적이며, 기체의 부피가 작아 이동성이 좋고 유지보수 비용도 낮다. 또한 항공방제는 농약 살포자가 눈 또는 발로 들어가지 않고 살포하여 농약 노출을 효과적으로 감소시키는 장점이 있다(Yoon et al., 2011). 하지만 배터리 용량이 작아 한 번에 살포할 수 있는 면적이 매우 제한적이고 사고의 위험, 비산의 위험 등이 도사리고 있다. 또한 무인 헬기를 이용한 농약 살포의 경우에는 벼, 배추, 쪽파, 옥수수, 감자 등의 작물에 과학적인 근거로 설정된 농약 안전사용기준이 존재하지만 멀티콥터의 경우 아직까지 멀티콥터를 이용하여 연구한 결과로 안전사용기준을 설정하지 않고 무인 헬기에 등록되어 있는 기준을 따르도록 되어 있기 때문에 작물에 대한 잔류 농약의 안전성이 확보되지 않았다.

따라서 이 연구는 멀티콥터로 살포한 신규 등록 농약인 picarbutrazox의 쪽파 중 잔류특성을 구명하고 경시적 잔류량 변화를 조사하여 멀티콥터 활용 살포 농약의 작물 중 안전성을 확보하기 위하여 수행되었다.

## 재료 및 방법

### 대상농약 및 작물

시험농약은 배추, 쪽파 등 작물에 노균병을 방제하는데 사용되는 picarbutrazox이었으며, 시험농약의 안전사용기준은 Table 1에 제시하였다. 또한 대상작물은 시험농약이 항공방제로 등록되어 있는 쪽파(노지재배)이었다.

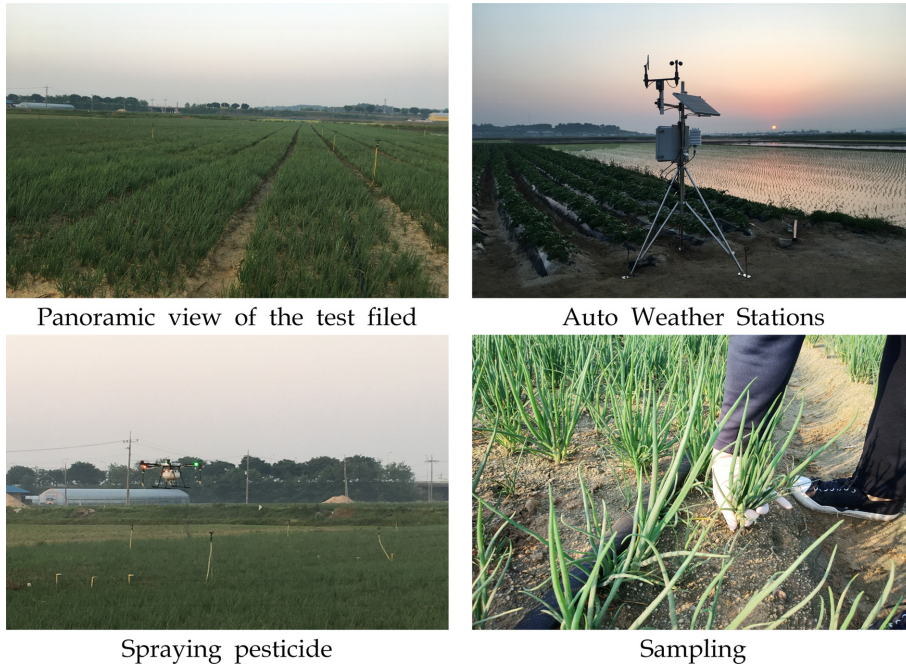
### 포장시험

포장시험은 충북 청주시 청원구 오창읍 탑리에 위치한 쪽파 전문 재배단지에서 수행하였으며, 해당 지역은 관제권(공항주변)으로 설정되어 있어 초경량비행장치 비행 승인 신청 후 시험을 수행하였다. 처리구는 안전사용기준의 추천 살포 농도인 16배 희석액을 단일비행 살포(저물량)하는 처리구와 32배 희석액을 왕복비행 살포(고물량)하는 처리구로 배치하여 실제 투입되는 농약의 양은 같지만 물량은 다르게 하였다. 각 처리구의 면적은 400 m<sup>2</sup> (4 m W. × 100 m L.)이었으며, 안전사용기준에 준하여 수확 14일전 7일간격 3회 살포하였다. 농약 살포에 사용된 멀티콥터는 로터(rotor)가 6개인 헥사콥터(OneTop A1, Topflight Co., LTD, Korea)이

**Table 1.** Pre-harvest intervals of the commercial product of picarbutrazox and its MRL in shallot

A.I. <sup>a)</sup>	Formulation	Spraying method	Spraying dose	Pre-harvest interval		MRL <sup>c)</sup>
				Last application day before harvest	Maximum application time	
10%	SC <sup>b)</sup>	Foliar method (aerial application)	1.6 L/10 a	14	3	3.0

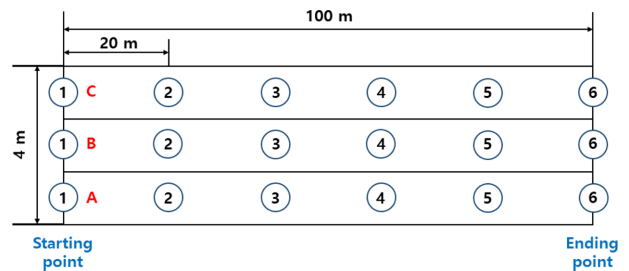
<sup>a)</sup>Active ingredient, <sup>b)</sup>Suspension concentrate, <sup>c)</sup>Maximum residue limit



