pISSN 1229-1153 / eISSN 2465-9223 *J. Food Hyg. Saf.*
Vol. 40, No. 3, pp. 229~242 (2025)
https://doi.org/10.13103/JFHS.2025.40.3.229

Journal of Food Hygiene and Safety
Available online at http://www.foodhygiene.or.kr

PLS 시행 이후 경상남도 유통 양식 어류의 동물용의약품 잔류 수준 분석

정원희 · 김윤지 · 한재윤 · 김경화 · 이승진 · 김혜정 · 김미숙*
경상남도 보건환경연구원 위생화학팀

Analysis of Residual Veterinary Drug Levels in Cultured Fish Distributed in Gyeongsangnam-do After Positive List System (PLS) Implementation

Wonhee Jung, Yoonji Kim, Jaeyoon Han, Gyeonghwa Kim, Seungjin Lee, Hyejung Kim, Misuk Kim*
Sanitary team, Gyeongsangnam-do Institute of Health and Environment, Jinju, Korea

(Received February 10, 2025/Revised April 16, 2025/Accepted May 7, 2025)

ABSTRACT - To evaluate the effectiveness of the implementation of the Positive List System (PLS), we analyzed the residual levels of veterinary drugs in cultured fish from Gyeongsangnam-do in 2024. In total, 116 fish samples were tested for 142 veterinary drugs using a simultaneous multi-residue analysis method with liquid chromatography–tandem mass spectrometry (LC–MS/MS). The detection rate of veterinary drugs was 46.6%, comparable to the 49.6% rate observed in 2023 before PLS implementation. Loaches (81.8%) and rockfish (78.6%) exhibited the highest detection rates, with rockfish showing consistently high detection rates in 2023 and 2024. Oxytetracycline (22.4%) and enrofloxacin (19.8%) were the most frequently detected drugs, which is consistent with the results from 2023. The mean residual levels relative to the maximum residue limit (MRL) were nearly identical between 2023 (14.1%) and 2024 (14.2%). However, residual levels increased for most drugs, except for trimethoprim, flumequin, and amoxicillin. Risk assessment confirmed that all the detected drugs were within safe limits, with a maximum acceptable daily intake (0.0335%). The number of samples that exceeded the MRLs decreased after PLS implementation, indicating improved regulatory compliance. However, variability in residue levels persists, with certain drugs exhibiting high detection rates. Continuous monitoring is essential for assessing the long-term effectiveness of PLS in ensuring food safety.

Key words: Veterinary drugs, Cultured fish, Positive List System (PLS), Risk assessment, Gyeongsangnam-do

국민소득의 증가와 건강에 대한 관심 고조는 단백질이 풍부한 수산물에 대한 소비자 수요를 지속적으로 확대시키고 있다[1]. 실제로 국내 1인당 연간 수산물 소비량은 2000년 36.8 kg에서 2022년 63.3 kg으로 증가하여[2], 2022년 세계 평균 소비량(20.7 kg)의 3배를 초과하였다[3]. 이러한 소비 트렌드는 수산업, 특히 양식업의 발전을 촉진하였으며, 양식업 생산량은 2023년 기준 국내 수산물 생산량의 61.7%를 차지하며 핵심 산업으로 자리 잡았다[4].

양식업은 대규모 생산 및 밀집된 사육 환경의 특성상 세균 감염을 예방하거나 치료하기 위해 항생제와 같은 동물용의약품을 사용하는 경우가 많다[5]. 항생제의 사용은 양식업의 성장을 촉진시켰지만, 동시에 항생제 내성균 출현을 유발시켜 인간과 동물에 유해하게 작용할 수 있다[6,7]. 양식업에서 약물을 오남용할 경우 축·수산물 중 항생제가 잔류할 수 있으며, 이를 사람이 섭취하면 인체 자체의 내성률 증가로도 이어져 사람의 질병 치료를 어렵게 만들 수 있다[8,9]. 또한 항생제 사용 후 폐기되는 약물이 수역으로 배출되면, 수생태계에 심각한 영향을 미칠 수 있다. 이처럼 항생제 사용 및 잔류의 위험은 인간, 동물, 환경 간 상호작용으로 전파될 수 있어 원헬스(one health)의 문제로 지속해서 제기되고 있으며, 글로벌 식품 안전과 공중보건에 심각한 위협을 가하고 있다[10-12].

이러한 문제를 해결하기 위해, 각국은 잔류허용기준(maximum residue limit, MRL)을 설정하여 동물용의약품의 사용을 규제하고 있으며, 국내에서도 2023년 기준 212종의 동물용의약품에 대해 MRL을 설정하였다. 그러나 수산용 의약품의 경우, 축산물에 비해 허가 품목이 부족하여 수의사

*Correspondence to: Misuk Kim, Sanitary team, Gyeongsangnam-do Institute of Health and Environment, Jinju 52732, Korea
Tel: +82-55-254-2282, Fax: +82-55-254-2279
E-mail: sehaya@korea.kr

Copyright © The Korean Society of Food Hygiene and Safety. All rights reserved. The Journal of Food Hygiene and Safety is an Open-Access journal distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License(http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0) which permits unrestricted non-commercial use, distribution,and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

의 임의 처방에 의존하여 수산생물에 사용되는 경우가 빈번하고, 수입 수산물이 증가함에 따라 안전성이 입증되지 않은 동물용의약품에 대한 관리가 필요했다[13,14].

이에 따라 2024년부터 어류를 포함한 축·수산물의 동물용의약품에 대해 허용물질목록 관리제도(Positive List System, PLS)가 도입되었다. PLS는 잔류허용기준이 설정되지 않은 물질에 대해 불검출 수준인 일률기준(0.01 mg/kg 이하)을 적용하는 제도로, 안전성이 검증된 동물용의약품만을 안전기준에 맞게 사용하도록 규정하여 축·수산물의 안전관리를 강화하였다[15].

사용 기준에 대한 관리 강화와 더불어 축·수산물 중 기준·규격 또는 분석 시험법이 확립되지 않은 동물용의약품의 관리를 위하여 liquid chromatograph mass spectrometry (LC-MS/MS) 기반의 동시 다성분 분석법을 도입하여, 157종의 동물용의약품을 동시에 분석할 수 있는 효율적인 관리 체계를 구축하였다[15]. 이와 같이 PLS 도입은 잔류물질 관리 체계를 강화하는 전환점이 되었으며, PLS의 효과적인 시행을 위해 제도 도입 후 초기 데이터를 분석하고, PLS 전후의 변화를 확인함으로써 제도 도입의 효과를 평가하는 것이 필요하다.

따라서 본 연구는 경상남도 지역에서 PLS 시행 후(2024년) 유통되는 양식 어류의 동물용의약품 잔류 실태를 조사하고, 노출량 산출 및 위해성 평가를 수행하였다. 또한 PLS 시행 전(2023년)과의 잔류 수준 변화를 분석하여 제도 초기 단계에서 나타난 개선 사항을 도출하고자 하였다.

Materials and Methods

대상 시료

2024년 1월부터 11월까지 경상남도 수산물 유사도매시장에서 유통되는 양식 어류 116건을 분석시료로 사용하였다. 대상 어류는 해수어와 담수어로 구분하였으며, 해수어는 넙치 19건, 돔류 18건, 조피볼락 14건, 강도다리 12건, 숭어 11건, 농어 10건, 기타 어종으로 고등어, 가자미 등 10건이 포함되었고, 담수어는 미꾸라지 11건과 뱀장어 11건이 포함되었다(Table 1). 이들 시료는 우리나라 주요 양식 품종을 기준으로 선정하였으며[16], 총 128종 142항목의 동물용의약품을 대상으로 검사하였다.

PLS 시행 전인 2023년 시료는 총 125건으로, 주요 어종으로는 넙치, 조피볼락, 돔류가 포함되었으며, 뱀장어 1건을 제외하면 모두 해수어였다[17].

시료는 「식품의 기준 및 규격」 8.1 일반사항에 따라 가식부위를 채취하고, 이를 분쇄하여 균질화하였다[15]. 균질화한 시료는 20 g 단위로 소분하여 밀봉한 후, 분석 전까지 -20°C에서 냉동 보관하였다.

