

HPLC를 이용한 어패류 중의 테트라사이클린계 항생제 분석방법 개발

이희정* · 이태식 · 손광태 · 김풍호 · 조미라 · 박미정¹ · 이영호²
국립수산물품질관리원, ¹국립수산물품질검사원, ²대한민국 국회

Analysis of Tetracyclines Using High-Performance Liquid Chromatography for Fishery Products

Hee Jung LEE*, Tae Seek LEE, Kwang Tae SON, Poong Ho KIM,
Mi Ra JO, Mi Jung PARK¹ and Young Ho Yi²

National Fisheries Research and Development Institute, Busan 619-092, Korea

¹National Fishery Products Quality Inspection Service, Gyunggi-do 410-315, Korea

²The National Assembly, Seoul 150-701, Korea

An analysis method of tetracyclines for fish and shellfish products containing large amount of low molecular materials and pigments was established. The recovery of the established analysis method for four tetracycline samples was 72-100% and higher than other methods reported. Especially, proposed sample treatment protocol was shown to be effective for the removal of low molecular materials and pigments that tend to interfere with accurate analysis. The detection limit of oxytetracycline (OTC) and tetracycline (TC) from the sample was 0.02 ppm, and the detection limit of chlortetracycline (CTC) and doxycycline (DC) from the sample was 0.1ppm. To examine the efficiency of the established method and identify tetracycline usage in fish farms, tetracycline group antibiotics in the flounder being cultured was monitored. The improved method can be used for fish and shellfish products effectively and all surveyed fish farms have used tetracycline all the year round. The proposed method was adopted as official method for fishery products by Korean Food and Drug Administration in 2003 and it is being used by regulatory authority as National Fishery Products Quality Inspection Service.

Key words: HPLC, Oxytetracycline, Tetracycline, chlorotetracycline, doxycycline,

서 론

2005년 현재 우리나라에서는 성분별로 약 30여종의 항균 물질이 수산양식용으로 시판되고 있으며, 이 중 tetracycline 계 항생제인 oxytetracycline이 가장 많이 사용되고 있다. 그리고 국내에서의 항균물질의 계열별 사용 또한 tetracycline계가 연간 약 800톤으로 전체 사용량의 50%를 차지하고 있다(Ha et al., 2003). Tetracycline계 항생제는 polycycle 구조를 가지고 있는 항생물질로서 토양균에서 생성되는 항생물질을 검사하다가 *Streptomyces aureofaciens*로부터 chlortetracycline이 처음 발견된 이래, *Streptomyces rimosus*로부터 oxytetracycline이 분리되었으며(Huber, 1988), democycline, doxycycline, minocycline 등은 근래에 소개된 tetracycline계 항생제이다. 특히 oxytetracycline은 tetracycline계 항생제 중에서 가장 광범위한 항균 범위를 나타내며, 어류의 비브리오증, 연쇄구균증 및 아가미부식증과 같은 세균성 질병의 치료에 사용되고 있다. 이와 같이 수산용 항균물질은 양식과정 중의 어류 질병의 예방 또는 치료 등을 통하여 양식어류의 생산성 증대에 크게 공헌을 하고 있지만, 장기간의 사용 또는 오남용으로

인하여 어류질병 원인세균의 항균물질 내성을 증대시켜 항균 물질의 치료효과가 저하되고 있는 것으로 보고되고 있다(Heo et al., 1992). 한편 항균물질이 다량 함유된 식품을 지속적으로 섭취할 경우 인체 장내세균과 병원세균의 항균물질 내성을 증대시켜 질병 치료제로서의 항균물질의 효용성을 떨어뜨리고 나아가서는 치료가 불가능하게 될 수도 있기 때문에 식품중의 항균물질은 반드시 관리되어야 식품위생안전위해로 간주되고 있다(Song et al., 1994). 따라서 식품 중의 항균물질 잔류는 미국, EU를 비롯한 세계 모든 국가는 물론 국제식품규격위원회(CODEX) 등에서 최대허용잔류기준(MRL, maximum residue level)을 설정하여 규제하고 있다.

한편 식품위생 안전확보 차원에서 식품 중에 존재하는 항생물질을 정확히 확인하고 평가하기 위하여 재현성 있는 분석방법의 확립이 무엇보다 우선적으로 선행되어야 한다.