**Fig. 1.** Scene of filed trial for the pesticide residue in shallot sprayed with agricultural multi-copter.

었다. 또한 노즐은 비산을 저감시킬 수 있다고 알려져 있는 TeeJet사(USA)의 DG11002 제품 2개를 장착하였다. 살포고도와 비행속도는 각각 약 2 m와 3 m/s이었으며, 유효 살포 폭은 4 m이었다. 또한 토출량은 1,200 mL/min로 설정하여 안전사용기준의 추천 살포액량(1.6 L/10 a)에 맞추었다. 약제 살포동안 기상을 측정하기 위하여 CR1000X series가 장착된 Cambell Scientific사(USA)의 AWS를 설치하였으며, 이 장치에는 온습도 측정센서(모델명: EE181)와 풍향 및 풍속 측정센서(모델명: 03002)를 장착하여 5초 단위로 측정하도록 설정하였다.

시료는 경시적 잔류량 변화를 조사하기 위하여 최종 약제 살포 당일부터 14일차까지 7회 채취할 계획이었지만 14일차에 강우가 예상되어 부득이 13일차에 시료를 채취하였으며, 농약이 교차 살포되어 잔류농도가 높을 것으로 예상되는 중앙 부분을 중심으로 10개 지점에서 채취하였다. 0일차의 시료 무게는 단일살포와 왕복살포 처리구 각각 625.66 g (n=45)와 650.18 g(n=50)이었으며, 13일차에는 각각 857.92 g (n=30)과 798.81 g(n=30)이었다. 또한 안전사용기준의 수확 예정인인 최종 약제 살포 14일차(이 연구에서는 13일차)의



**Fig. 2.** Sampling point in test plot at pre-harvest day.

시료는 살포 구역을 살포 방향의 왼쪽, 중앙, 오른쪽으로 구분한 후 20 m 간격으로 6지점으로 구분 채취하여 쪽파에 멀티콥터를 활용하여 살포한 경우 잔류량이 포장 전체적으로 균일한지를 조사하였으며, 포장시험 장면과 시료채취 지점을 Fig. 1과 2에 제시하였다. 채취한 시료는 뿌리와 노엽을 제거한 후 dry ice와 함께 마쇄하여 분말화한 후 -20°C 이하의 냉동실에 분석전까지 보관하였다.

**시약 및 기구**

Picarbutrazox와 TZ-1E의 표준품의 순도는 각각 98.8와

99.6%이었으며, (주)경농에서 분양받아 사용하였다. 시료를 추출하고 기기분석에 사용된 acetonitrile은 Merck사(Darmstadt, Germany)의 PR (pesticide residue)등급을 사용하였으며, LC의 이동상으로 사용된 formic acid는 Sigma-Aldrich사 (Massachusetts, USA)의 제품을 이용하였다. 잔류농약 분석 과정에서 사용된 QuEChERS 추출 pouch와 d-SPE tube는 Agilent사(California, USA)의 제품을 사용하였으며, 원심분리기와 추출기는 각각 한일과학산업(주)사(Incheon, Korea)의 combi-514R 제품과 Collomix GmbH사(Gaimersheim, Germany)의 VIBA 330 제품을 사용하였다.

#### 표준용액 조제

Picarbutrazox과 TZ-1E 표준품을 각각 약 20.24와 20.08 mg을 칭량하여 20 mL의 acetonitrile로 용해하여 1,000 mg/L의 stock solution을 조제하였으며, 이를 혼합한 후 LC

gradient grade acetonitrile로 희석하여 100, 50, 25, 10 및 5 mg/L의 working solution으로 조제하였다. 검량선 작성용 표준용액을 조제하기 위하여 1, 2, 10, 20, 40 및 100 ug/L의 농도로 되도록 acetonitrile을 이용하여 희석하였으며, LC-MS/MS 분석 시에는 시료 중 추출성분에 의하여 대상 성분의 이온화 억압 또는 증강현상을 보정하기 위하여 무처리 시료를 추출한 용액으로 2배 희석하여 0.5, 1, 5, 10, 20 및 50 ug/L의 matrix matched standard를 조제하였다. 이를 LC-MS/MS에 주입하여 얻은 peak 면적을 이용하여 calibration curve를 작성하여 정량에 이용하였다.

#### 잔류농약 분석법

Picarbutrazox와 대사체 TZ-1E의 잔류농약 분석법은 국외에서는 보고된 바가 없고 국내에서는 Park et al. (2017)에 의해 보고되었다. 하지만 Park et al. (2017)의 보고에는 액