Table 1. The number of cultivated fish collected by species in the markets of Gyeongsangnam-do

Groups	Species
Saltwater fish	Flatfish (19) Sea bream (18) Rockfish (14) Flounder (12) Mullet (11) Sea bass (10) Others (10)
Freshwater fish	Loach (11) Eel (11)
Total	116

표준품 및 시약

분석에 사용된 표준품은 Chiron (Trondheim, Norway)의 혼합 표준품(100 mg/L)을 사용하였으며, 부적합 판정을 위한 재시험에는 Sigma-Aldrich (St. Louis, MO, USA), Dr. Ehrenstofer (Augsburg, Germany)의 단품 표준품을 사용하였다.

시료의 전처리 과정에 사용된 아세토니트릴, 메탄올, 헥산은 Merck (Darmstadt, Germany)에서 공급된 제품을 사용하였으며, C_{18} 분말은 Chromatific (Nastätten, Germany) 제품을 사용하였다. 기기분석용 이동상 용매로는 HPLC 등급 이상의 아세토니트릴과 물(Merck), 개미산(Sigma-Aldrich)이 사용되었다.

시험용액 및 표준용액의 조제

시료 전처리는 「식품의 기준 및 규격」 8.3.1. 축·수산물 중 동물용의약품 동시 다성분 시험법을 기준으로 수행하였다[15]. 균질화한 시료 2 g에 물:아세토니트릴(1:4, v/v) 혼합용액 10 mL를 첨가하고, 5분간 진탕한 후 4°C에서 4,800 × g로 10분간 원심분리하였다. 상층액을 취하여 C_{18} 분말 500 mg과 아세토니트릴 포화 헥산 10 mL를 추가하고, 1분간 진탕한 후 4°C에서 4,800 × g로 5분간 원심분리하였다. 분말을 제외한 하층액 중 5 mL을 취하여 40°C 이하에서 질소로 농축하였다. 잔여물에 물:메탄올(1:1, v/v) 혼합용액 1 mL을 첨가하여 녹인 후, 0.2 μm 멤브레인필터(SEPARA vial filters, PTFE, GVS, Bologna, Italy)로 여과하여 이를 시험용액으로 하였다.

표준용액은 매트릭스 효과(matrix effect)를 보정하기 위해 음성시료 2 g에 표준액을 첨가한 후, 시험용액과 동일한 방법으로 전처리하여 조직표준곡선(tissue standard curve)을 작성하였다.

기기 및 분석조건

동물용의약품 분석에는 Waters의 LC-MS/MS (XeVO TQ-S, MA, USA)를 사용하였고, 분석조건은 Table 2와 같다. 128종 142항목에 대한 multiple reaction monitoring (MRM) 조건은 「식품의 기준 및 규격」 8.3.1. 축·수산물 중 동물용의약품 동시 다성분 시험법[15]을 따랐다.

Table 2. Analytical conditions of LC-MS/MS for veterinary drugs

Instrument	LC: Acquity UPLC (Waters, MA, USA) MS/MS: XeVO TQ-S (Waters, MA, USA)		
LC conditions			
Column	ACQUITY UPLC BEH C_{18} (2.1×100 mm, 1.7 μm)		
Column temp.	40°C		
Flow rate	0.3 mL/min		
Injection volume	2 μL		
Mobile phase	A: 0.1% formic acid in water B: 0.1% formic acid in acetonitrile		
Mobile phase gradient	Time (min)	Mobile phase	
		A (%)	B (%)
	0.0	95	5
	0.5	95	5
	5.5	60	40
	6.0	0	100
	10.0	0	100
	10.2	95	5
	12.0	95	5
MS/MS conditions			
Ionization mode	ESI (Positive, Negative)		
Capillary voltage	3.5 kV (Positive), 3.0 kV (Negative)		
Source temp.	150°C		
Desolvation temp.	450°C		
Desolvation gas flow	800 L/hr		
Cone gas flow	150 L/hr		

시험법의 유효성 검증

시험법의 유효성 검증은 CODEX 가이드라인(CAC/GL 71-2009)[18]을 기준으로 수행되었으며, 128종 142항목에 대해 직선성, 검출한계, 정량한계를 평가하였다.

직선성은 검증농도인 MRL의 0.5배, 1배 및 2배(금지물질의 경우, LOQ의 1배, 2배 및 10배) 수준의 농도를 포함한 6포인트 이상의 검량선을 작성하여 결정계수(coefficient of determination, R^2)를 확인하였다. 검출한계와 정량한계는 검량선 작성 후 일정한 농도의 표준물질을 7회 반복 분석하여 얻은 표준편차와 기울기를 바탕으로 아래 식으로 구하였다[19]. 검증에 사용된 음성시료는 어류의 대표 품종인 넙치로 수행하였다.

$$LOD=3.3\times\sigma/S$$
$$LOQ=10\times\sigma/S$$

σ: The standard deviation of response
S: The slope of the calibration curve

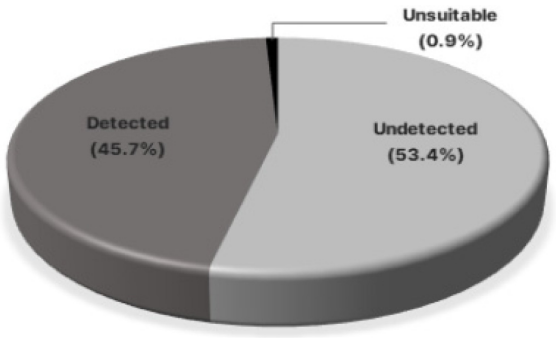

Fig. 1. Detection ratio of veterinary drugs in total fish samples.

Results and Discussion

유효성 검증 결과

동물용의약품 128종 142항목의 유효성 검증 결과는 Appendix 1에 나타내었다. 모든 항목에서 결정계수(R^2)가 CODEX 기준인 0.98 이상으로 확인되었다. 검출한계는 0.00004-0.0020 mg/kg, 정량한계는 0.0001-0.0050 mg/kg으로, 설파세타마이드를 제외한 모든 항목이 「식품의 기준 및 규격」에서 제시한 정량한계 이하로 확인되었다[15].

동물용의약품 잔류실태 및 PLS 도입에 따른 변화

2024년 경상남도 내에서 유통되는 양식 어류 116건에 대해 동물용의약품 잔류실태를 조사한 결과, 총 54건의 시료에서 동물용의약품이 검출되어 검출률은 46.6%로 나타났다(Fig. 1). 이 중 넙치 1건에서 옥시테트라사이클린이 0.4 mg/kg으로 검출되어, 이는 잔류허용기준인 0.2 mg/kg을 초과함에 따라 부적합으로 판정되었다. 이에 따라 전체 부적합률은 0.9%로 확인되었다.

PLS 도입 이전인 2023년의 연구 결과[17]와 비교했을 때, 검출률은 2023년 49.6%에서 2024년 46.6%로 큰 차이가 없었다. 그러나 부적합률은 2023년 2.4%에서 2024년 0.9%로 감소하였다. 2023년에는 넙치에서 아목시실린 1건과 조피볼락에서 트리메토프림 2건이 부적합으로 확인되었으며, 2024년에는 넙치에서 옥시테트라사이클린 1건이 부적합으로 나타났다.

한편, PLS 시행 전인 서울, 인천, 충남에서의 이전 연구[20-22]에서 보고된 검출률(7.3-40.5%)과 비교할 때, 본 연구(46.6%)와 Han 등[17]의 연구는 상대적으로 높은 검출률을 보였다. 이는 지역별 유통되는 어류의 생산지, 유통 경로 및 어종 구성 차이에 기인한 것으로 해석된다. 타지역 연구 결과의 부적합률은 0.5-4.0%로, 2023년과 2024년의 결과와 유사한 수준을 보였다.