현재 tetracycline계 항생제의 확인 및 정량 분석에는 감수성 세균을 이용한 미생물학적 검사법, 박층 크로마토그래피법, 방사능 동위원소를 이용하는 charm II 시험법, 효소면역학적 방법 및 HPLC를 이용한 기기분석법 등이 보고되고 있다. 이 중 미생물학적 검사법이나 박층 크로마토그래피법은 일시에 많은 수의 시료를 간편하고 신속하게 검색하는데 이용할 수

*Corresponding author: hjlee@nfrdi.re.kr

있으나 특이성이나 검출감도가 낮고, 정밀한 정량분석이 어려운 단점이 있다. 그리고 효소면역학적방법은 개별적인 잔류항생, 항균제를 검색하기에는 적합하나 여러 종류의 항균물질을 동시에 분석하기에는 부적합한 것으로 평가되고 있다 (Kang et al., 1996). 한편 GC나 GC/MS는 개별적인 항균물질의 확인 및 정량에는 매우 정확하나 전처리가 복잡하며 동시에 많은 수의 시료를 분석하기 어려운 점이 지적되고 있다. 따라서 시료의 전처리가 비교적 용이하고 재현성이 높은 HPLC를 이용한 분석법이 가장 널리 사용되고 있다. 항균물질의 분석에 HPLC를 사용할 경우 비교적 경제적인 경비로 짧은 시간에 정밀한 분석결과를 얻을 수 있기 때문에 식품 중의 항균물질에 관한 연구목적이나 규제당국 등에서 널리 사용되고 있다.

한편 지금까지 식품 중의 항균물질 검출이나 방법 개선에 관한 연구는 거의 대부분 축산식품을 대상으로 이루어져 왔으며, tetracycline계 항생제 또한 예외는 아니었다. 그러나 근년에 어류양식 기술의 발달과 더불어 양식어류 생산물의 생산 및 소비가 증가함에 따라 양식어류는 물론 양식어류와 수평적으로 동일한 양식 또는 서식 환경에 있는 패류생산물에 대한 위생안전 확보가 절대적으로 필요하다는 요구가 증가함에 따라 여러 연구자들이 어패류 중의 항균물질 검출에 관한 기술 개발 결과를 지속적으로 보고하고 있다(Björklund, 1988; Rogstad et al., 1988; Ueno et al., 1989; Segawa, 1995; Fujita et al., 1997; Namdari et al., 1999). 그러나 지금까지 보고된 시험 분석법들의 대부분은 동일한 시료 처리에 의하여 시료 중에 존재하는 한두 가지 항균물질만 분석할 수 있고, 경우에 따라서는 어패류 중에 존재한 저분자 화합물이나 색소 등이 방해물질로 작용하여 정밀하고 재현성 있는 분석결과를 얻기 어려운 문제점이 있는 것으로 파악되었다.

따라서 본 연구에서는 항균물질에 대한 수산식품 위생안전 확보 차원에서 양식 어패류 중에 존재하는 tetracycline계 항균제 4종을 높은 재현성으로 동시에 분석할 수 있는 시험법 개발을 시도하였으며, 개발된 분석방법을 사용하여 연안해역에서 운영중인 양식장의 양식어류 중의 항생제 잔류 모니터링 결과를 보고하고자 한다.

재료 및 방법

시약 및 시료

본 연구에서 사용된 항생제의 표준품 oxytetracycline (OTC), tetracycline (TC), chlortetracycline (CTC), doxycycline (DC)은 Sigma사(USA)를 사용하였으며, 시료 중의 항생제 추출에는 n-hexane, acetonitrile, methanol, chloroform (Merck, Germany), oxalic acid (Sigma, USA) 등을 사용하였다. 그리고 시료에서 추출한 항생제 정제에는 Sep-pak C₁₈ 카트리지(Vac 3 cc, 500 mg, Waters, Ireland)를 사용하였다.

양식어류 중의 tetracycline계 항생제 모니터링은 전남 장흥, 완도 및 경남 통영지역 양식장에서 양식중인 어류를 대상으로

하였다.

항생제 표준용액 조제 및 표준곡선 작성

Stock solution: Tetracycline, oxytetracycline, chlortetracycline 및 doxycycline 표준품 각각 10 mg씩을 100 mL 용량 플라스크에 취하고 증류수로 녹여 100 ppm 농도의 Stock solution을 조제하였다.

Working solution: Stock solution 10 mL을 정확히 취하여 100 mL 용량 플라스크에 옮기고 증류수로 표시선까지 채운 다음 잘 혼합하여 표준용액으로 사용하였다. 10 ppm 표준용액을 희석하여 0.1, 0.2, 0.5, 1.0, 2.5, 5.0 ppm의 working solution을 만들어 사용하였다.

HPLC 이동상의 제조: Methanol, acetonitrile, 0.01 M oxalic acid 용액을 1:2:7 (pH 2.0 with ammonia water)의 비율로 혼합한 후 0.2 μ m membrane filter (Millipore, USA)하여 이동상으로 하였다.