**Table 2.** LC-MS/MS conditions for the residual analysis of picarbutrazox and TZ-1E in shallot

<LC condition>																													
Instrument	ExionLC™, AB SCIEX, USA																												
Column	Halo C <sub>18</sub> , 2.1 mm I.D. × 150 mm L. (2.7 µm particle size)																												
Flow rate	0.2 mL/min																												
	A: 0.1% formic acid in distilled water																												
	B: 0.1% formic acid in acetonitrile																												
	<table border="1"> <thead> <tr> <th>Time (min)</th> <th>A (%)</th> <th>B (%)</th> <th>Flow rate (mL/min)</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>0.0</td> <td>30</td> <td>70</td> <td>0.2</td> </tr> <tr> <td>2.0</td> <td>30</td> <td>70</td> <td>0.2</td> </tr> <tr> <td>2.1</td> <td>70</td> <td>30</td> <td>0.2</td> </tr> <tr> <td>5.0</td> <td>70</td> <td>30</td> <td>0.2</td> </tr> <tr> <td>5.1</td> <td>30</td> <td>70</td> <td>0.2</td> </tr> <tr> <td>6.0</td> <td>30</td> <td>70</td> <td>0.2</td> </tr> </tbody> </table>	Time (min)	A (%)	B (%)	Flow rate (mL/min)	0.0	30	70	0.2	2.0	30	70	0.2	2.1	70	30	0.2	5.0	70	30	0.2	5.1	30	70	0.2	6.0	30	70	0.2
Time (min)	A (%)	B (%)	Flow rate (mL/min)																										
0.0	30	70	0.2																										
2.0	30	70	0.2																										
2.1	70	30	0.2																										
5.0	70	30	0.2																										
5.1	30	70	0.2																										
6.0	30	70	0.2																										
Mobile phase																													
Injection volume	1 µL																												
<Mass condition>																													
Instrument	QTRAP 5500 system, AB SCIEX, USA																												
Ionspray voltage	5500 V	Nebulizer gas	50 psi																										
Curtain gas	20 psi	Drying gas	50 psi																										
Collision gas	10 psi	Scan type	MRM mode																										
Drying gas Temp.	500°C	Ion source	ESI+																										
<MRM condition>																													
Compound	Precursor ion (m/z)	Ion transition																											
		Quantitation ion (m/z)	CE <sup>a)</sup> (eV)	Confirmation ion (m/z)	CE(eV)																								
Picarbutrazox	410.1	310.1	19	80.1	71																								
TZ-1E	410.7	310.2	19	80.1	75																								

<sup>a)</sup>Collision energy

액분배 및 chromatography 정제 방법을 채택하고 있어서 많은 시료를 효과적으로 분석하기 어려움이 있다. 따라서 이 연구에서는 신속하고 정확하게 분석할 수 있는 QuEChERS 방법과 Park et al. (2017)에서 보고한 분석법을 참고하여 분석법을 확립하고자 했으며, 최종 확립된 분석법은 다음과 같다.

시료 10 g을 50 mL conical centrifuge tube (Falcon™, USA)에 정확히 칭량하고 acetonitrile 10 mL를 첨가한 후 690 rpm으로 10분간 진탕 추출하였다. 추출한 시료에 4 g MgSO<sub>4</sub>, 1 g NaCl, 1 g trisodium citrate dohydrate, 0.5 g disodium hydrogencitrate sesquihydrate를 첨가하고 손으로 격렬하게 흔든 후 연속해서 690 rpm으로 5분간 진탕하였으며, 이 추출물을 3,500 rpm으로 5분간 원심 분리하였다. 정제는 분리되지 않고 남아 있을 수 있는 수분을 제거하고 극성 유기산과 색소 등을 제거하기 위하여 MgSO<sub>4</sub> 150 mg, PSA (primary secondary amine) 25 mg 및 GCB (graphitized carbon black) 2.5 mg가 들어있는 d-SPE (dispersive-solid phase extract) tube를 사용하였으며, 추출 후 원심 분리한 상정액 1 mL를 d-SPE tube에 가하고 약 30 초간 vortexing 한 후 이를 다시 12,000 rpm으로 5분간 원심 분리하는 방식으로 정제하였다. 원심분리 후 상정액은 acetonitrile을 이용하여 2배 희석하는 방식으로 matrix matching한 후 이를 0.2 µm syringe filter로 여과하여 기기 분석하였다.

### 기기분석 방법

Picarbutrazox는 carbamate 및 pyridine계 농약으로 분자 구조에 다량의 amino기를 포함하고 있고 카보닐기에 탄소 사슬이 결합되어 있는 ketone 구조이기 때문에 GC-NPD와 GC-ECD 모두 분석이 가능할 것으로 판단되었지만 amino기는 열에 불안정하기 때문에 고온 조건에서 분석하는 GC를 이용하여 분석하는 것은 바람직하지 않다고 판단되었다. 따라서 쪽파 중 picarbutrazox의 잔류농약을 분석하기 위하여 선택성과 감도가 우수한 LC-MS/MS를 분석장비로 선정하였으며, 기기분석 조건은 다음과 같다. 분석에 사용한 LC는 AB SCIEX사(USA)의 Exion LC™이었으며, tandem mass spectrometer는 AB SCIEX TRIPLE QUAD™ 5500

모델을 사용하였다. Column은 ODS (octadecyl-silica) 역상 column인 Advance materials technology사(USA)의 Halo C<sub>18</sub> (2.1 mm I.D. × 150 mm L., 2.7 µm)을 사용하였다. 이동상은 [M+H]<sup>+</sup> 이온 생성을 촉진시키기 위하여 formic acid를 증류수와 acetonitrile에 각각 첨가하여 0.1%의 농도가 되도록 조제하여 사용하였으며, 분석용 시료는 1 µl씩 주입하여 잔류농약을 분석하였다. 또한 시험 농약의 선택성과 감도 향상을 위하여 MRM (multiple reaction monitoring) mode로 분석하였으며, 상세한 기기분석 조건은 Table 2에 제시하였다.