어종별 잔류동물용의약품 검출 빈도

본 연구의 어종별 잔류동물용의약품 검출 빈도는 Fig. 2

에 제시하였다. 조사 결과, 담수어인 미꾸라지에서 잔류동물용의약품이 11건 중 9건(81.8%)이 검출되어 가장 높은 검출률을 보였으며, 해수어 중에서는 조피볼락이 14건 중 11건(78.6%)으로 검출률이 가장 높았다. 이러한 결과는 식품의약품안전평가원의 '수산물 중 잔류물질 실태조사 결과(2020)'와 유사한 경향을 보였다[23]. 해당 조사에서는 미꾸라지가 68.3%, 조피볼락이 47.4%로, 담수어 및 해수어 중에서 각각 가장 높은 검출률을 보였다. 이 두 어종은 서울[15], Han 등[17], Jang 등(인천)[21], Lee 등(충남)[22] 연구에서도 MRL을 초과하여 부적합 판정을 받은 사례가 확인되어, 해당 어종에 대한 정기적인 모니터링과 강화된 안전관리가 필요함을 시사한다.

다음으로 넙치는 19건 중 13건(68.4%)에서 검출되었으며, 이 중 1건은 잔류허용기준(MRL)을 초과하여 부적합으로 판정되었다. 강도다리는 12건 중 6건(50.0%), 농어는 10건 중 4건(40.0%), 뱀장어는 11건 중 4건(36.4%), 돔류는 18건 중 5건(27.8%), 숭어는 11건 중 2건(18.2%)에서 각각 검출되었으며, 기타 어종 10건에서는 모두 검출되지 않았다.

PLS 도입 이전인 2023년의 어종별 분석 결과[17]에 따르면, 검출률은 조피볼락(81.5%), 농어(66.7%), 숭어(57.1%), 넙치(51.5%), 돔류(25.0%), 강도다리(22.2%) 순으로 높았다(Fig. 2B). 2023년과 마찬가지로 조피볼락은 해수어 중 가장 높은 검출률을 보였으나, 다른 어종의 검출 경향은 차이를 보였다. 농어와 숭어의 검출률은 각각 2023년 66.7%와 57.1%에서 2024년 40.0%와 18.2%로 감소한 반면, 넙치와 강도다리의 검출률은 2023년 51.5%와 22.2%에서 2024년 68.4%와 50.0%로 증가하였다(Fig. 2A, B).

일부 어종에서 검출률의 차이를 보였으나 카이제곱 검정(chi-squared test) 및 피셔 정확 검정(Fisher's exact test)으로 통계적 유의성을 확인한 결과, 모든 어종에서 P값이 0.05 이상으로 나타나 2023년과 2024년 어종별 결과 간의 유의미한 차이가 확인되지 않았다.

물질별 잔류동물용의약품 검출 빈도

본 연구에서는 동물용의약품 142항목 중 10개 항목이 총 76회 검출되었으며, 각 항목별 검출 빈도는 Fig. 3에 나타내었다. 가장 많이 검출된 항목은 옥시테트라사이클린으로, 전체 검사건수 116건 중 26회(22.4%)가 검출되었고, 엔로플록사신은 23회(19.8%)가 검출되어 두 번째로 높은 검출 빈도를 보였다. 2023년 연구[17]에서는 옥시테트라사이클린이 35.2%, 엔로플록사신이 20.0%의 검출률을 보여, 본 연구와 유사한 경향을 나타냈다(Fig. 3B). 다만, 옥시테트라사이클린의 검출률은 2023년 35.2%에서 2024년 22.4%로 감소한 것으로 나타났다.

옥시테트라사이클린은 테트라사이클린계 항생제로, 세균의 리보솜에서 단백질 합성을 억제하여 광범위한 항균 작용을 발휘한다[24,25]. 이는 참돔, 넙치 등 다양한 양식 어종의 세균성 질병의 예방과 치료에 널리 사용되고 있다[26,27].

엔로플록사신의 경우, 과거 동일 계열인 노르플록사신, 오플록사신, 페플록사신, 시프로플록사신의 사용이 금지된 이후 대체제로 양식 현장에서 빈번히 사용되고 있다[28,29]. 또한, 엔로플록사신은 80-90일의 긴 휴약기간을 가지고 있어, 어류 조직 내 잔류 가능성이 다른 항생제보다 높을 수 있다[27]. 이러한 특성들이 옥시테트라사이클린과 엔로플록사신의 높은 검출률에 영향을 미쳤을 가능성이 있다.

옥시테트라사이클린과 엔로플록사신은 이전 연구[20,21,23]에서도 높은 검출률을 보였으며, 이는 이들 약물에 대한 엄격한 관리와 규제의 필요성을 시사한다. 그러나 검출률이 사용량이나 휴약기간과 반드시 비례하는 것은 아니며, 어종의 특성, 약물의 체내 배출 시간, 수온, 양식 밀도 등 다양한 요인이 영향을 미칠 수 있다[30-32]. 따라서 이를 규명하기 위한 추가 연구가 필요하다.

이어서 트리메토프림이 10회(8.6%), 엔로플록사신의 분해물질인 시프로플록사신이 7회(6.0%), 설파디아진이 5회(4.3%) 검출되었고, 설파구아니딘, 설파메톡사졸, 플루메퀸, 플로르

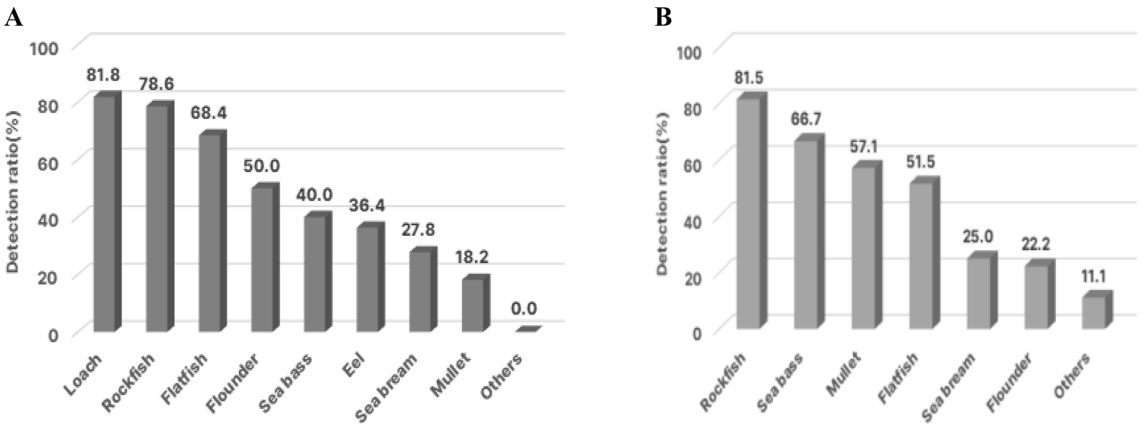

Fig. 2. Detection ratio of veterinary drugs by species of the sample in 2024 (A) and 2023 (B).
*There was no statistically significant difference between these years.

페니콜, 플로르페니콜 아민은 각각 1회씩(0.9%) 검출되었다.

두 연도의 동물용의약품 검출 빈도의 통계적 유의성 확인을 위하여 카이제곱 검정(chi-squared test) 및 피셔 정확검정(Fisher's exact test)을 진행하였다. 옥시테트라사이클린을 제외한 모든 항목에서 P값이 0.05 이상으로 나타나 전체적으로 두 연도의 결과가 유의미한 차이를 보이지 않

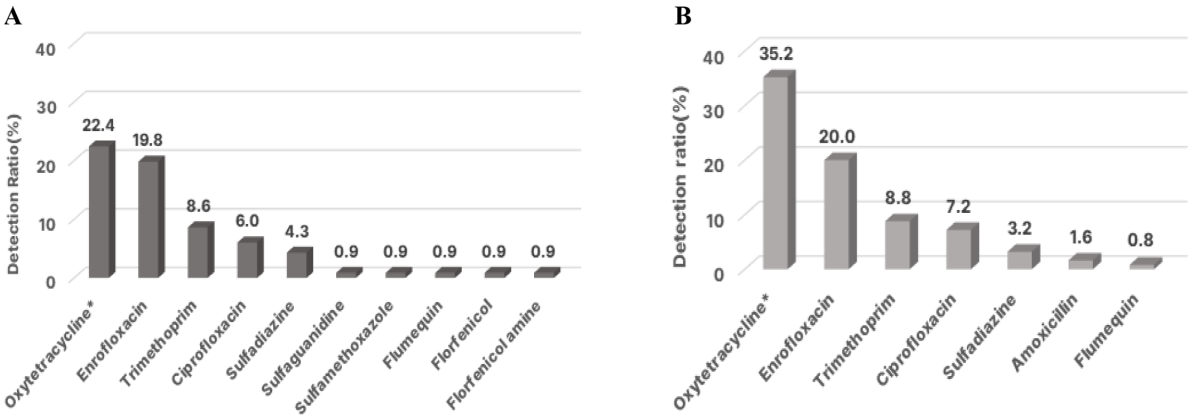

Fig. 3. Detection ratio of veterinary drugs according to compounds in 2024 (A) and 2023 (B).
*P<0.05.