Tetracycline계 항생제 추출

어패류 중의 tetracycline계 항생물질의 추출 및 분석은 Ueno et al. (1989)이 제시한 방법을 다음과 같이 개량하여 실시하였다. 즉 Fig. 1에서와 같이, 탈피하여 포를 뜬 어육은 잘게 마쇄하여 조제한 어육 10 g에 0.5% disodium EDTA (Sigma, USA)가 함유된 5% trichloroacetic acid (TCA, Simga, USA)를 40 mL 첨가하여 homogenizer (Polytron PT 3000, Switzerland)로 2분간 균질화하였다. 시료 균질액은 8,000 rpm에서 20분간 원심분리(Supra 21K, Hanil, Korea)한 후 잔사를 제거한 상층액을 취하여 분액여두로 옮긴 후 지질성분을 제거하기 위하여 n-hexane과 chloroform (9:1)용액을 40 mL 첨가하여 강하게 30초간 흔든 다음 하층액을 취하였다(2회 반복). 지질이 제거된 하층액은 감압농축기(EYELA, model N-2NW, Japan)로 40°C에서 약 3 mL 정도까지 농축하였다. 시료 농축액은 vacuum manifold (Supelco, USA)를 이용하여 Sep-pak C₁₈ 카트리지에 흡착시켰다.

Sep-pak C₁₈ cartridge는 시료를 흡착시키기 전에 methanol 20 mL, 증류수 20 mL, 5% EDTA 용액 10 mL를 순차적으로 0.5 mL/min의 속도로 흘려 cartridge를 활성화시킨 후 사용하였다. 항생제 추출물을 흡착시킨 카트리지는 증류수 40 mL로 약 0.5 mL/min의 속도로 세척하여 수용성 성분을 제거한 후, methanol 40 mL로 흡착물을 0.5 mL/min의 속도로 용출시킨다. Methanol 용출물은 40°C에서 감압 농축하여 건조시키고, 건조물을 acetonitrile과 증류수(3:7) 혼합액을 사용하여 2 mL로 정용하고, 0.2 μ m membrane filter로 여과한 후 HPLC로 분석하였다. Tetracycline 항생제 표준품 및 시료 추출액의 기기분석 조건은 Table 1과 같다. 항생제 표준품 및 추출액의 분석에는 Shiseido nanospace SI-2 HPLC system (Shiseido Co., Japan)과 C₁₈ column (4.6 mm ID×250 mm, MG type, 5 μ m, Shiseido Co., Japan)을 사용하였다.