### 분석법 검증

분석기기의 재현성을 확인하기 위하여 확립된 기기분석 조건에서 정량한계(limit of quantitation, LOQ)와 정량한계의 10배 농도의 matrix matched standard를 제조하여 각각 7회 반복 분석한 후 반복간에 peak 면적, 높이 및 머무름 시간의 변이를 조사하였다. 또한 쪽파 중 picarbutrazox 및 대사체 TZ-1E의 잔류 분석법을 검증하기 위하여 회수율 시험을 수행하였다. 회수율 시험은 무처리 쪽파 시료에 전체 농도가 0.005, 0.05 및 0.25 mg/kg이 되도록 표준용액을 3반복 처리한 후 확립된 분석법을 이용하여 분석한 후 처리량 대비 회수량으로 회수율을 산출하였으며, FAO (2016)을 참고하고 분석법의 적합성을 판단하였다.

### 결과 및 고찰

#### 기상측정 결과

농약을 살포하는 동안의 온도, 습도, 풍향, 풍속 등의 기상을 측정하였으며, 그 결과를 Table 3에 제시하였다. 1차 살포시에는 동남동풍과 동풍이 평균 0.8-1.2 m/s로 불었지만 2차와 3차 살포시에는 바람의 영향이 없었다. 포장 잔류성 시험에서는 수확일에 인접한 살포가 잔류에 많은 영향을 미치는데 이 연구에서는 수확 28일전에 살포시에만 약간의 바람이 불었기 때문에 농약 살포시 환경조건은 잔류에 크게 영향이 없었을 것이라고 판단되었다.

**Table 3.** Average temperature, humidity, wind speed and wind direction measured with AWS during pesticide spraying

Spray date	Plot (Dilution rate, time)	Temperature (°C)	Humidity (%)	Wind speed (m/s)	Wind direction
10. May (1 <sup>st</sup> spraying)	Picarbutrazox (×16)	8.0	72.1	1.2	ESE <sup>a)</sup>
	Picarbutrazox (×32)	7.2	76.5	0.8	E <sup>b)</sup>
17. May (2 <sup>nd</sup> spraying)	Picarbutrazox (×16)	16.8	81.2	0.0	-
	Picarbutrazox (×32)	17.0	83.5	0.0	-
24. May (3 <sup>rd</sup> spraying)	Picarbutrazox (×16)	14.1	85.6	0.0	-
	Picarbutrazox (×32)	14.1	84.0	0.0	-

<sup>a)</sup>East-southeast, <sup>b)</sup>East

**Table 4.** Reproducibility test of picarbutrazox and TZ-1E using matrix matched standard with LC-MS/MS

Compound	Concentration (mg/kg)	Peak area		RSD <sup>b)</sup> (%)	Peak height		RSD (%)	Retention time		RSD (%)
		Mean	SD <sup>a)</sup>		Mean	SD		Mean	SD	
Picarbutrazox	0.005	1,035,657	23,729.51	2.29	238,943	5,635.56	2.36	4.11	0.02	0.53
	0.05	9,939,857	291,321.95	2.93	2,247,429	62,721.23	2.79	4.10	0.02	0.46
TZ-1E	0.005	66,354	1,353.48	2.04	15,979	309.97	1.94	3.77	0.02	0.57
	0.05	626,714	12,054.80	1.92	150,486	2,580.97	1.72	3.76	0.02	0.50

<sup>a)</sup>Standard deviation, <sup>b)</sup>Relative standard deviation

**Table 5.** Results of recovery test for the picarbutrazox and TZ-1E residue analysis in shallot

Pesticide	Fortification (mg/kg)	Recovery (%)				RSD <sup>b)</sup> (%)
		Rep. 1	Rep. 2	Rep. 3	Mean±SD <sup>a)</sup>	
Picarbutrazox	0.005	74.9	76.2	74.6	75.2±0.8	1.1
	0.05	89.6	87.4	87.5	88.2±1.2	1.4
	0.25	98.2	88.0	97.2	94.4±5.6	6.0
TZ-1E	0.005	91.2	85.3	78.0	84.8±6.6	7.8
	0.05	94.1	92.7	93.2	93.3±0.7	0.7
	0.25	100.0	93.4	101.2	98.2±4.2	4.3