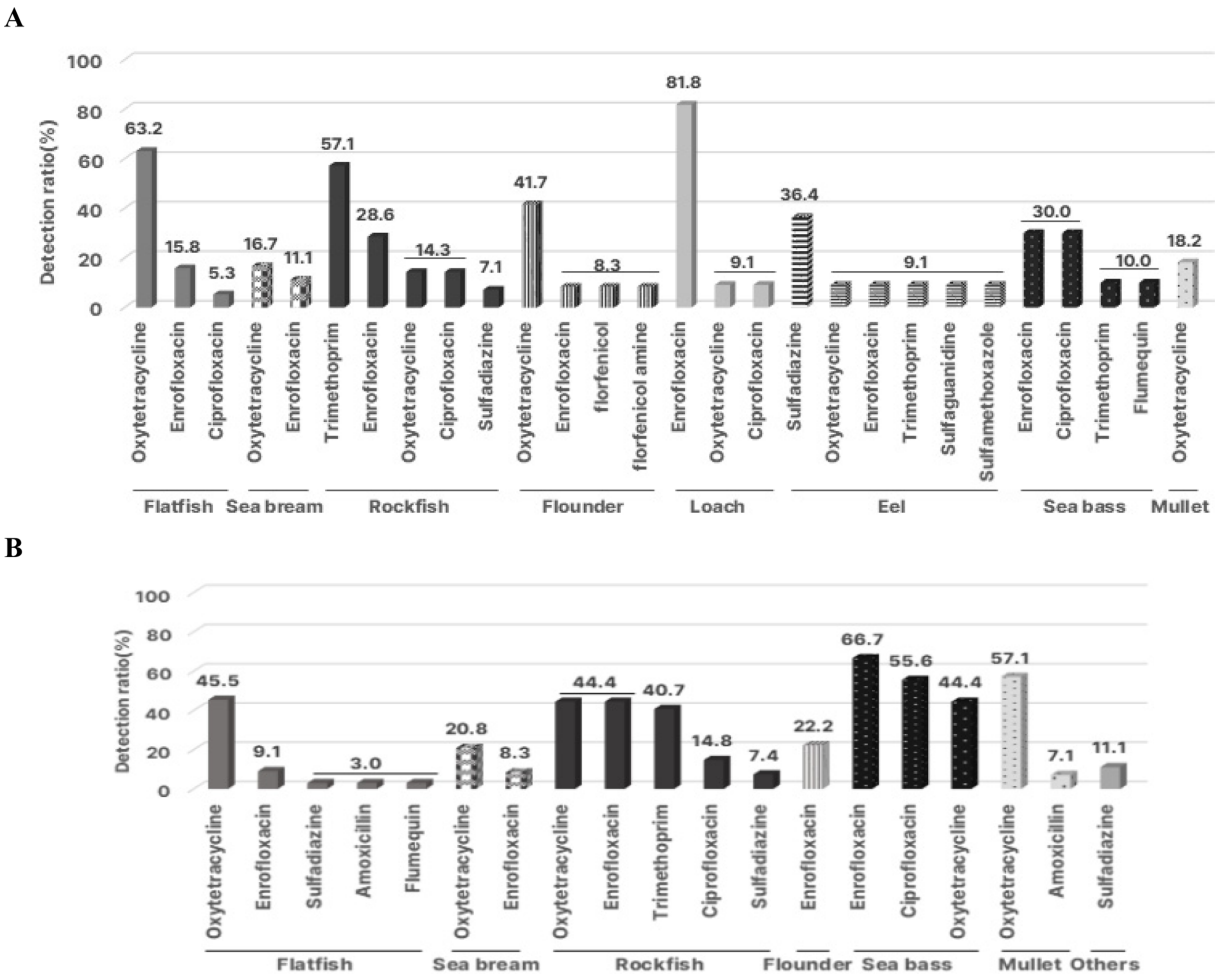

Fig. 4. Percentage of veterinary drugs detected in each fish sample in 2024 (A) and 2023 (B).
*There was no statistically significant difference between these years.

는다고 해석된다. 옥시테트라사이클린의 경우 P값이 0.05 미만으로 두 연도 간 유의미한 차이가 있다고 볼 수 있으나, 2023년과 2024년의 검사어종에 차이가 있으므로 PLS의 효과를 판단하기 위해서는 추가적인 모니터링이 필요할 것으로 보인다.

어종 및 물질별 동물용의약품 잔류 범위와 검출 빈도

어종별로 검출된 동물용의약품의 잔류 범위와 검출 빈도를 Fig. 4와 Table 3에 제시하였다. 본 연구에서는 옥시테트라사이클린과 엔로플록사신이 각각 7가지 어종에서 검출되어 다양한 어종에서 광범위하게 사용되고 있음을 확인할 수 있었다. 특히, 미꾸라지의 경우 11건 중 9건(81.8%)에서 엔로플록사신이 검출되어 전체 어종 중 가장 높은 검출률을 보였다. 이러한 높은 검출률은 Lee 등[20]의 선행 연구에서도 보고된 바 있으며, 미꾸라지에 적용되는 휴약기간의 부재가 원인일 것으로 추정된다. 높은 검출률과 달리 미꾸라지에서 엔로플록사신의 검출농도는 최대 0.03 mg/kg로, 0.1 mg/kg의 MRL에 비해 낮은 수준으로 나타났다. 그러나 미꾸라지에서 엔로플록사신의 분해속도가 느리다는 기존 연구 결과[22]를 고려할 때, 미꾸라지에 해당 약물의 안전한 사용을 위하여 적절한 휴약기간 설정이 필요할 것으로 보인다[23].

그 다음으로 넙치에서는 옥시테트라사이클린이 12건 검출되어 63.2%의 검출률을 보였으며, 검출농도는 부적합 1건을 제외하면 최대 0.06 mg/kg 수준으로 나타났다. 이어서 엔로플록사신이 3건(15.8%), 시프로플록사신이 1건(5.3%) 검출되었다. 전년도 조사[17]에서는 넙치에서 옥시테트라사이클린의 검출률이 45.5%로, 본 연구 결과보다 낮았으며, 모든 검출 건은 기준치 이내였다.

조피볼락에서는 트리메토프림이 8건(57.1%) 검출되어 가장 높은 검출률을 보였다. 그 다음으로 엔로플록사신이 4건(28.6%) 검출되었고, 시프로플록사신과 옥시테트라사이클린은 각각 2건(14.3%), 설파디아진은 1건(7.1%)이 검출되었다.

