

육류중 잔류 항생물질 및 테트라사이클린 조사

백미순, 이영철, 심항섭, 박병옥, 조중현, 박유순

경기도 가축위생시험소

Detection of Residual antibiotics and tetracyclines in beef, pork and chicken

Mi-Soon Baik, Young-Cheol Lee, Hang-Sub Shim, Byoung-Ok Park,
Jung-Hun Cho, Yu-Soon Park

Kyeonggi Veterinary Service Laboratory

Abstract

The purpose of the survey were determined the residual antibiotics and tetracyclines in beef(n=1,364), pork(n=2,817) and chickens(n=1,921) by the EEC 4-plate method, Charm II and HPLC. The results were summarized as follows ;

1. The recovery rates in spiked samples were 98.8-107.2% for oxytetracycline(OTC), 33.2-48.6% for tetracycline(TC) and 64.1-72.3% for chlortetracycline(CTC) at 0.05-0.1ppm by HPLC using MSPD.
2. Residues of antibiotic were detected from 10 beef(0.75%) and 36 pork(1.31%) by EEC 4-plate method. In case of chickens were not detected.
3. Twenty-eight from 46 positive samples by the EEC 4-plate method were classified as TCs(60.9%) by Charm II and TC of 12 samples were detected by HPLC.
4. Ten samples were detected levels of OTC ranging from 0.035 to 0.635 ppm and 3 samples were levels of CTC ranging from 0.066 to 0.150 ppm. OTC and CTC levels in 3 beef and 4 pork samples were exceeded the current tolerance level of 0.1 ppm.

Key words : Meat, Tetracyclines, Antibiotics, Residues, HPLC

서 론

최근 경제성장 및 국민 1인당 GNP 상승은 국민 생활 전반에 큰 변화를 가져왔는데 이 중에서도 식생활 개선 특히 우유 및 육류 등의 동물성 식품의 소비가 급증하여 전체 식품중에 축산물이 차지하는 비중이 높아짐에 따라 축산업은 경제성 위주의 과밀한 사육환경 등으로 가축 질병치료 및 사료효율의 향상을 목적으로 동물약품이 널리 사용되고 있다¹⁻⁷⁾.

이러한 동물약품의 남용 및 유해성이 문제로 제기되면서 세계 각국은 엄격한 평가제도로 이들 물질의 사용을 제한하고 있으며, 국내에서도 WTO체제 출범과 축산물의 수입 자유화 등 국제 경쟁시대를 맞아 수입 축산물 뿐 아니라 국내산 축산물의 위생관리가 WTO의 SPS협정에 의한 FAO/WHO의 Codex 국제기준을 적용 받게 되었다. 이에 안전한 축산물을 생산하고 축산물의 유해잔류물질로 인한 위해를 예방하기 위해 1989년 처음 쇠고기, 돼지고기에 대해 항생물질등의 잔류허용 한계치를 고시⁸⁾하여 잔류물질검사를 시작하였으며, 1996년에는 쇠고기를 포함한 11개 축산물에 대해 농약 등 총 112종의 잔류허용 한계치를 고시⁹⁾하여 검사를 실시하고 있다.

테트라사이클린계 항생물질은 페니실린 등 다른 항생물질과는 달리 그람 양성균과 그람 음성균을 억제하고, 리켓치아, Mycoplasma 등 또다른 미생물에서도 증균억제효과가 있는 광범위 항생제인 것으로 알려져 동물의 질병치료 및 예방을 목적으로 널리 사용되고 있으나^{11,10)} calcium, magnesium 등의 금속이온들과 착화반응(chelation)하여 뼈와 치아에 침착된다. 특히 어린 동물에 장기간 동안 과다 사용시에는 치아와 뼈의 발육에 영향을 미칠 뿐 아니라, 알러지반응으로 피부발진, 발열 및 광과민성 증상도 나타나며, 신독성과 내복에 의한 오심, 구토, 설사 등의 부작용도 흔히 나타나는 것으로 알려져 있다^{1,4,11-13)}.

테트라사이클린계 항생물질은 oxytetracycline (OTC), tetracycline(TC), chlortetracycline (CTC), doxycycline(DC), methacycline 등이

있으며 우리나라에서는 1960년 페니실린 이후 두번째로 사용되기 시작하여 OTC와 CTC의 경우 1990년말 생산된 항생물질 유효성분량의 39.1%로 가장 많은 양을 차지하였다^{13,14)}. 또한 1995년의 항생물질 실사용량을 보면 테트라사이클린계가 41.8%로 가장 많았고 1994년에 비해 15.7%가 증가하였다고 보고되었다^{13,14)}.