<sup>a)</sup>Standard deviation, <sup>b)</sup>Relative standard deviation

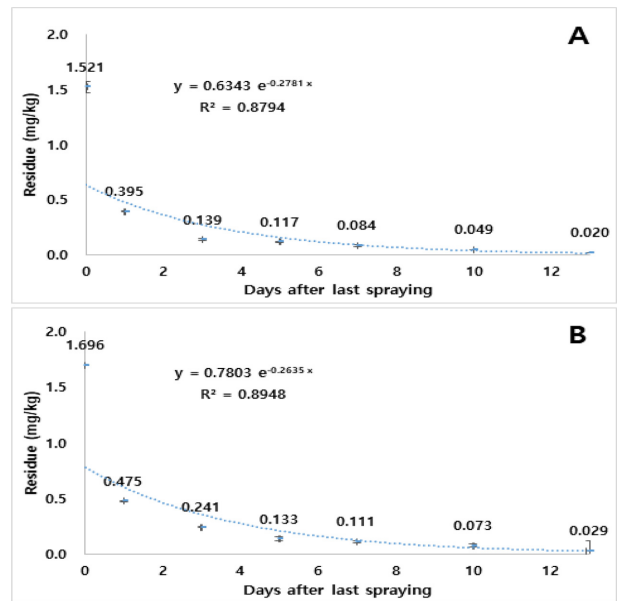
**분석기기의 재현성 및 회수율**

쪽파 중 picarbutrazox 및 대사체 TZ-1E의 peak 면적 및 높이의 상대표준편차(Relative standard deviation, RSD)는 모두 3% 미만이었으며, peak의 머무름 시간에 대한 RSD는 0.6% 미만으로 나타나 확립된 기기분석 조건하에서 분석 결과는 양호한 재현성을 가졌다고 판단되었다(Table 4) (Melgar et al., 2010). 쪽파 중 picarbutrazox와 TZ-1E의 회수율은 Table 5에 제시한 바와 같이 74.6-101.2%로 유효한 결과를 보여 확립된 분석법을 이용하여 잔류농약을 분석하는데 문제가 없을 것으로 판단되었다.

**쪽파 중 picarbutrazox의 경시적 잔류량**

쪽파 중 picarbutrazox의 잔류량은 picarbutrazox와 TZ-1E의 분자량이 같기 때문에 별도의 환산 계수를 곱하여 산출하지 않고 picarbutrazox와 TZ-1E의 잔류량의 합으로 산출하였다. 시험농약을 단일살포한 처리구의 최종 약제 살포일(0 일차)에 쪽파 중 picarbutrazox의 평균 잔류량은 Fig. 3에 제시한 바와 같이 1.521 mg/kg이었으며, 13일차의 잔류량은 0.020 mg/kg이었다. 또한 왕복살포한 처리구의 경우 0일차의 잔류량은 1.696 mg/kg이었으며, 13일차의 잔류량은 0.029 mg/kg으로 단일살포 처리구 보다 높은 잔류량을 보였다. 하지만 두 처리구 모두 약제 살포 당일부터 잔류량은 잔류허용기준(maximum residue limit, MRL)인 3.0 mg/kg 미만으로 무인헬기의 살포 기준을 멀티콥터에 적용해도 쪽파는 안전하게 재배 가능할 것으로 판단되었다.

쪽파 중 picarbutrazox의 경시적 잔류량을 이용하여 회귀



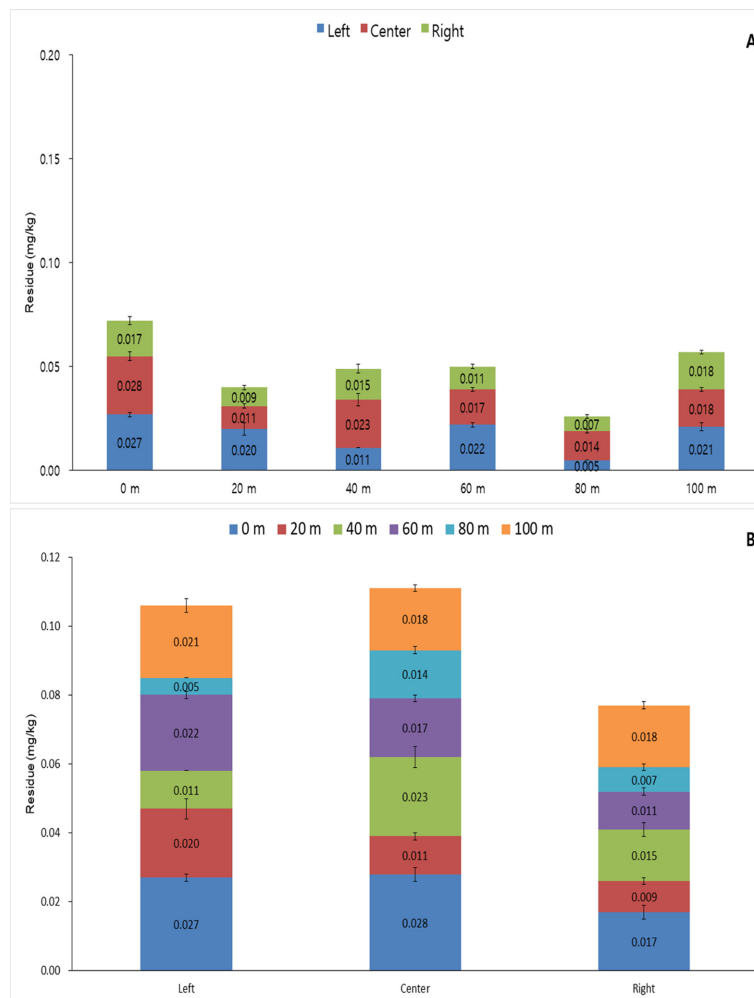
**Fig. 3.** Residual concentration of picarbutrazox in time-dependent manner sprayed onto shallot with multi-copter. A;Single spraying at 16-fold solution, B;double spraying at 32-fold solution.