트리메토프림은 주로 조피볼락의 연쇄구균증과 비브리

Table 3. The residue range (mg/kg) and the number of samples in which each veterinary drug was detected for each fish species in 2024

Veterinary drugs	MRL (mg/kg)	Residue range (mg/kg) (No. of detected samples)								
		Flat fish	Sea bream	Rock fish	Flounder	Loach	Eel	Mullet	Sea bass	Total
Oxytetracycline	0.2[a]	0.00-0.45 (12)	0.00-0.01 (3)	0.00-0.01 (2)	0.00-0.01 (5)	0.01 (1)	0.01 (1)	0.00-0.01 (2)	N.D.* (0)	(26)
Enrofloxacin	0.1[b]	0.00-0.09 (3)	0.00-0.00 (2)	0.00-0.02 (4)	0.00 (1)	0.00-0.03 (9)	0.00 (1)	N.D. (0)	0.00-0.07 (3)	(23)
Ciprofloxacin		0.01 (1)	N.D. (0)	0.00-0.00 (2)	N.D. (0)	0.00 (1)	N.D. (0)	N.D. (0)	0.00-0.01 (3)	(7)
Trimethoprim	0.05	N.D. (0)	N.D. (0)	0.001-0.037 (8)	N.D. (0)	N.D. (0)	0.002 (1)	N.D. (0)	0.004 (1)	(10)
Sulfadiazine	0.1[c]	N.D. (0)	N.D. (0)	0.00 (1)	N.D. (0)	N.D. (0)	0.00-0.11 (4)	N.D. (0)	N.D. (0)	(5)
Sulfaguanidine		N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	0.00 (1)	N.D. (0)	N.D. (0)	(1)
Sulfamethoxazole		N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	0.02 (1)	N.D. (0)	N.D. (0)	(1)
Flumequin	0.5	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	0.00 (1)	(1)
Florfenicol	0.2[d]	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	0.15 (1)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	(1)
Florfenicol amine		N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	0.03 (1)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	N.D. (0)	(1)

*N.D.: Not detected.
[a] Sum of oxytetracycline, chlortetracycline and tetracycline.
[b] Sum of enrofloxacin and ciprofloxacin.
[c] Sum of sulfonamides.
[d] Sum of florfenicol and florfenicol amine.

오병 치료에 사용되며, 주로 설파디아진과 합제로 사용된다[27]. 본 연구 결과, 트리메토프림이 검출된 조피볼락 1건에서 설파디아진이 함께 검출되었으며, 나머지 7건에서는 트리메토프림만 검출되었다. 이러한 결과는 조피볼락에서 트리메토프림의 잔류성이 설파디아진보다 높은 것으로 추정된다[23].

Han 등[17]의 연구에서는 트리메토프림은 조피볼락에서만 검출되었으며, 총 27건 중 11건(40.7%)에서 검출되었고, 그 중 2건은 최대허용기준인 0.05 mg/kg을 초과한 0.08 mg/kg과 0.13 mg/kg으로 검출되었다. 2024년 연구에서 트리메토프림의 검출률은 증가하였으나, 잔류수준은 0.001-0.037 mg/kg으로 전년도에 비해 상대적으로 낮았다. 이는 2024년 트리메토프림의 휴약기간이 30일에서 45일로 연장되어, 약품의 잔류 수준이 감소한 것으로 해석된다[33]. 그러나 전년도 연구 등[17,23]에서 해당 약물이 기준치를 초과한 사례가 있으므로 지속적인 모니터링이 필요할 것으로 보인다.

강도다리에서는 옥시테트라사이클린이 5건(41.7%)으로 가장 많이 검출되었고, 뱀장어에서는 설파디아진이 36.4%의 검출률을 보였다. 전년도에 넙치 1건에서 아목시실린이 기준치를 초과하였으나[17], 본 연구에서는 아목시실린이 검출되지 않았다. 또한 전년도와 달리 본 연구에서는 다빈도 검출 항목인 플로르페니콜과 플로르페니콜 아민을 추가로 검사한 결과, 강도다리에서 0.17 mg/kg 수준으로 검출되었다.

MRL 대비 검출수준 및 PLS 효과 평가

PLS 도입 효과를 평가하기 위해 2023년[17]과 2024년의 검출률 및 부적합률을 비교한 결과, 검출률은 49.6%에서 46.6%로, 부적합률은 2.4%에서 0.9%로 감소했다. 그러나 검출률과 부적합률은 단순히 검출 여부를 나타내는 정성적 지표에 해당하므로, 각 검출 농도를 MRL과 비교하여 정량적 수준을 확인하였다.

MRL 대비 전체 검출 농도의 평균은 2023년 14.1%에서 2024년 14.2%로 유사하였으나, 트리메토프림, 플루메퀸, 아목시실린을 제외한 대부분의 항목에서 평균 검출 농도가 전년도에 비해 증가하였다(Fig. 5).

PLS 도입 전후인 2023년과 2024년의 조사에서 검출된 모든 약물은 MRL이 설정된 물질이었으며, MRL이 설정되지 않은 물질은 검출되지 않았다. 다만 일부 약물에서 MRL 대비 잔류 수준이 증가한 경향이 있어, 약물 사용량과 잔류물 관리 개선이 필요하다. 특히 미꾸라지에서 높은 검출률을 보인 엔로플록사신과 같이 어종별로 특정 약물의 잔류성이 강한 것으로 추정되므로, 각 어종의 특성에 맞는 휴약기간 등의 명확한 관리 지침이 마련되어야 할 것이다. 또한 이 연구는 경남 지역에서 유통되는 일부 어류만을 대상으로 수행되었으므로, PLS 도입 효과를 정확하게 평가하기 위해서는 다양한 어종을 포함한 지속적인 모니터링이 필요하다.

잔류실태조사를 통한 위해도 평가

본 연구 결과, 전체 시료에 대한 검출률은 46.6%로, 특히 미꾸라지와 조피볼락에서 높은 검출률이 관찰되었다. 하지만 검출률만으로 식품의 안전성을 판단하기는 어려우므로, 실제 인체에 미치는 위해성을 평가하기 위해 일일추정섭취량(estimated daily intake, EDI)을 산출하였다[34].

각 어종별 1인 1일당 평균섭취량과 국민 평균 체중은

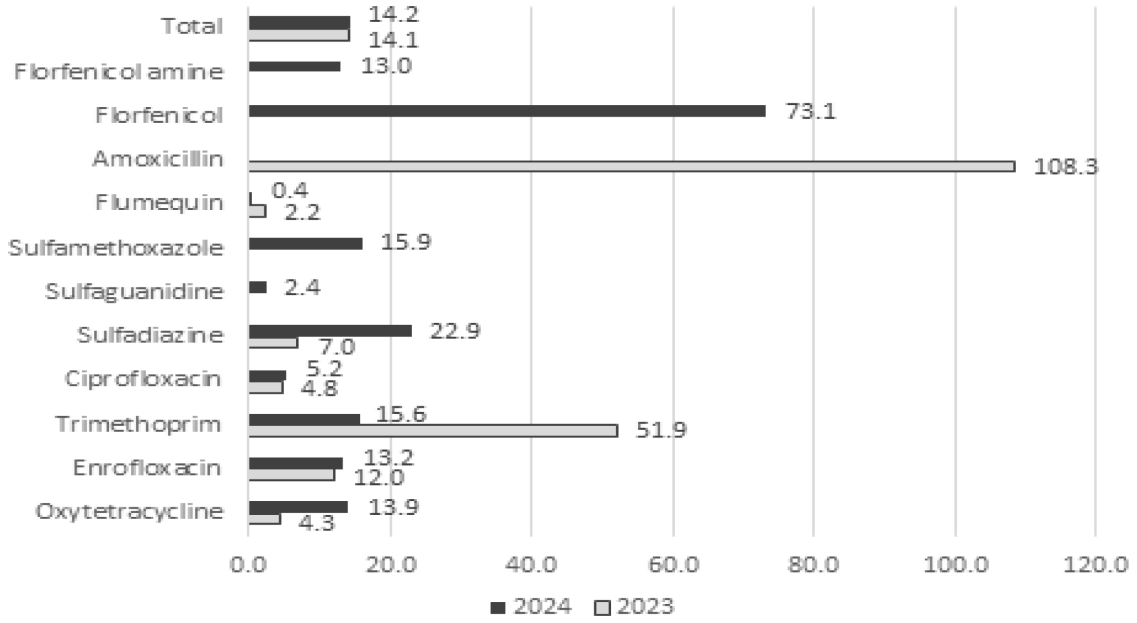

Fig. 5. The mean residue levels (%) of each detected veterinary drug compared to its MRL in 2023 and 2024.