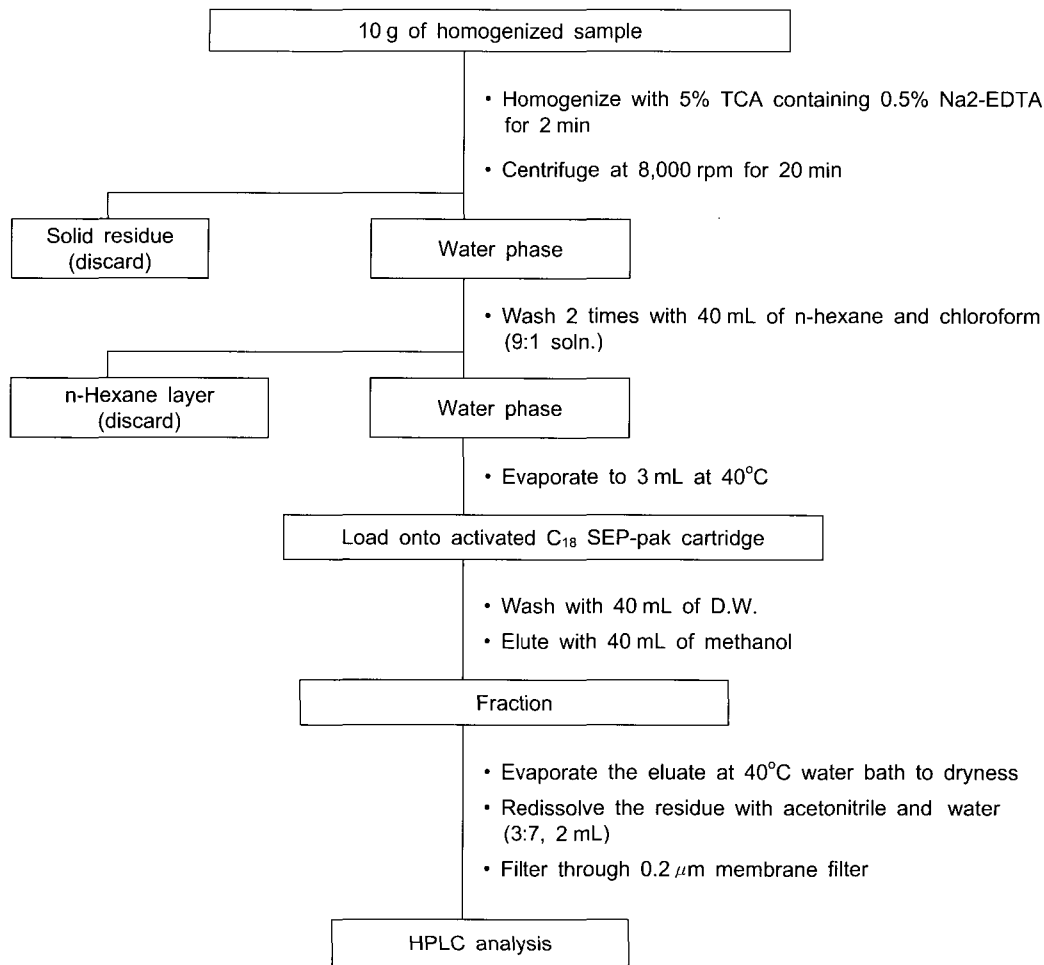


Fig. 1. Summary of clean-up procedure of tetracyclines for fish and shellfish sample.

Table 1. HPLC instruments and analysis conditions for tetracyclines

HPLC	Shiseido nanospace
Column	Shiseido MG C ₁₈ , 4.6 mm ID x 250 mm
Mobile phase	Methanol:Acetonitrile:0.01 M Oxalic acid = 1:2:7 (pH 2.0 with ammonia water, v/v/v)
Flow rate	1 mL/min
Detector	UV/VIS Detector 360 nm
Injection volumn	20 μL
Ending time	20 min

결과 및 고찰

Tetracycline 항생물질의 동시분석을 위한 기존방법의 문제점 및 개선

어패류 시료 중의 tetracycline 그룹의 항생제의 동시 분석을 위하여 Ueno et al. (1989)이 개발한 시험법을 변형하여 새로운 분석방법을 확립하였다. Ueno et al. (1989)의 시험법은 크게 시료의 처리 및 HPLC를 이용한 분석 두 단계로 구분되어 있으며, 본 연구에서도 효율적인 분석법 개선을 위하여 두

단계 모두에서 부분적인 수정을 실시하였다.

즉 Ueno et al. (1989)의 방법에서는 TCA 용액으로 추출한 시료용액 중에 존재할 수 있는 지질 성분을 제거하기 위하여 시료추출액을 n-hexane으로 처리하였으나, 뱀장어 등과 같이 지질이 많이 함유된 시료에서는 지질제거에 어려운 부분이 있어 n-hexane과 chloroform을 9:1로 혼합한 용액으로 시료추출액을 세척하여 시료 중의 지질성분을 제거하였다. 그리고 Ueno법에서는 지질을 제거한 시료액을 Sep-pak C₁₈을 사용하여 정제할 때 60 mL 정도의 추출액을 30 mL로 농축한 후 Sep-pak column에 loading하였다. 그러나 이와 같은 많은 양의 시료 추출액을 Sep-pak column을 사용하여 정제할 경우 Sep-pak column의 종류에 따라 정제과정이 상당히 곤란한 문제점이 발생하는 것이 확인되었다. 특히 Disc type과 같은 소형 column을 사용하여 다량의 시료액을 loading할 경우 loading 과정 중에 시료용액에 함유되어 있던 EDTA 성분이 석출되어 column의 여과막을 막아 시료의 순조로운 loading을 방해하는 경우가 많이 발생하였다.

한편 Ueno et al. (1989)의 시험법은 어류의 근육 및 내장기관

에서의 oxytetracycline의 검출을 목적으로 개발한 것이었으며, 제시된 분석법의 경우 어체 근육에 대한 분석 결과는 상당히 양호한 분리능을 가지는 것으로 확인되었다. 그러나 제시된 방법의 경우 색소나 저분자 물질이 다량 함유된 어류의 간장이나 신장 시료에서는 여러 가지 방해물질이 항생제와 함께 검출되어 시료 중에 존재하는 항생제의 정확한 확인이나 정량에는 문제가 있는 것으로 확인되었다.