축산 식품중의 잔류 테트라사이클린 검사법은 미생물을 이용한 발육억제 시험법^{2,4,11,15)}, thin layer chromatography-bioautography (TLCB)법^{3,11)}, 방사선동위원소법^{11,16,17)}, 효소면역학적 방법¹¹⁾ 및 LC, GC를 이용한 기기분석법^{7,11,14,18-23)} 등이 있으나 이중 미생물학적인 검사법이 가장 많이 사용되고 있으며, 최근에는 우유^{16,17,19,21)}, 식육⁵⁻⁷⁾, 어류²⁴⁾ 및 벌꿀²⁵⁾ 등에서 LC, GC 등을 이용한 기기분석법에 의한 연구보고가 많다.

우리나라에서도 1980년 말부터 우유^{26,29)}, 식육^{14,25,30,31)} 및 계란^{25,32)} 등 축산식품의 잔류 항생물질 검사를 위한 분석기법 등은 연구보고가 누적되고 있으나 테트라사이클린의 잔류실태 조사는 거의 없는 실정으로 안전한 축산물 공급 및 유해물질에 대한 방지를 위하여 이에 대한 조사를 필요로 하는 실정이다.

이에 HPLC를 이용한 식육중의 테트라사이클린 항생물질 검출을 위한 검사기법을 확립하고 육류중의 항균물질 및 테트라사이클린의 잔류실태를 조사하여 축산농가에서 안전한 축산물을 생산하기 위한 동물약품의 올바른 사용과 유해잔류물질에 대한 계몽 및 국내산 육류의 안전성 확보를 위한 기초자료로 활용코자 경기도 관내 도축장 및 도계장에서 생산된 식육을 채취하여 항균물질 및 테트라사이클린의 잔류검사 및 잔류물질 양성축에 대한 출하능가의 역학조사를 수행하였다.

재료 및 방법

1. 공시재료

1996년 1월부터 12월까지 경기도 관내 18개 도축장과 15개 도계장에서 도축 및 도계된 쇠고기 1,364건, 돼지고기 2,817건 및 닭고기 1,921

건을 무작위로 채취하여 -20°C 에서 냉동 보관하면서 시험에 공하였다.

2. 시험방법

가. EEC 4-plate method

본 시험은 수육중 잔류물질 시험방법(농림부고시 제 89-33호, '89.5.22)중 식육중 항생물질 간이검사 제2법을 적용하였다^{8,15)}.

1) 시험용 균액의 조제

가) *Bacillus subtilis* 포자액

나) *Micrococcus lutea* 균액

2) 시험용 평판배지의 조제

시험용 배지는 Nutrient agar를 각각 pH 6.0, 7.2, 8.0(*B. subtilis*용) 및 8.0(*M. lutea*용)이 되도록 조절하여 멸균한 후 pH 7.2배지에는 Trimethoprim용액을 $0.05\mu\text{l}/\text{ml}$ 되게 첨가하였다.

각 배지에 준비된 균액을 10^4 cfu/ml 농도가 되게 혼합하여 멸균 페트리디쉬에 두께가 2mm 되도록 분주하고 표준 항균물질용액을 이용하여 감도를 측정된 후 시험에 사용하였다.

3) 시료의 검사 및 판정

냉동된 시료는 해동후 지육검사용 디스크(Advantec, Toyo, Japan, $\phi 10\text{mm}$)를 넣어 육즙을 충분히 적신 후 각 배지에 부착시켰으며 *B. subtilis*배지는 30°C , *M. lutea*배지는 37°C 에서 18-24시간 배양하였다.

시험결과 하나 또는 그 이상의 평판에서 디스크 주변 억제대가 2mm(직경 12mm) 이상인 경우 양성으로 판정하였다.

나. Radioimmunoassay method(Charm II)

본 시험에서 수행한 Radioimmunoassay법은 AOAC 공인법인 Microbial receptor binding assay(Charm II)를 적용하였다¹¹⁾.

1) 재료 및 시약

가) Charm II System Analyzer(New # 7600, Charm Science)

나) Testing Reagents

① Multi-antimicrobial standard, Zero standard, MSU buffer 및 M_2 buffer, Optifluor

② Tetracycline kit, lot # TMSU005A

2) 시험방법

가) 식육 시료의 전처리

원심관에 MSU buffer 30ml와 시료 10g을 넣은 후 균질화시켜 80°C 에서 30분간 가열하였다. 가열된 시료는 4°C 에서 냉각시킨 후 1,750g에서 10분간 원심하여 상층액을 여과하였다. 여과된 상층액은 M_2 buffer를 사용하여 pH 7.5로 조절한 후 시험에 공하였다.

나) 시험방법

시험관에 미생물 수용체 정제시약과 증류수 $300\mu\text{l}$ 를 가하여 10초간 교반한 후 시료 추출액 4ml와 ^3H 표식 항균물질 정제시약을 순서대로 넣고 교반시켜 35°C 에서 5분간 반응시킨 후 1,750g에서 5분간 원심하였다. 상층액은 버리고 증류수 $300\mu\text{l}$ 를 가하여 잔류물을 부유시키고 Optifluor 3ml를 가하여 교반한 후 analyzer에서 cpm 값을 측정하였다.

다) 결과 판정

시험결과 cpm 측정값이 테트라사이클린계 항균물질의 control point값보다 낮을 경우 양성으로 판정하였다.