Table 4. Evaluation of human exposure and risk of veterinary drugs in 2024

Veterinary drugs	Species	Daily food intake (g/person/day)	Average residue result (mg/kg)	EDI[a] (mg/kg bw/day)	ADI[b] (mg/kg bw/day)	Risk level[c] (%)
Oxytetracycline	Flatfish	0.64	0.0541	0.000000554	0.03	0.0031777
	Sea bream	0.52	0.0040	0.000000033		
	Rockfish	0.59	0.0074	0.000000070		
	Flounder	0.16	0.0044	0.000000011		
	Loach	1.04	0.0096	0.000000160		
	Eel	1.28	0.0058	0.000000119		
	Mullet	0.10	0.0040	0.000000006		
	Total			0.000000953		
Enrofloxacin	Flatfish	0.64	0.0369	0.000000378	0.002	0.0334600
	Sea bream	0.52	0.0019	0.000000016		
	Rockfish	0.59	0.0053	0.000000050		
	Flounder	0.16	0.0013	0.000000003		
	Loach	1.04	0.0089	0.000000148		
	Eel	1.28	0.0025	0.000000051		
	Sea bass	0.05	0.0286	0.000000023		
	Total			0.000000669		
Trimethoprim	Rockfish	0.59	0.0090	0.000000085	0.0042	0.0029806
	Eel	1.28	0.0018	0.000000037		
	Sea bass	0.05	0.0042	0.000000003		
	Total			0.000000125		
Ciprofloxacin	Flatfish	0.64	0.0091	0.000000093	0.002	0.0083568
	Rockfish	0.59	0.0027	0.000000025		
	Loach	1.04	0.0026	0.000000043		
	Sea bass	0.05	0.0065	0.000000005		
	Total			0.000000167		
Sulfadiazine	Rockfish	0.59	0.0012	0.000000011	0.02	0.0029546
	Eel	1.28	0.0283	0.000000580		
	Total			0.000000591		
Sulfamethoxazole	Eel	1.28	0.0159	0.000000326	0.05	0.0006513
Flumequin	Sea bass	0.05	0.0018	0.000000001	0.03	0.0000048
Florfenicol	Flounder	0.16	0.1462	0.000000374	0.003	0.0124757
Florfenicol amine	Flounder	0.16	0.0261	0.000000067	0.003	0.0022272

[a] Detected average concetration (mg/kg)×daily food intake (g/person/day)/62.5 (kg)/1,000.
[b] Acceptable daily intake (mg/kg bw/day).
[c] Risk level=%ADI=(EDI/ADI)×100.

2021년 국민영양통계를 참조하였으며[35,36], 일일허용섭취량(acceptable daily intake, ADI)은 World Health Organization (WHO), 농림축산검역본부 및 식품의약품안전평가원의 자료를 활용하였다[37-40]. 설파구아니딘의 ADI 값은 확인되지 않아 평가에서 제외하였다.

EDI는 각 항목의 평균 잔류농도에 1인 1일 평균섭취량을 곱한 후, 국민 평균 체중인 62.5 kg을 나누어 계산하였다. 그 다음 어종별 EDI값을 합산한 총 EDI 값을 ADI로 나누어 위해도를 평가하였으며, 위해도가 100% 이하일 경우 안전한 수준으로 간주하였다[41].

위해도 평가 결과, ADI 대비 위험도는 0.0000048%에서 0.0334600%로 모든 항목이 매우 안전한 수준으로 나타

났다(Table 4). 위해도가 가장 높은 항목은 엔로플록사신으로, ADI 값이 다른 항목에 비해 낮은 것이 영향을 끼쳤을 것으로 판단된다. 다만 수산물의 섭취량이 개인마다 차이가 있으며, 잔류하는 약물의 영향 또한 개인마다 다를 수 있으므로, 지속적인 잔류 실태 조사가 필요할 것이다.

국문요약

본 연구는 경상남도 내 유통되는 양식 어류 116건을 대상으로 PLS 도입 이후 동물용의약품 128종 142항목의 잔류 실태를 분석하고, PLS 도입 전후의 변화를 평가하였다. 경상남도 양식 어류 116건 중 54건(46.6%)에서 잔류동물용의약품이 검출되었으며, 이 중 넙치 1건에서 옥시테트라사이클린이 기준치를 초과하였다. PLS 도입 전인 2023년의 검출률(49.6%)과 2024년의 검출률(46.6%)은 유의미한 차이가 없었으나, 부적합률은 2023년 2.4%에서 2024년 0.9%로 감소했다. 어종별 잔류동물용의약품 검출 빈도는 미꾸라지(81.8%), 조피볼락(78.6%), 넙치(68.4%) 순으로 높았다. PLS 도입 전후 모두 조피볼락이 해수어 중 검출률이 가장 높았으며, PLS 도입 이후 넙치와 강도다리의 검출률이 증가한 반면, 농어와 숭어의 검출률은 감소했다. 물질별 검출 빈도는 옥시테트라사이클린(22.4%), 엔로플록사신(19.8%), 트리메토프림(8.6%) 순으로 높았으며, 2023년 연구에서도 유사한 경향을 보였다. 2024년에는 미꾸라지에서 엔로플록사신이 81.8%의 높은 검출률을 보였다. 넙치에서 옥시테트라사이클린의 검출률은 2023년 45.5%에서 2024년 63.2%로 증가했으며, 조피볼락에서 트리메토프림의 검출률은 40.7%에서 57.1%로 증가하였다. MRL 대비 검출 농도의 평균은 2023년 14.1%에서 2024년 14.2%로 유사한 수준이었고, 트리메토프림, 플루메퀸, 아목시실린을 제외한 대부분의 항목에서 MRL 대비 평균 검출농도가 증가했다. 위해성 평가 결과, 검출된 9항목에 대한 위해도는 0.0335% 이내로 매우 안전한 수준으로 평가되었다. 그러나 일부 어종에서 특정한 약물의 잔류성이 강하다고 추정되므로, 각 어종의 특성에 맞는 휴약기간 등의 명확한 관리 지침이 마련되어야 할 것이다. 또한 PLS 도입의 효과를 정확하게 평가하기 위해서는 지속적인 모니터링이 필요할 것으로 보인다.

Conflict of interests

The authors declare no potential conflict of interest.

ORCID

Wonhee Jung https://orcid.org/0000-0003-0002-6342
Yoonji Kim https://orcid.org/0000-0002-3780-9968
Jaeyoon Han https://orcid.org/0009-0007-9140-1190
Gyeonghwa Kim https://orcid.org/0009-0008-0125-8106
Seungjin Lee https://orcid.org/0009-0000-0999-5479
Hyejung Kim https://orcid.org/0009-0008-8280-7794
Misuk Kim https://orcid.org/0009-0001-5279-4549

References

1. Lee, H.D., Kim, D.Y., Current status and improvement of the fisheries supply and demand statistics. *J. Fish. Bus. Adm.*, **48**, 019-032 (2017).
2. Ministry of Oceans and Fisheries (MOF), (2024, November 1). Annual consumption of marine products per person in Korea (2022). Retrieved from https://www.index.go.kr/enara.
3. Food and Agriculture Organization of the United Nations (FAO), (2024, November 1). FAO report: global fisheries and aquaculture production reaches a new record high (2024). Retrieved from https://www.fao.org/newsroom/detail/fao-report-global-fisheries-and-aquaculture-production-reaches-a-new-record-high/en.
4. Ministry of Oceans and Fisheries (MOF), (2024, November 1). Fishery and aquaculture production (2023). Retrieved from https://www.index.go.kr/enara.
5. Carvalho, I.T., Santos, L., Antibiotics in the aquatic environments: a review of the european scenario. *Environ. Int.*, **94**, 736-757 (2016).
6. Teuber, M., Veterinary use and antibiotic resistance. *Curr. Opin. Microbiol.*, **4**, 493-499 (2001).
7. Kim, H.Y., Lee, I.S., Oh, J.E., Human and veterinary pharmaceuticals in the marine environment including fish farms in Korea. *Sci. Total Environ.*, **579**, 940-949 (2017).
8. Jung, S.C., 2003. The annual report of KFDA, Korea Food and Drug Administration (KFDA), Cheongju, Korea, pp. 1113-1114.
9. Son, S.W., 2008. Current status of safety management of animal drugs in Korea, APQA, Anyang, Korea, pp. 19-31.
10. Cole, D.W., Cole, R., Gaydos, S.J., Gray, J., Hyland, G., Jacques, M.L., Powell-Dunford, N., Sawhney, C., Au, W.W., Aquaculture: environmental, toxicological, and health issues. *Int. J. Hyg. Environ. Health*, **212**, 369-377 (2009).
11. Korea Disease Control and Prevention Agency (KDCA), 2022. Study on prevalence of antimicrobial resistant bacteria and genome analysis in human, livestock and environment, Seoul, Korea.
12. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation (NIFDS), 2023. Monitoring national antibiotic use and resistance in 2022, Cheongju, Korea.
13. National Fishery Products Quality Management Service, (2024, November 1). Request for proposal (study on residual acceptance and use of veterinary drugs for preparing PLS). Retrieved from https://sanhak.kmu.ac.kr/board/down.do?a_num=15553067&b_num=3646&f_num=1
14. Ministry of Oceans and Fisheries (MOF), (2024, November 1). Implementation of PLS for veterinary drug of livestock and fishery products. Retrieved from https://www.mof.go.kr/index.do.