그리고 Ueno et al. (1989)은 시도하지 않았지만 본 연구에서 확인 결과 Ueno et al.이 제시한 조건으로 어패류 시료 중의 tetracycline계 항생제를 분석할 경우 10분 이내에 4 성분 모두 검출되는 것으로 확인되었다. 그러나 retention time이 상대적으로 빠른 OTC와 TC의 경우 시료 속에 혼재되어 있는 여러 가지 방해물질이 항생제 peak 전후에 나타나 시료 중의 항생제를 정확하게 분석하는데 많은 문제점이 있는 것으로 확인되었다. 그리고 retention time이 상대적으로 늦은 DC나 CTC의 경우 검출 감도가 매우 낮아 실제적인 시료 중의 항생제 검출에 사용하는 어려운 문제점이 있는 것으로 확인되었다. 즉 본 연구에서 확인된 바로는 Ueno et al.이 제시한 OTC 검출 시험법을 사용하여 DC나 CTC를 검출 할 경우 검출 한계는 표준물질의 경우 1 ppm 그리고 시료의 경우 0.2 ppm으로 검출 한계가 낮아 제시된 시료의 위생학적 안전성을 확인하는데 사용하기는 어려운 것으로 확인되었다.

따라서 본 연구에서는 tetracycline계 항생제 4종을 고효율로 동시에 분석할 목적으로 Ueno et al.이 제시한 시료 처리법 및 HPLC 분석 조건 등을 변경하여 개량된 tetracycline계 항생제 분석법을 제시하였다(Fig. 1, Table 1). 제시된 분석법의 조건하에서 각각의 항생제 표준물질 및 어패류 시료 중에 함유된 4종의 tetracycline계 항생제 동시 분석한 크로마토그램은 Fig. 2와 Fig. 3과 같다.

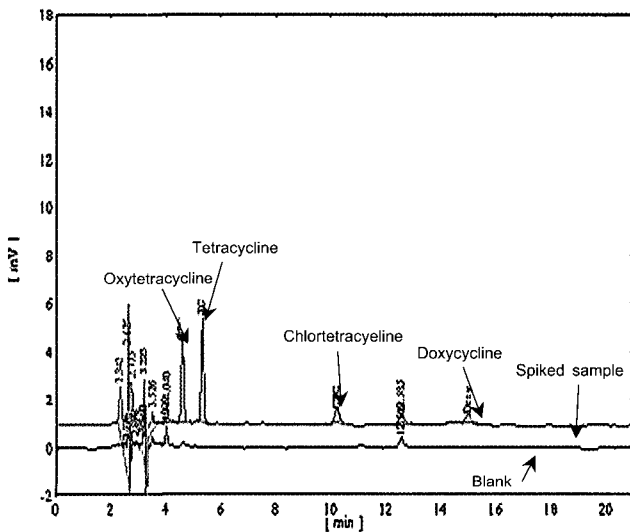


Fig. 2. HPLC chromatogram of tetracyclines in spiked olive flounder (*Paralichthys olivaceus*) sample (1 ppm).

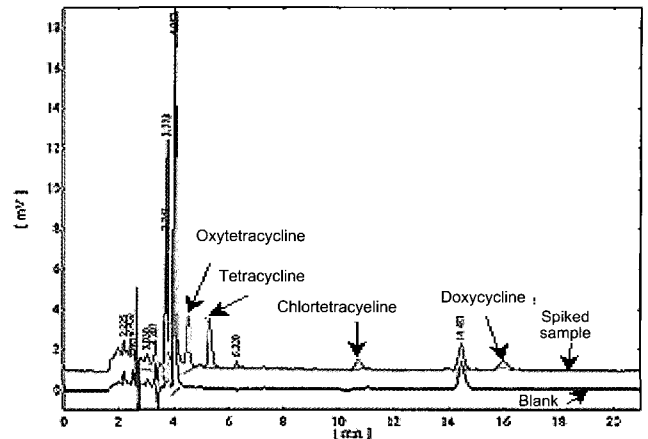


Fig. 3. HPLC chromatogram of tetracyclines in spiked pacific oyster (*Crassostrea gigas*) sample (1 ppm).

즉 제시된 분석법의 조건하에서는 사용하는 HPLC 시스템에 채택되어 있는 검출기의 감도에 따라 다소 달라질 수는 있겠지만 OTC와 TC의 표준물질의 검출한계는 0.1 ppm까지 그리고 시료 중의 항생제의 경우 시료처리과정 중의 농축계수 등을 고려할 때 0.02 ppm까지 검출 가능한 것으로 확인되었다. 그러나 CTC와 DC의 경우 표준물질은 0.5 ppm 그리고 시료 중 항생제는 0.1 ppm까지 검출이 가능하였다.

