pISSN 1229-1153 / eISSN 2465-9223 *J. Food Hyg. Saf.*
Vol. 38, No. 4, pp. 211~216 (2023)
https://doi.org/10.13103/JFHS.2023.38.4.211

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

올리브유의 잔류농약 모니터링 및 노출량 조사

손미희* · **김재관** · **이유진** · **김지은** · **백은진** · **김병태** · **이성남** · **박명기** · **박용배**
경기도보건환경연구원 농수산물검사부 안산농수산물검사소

Monitoring of Residual Pesticides and Exposure Assessment of Olive Oil Products Sold on the Market

Mi-Hui Son*, Jae-Kwan Kim, You-Jin Lee, Ji-Eun Kim, Eun-Jin Baek, Byeong-Tae Kim, Seong-Nam Lee, Myoung-Ki Park and Yong-Bae Park
Ansan Agricultural and Fishery Products Inspection Center, Gyeonggi province Institute of Health and Environment, Ansan, Korea

(Received June 13, 2023/Revised July 17, 2023/Accepted July 17, 2023)

ABSTRACT - A total of 100 commercially available olive oil products were analyzed for 179 pesticide residues using gas chromatography-tandem mass spectrometry (GC/MS/MS). The olive oil samples were mixed with organic solvents, centrifuged and frozen to remove fat, and pesticide residues were analyzed using the "quick, easy, cheap, effective, rugged, and safe" (QuEChERS) method. The determination coefficient (R^2) of the analysis method used in this study was ≥0.998. The detection limit of the method ranged 0.004–0.006 mg/kg and its quantitative limit ranged 0.012–0.017 mg/kg. The recovery rate (n=5) measured at the level ranging 0.01–0.02, 0.1, and 0.5 mg/kg ranged 66.8–119.5%. The relative standard deviation (RSD) was determined to be ≤5.7%, confirming that this method was suitable for the "Guidelines for Standard Procedures for Preparing Food Test Methods". The results showed that a total of 151 pesticides (including difenoconazole, deltamethrin, oxyfluorfen, kresoxim-methyl, phosmet, pyrimethanil, tebuconazole, and trifloxystrobin) were detected in 64 of the 100 olive oil products. The detection range of these pesticide residues was 0.01–0.30 mg/kg. The percentage acceptable daily intake (%ADI) of the pesticides calculated using ADI and estimated daily intake (EDI) was 0.0001–0.1346, indicating that the detected pesticides were present at safe levels. This study provides basic data for securing the safety of olive oil products by monitoring pesticide residues in commercially available oilve oil products. Collectively, the analysis method used in this study can be used as a method to analyze residual pesticides in edible oils.

Key words: Olive oil, Pesticides, GC/MS/MS

올리브유는 올리브 과육을 물리적 또는 기계적인 방법으로 압착·여과·정제한 것 또는 이를 혼합한 것을 말하며[1] 스페인, 이탈리아, 그리스 등 지중해 연안국가에서 주로 생산되고 있다. 올리브유는 정제정도에 따라 엑스트라 버진올리브유(extra virgin olive oil), 파인 버진올리브유(fine virgin olive oil), 퓨어 올리브유(pure olive oil) 등으로 나뉘진다[2,3].

올리브유는 다양한 생리활성 기능을 가지고 있는데, 폴리페놀성 물질인 tyrosol, hydroxytyrosol, 토코페롤, oleic acid 등의 성분이 항산화, 혈행 개선, 항암 효과 등에 효능이 있다고 알려져 있으며, 2004년 미국 FDA는 올리브유가 관상동맥성 심혈관 질환 예방에 효과적이라는 표기를 허용하였다[4]. 이로 인해 올리브유에 대한 관심이 증가하였고, 건강 추구 트렌드의 영향을 가장 크게 받는 웰빙 식품으로 자리매김 하였다[3].

우리나라의 올리브유 수입량은 2021년(22,828톤)으로, 2017년(12,860톤)에 비해 두 배 가까이 증가하였다[3]. 또한 올리브유는 가정용 식용유 중 매출액을 기준으로 21.73% (2021년 기준)의 점유율을 차지하고 있으며, 카놀라유와

*Correspondence to: Mi-Hui Son, Ansan Agricultural and Fishery Products Inspection Center, Gyeinggi-Do Institute of Health and Environment, Ansan 15507, Korea
Tel: +82-31-8008-9771, Fax: +82-31-438-5871
E-mail: amas82@gg.go.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.