15. Ministry of food and drug safty (MFDS), (2024, November 14). Guidelines on food safety. Retrieved from https://various.foodsafetykorea.go.kr/fsd/#/ext/Document/FC.
16. Ministry of food and drug safty (MFDS), 2024. Food safety management guidelines, Cheongju, Korea.
17. Han, J.Y., Jung, W.H., Lee, S.J., Park, J.I., Seok, Y.J., Kim, H.J., Kim, M.S., Ha, G.J., Monitoring of veterinary drug residues in cultivated fishery products distributed in gyeongsangnam-do. *Annual Report of G.N.I.H.E*, **19**, 14-15 (2024).
18. Codex Alimentarius, 2014. Guidelines for the design and implementation of national regulatory food safety assurance programme associated with the use of veterinary drugs in food producing animals (CAC/GL 71-2009), Roma, Italy.
19. International Council for Harmonisation (ICH), (2024, November 1). Validation of analytical procedures Q2(R2). Retrieved from https://www.ich.org/page/quality-guidelines.
20. Lee, I.S., Han, C.H., Chang, M.S., Kim, J.M., Yi, H.J., Park, S.K., Kim, M.S., Jung, K., Monitoring of veterinary drug residues in commercial fish by using LC-MS/MS in Seoul(II). *Report of S.I.H.E.*, **53**, 80-93 (2017).
21. Jang, J.S., Hur, M.J., Kim, M.H., Han, Y.S., Kwon, S.H., Yeo, E.Y., Hong, S.H., Kim, J.S., Lee, S.R., Monitoring of residual veterinary drugs in Incheon fishery products distribution. *J. Environ. Health Sci*., **44**, 444-451 (2018).
22. Lee, K.B., Kim, N.W., Kim, D.U., Shin, M.H., Lee, M.Y., Monitoring of veterinary drug residues in cultured fishery products in Chungcheongnam-do province. *J. Food Hyg. Saf.*, **35**, 447-451 (2020).
23. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation (NIFDS), 2020. Development of analytical methods and monitoring for veterinary drug residue in fishery products, Cheongju, Korea.
24. Chopra, I., Roberts, M., Tetracycline antibiotics: mode of action, applications, molecular biology, and epidemiology of bacterial resistance. *Microbiol. Mol. Biol. Rev.*, **65**, 232-260 (2001).
25. Choi, D.M., Jeong, J.Y., Chang, M.I., Im, M.H., Park, K.S., Hong, M.K., Determination of tetracycline antibiotics in food. *Anal. Sci. Tech.*, **18**, 250-256 (2005).
26. Jung, S.H., Choi, D.L., Kim, J.W., Jo, M.R., Seo, J.S., Jee, B.Y., Pharmaco-kinetics of oxytetracycline in olive flounder (Paralichthys olivaceus) by intramuscular injection. *J. Fish Pathol.*, **22**, 91-95 (2009).
27. Ministry of Oceans and Fisheries (MOF), 2024. Aquatic medicine catalog, Sejong, Korea.
28. Park, Y.A., Yuk, D.H., Kim, S.U., Kim, J.A., Park, A.S., Kim, Y.C., Kim, M.S., Analysis of residual fluoroquinolones contents in fish. *Korean J. Food Sci. Technol.*, **44**, 293-299 (2012).
29. Seo, J.S., Jeon, E.J., Lee, E.H., Jung, S.H., Park, M.A., Jee, B.Y., Kim, N.Y., The residues of enrofloxacin in cultured paralichthys olivaceus. *J. Fish. Pathol.,* **26**, 45-50 (2012).
30. Son, K.T., Jo, M.R., Oh, E.G., Mok, J.S., Kwon, J.Y., Lee, T.S., Song, K.C., Kim, P.H., Lee, H.J., Residues of ampicillin and amoxicillin in olive flounder paralichthys olivaceus following oral administration. *Kor. J. Fish. Aquat. Sci.*, **44**, 464-469 (2011).
31. He, X., Deng, M., Wang, Q., Yang, Y., Yang, Y., Nie, X., Residues and health risk assessment of quinolones and sulfoamides in cultured fish from Pearl River Delta, China. *Aquaculture*, **458**, 38-46 (2016).
32. Kang, H.S., Lee, S.B., Shin, D.S., Jeong, J.Y., Hong, J.H., Rhee, G.S., Occurrence of veterinary drug residue in farmed fishery products in south korea. *Food Control*, **85**, 57-65 (2018).
33. Ministry of Oceans and Fisheries (MOF), (2024, November 1). Announcement of reevaluation results of fishery drugs in 2023. Retrieved from https://www.nfqs.go.kr/apms/index.ad.
34. Ministry of Food and Drug Safty (MFDS), 2015. Guideline for risk assessment report, Cheongju, Korea.
35. Korea Health Industry Development Institute (KHIDI), (2024, November 1). The amount of intake by food (2021). Retrieved from https://www.khidi.or.kr/nutristat.
36. Korea Health Industry Development Institute (KHIDI), (2024, November 1). The national average weight (2021). Retrieved from https://www.khidi.or.kr/nutristat.
37. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation (NIFDS), 2014. Exposure assessment and monitoring on residues of veterinary drugs in fishery products, Cheongju, Korea.
38. National Institute of Food and Drug Safety Evaluation (NIFDS), 2018. The determination of veterinary drug residues and development of analytical methods from domestic fishery products in 2018, Cheongju, Korea.
39. World Health Organization (WHO), (2024, November 1). Evaluations of the joint FAO/WHO expert committee on food additives (JECFA). Retrieved from https://apps.who.int/food-additives-contaminants-jecfa-database/
40. Animal and Plant Quarantine Agency, (2024, November 1). Hazard profile. Retrieved from https://www.qia.go.kr.
41. Ministry of food and drug safty (MFDS), 2017. Principles for setting standards for food, Cheongju, Korea.

Appendix 1. Validation parameter of the analytical methodologies for veterinary drugs

No.	Veterinary drugs	Coefficient of determination, R^2	LOD[a] (mg/kg)	LOQ[b] (mg/kg)
1	2-Amino flubendazole	0.9996	0.0004	0.0012
2	2-Aminoalbendazole sulfone	1.0000	0.0003	0.0009
3	5-Hydroxy mebendazole	0.9949	0.0003	0.0009
4	5-Hydroxy thiabendazole	0.9995	0.0011	0.0033
5	Acetanilide	0.9978	0.0017	0.0050
6	Acriflavine	0.9984	0.0011	0.0033
7	Albendazole	0.9998	0.0005	0.0016
8	Albendazole sulfone	0.9996	0.0002	0.0007
9	Albendazole sulfoxide	0.9996	0.0002	0.0006
10	Amoxicillin	0.9945	0.0015	0.0046
11	Ampicillin	0.9983	0.0008	0.0025
12	Antipyrine	0.9998	0.0010	0.0030
13	Azaperol	0.9999	0.0008	0.0023
14	Azaperone	0.9988	0.0009	0.0027
15	Benzylpenicillin	0.9999	0.0010	0.0032
16	Berberine	0.9998	0.0005	0.0016
17	Bithionol	0.9973	0.0003	0.0010
18	Carazolol	0.9996	0.0005	0.0016
19	Carbadox	0.9992	0.0006	0.0019
20	Carbendazim	1.0000	0.0007	0.0020
21	Cefadroxil	0.9954	0.0015	0.0047
22	Cefalexin	0.9999	0.0010	0.0030
23	Cefazolin	0.9972	0.0013	0.0038
24	Cefoperazone	0.9988	0.0007	0.0023
25	Chlortetracycline	0.9923	0.0010	0.0030
26	Ciprofloxacin	0.9982	0.0005	0.0016
27	Clindamycin	0.9999	0.00004	0.0001
28	Clopidol	0.9994	0.0009	0.0028
29	Clorsulon	0.9999	0.0004	0.0014
30	Closantel	0.9955	0.0007	0.0020
31	Cloxacillin	0.9997	0.0012	0.0037
32	Coumaphos	0.9992	0.0008	0.0025
33	Cyproheptadine	0.9963	0.0009	0.0028
34	Danofloxacin	0.9987	0.0011	0.0032
35	Dapsone	0.9999	0.0001	0.0003
36	Derquantel	1.0000	0.0009	0.0028
37	Diaveridine	0.9998	0.0008	0.0023
38	Diclazuril	0.9990	0.0008	0.0024
39	Dicloxacillin	0.9984	0.0012	0.0035
40	Diethylcarbamazine	0.9985	0.0009	0.0029
41	Difloxacin	0.9993	0.0001	0.0002
42	Dimetridazole	0.9990	0.0002	0.0005