표준곡선

Tetracycline계 항생제의 혼합용액을 이동상으로 0.1-5 ppm 농도가 되게 희석하여 HPLC로 분석한 다음 농도대에 따른 peak 면적비를 이용하여 표준곡선을 작성한 결과 oxytetracycline, tetracycline, chlorotetracycline, doxycycline의 r^2 값은 각각 0.9913, 0.9979, 0.9944, 0.9936으로 모두 양호한 직선성 ($r^2 > 0.991$)을 나타내었다(Fig. 4).

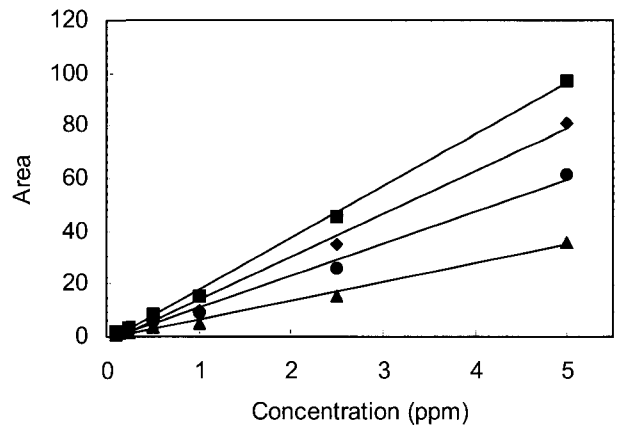


Fig. 4. Standard calibration curves of tetracyclines. (■ OTC, ◆ TC, ● DC, ▲ CTC)

제시된 시험법에 의한 tetracycline계 항생제 회수율 본 연구에서 제시된 시험법의 시료 중 tetracycline계 항생제

에 대한 회수율은 각각의 tetracycline 항생제 표준용액을 넙치 근육 10 g에 각각 0.1, 0.5, 1.0 ppm 되도록 spiking하여 회수율을 구하였다(Table 2). 넙치에서의 각각 농도에서의 tetracycline계 회수율은 0.1 ppm 농도의 경우 OTC, TC, CTC 및 DC의 회수율은 각각 100, 100, 72 및 78%였고 0.5 ppm에서는 각각 98, 97, 85 및 82%였으며 그리고 1 ppm에서는 각각 97, 96, 87 및 86%이었으며, 농도에 따른 회수율에는 큰 차이는 없었다. 따라서 본 연구 결과에 나타난 각 항생제들의 회수율(72-100%)은 Ueno et al.이 제시한(64-81%)보다 상당히 높은 경향을 나타내었으며, 28-73%의 회수율을 얻은 Kang et al. (1993)의 Matrix Solid Phase Dispersion (MSPD) 시료처리 방법 보다는 월등히 높은 것으로 확인되었다.

Table 2. Recovery of tetracyclines from olive flounder (*Paralichthys olivaceus*) muscle tissue

Fortified level ($\mu\text{g/sample } 10\text{ g}$)	Antibiotic	Number of Samples	Recovery rate (%) (Mean \pm SD)
0.1	OTC	3	100 \pm 1.5
	TC	3	100 \pm 0.9
	CTC	3	72 \pm 1.2
	DC	3	78 \pm 1.3
0.5	OTC	3	98 \pm 2.0
	TC	3	97 \pm 1.6
	CTC	3	85 \pm 1.9
	DC	3	82 \pm 2.4
1.0	OTC	3	97 \pm 2.0
	TC	3	96 \pm 1.5
	CTC	3	87 \pm 2.2
	DC	3	86 \pm 3.1

따라서 본 연구 결과에 의하면 수산식품 중에 존재하는 tetracycline계 항생제 4종을 동시에 효율적으로 분석할 수 있다는 것을 입증하였고, 식약청에서는 2003년 8월에 제시된 시험법 사용의 타당성을 검토한 후 식품의 기준 및 규격 중 개정 고시를 통하여 식품공전에 등재하였고, 본 시험법은 식약청, 수산물품질검사원등에서 내수산 및 수입산 어패류에 대한 시험분석법으로 활용되고 있다.

어류양식장을 대상으로 한 항생제 사용실태 모니터링

본 연구에서 개발된 분석방법의 활용 가능성 확인 및 어류양식장에서의 tetracycline계 항생제 사용실태 파악을 위하여, 남해안 일원에서 운용 중인 넙치 양식장의 양식어류와 부산 시내의 시장에서 유통되고 있는 활뱀장어를 대상으로 모니터링을 실시하였다.