다. High performance liquid chromatography(HPLC)법

본 실험은 Baker 등¹⁰⁾의 방법을 응용한 MSPD법을 적용하였다.

1) 실험기구

가) HPLC System(Spectra Physics)
HPLC Pump(SP 4000), UV/Vis Detector(Spectra-100), Reodyne injector, Data module(Data jet integrator)

나) Rotary evaporator(Buchi Laboratory Tech.)

다) Column : μ Bondapak C18(300×3.9 mm ID, Waters)

2) 표준품 및 시약

가) Tetracyclines 표준품 : Sigma 제품의 Oxytetracycline(OTC), tetracycline(TC), chlortetracycline(CTC)을 사용하였다.

나) 시약 : Methanol, hexane, acetonitrile, methylene chloride(HPLC

grade, J T Baker), oxalic acid, disodium EDTA(Sigma), C₁₈ Bulk(J T Baker)을 사용하였다.

3) 시험방법

가) 이동상 용매(Mobile phase) : 0.01M Oxalic acid, acetonitrile 및 methanol을 7 : 2 : 1의 비율로 혼합하고 0.2 μ l로 여과한 후 helium gas를 이용하여 Degassing하였다.

나) 시료중 테트라사이클린계 항생물질의 전처리 : 지방이 포함되지 않게 시료 0.5g을 유발에 취하고 Na₂ EDTA와 Oxalic acid를 각각 0.05g, 활성화시킨 C18 bulk 2g을 넣은 후 1분간 부드럽게 혼합하여 균질화시켰다. 여과지(Whatman No. 1)를 넣은 10ml 주사기에 균질화시킨 혼합물을 옮겨 담은 후 혼합물의 부피가 약 4.5 ml되게 압축하였다. 주사기에 hexan 8ml와 디클로르메탄 8ml를 순서대로 가하여 세척한 후 0.01M methanolic oxalic acid 8ml로 용출하였다. 용출액은 증발 플라스크에 취하여 40°C의 rotary evaporator에서 증발 건조시킨 후 이동상 0.5ml를 가해 초음파 세척기에서 완전히 녹였다. 이 액을 12,000g에서 10분간 원심 분리한 후 상층액을 0.45 μ l 디스크 필터로 여과하여 HPLC에 주입하였다.

4) 분석 조건

본 실험에서 HPLC 분석과장은 자외부 360 nm, 유속은 1.0ml/min, 측정감도는 0.005 AUFS 그리고 시료 주입량은 50-100 μ l로 하였다.

3. 역학조사

EEC 4법 검사결과 양성축 출하농가에 대한 잔류원인을 규명하기 위하여 질병치료를 위한 동물약품의 사용 여부, 사료급여 및 사양관리 등에 대해 설문조사를 실시하였다.

결 과

1. 회수율 및 크로마토그램

테트라사이클린의 농도별 평균 회수율을 구하기 위해 쇠고기 및 돼지고기에 테트라사이클린 혼합 표준용액을 각각 0.5 μ l/g과 1.0 μ l/g을 첨가한 후 시료 추출법과 동일하게 5회 반복 실험하여 Table 1의 결과를 얻었다.

회수율은 농도가 높을수록 점차 높아지는 경향을 보였으나 TC의 경우 OTC, CTC보다 상당히 낮게 나타났다.

테트라사이클린 혼합 표준용액의 크로마토그램은 Fig 1과 같으며, 테트라사이클린 혼합 표준용액 첨가 돈육시료의 용출시간은 OTC 5.98분, TC 7.22분 및 CTC 15.31분으로 방해 피크없이 깨끗한 크로마토그램을 얻을 수 있었다.

Table 1. Recovery rate of oxytetracycline, tetracycline and chlortetracycline from spiked beef and pork

| Meat | Fortified amount(μ l/g) | Recoveries(% , Mean \pm SD, n=5) | | |
|------|------------------------------|------------------------------------|-----------------|----------------|
| | | OTC | TC | CTC |
| Beef | 0.5 | 102.5 \pm 14.0 | 33.2 \pm 1.7 | 64.1 \pm 5.9 |
| | 1.0 | 104.3 \pm 9.4 | 44.8 \pm 1.8 | 72.3 \pm 4.8 |
| Pork | 0.5 | 98.8 \pm 16.3 | 48.4 \pm 14.4 | 68.6 \pm 2.7 |
| | 1.0 | 107.2 \pm 4.8 | 48.6 \pm 6.9 | 67.7 \pm 4.7 |

* : OTC : oxytetracycline, TC : tetracycline, CTC : chlortetracycline

2. EEC 4법을 이용한 쇠고기, 돼지고기, 닭고기 중의 잔류 항생물질

쇠고기 1,364건, 돼지고기 2,817건 및 닭고기 1,921건의 시료에 대상으로 EEC 4법을 적용한 검사 결과는 쇠고기 10건(0.73%), 돼지고기 36건(1.27%) 등 총 46건(0.75%)에서 세균 발육 억제대가 관찰되었으며, 닭고기에서는 세균 발육 억제대가 관찰되지 않았다(Table 2).