곡선을 작성하여 얻어진 회귀 곡선식을 이용하여 반감기를 산출하였으며, 산출된 반감기는 16배 희석액과 32배 희석액 처리구 모두 3일로 같았다. 또한 약제 살포 당일에 농약의 잔류농도는 MRL 미만으로 검출되었기 때문에 수확일에 잔류농약에 대한 안전성은 문제가 없는 것으로 판단되었다. 추가적으로, 회귀 곡선식을 이용하여 농약 잔류농도가 농약

**Table 6.** Residual concentration of picarbutrazox in shallot according to sampling point

Plot	Residual concentration (mg/kg)							
	0 m	20 m	40 m	60 m	80 m	100 m	Mean	
Single spray	Left (C)	0.026	0.020	0.011	0.022	0.005	0.021	0.018
	Center (B)	0.028	0.011	0.023	0.017	0.014	0.018	0.018
	Right (A)	0.017	0.009	0.015	0.011	0.007	0.018	0.013
	Mean	0.024	0.013	0.016	0.017	0.009	0.019	0.016
Double spray	Left (C)	0.042	0.012	0.009	0.016	0.013	0.030	0.020
	Center (B)	0.127	0.017	0.036	0.036	0.033	0.049	0.050
	Right (A)	0.154	0.007	0.021	0.018	<LOQ <sup>a,b)</sup>	0.016	0.037
	Mean	0.108	0.012	0.022	0.023	0.017	0.032	0.036

<sup>a)</sup>Limit of quantitation, <sup>b)</sup>When calculating the average value, the LOQ of 0.005 mg/kg is applied.



**Fig. 4.** Residual concentration of picarbutrazox in shallot at single spraying plot according to sampling point. A; Residual concentration by distance, B; Residual concentration by location.

허용물질강화제도(positive list system, PLS) 기준인 0.01 mg/kg 미만으로 감소하는데 소요되는 기간을 예측한 결과 단일 및 왕복살포 처리구 각각 최종 약제 살포 후 14.9일과 16.5일로 예측되었다.

**살포물량에 따른 잔류량**

무인헬기 안전사용기준 상의 수확 예정일에 Fig. 2에 제시한 18개 지점에서 쪽파를 채취하여 잔류농약을 분석한 결과는 Table 6에 제시하였다. 시료채취 구역에 따라 다르지

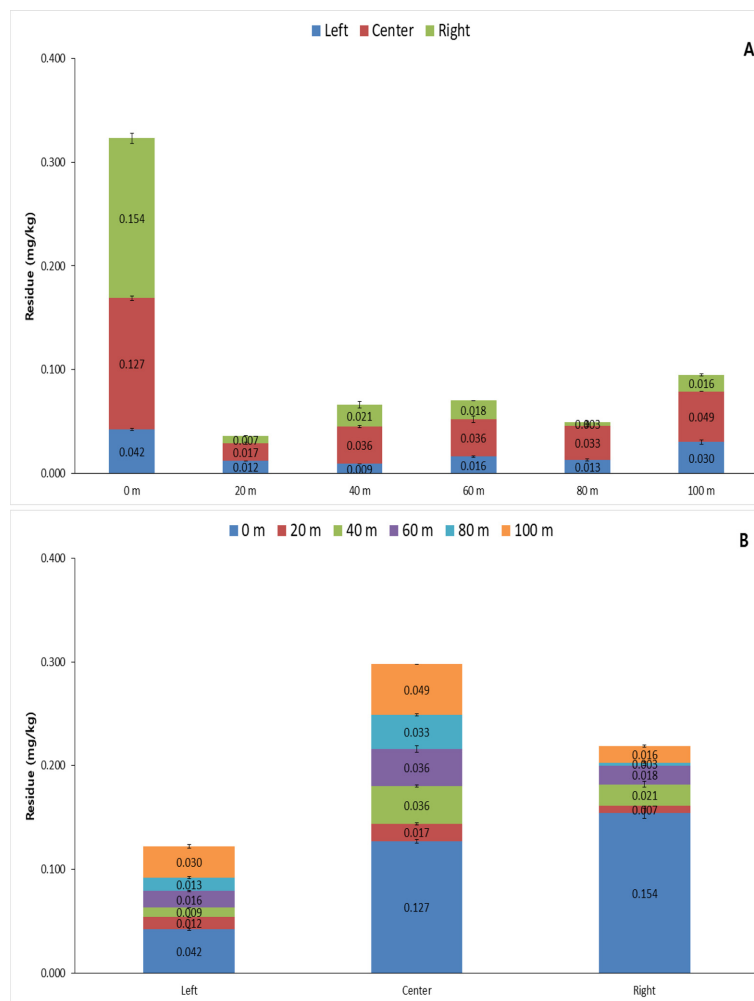
만 단일살포 처리구의 전체 평균 잔류량은 0.016 mg/kg이었으며, 왕복살포 처리구의 경우 0.036 mg/kg으로 이론적으로는 동일한 약량을 살포하였지만 희석배수와 물량을 높여 살포한 처리구가 더 많은 잔류량을 보였다. 이는 살포 물량이 많을수록 농약 부착량이 많아진다는 Moon et al. (2016)의 보고와 유사한 결과이었다. 또한 각 지점의 세부 잔류량을 보면, 단일살포 처리구는 최대 0.028 mg/kg (중앙 0 m지점), 최소 0.005 mg/kg (왼쪽 80 m 지점)으로 5.6배의 잔류량 차이를 보였으며, 왕복 살포 처리구의 경우 최대 0.154 mg/kg (오른쪽 0 m 지점), 최소 0.007 mg/kg (오른쪽 20 m 지점)으로 최대 22배의 잔류량 차이를 보여 고물량인 경우 지점별로 잔류량 차이가 더 컸다. 또한 살포 당시 바람의 영향이 거의 없었던 것으로 미루어 볼 때 풍속 및 풍향 등의 환경 조건보다 비행시 기체의 흔들림과 와류 등에 의하여 왼쪽과 오른쪽의 잔류량이 차이가 발생한 것으로 판단되었다.