넙치양식장에 대한 항생제 모니터링은 2001년 9월부터 11월까지 전남 장흥, 완도 및 경남 통영 소재 12개 양식장을 대상으로 실시하였으며, 총 89개의 시료를 분석하였다(Table 3). 넙치 중의 항생제 잔류농도 범위는 OTC의 경우, 불검출-2.17 mg/kg 이었다. 월별 OTC의 검출농도는 9월이 불검출-2.17 mg/kg으로 가장 높았으며, 10월 및 11월이 각각 불검출-1.34 mg/kg, 불검출-0.13 mg/kg 이었다. 총 조사시료 중 0.1 mg/kg을 초과하는 시료는 9월이 7개였으며, 10월 및 11월은 각각 17개 및 2개였다. OTC를 제외한 tetracycline계 항생제인 TC, CTC 및 DC의 전 조사기간 중 검출농도는 각각 불검출-0.26 mg/kg, 불검출-0.27 mg/kg, 불검출-0.19 mg/kg 이었다. 조사기간 중 실시한 각 양식장에서의 사용 항생제 종류에

Table 3. Tetracycline level in olive flounder (*Paralichthys olivaceus*) being cultured in fish farm in 2001

Month	Location	Tetracyclines (mg/kg)			
		OTC	TC	CTC	DC
Sep.	Janghung	ND*-0.12 (0.03)	ND-0.05 (0.01)	ND-0.07 (0.01)	ND-0.05 (0.01)
	Wando (1st) ¹⁾	ND-0.93 (0.12)	ND-0.16 (0.01)	ND-0.14 (0.02)	ND-0.19 (0.01)
	Wando (2nd) ²⁾	0.02-2.17 (0.53)	ND-0.04 (0.01)	ND-0.05 (0.01)	ND
	Tongyoung	0.04-0.13 (0.07)	0.03-0.05 (0.04)	ND-0.04 (0.02)	ND
Oct.	Wando (1st) ³⁾	ND-1.34 (0.57)	ND-0.08 (0.02)	ND	ND
	Janghung (1st) ³⁾	0.03-1.19 (0.21)	ND-0.08 (0.03)	ND-0.09 (0.01)	ND-0.07 (0.01)
	Wando (2nd) ⁴⁾	ND-0.08 (0.02)	ND-0.07 (0.01)	ND	ND-0.04 (0.01)
	Janghung (2nd) ⁴⁾	0.05-0.19 (0.15)	ND-0.26 (0.06)	ND-0.27 (0.05)	ND-0.19 (0.03)
Nov.	Wando	ND-0.10 (0.02)	ND-0.08 (0.01)	ND-0.10 (0.01)	ND-0.14 (0.01)
	Tongyoung	0.03-0.13 (0.08)	ND	0.03 (0.03)	ND
Range		ND-2.17	ND-0.26	ND-0.27	ND-0.19

ND, Not detected; ¹⁾September 26; ²⁾September 29; ³⁾October 19; ⁴⁾October 27.

Table 4. Tetracycline level in live eel (*Anguilla japonica*) purchased from market place in Busan area in 2002

Month	Market	Tetracyclines (mg/kg)				Number of samples
		OTC	TC	CTC	DC	
Jan.	Kijang	ND-0.05	ND	ND	ND	3
	Bujun	ND-0.02	ND-0.02	ND	ND	6
Feb.	Kijang	ND-0.03	ND	ND	ND	6
	Bujun	ND-0.01	ND	ND-0.01	ND	6
Mar.	Kijang	ND-0.04	ND	ND	ND	5
	Bujun	ND-0.05	ND	ND	ND	6
Apr.	Kijang	ND-0.04	ND-0.03	ND	ND	7
Range		ND-0.05	ND-0.03	ND-0.01	ND	39

ND, Not detected.

대한 탐문 조사 결과, 약제를 사용하고 있는 대부분의 양식장에서는 주로 OTC 제제를 사용하는 것으로 확인되었다. 그러나 조사결과에서는 실제로 사용하지 않은 TC, CTC 및 DC 등이 검출되는 것은 항생제 제조과정에 유도체 등의 형태로 혼입되어지는 이들 성분이 어류 체내에 축적, 검출되고 있을 가능성도 있는 것으로 추정된다. DC을 사용한 것으로 확인된 1개소의 양식장 넙치를 투약 후 30일이 경과 한 후에 채취하여 잔류성분을 분석한 결과 실제로 투여한 DC은 검출되지 않았으나, OTC 및 CTC이 각각 0.03-0.13 mg/kg, 0.03 mg/kg 검출되었다.