계절별 검출률은 평균 0.74%로 사계절 모두 1% 이하의 양성 검출률을 보였으며, 여름, 가을의 순으로 높았다(Table 3).

Table 2. Screening test of antimicrobial activity by EEC 4-plate method from beef, pork and chicken

| Meat | No of samples | EEC 4-plate | |
|---------|---------------|-------------|--------------|
| | | Positive(%) | Negative(%) |
| Beef | 1,364 | 10(0.73) | 1,354(99.27) |
| Pork | 2,817 | 36(1.27) | 2,781(98.73) |
| Chicken | 1,921 | — | 1,921(100.0) |
| Total | 6,102 | 46(0.75) | 6,056(99.25) |

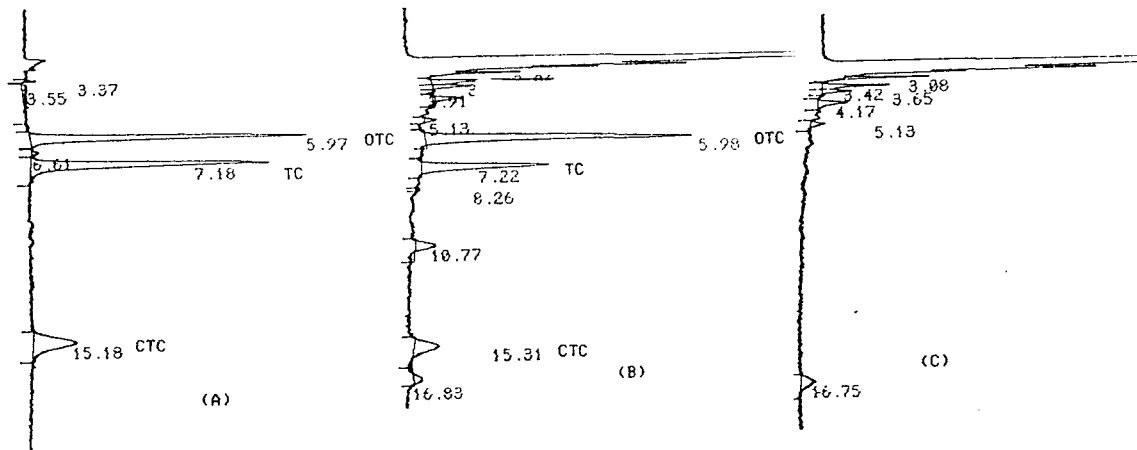


Fig 1. Chromatograms of (A) three tetracycline standards ($0.5\mu\text{l/ml}$), (B) pork spiked with tetracyclines ($0.5\mu\text{l/g}$) and (C) pork blank

Table 3. The ratio of positive detection with EEC 4-plate method by seasons

| Meat | | Season | | | |
|---------|----------|--------|--------|--------|--------|
| | | Spring | Summer | Autumn | Winter |
| Beef | Number | 500 | 393 | 283 | 188 |
| | Positive | 1 | 2 | 4 | 3 |
| | % | 0.20 | 0.50 | 1.41 | 1.59 |
| Pork | Number | 903 | 917 | 703 | 294 |
| | Positive | 12 | 15 | 7 | 2 |
| | % | 1.33 | 1.64 | 1.00 | 0.68 |
| Chicken | Number | 526 | 629 | 504 | 262 |
| | Positive | — | — | — | — |
| | % | — | — | — | — |
| Total | Number | 1,929 | 1,939 | 1,490 | 744 |
| | Positive | 13 | 17 | 11 | 5 |
| | % | 0.67 | 0.87 | 0.73 | 0.67 |

3. 테트라사이클린계 항생물질 확인

EEC 4법에서 양성으로 확인된 시료 46건에 대하여 Charm II 및 HPLC를 이용한 테트라사이클린계의 확인검사 결과 Charm II에서 28건, HPLC에서는 12건이 검색되었다. 시료별로는 HPLC정량검사 결과 쇠고기 4건(0.29%), 돼지고기 8건(0.28%)에서 검출되어 약 0.3%의 잔류 실태를 보였다(Table 4).

Table 4. Determination of tetracycline residues by EEC 4-plate method, Charm II and HPLC

| Meat | No of sample | Detection method | | |
|---------|--------------|------------------|--------------|----------|
| | | EEC (%) | Charm II (%) | HPLC (%) |
| Beef | 1,364 | 10(0.73) | 7(0.51) | 4(0.29) |
| Pork | 2,817 | 36(1.27) | 21(0.74) | 8(0.28) |
| Chicken | 1,921 | — | — | — |
| Total | 6,102 | 46(0.75) | 28(0.67) | 12(0.19) |

4. HPLC를 이용한 테트라사이클린계 확인 및 정량

Charm II 검사결과 테트라사이클린계 양성 시료에 대한 HPLC 정성, 정량검사 결과는 Table 5와 같다. HPLC 정량검사 결과 쇠고기 4건, 돼지고기 8건 총 12건에서 OTC 및 CTC이 최저 0.035ppm, 최고 0.634ppm이 검출되었으며, OTC 및 CTC의 잔류허용기준인 0.1ppm 이상인 시료는 7건(58.3%)이었다.