현재 안전사용기준에 준하여 멀티콥터로 농약을 살포할 경우 물량이 적어 정해진 면적을 모두 살포하기 어려움이 있다. 이를 해결하기 위해서는 살포 물량을 늘리고 희석배

수를 조정하는 방안이 있지만 이 연구 결과에 따르면 비록 잔류허용기준 미만일지라도 농약살포 물량과 희석배수를 늘리면 작물 중 농약의 잔류량이 높아지고 살포 구역 내에서 잔류량 편차가 크다는 단점이 있다. 따라서 무조건 물량을 높이는 것보다 약효·약해 등의 추가 연구 결과를 고려하여 희석배수와 살포물량을 정하는 것이 합리적이라고 판단되었다.

**시료채취 지점별 잔류량**

처리구의 중앙 부분은 노즐에서 살포액이 분사되면서 교차 살포될 뿐만 아니라 살포액이 가장 많이 낙하되기 때문에 가장 많은 잔류량을 보일 것으로 예상되었지만(Kim et al., 2018) Table 6에 제시한 바와 같이 단일살포 처리구에서는 왼쪽(0.018±0.008 mg/kg) 및 오른쪽(0.013±0.004 mg/kg)과 중앙 부분(0.019±0.006 mg/kg)의 평균 잔류량 차이가 거의 없었다. 하지만 왕복살포로 살포액량이 증가한 경우에는 중앙 부분(0.050±0.039 mg/kg)의 잔류량이 왼쪽(0.020±0.013 mg/kg) 및 오른쪽(0.037±0.058 mg/kg)의 잔류량보다 높은 경향을 보였다(Fig. 4와 5).



**Fig. 5.** Residual concentration of picarbutrazox in shallot at double spraying plot according to sampling point. A;Residual concentration by distance, B;Residual concentration by location.



살포시작 지점(0 m)과 살포종료 지점(100 m)의 잔류량은 단일살포인 경우 각각 전체 평균 잔류량(0.016 mg/kg)과 유사한 0.024과 0.019 mg/kg이 잔류하였다. 왕복살포인 경우 종료 지점의 잔류량(0.032 mg/kg)은 전체 평균 잔류량(0.036 mg/kg)과 유사하였지만 시작지점의 잔류량(0.108 mg/kg)은 평균 잔류량보다 약 3배 높았다(Fig. 4와 5). 시작 지점의 잔류량이 높은 이유는 항공살포 시작 전 출발 지점에서 기체를 호버링(지정한 위치에서 정지비행)하다가 살포를 시작할 때 분사 버튼을 누름과 동시에 비행이 시작되면 시작 지점의 잔류량과 다른 구역의 잔류량의 차이가 없을 것으로 예상되지만 실제로 이것이 동시에 이루어지기가 힘들고 보통 분사 버튼을 누른 후 비행을 시작하기 때문에 초기 살포시작 지점에 농약이 과다하게 살포되기 때문에 과다하게 잔류될 가능성이 있는 것으로 판단되었다. 이와 더불어 비행종료와 분사종료가 동시에 이루어지지 않거나 분사가 먼저 종료된 후 비행이 종료되면 이에 따라 잔류량의 차이가 발생할 것으로 판단되었다. 따라서 멀티콥터를 이용한 농약의 고른 살포를 위해서는 살포 시작과 동시에 비행이 시작되고 비행 종료와 함께 살포가 종료되는 기술과 소프트웨어가 연구 및 개발되어 멀티콥터에 적용되어야 한다고 판단되었다. 또한 항공살포시 풍향 등의 환경조건을 조절할 수 없기 때문에 살포액의 고른 분사가 가능하고 비산을 저감할 수 있는 노즐 개발이 요구되며, 일정한 분사를 위해 와류 현상을 최소화 할 수 있는 분사압력, 비행속도 및 비행고도를 확립할 필요성이 있다고 판단되었다. 추가적으로 일반적으로 쪽파에 대한 작물 잔류성 시험에서는 각 처리구의 면적을 10 m<sup>2</sup>로 하고 시료 채취 지점의 수는 정해지지 않은 상태에서 무작위로 약 1 kg을 채취하지만 항공살포 방법으로 시험할 경우 시료의 대표성을 확보하기 위하여 처리구의 면적을 충분히 확보하고 잔류량 편차가 심한 지점을 고려한 시료 채취 방법을 확립할 필요성이 있다고 판단되었다.

## 감사의 글

본 연구는 농촌진흥청 국립농업과학원 농업과학기술 연구개발사업(과제번호: PJ013426032019)의 지원에 의해 수행되었으며, 이에 감사드립니다.

## Literature cited

Cha, B. R., M. S. Choi, B. K. Kim, O. S. Cheon, T. H. Han, J. W. Kim and S. Park (2016) Research of next generation IoF-Cloud based smart greenhouse & services. Smart