한편, 모니터링과정에 실시한 탐문조사에 의하여 tetracycline계 항생제를 사용한 이력이 없는 것으로 파악되고 있는 양식장의 넙치 중에서도 OTC를 비롯한 4종의 tetracycline계 항생제가 검출되고 있는 것으로 확인되었다. 이는 어류양식장에서의약품관리의 심각성 및 필요성을 강력히 요구하고 있는 부분이라 할 수 있다. 따라서 양식어류에 대한 국민보건위생 안전 확보를 위하여서는 정부차원의 강제적인 어류양식장 위생관리체제 운용이 절대적으로 필요하다고 생각한다.

활범장어에 대한 항생제 모니터링은 2002년 1월부터 4월까지 부산시 소재 재래시장에서 유통 중인 것을 대상으로 실시하였다(Table 4). 분석결과 유통중인 범장어에서 OTC, TC, CTC가 검출되었으며, 각 항생제의 검출농도 범위는 불검출-0.05 mg/kg으로 항생제 종류에 따라 다소 차이는 있었다. 시험 조사기간 중에 범장어 양식장을 대상으로 한 탐문조사에 의하면 지금까지 범장어양식장에서는 tetracycline계 항생제는 사용하지 않는 것으로 확인되었다. 그러나 실제로 모니터링과정 중에 범장어에서 tetracycline계 항생제가 검출된 것은 의외이며, 양식 또는 유통 중인 양식어류에 대한 철저한 항생제 관리의 필요성이 다시 한번 확인된 것으로, 이와 같은 모니터링 결과가 시사하는 바는 상당히 크다고 할 수 있다.

사 사

본 연구는 국립수산물과학원의 이화학적 위생안전위해관리 연구 및 해양수산부의 해양수산연구개발사업인 생산·출하

전 단계 수산물에 대한 위해요소중점관리기준 설정 및 표준모델 개발에 관한 연구의 연구비 지원에 의해 수행되었습니다 (RP-2005-FS-006).

참 고 문 헌

- Björklund, H. 1988. Determination of oxytetracycline in fish by high-performance liquid chromatography. *J. Chromatogr. B*, 432, 381-387.
- Fujita, K., K. Ito, E. Araki, K. Tanno, M. Murayama and Y. Saito. 1997. Analytical method for residual oxytetracycline in livestock and marine products, *J. Food Hyg. Soc. Japan*, 38, 12-15.
- Ha, H.I., K.S. Hong, S.W. Song, S.C. Jong, Y.S. Min, H.C. Shin, G.O. Lee, K.J. Lim and J.M. Park. 2003. Survey of antimicrobial agents used in livestock and fishes. *Kor. J. Vet. Publ. Hlth.*, 27, 205-217.
- Heo, G.J., K.S. Shin and M.H. Lee. 1992. Diseases of aquaculture animals and prevention of drug residues. *Kor. J. Food Hygiene*, 7, S7-S19.
- Huber, W.G. 1988. Tetracyclines. In: *Veterinary pharmacology and therapeutics*. Booth, N.H. and McDonald, L.E., 6th ed. Iowa State University Press, Ames, USA, 813-821.
- Kang, H.G., S.W. Won, B.H. Cho, H.W. Lee, S.J. Park, J.H. Kim and M.H. Cho. 1996. Multiresidue matrix solid phase dispersion (MSPD) extraction and HPLC determination of tetracyclines in animal muscle tissue. *Kor. J. Vet. Res.*, 36, 541-550.
- Namdari, R., S. Abedini and F.C.P. Law. 1999. A comparative tissue distribution study of oxytetracycline in rainbow trout, *Oncorhynchus mykiss* (Walbaum), and chinook salmon, *Oncorhynchus tshawytscha* (Walbaum). *Aquacult. Res.*, 30, 279-286.
- Rogstad, A., V. Hormazabal and M. Yndestad. 1988. Optimization of solid phase extraction of oxytetra-

- cycline from fish tissue and its determination by HPLC. *J. Liq. Chromatogr.*, 11, 2337-2347.
- Segawa, I. 1995. Determination of oxytetracycline in cultured marine fish serums by high performance liquid chromatography. *Bull. Natl. Inst. Aquacult.*, 24, 73-78.
- Song, S.O., M.H. Cho, K.S. Shin, M.H. Lee, P.D. Ryu, B.G. Jeong, S.W. Lee and H.G. Lee. 1994. Simultaneous determination of residual tetracyclines in beef, pork and chicken meats by high performance liquid chromatography. *Kor. J. Vet. Publ. Hlth.*, 18, 343-352.
- Ueno, R., K. Uno, S.S. Kubota and Y. Horiguchi. 1989. Determination of oxytetracycline in fish tissues by high performance liquid chromatography. *Nippon Suisan Gakkaishi*, 55, 1273-1276.

2005년 11월 14일 접수
2005년 12월 26일 수리