쇠고기는 4건은 모두 OTC가 평균 0.274 ± 0.250 ppm이 잔류하였고, 우육종의 OTC 잔류허용기준인 0.1ppm 이상은 3건(75.0%)이었다. 돼지고기에서는 OTC가 6건(75.0%), CTC가 3건(37.5%)으로 평균 0.116 ± 0.096 및 0.118 ± 0.045 ppm이 잔류하였고, 이중 1건(12.5%)의 시료에서 OTC와 CTC가 동시에 검출되었다. 돈육종의 OTC 및 CTC 잔류허용기준인 0.1ppm 이상 검출된 시료는 4건(50.0%)이었다.

Table 5. Detection of residual tetracyclines from beef and pork by HPLC

| Meats | Sample ID | Tetracyclines | | |
|-------|-----------|---------------|----|---------|
| | | OTC | TC | CTC |
| Beef | C-101 | 0.045* | - | - |
| | C-301 | 0.634 | - | - |
| | C-303 | 0.210 | - | - |
| | C-501 | 0.208 | - | - |
| | Mean | 0.274 | - | - |
| | ± SD | ± 0.252 | - | - |
| Pork | S-101 | 0.042 | - | - |
| | S-107 | 0.035 | - | - |
| | S-108 | 0.082 | - | - |
| | S-121 | - | - | 0.066 |
| | S-122 | - | - | 0.138 |
| | S-302 | 0.261 | - | 0.150 |
| | S-303 | 0.222 | - | - |
| | S-304 | 0.146 | - | - |
| | Mean | 0.131 | - | 0.118 |
| | ± SD | ± 0.077 | - | ± 0.045 |

* ; unit : $\mu\text{g/g}$

5. 양성시료 출하농가의 역학

EEC 4법 검사 결과 양성시료 46건의 출하농가에 대한 역학조사 결과 질병 치료를 위한 약물 투여가 16건(34.8%), 후기사료 미급여가 18건(39.1%), 사양관리 불량 3건(6.5%) 및 기타 9건(19.6%)으로 34건(73.9%)이 휴약기간 위반에 의한 잔류로 확인되었다(Table 6).

소에서는 질병치료를 위한 약물투여 후 휴약기간 미준수가 4건(40.0%), 후기사료 미급여가 4건(40.0%)이었고, 돼지에서는 질병치료를 위한 약물투여가 12건(33.3%), 후기사료 미급여가 14건(38.9%)이었다.

Table 6. The survey of residual causes for production farms with positive sample

| Causes | Cattle (%) | Pigs (%) | Subtotal (%) |
|-----------------------|------------|----------|--------------|
| Antibiotic treatments | 4(40.0) | 12(33.3) | 16(34.8) |
| Feed additives | 4(40.0) | 14(38.9) | 18(39.1) |
| Unknown | - | 3(8.3) | 3(6.5) |
| Other | 2(20.0) | 7(19.4) | 9(19.6) |
| Total | 10 | 36 | 46(100.0) |

고 찰

축산에서 가축질병에 의한 피해는 대략 총 생산액의 20% 내외로 동물약품의 사용은 이러한 피해를 최소화시키고 있으며, 사료 첨가제 사용으로 축종에 따라 14-18%의 사료효율 개선효과를 얻고 있다²⁾.

테트라사이클린계 항생물질은 이런 목적으로 우리나라^{10,13,31,33,34)} 뿐아니라 전세계적^{1-4,11,16,17)}으로 사용되는 주요 항생제로 일본의 경우는 가축에 사용하는 항생제중 테트라사이클린계가 전체의 60%를 차지하였고^{5,6)}, 오스트레일리아에서는 설파제와 함께 축산에 가장 널리 이용되는 항생제로 수입 및 자국산 축산식품에 대해 잔류여부와 약물의 사용에 관한 조사를 실시하였다고 보고하였다⁷⁾. 테트라사이클린의 식육에

대한 잔류 및 부작용¹⁴⁾에 대한 연구는 1960년대부터 꾸준히 이루어졌으며 각 나라마다 테트라사이클린에 대한 잔류허용기준이나 사용량등이 다르다. 최근 FAO/WHO 합동식품공전위원회에서는 쇠고기, 돼지고기, 양고기 및 닭고기에 대해 0.1ppm의 옥시테트라사이클린에 대한 잔류허용기준을 설정하여 각국에 권장하고 있다¹²⁾.