- Media Journal. 5(3):17-24.
- Food and Agriculture of the United Nations (FAO) (2016) Submission and evaluation of pesticide residues data for the estimation of maximum residue levels in food and feed.
- Jin, Y. D., H. D. Lee, Y. K. Park, J. B. Kim and O. K. Kwon (2008) Drift and distribution properties of pesticide spray solution applied aerially by manned-helicopter. Kor. J. Pestic. Sci. 12(4):351-356.
- Kang, J. H., H. J. Kim and M. S. Jun (2015) Market and technical trends of internet of things. Korea Contents Association Review. 13(1):14-17.
- Kim, S. K., J. U. Ryu, J. M. Jang and S. Y. Jung (2018) Optimization of nozzle distance of agricultural drone. Korean Soc. Mech. Eng. 2018:1107-1111.
- Melgar, M. J., M. Santaefemia and M. A. Garcia (2010) Organophosphorus pesticide residues in raw milk and infant formulas from spanish northwest. J. Environ. Sci. Health. B 45(7):595-600.
- Moon, S. H., H. Kwon, S. M. Hong, S. S. Kim, K. A. Son and C. H. Lim (2016) Comparison of pesticide residue amounts in apple trees applied by different sprayers and spray volumes. Kor. J. Pest. Sci. 20(3):264-270.
- Park, J. K., A. Das and J. H. Park (2015) Application trend of unmanned aerial vehicle (UAV) image in agricultural sector: Review and proposal. CNU Journal of Agricultural Science. 42(3):269-276.
- Park, S. M., J. A. Do, S. H. Lim, W. M. Pak, J. H. Yoon, D. S. Lee and M. I. Chang (2017) Development of simultaneous analytical method for determination of fungicide picarbutrazox and its metabolite (TZ-1E) residues in agricultural products using LC-MS/MS. Kor. J. Pestic. Sci. 21(2):136-149.
- Seong, D. G., S. M. Bea, Y. G. Kim, Y. C. Cho, S. D. Lee, S. I. Shim and J. S. Chung (2014) Efficacy of foliar herbicide treatment by unmanned helicopter under water-seeded rice cultivation. Weed. Truf. Sci. 3(4):323-328.
- Yeo, U. H., I. B. Lee, K. S. Kwon, T. Ha, S. J. Park, R. W. Kim and S. Y. Lee (2016) Analysis of research trend and Core technologies based on ICT to materialize smart-farm. Protected Horticulture and Plant Factory. 25(1):30-41.
- Yi, J. S. (2017) Smart farming as a countermeasure for Free Trade Agreements in agriculture. The Journal of Korea Research Society for Customs. 18(4):237-255.
- Yoon, C. S., C. H. Bae, S. C. Lee, K. H. Kim, K. H. Lee, T. K. Cho and I. C. Hwang (2011) Herbicidal effects on the differential rice cultivation condition and damage of no-target plants of macro granule herbicide for remote-controlled aerial application. Korean J. Weed. Sci. 31(4):375-383.

## 농업용 멀티콥터를 이용한 항공살포에서 picarbutrazox와 대사체 TZ-1E의 쪽파 중 잔류특성

노현호 · 문병철\* · 김창조 · 권혜영<sup>1</sup> · 노진호 · 김단비 · 오민석 · 김병석 · 김흥태<sup>2</sup> · 경기성<sup>3</sup>

농촌진흥청 국립농업과학원 화학물질안전과, <sup>1</sup>농촌진흥청 기획조정관실, <sup>2</sup>충북대학교 농업생명환경대학 식물의학과, <sup>3</sup>충북대학교 농업생명환경대학 환경생명화학과

**요 약** 이 연구는 멀티콥터를 이용하여 살포한 쪽파 중 농약의 잔류 분포 특성을 구명하고 경시적 잔류량 변화를 조사하기 위하여 수행되었다. 시험농약은 쪽파 노균병을 방제하는데 사용되고 있는 picarbutrazox이었으며, 포장시험은 충북 청주의 쪽파 전문 재배 단지에서 수행되었다. 물량과 희석배수에 따른 잔류 특성을 조사하기 위하여 안전사용기준의 추천 살포 농도인 16배 희석액(단일살포)과 물량을 2배로한 32배 희석액(왕복살포)을 각각 400 m<sup>2</sup>의 포장에 7일간격으로 3회 살포하였으며, 살포 동안의 기상을 측정을 위하여 자동기상관측기(Auto Weather Stations, AWS)를 설치하였다. 경시적 잔류량을 조사하기 위한 시료는 최종 약제 살포 후 0(3시간 후), 1, 3, 5, 7, 10 및 13일차에 잔류가 많을 것으로 예상되는 살포 중앙 지점 위주로 채취하였으며, 수확 예정일인 13일차에는 살포 구역을 18개 지점으로 나누어 채취하여 살포 구역 내의 잔류 분포를 조사하였다. 잔류농약 분석 결과, 단일살포 처리구의 잔류량은 약제 살포 당일 1.521 mg/kg에서 13일차에 0.020 mg/kg으로 감소하였으며, 왕복살포 처리구의 경우 1.696 mg/kg에서 0.029 mg/kg으로 감소하였으며, 모두 약 3일의 반감기를 보였다. 또한 초기 잔류량이 PLS 기준인 0.01 mg/kg으로 감소하는데 소요되는 기간은 각각 14.9일과 16.5일로 예측되었다. 물량이 많은 처리구인 왕복살포 처리구가 단일살포 처리구보다 잔류량이 높은 경향이었으며, 두 처리구 모두 잔류허용기준인 3.0 mg/kg보다 낮은 잔류량을 보였다. 하지만 시료채취 지점별 잔류량은 최소 잔류량과 최대 잔류량이 약 22배까지 차이가 났으며, 이는 항공살포 잔류성 시험에서 시료의 대표성 확보가 매우 중요하다는 것을 보여 주는 결과라고 판단되었다.

**색인어** Picarbutrazox, 멀티콥터, 항공살포, 잔류농약, 쪽파