Appendix 1. (Continued) Validation parameter of the analytical methodologies for veterinary drugs

No.	Veterinary drugs	Coefficient of determination, R^2	LOD[a)] (mg/kg)	LOQ[b)] (mg/kg)
43	Diphenhydramine	0.9989	0.0002	0.0006
44	DL-methylephedrine HCl	0.9997	0.0004	0.0011
45	Doxycycline	0.9998	0.0003	0.0010
46	Emamectin benzoate	0.9967	0.0005	0.0014
47	Enrofloxacin	0.9996	0.0003	0.0010
48	Erythromycin	0.9999	0.0003	0.0010
49	Ethophabate	0.9997	0.0004	0.0013
50	Febantel	0.9999	0.00004	0.0001
51	Fenbendazole	0.9997	0.00005	0.0001
52	Fenobucarb	0.9990	0.0003	0.0008
53	Florfenicol	0.9984	0.0028	0.0084
54	Florfenicol amine	0.9989	0.0012	0.0037
55	Fluazuron	0.9987	0.0013	0.004
56	Flubendazole	0.9999	0.00004	0.0001
57	Flumequin	0.9993	0.0001	0.0002
58	Flunixin	0.9998	0.00004	0.0001
59	Halofuginone	0.9968	0.0009	0.0027
60	HMMNI	0.9995	0.0002	0.0007
61	Josamycin	0.9942	0.0001	0.0003
62	Ketoprofen	0.9982	0.0012	0.0038
63	Keto-triclabendazole	0.9995	0.0003	0.0010
64	Kitasamycin	0.9998	0.0003	0.0010
65	Levamisole	0.9982	0.0004	0.0012
66	Lincomycin	0.9998	0.0003	0.0010
67	Loperamide	0.9964	0.00005	0.0001
68	Marbofloxacin	0.9995	0.0005	0.0016
69	Mebendazole	1.0000	0.0001	0.0002
70	Mebendazole amine	0.9996	0.0003	0.0010
71	Meloxicam	0.9999	0.0001	0.0002
72	Metoclopramide	0.9993	0.0001	0.0002
73	Minocycline	0.9993	0.0014	0.0042
74	Monoacetyl dapsone	0.9998	0.0001	0.0005
75	Morantel	1.0000	0.0013	0.0038
76	m-phenetidine	0.9973	0.0003	0.0008
77	Nafcillin	0.9995	0.0005	0.0015
78	Nalidixic acid	0.9989	0.0003	0.0009
79	Naloxone	0.9999	0.0011	0.0034
80	Nandrolone	0.9998	0.0003	0.0009
81	Nicarbazin	0.9901	0.0003	0.0008
82	Novobiocin	0.9994	0.0007	0.0021
83	Olaquindox	0.9996	0.0007	0.0021
84	Oleandomycin	0.9999	0.0002	0.0006

Appendix 1. (Continued) Validation parameter of the analytical methodologies for veterinary drugs

No.	Veterinary drugs	Coefficient of determination, R^2	LOD[a] (mg/kg)	LOQ[b] (mg/kg)
85	Orbifloxacin	1.0000	0.0008	0.0023
86	Ormethoprim	0.9999	0.0002	0.0007
87	Oxacillin	0.9990	0.0015	0.0046
88	Oxfendazole	0.9996	0.0004	0.0013
89	Oxfendazole sulfone	0.9970	0.0020	0.0006
90	Oxibendazole	1.0000	0.0001	0.0002
91	Oxolinic acid	0.9998	0.0003	0.0008
92	Oxyclozanide	0.9863	0.0003	0.0009
93	Oxytetracycline	0.9902	0.0001	0.0003
94	Pefloxacin	0.9991	0.0002	0.0007
95	Phenacetin	1.0000	0.0010	0.0029
96	Pirlimycin	0.9998	0.0006	0.0017
97	Praziquantel	0.9968	0.0003	0.0009
98	Rifaximin	0.9949	0.0002	0.0006
99	Robenidine	0.9958	0.0015	0.0044
100	Roxithromycin	0.9999	0.0004	0.0011
101	Sarafloxacin	0.9982	0.0011	0.0032
102	Scopolamine	1.0000	0.0006	0.0018
103	Spiramycin	0.9935	0.0003	0.0009
104	Succinyl-sulfathiazole	0.9905	0.0003	0.0008
105	Sulfabenzamide	0.9997	0.0001	0.0003
106	Sulfacetamide	0.9959	0.0005	0.0016
107	Sulfachlorpyrazine	0.9979	0.0001	0.0003
108	Sulfachlorpyridazine	0.9991	0.0002	0.0005
109	Sulfadiazine	0.9997	0.0001	0.0004
110	Sulfadimethoxine	0.9999	0.0001	0.0003
111	Sulfadoxine	0.9992	0.0001	0.0003
112	Sulfaguanidine	0.9988	0.0002	0.0005
113	Sulfamerazine	0.9998	0.0002	0.0005
114	Sulfameter	0.9996	0.0001	0.0002
115	Sulfamethazine	0.9996	0.0001	0.0004
116	Sulfamethoxazole	0.9983	0.0002	0.0005
117	Sulfamethoxypyridazine	0.9999	0.0001	0.0003
118	Sulfamonomethoxine	0.9999	0.0001	0.0002
119	Sulfamoxol	0.9999	0.0001	0.0003
120	Sulfaphenazole	0.9999	0.0001	0.0004
121	Sulfapyridine	0.9998	0.0001	0.0003
122	Sulfaquinoxaline	0.9997	0.0001	0.0002
123	Sulfathiazole	0.9981	0.0001	0.0003
124	Sulfisomidine	0.9992	0.0001	0.0002
125	Sulfisoxazole	1.0000	0.0001	0.0004
126	Sulpyrine	0.9990	0.0006	0.0020

Appendix 1. (Continued) Validation parameter of the analytical methodologies for veterinary drugs

No.	Veterinary drugs	Coefficient of determination, R^2	LOD[a)] (mg/kg)	LOQ[b)] (mg/kg)
127	Tetrachlorvinphos	0.9988	0.0011	0.0034
128	Tetracycline	0.9991	0.0007	0.0021
129	Tetramisole	0.9978	0.0005	0.0014
130	Thiabendazole	0.9989	0.0007	0.0020
131	Tiamulin	0.9997	0.0001	0.0002
132	Tildipirosin	0.9994	0.0009	0.0027
133	Tilmicosin	0.9928	0.0012	0.0036
134	Tinidazole	0.9999	0.0007	0.0021
135	Triclabendazole	0.9993	0.0004	0.0013
136	Trimethoprim	0.9998	0.0003	0.0008
137	Tripelennamine	0.9994	0.0003	0.0010
138	Tulathromycin	0.9927	0.0014	0.0043
139	Tylosin	0.9999	0.0003	0.0009
140	Valnemulin	0.9991	0.0005	0.0014
141	Virginiamycin	0.9992	0.0006	0.0018
142	Yohimbine	0.9999	0.0008	0.0023

[a)] Limit of detection.
[b)] Limit of quantification.