본 조사에서는 쇠고기, 돼지고기 및 닭고기 6,102건을 EEC 4법으로 검사한 바 쇠고기 및 돼지고기 46건(0.75%)에서 세균 발육억제대가 관찰되었으며 이는 1988년 말 근육시료에 대한 잔류 항균물질 검사 결과 26%에서 항균물질이 검출되었다는 보고³⁰⁾와는 큰 차이를 보였다. 한편 닭고기에서는 검사재료 모두에서 세균 발육억제대가 관찰되지 않았으며, 이는 박 등³⁰⁾과 박 등³¹⁾의 결과와 일치하였다. 이러한 결과는 육계나 산란계의 배합사료내 동물약품의 사용이 규제³⁵⁾되어 있고, 양계에서 문제가 되는 콕시듐 치료 및 예방을 위한 항콕시듐제제의 사용이 대부분을 차지하기 때문인 것으로 판단되었다. 조 등³²⁾은 산란계에 사용이 금지된 CTC 200 ppm을 사료에 첨가하여 급여한 후 계란으로의 잔류 이행에 관해 조사하였는데 급여 5주 후부터 난백과 난황에서 각각 0.11과 0.09ppm이 검출되었고 급여 중지 2일부터는 난백, 난황 모두 검출되지 않았다고 보고하였다. MSPD(matrix solid phase dispersion)추출법을 이용한 쇠고기 및 돼지고기의 테트라사이클린계의 HPLC 분석 결과 OTC, TC 및 CTC의 회수율은 98-104%, 33-49% 및 64-73%였는데 이는 강 등²²⁾이 보고한 98-105%, 53-73% 및 71-88%와 유사하였으나, TC는 훨씬 낮은 회수율을 보여 TC 검출을 위한 지속적인 노력이 필요하리라 사료된다. Messersmith 등²⁾은 CTC 과용에 대한 효과 및 잔류여부를 조사한 결과 사료내 급여 후 어린돼지에서 평균 40% 이상의 증체효과를 보였으나 급여중지 후 7일이 경과하여도 근육내 1ppm이하로 잔류되었다고 보고하였고, Korsrud와 MacNeil³⁶⁾은 치료목적으로 사료내 CTC를 첨가하여 급여한 돼지의 지육을 검사한 결과 7일간의 휴약기간없이 출하한 돼지의 경우

평균 0.09ppm이 잔류하였다고 보고하였으며, Pakkala 등⁴⁾은 젖소에서 OTC를 5mg/kg 1회 근육주사 후 8일이 경과하여도 우유중에 OTC가 검출되었다고 보고하였다.

조 등¹⁴⁾은 쇠고기, 돼지고기 및 닭고기 150건에 잔류 항균물질검사 결과 돼지고기 1건(0.66%)에서 CTC 0.05ppm을 검출되었다고 보고하였고, Salisbury 등³⁾은 도축장에서 항생제 치료가 의심되는 도축돈 623두의 신장, 간 및 근육에 대해 TLCB 및 HPLC법으로 검사한 결과 16두(3.0%)에서 CTC는 0.1-1.38ppm을, 138두(22.0%)에서 OTC는 0.05-2.07ppm을 검출하였는데 그 중 3두에서 OTC와 CTC를 동시에 검출하였고, 근육에서 CTC는 3건(평균 0.28±0.11ppm), OTC는 79건(평균 0.2±0.3ppm)을 검색하였는데 이러한 결과는 항생제 치료 후 휴약기간 미준수에 의한 것이라고 보고하였다.

본 조사에서도 테트라사이클린계 검출양성 식육 28건을 대상으로 HPLC로 검색한 결과 12건(0.19%)에서 OTC와 CTC가 검출되었으며, 이중 1건에서는 OTC와 CTC가 동시에 검출되었다. 시료별로는 우육 4건(0.29%)에서 OTC가 평균 0.274±0.252ppm이 검출되었으며 잔류허용기준인 0.1ppm이상은 3건으로 검사시료 1,364건에 대해 0.21%이었으며, 돈육에서는 OTC 6건(0.21%) 및 CTC 3건(0.10%)이 평균 0.131±0.077ppm 및 0.118±0.045ppm으로 OTC 3건 및 CTC 2건에서 잔류허용기준인 0.1ppm 이상이었으며, 이는 검사시료 2,817건의 0.18%에 해당되었다.

양성축 출하농가의 역학조사 결과 질병치료를 위한 약물투여가 34.8%이었고, 출하전 비육후기 사료 미급여가 39.1%로 73.9%가 휴약기간 위반에 의한 잔류로 확인되었는데, 1995년 국내산 축산식품중의 항균성 물질잔류 원인을 조사한 결과 휴약기간 위반이 54.5%, 비허용 약제의 사용이 27.3%로 81.8%가 약제사용에 의한 것으로 이는 본 조사의 결과와 유사하였다. 미국 FDA에서 1983년부터 1988년까지 식육에서의 약물잔류에 관한 원인을 조사한 결과 45.2%가 휴약기간 미준수에 의한 것이었으며, 31.5

%가 동물약품 설명서 미준수에 의한 것이었다고 보고하였다³⁷⁾.

현재 우리나라는 축종별·항생물질별·투여방법등에 따라 동물용 의약품의 사용 및 휴약기간을 정하였고, 또한 배합사료내 사료첨가제의 사용도 축종별, 연령별로 기준을 제정·그 사용을 규제^{34,38)}하여 축산물의 안전성 확보를 위해 노력하고 있으나 본 조사의 결과로 미루어 볼 때 동물약품의 오·남용, 잔류물질에 대한 홍보 및 교육, 축산농가에서의 공중보건학적인 관심이 부족하였던 것으로 사료된다.

이에 국내산 축산물의 안전성 확보를 위해 국내·외적으로 많이 사용되는 동물약품의 감시 및 규제와 잔류물질의 검사를 실시하고 양축농가에 대한 올바른 동물약품 사용 및 휴약기간 준수에 대한 꾸준한 홍보와 지도가 필요하리라 사료된다.

결 론

가축의 질병 치료, 예방 및 사료효율 증진을 목적으로 사용되는 항생물질 및 테트라사이클린계의 육류내 잔류 실태를 조사하기 위하여 1996년 1월부터 12월까지 경기도 관내 도축장 및 도계장에서 채취한 쇠고기, 돼지고기, 닭고기를 대상으로 EEC 4-plates법, Charm II법 및 HPLC법으로 검사하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. MSPD를 이용한 HPLC법으로 테트라사이클린계 첨가 우육에서의 회수율은 OTC, TC 및 CTC에서 각각 103.4%, 39.0% 및 68.2% 이었고, 돈육에서의 회수율은 103.3%, 48.5% 및 68.2% 이었다.

2. 쇠고기 1,364건, 돼지고기 2,817건 및 닭고기 1,921건을 EEC 4-Plate법으로 검사하여 쇠고기 10건(0.75%), 돼지고기 36건(1.31%) 총 46건(0.75%)에서 항생물질 양성으로 판정되었으나, 닭고기에서는 검출되지 않았다.

3. EEC 4-plate법에서 양성으로 판정되었던 시료를 대상으로 Charm II와 HPLC를 이용하여 테트라사이클린계를 확인한 결과 Charm II에서 28건(60.9%)이, HPLC에서는 12건(26.1%)

에서 양성으로 나타났다.

4. 테트라사이클린 양성시료를 대상으로 HPLC로 정량검사한 바 OTC 및 CTC의 잔류 허용기준인 0.1ppm은 쇠고기 3건, 돼지고기 4건이었으며, OTC와 CTC가 최저 0.035ppm에서 최고 0.634ppm까지 잔류되었다.

5. 양성시료 46건에 대한 출하농가 추적조사 결과 질병 치료목적의 동물약품 사용이 16건(34.8%), 후기사료 미급여가 18건(39.1%)으로 확인되었다.

참 고 문 헌

1. American Society of Hospital Pharmacists. 1994. Drug information. *Am Hospital Form Serv* 324-340.
2. Messersmith RE, Sass B, Berger H, et al. 1967. Safety and tissue residue evaluations in swine fed rations containing chlortetracycline, sulfamethazine, and penicillin. *JAVMA* 151(6) : 719-724.
3. Salisbury CDC, Chan W, Patterson JR, et al. 1990. Case report : An investigation of chlor-tetracycline and oxytetracycline residues in suspect swine slaughtered in Manitoba, Canada, October 1987 to March 1988. *Food Addit Contam* 7(3) : 369-373.
4. Huber WG. 1988. *Veterinary Pharmacology and Therapeutics*. 6 ed. 813-821, 1172-1173.
5. Oka H, Ikai Y, Kawamura N, et al. 1991. Limited Survey of residual tetracycline on tissue collected from diseased animals in Aichi prefecture Japan. *JAOAC* 74 : 894-896.
6. Tsai CE, Kondo F. 1994. Simple continuous and Simultaneous determination of tetracycline residues. *Research Vet Sci* 56 : 277-283.
7. Walsh JR, Walken LV, Webber JJ. 1992. Determination of tetracyclines in bovine and porcine muscle by HPLC using solid-phase extraction. *J Chromato* 596 : 211-

- 216.
8. 농림수산부. 1989. 수육중 잔류물질 시험방법 및 허용기준 고시. 농림수산부고시 제89-33호.
 9. 보건복지부. 1996. 식품위생법. 식품등의 기준 및 규격 고시. 보건사회부고시 제96-10호.
 10. 이재진. 1984. 동물용 항생물질제제의 현황과 개선방안. 대한수의학회지. 24(1) : 9-20.
 11. Barker SA, Walker CC. 1992. Chromatographic method for tetracycline analysis in foods. *J Chromato* 624 : 195-209.
 12. CODEX Alimentarius Commission, 1993. Residues of veterinary drugs in foods. *Codex alimentarius* 3 : 8.
 13. 조태행, 이광직, 박종명 등. 1993. 1963-1992년도 동물용 항생물질제제의 국가검정 성적. 한국수의공중보건학회지 17(1) : 111-121.
 14. 조태행, 이광직, 진남섭 등. 1993. 테트라사이클린계 항생물질의 분석기법 개발 및 잔류조사에 관한 연구. 한국수의공중보건학회지 17(3) : 321-328.
 15. Bogaerts R, Wolf F. 1980. A standardized method for the detection of residues of antibacterial substances in fresh meat. *Fleischwirtschaft* 60 : 672-673.
 16. Moats WA, Anderson KL, Rushing JA, et al. 1995. Comparison of a radioimmunoassay(Charm II) test with HPLC for detection of oxytetracycline residues in milk samples from lactating cattle. *Am J Vet Res* 56(6) : 795-800.
 17. Anderson KL, Moats WA, Rushing JE, et al. 1995. Potential for oxytetracycline administration by three routes to cause milk residues in lactating cows, as detected radioimmunoassay(Charm II) and HPLC test methods. *Am J Vet Res* 56(1) : 70-77.
 18. Tsai CE, Kondo F. 1994. Simple continuous and simultaneous determination of tetracycline residue. *Res Vet Sci* 56 : 277-283.
 19. Baker SA, Long AR. 1994. Preparation of milk sample for immunoassay and liquid chromatographic screening using MSPD. *JAOAC* 77(4) : 844-854.
 20. Korsrud GO, Macneil JD. 1987. A Comparison of three bioassay techniques and high performance chromatography for the detection of CTC residues in swine tissue. *Food Addit Contam* 692 : 149-153.
 21. Moats WA, Raida Harikkhan. 1995. Rapid HPLC determination of tetracycline antibiotics in milk. *J Agric Food Chem* 43 : 931-934.
 22. 강환구, 손성완, 조병훈 등. 1996. 시료고체상 분산(matrix solid phase dispersion) 전처리법을 이용한 식육중 테트라사이클린계 항생물질 동시 정량분석. 대한수의학회지 36(3) : 541-550.
 23. 송성욱, 조명행, 신광순 등. 1994. HPLC를 이용한 식육류의 잔류 테트라사이클린계 항생물질의 동시 분석법. 한국수의공중보건학회지 18(4) : 343-351.
 24. Carignan G, Carrier K, Sved S. 1993. Assay of oxytetracycline residues in salmon muscle by liquid chromatography with ultraviolet detection. *JAOAC* 76(2) : 325-328.
 25. Oka H, Ikai Y, Hayakawa J, et al. 1994. Improvement of chemical analysis of antibiotics. 22. Identification of residual tetracyclines in honey by Frit FAB/LC/MS using a volatile mobile phase. *J Agric Food Chem* 42 : 2215-2219.
 26. 조태행. 1978. 축산식품의 잔류 항생물질. 우유, 계육 및 계란을 중심으로. 한국수의공중보건학회지 2 : 56-71.
 27. 박병욱, 백미순, 권기호 등. 1991. 원유중의 잔류 항생물질 및 설파제 조사. 한가위지 14 : 63-69.
 28. 김창수, 이성권, 고태오 등. 1996. 경기 남부지역 원유중의 설파제 잔류조사. 한가위지

- 19(1) : 39-45.
29. 박병옥, 백미순, 박향미 등. 1994. 원유중의 잔류설파제를 위한 액체크로마토그래피 및 신속 진단법의 비교 연구. 한국수의공중보건학회지 18(1) : 65-78.
 30. 박종명, 손성완, 조태행 등. 1990. 국내산 돈육 및 계육중의 항균물질잔류 조사. 한국수의공중보건학회지 14(1) : 61-68.
 31. 박종명, 이광직, 조태행 등. 1991. 국내산 우유, 돈육 및 계육중의 항생물질 잔류 조사. 한국수의공중보건학회지. 15(3) : 287-291.
 32. 조태행, 인영민, 박종명 등. 1990. 산란계에 항생물질 첨가사료 급여시 계란의 잔류. 한국수의 공중보건학회지 14(1) : 69-76.
 33. 박종명, 신진호, 이광직 등. 1990. 동물약품 수급정보 전산화 연구. 농진청 가위연시
 협연구보고서. 90 : 36-39.
 34. 한국동물약품협회. 1996. 항생제 실사용량. 동물약계. 96-4(31) : 6-7.
 35. 농림수산부. 1996. 배합사료 제조용 동물용 의약품 사용기준. 농림수산부고시 제96-22호.
 36. Korsrud GO, MacNeil JD. 1988. A comparison of three bioassay techniques and high performance liquid chromatography for the detection of CTC residues in swine tissues. *Food Addit Contam* 5 : 149-153.
 37. 김승환. 1990. 축산물에 있어서 항균·호르몬 물질의 잔류 문제와 방지 대책 (II). 동물약계. 겨울 : 7-13.
 38. 농림수산부. 1995. 동물용 의약품 안전 사용기준. 농림수산부고시 제95-85호.