대두유에 이어 3번째로 많이 판매되고 있다. 이는 웰빙 수요의 증가와 건강에 대한 우려 등으로 인해 올리브유가 고급 식용유로 인식되었기 때문인 것으로 판단된다[5].

그러나 올리브 재배과정에서 사용되는 농약이 최종제품인 올리브유에 잔류할 가능성이 있으며 현재 올리브유의 잔류농약에 관한 연구는 매우 미진한 상태이다. 올리브유는 식품 자체가 기름이기 때문에 유지에서 유래되는 방해물질의 복잡성을 고려할 때, 올리브유에서 잔류농약을 측정하는 것은 어려운 과제이다. 이를 위해 현재까지 액액 추출법(liquid-liquid extraction), 겔 투과 크로마토그래피(gel permeation chromatography, GPC)법, matrix solid-phase dispersion (MSPD)법, QuEChERS (Quick, Easy, Cheap, Effective, Rugged, Safe)법 등 다양한 분석방법과 측정결과가 보고되었다[6-12].

본 연구에서는 앞선 연구에서 언급된 유지를 냉동시켜 제거하는 법[10]과 QuEChERS법으로 분석한 방법을 응용하여[12] 올리브유를 아세토니트릴과 혼합 및 냉동하여 유지를 제거한 후 QuEChERS법을 이용하여 잔류농약을 분석하는 방법을 시도하였고, 시중 유통 중인 올리브유의 농약 잔류수준을 조사하여 안전성 확보를 위한 기초자료를 제공하고자 하였다.

Materials and Methods

시약

분석대상 농약은 2022년 경기도보건환경연구원(Suwon, Korea) GC/MS/MS 분석대상 179종을 대상으로 하였다. 농약 표준품은 Kemidas사(Suwon, Korea)에서 1,000 mg/L로 제조된 제품을 구입하여 표준원액으로 사용하였다. Acetonitrile (Honeywell Burdick & Jacson, Muskegon, MI, USA)은 HPLC급을 사용하였고 추출 및 정제 과정에 CHROMAtific (Heidenrod, Germany)사의 QuEChERS (Quick, Easy, Cheap, Effective, Ruggedand Safe) kit인 Extraction salts (4 g $MgSO_4$, 1 g NaCl, 1 g Na_3Citrate, 0.5 g Na_2HCitrate)와 PSA-MIX-4EN (150 mg PSA, 150 mg C18, 900 mg $MgSO_4$)를 사용하였다.

표준용액의 조제

표준원액을 아세토니트릴에 녹여 100 mg/L으로 한 용액을 표준용액으로 하고 다시 아세토니트릴로 희석하여 0.005-0.2 mg/L의 농도가 되도록 희석 및 혼합하여 혼합표준용액으로 사용하였다. 혼합표준용액은 실험결과의 정확성과 재현성을 위하여 2주일마다 표준원액으로부터 다시 제조하여 사용하였다.

실험재료

본 연구에 사용된 올리브유는 2022년 9월부터 12월까지 경기도내 대형유통매장 및 백화점 등에서 유통되고 있는 제품 100건을 구입하여 냉동고에 보관하면서 시료로 사용하였다. 올리브유의 수입원은 스페인, 이탈리아, 프랑스 등이었으며 시험법의 유효성 검증을 위해 유기농 올리브유를 냉암소에 보관하면서 사용하였다.

분석기기 및 조건

시료의 냉동은 상업용 냉동고(CRE6-190F2A1, Carrier, Yesan, Korea)를 사용하였고 볼텍스믹서는 Vortex-Genie® 2 (Scientific Industries, Bohemia, NY, USA)를 사용하였다. 원심분리기는 탁상형 IST- 4075R (Hanil SME, Anyang, Korea)를 사용하였다. 시료의 농축은 TurboVap LV (Biotage, Uppsala, Sweden)를 사용하였고, 질소가스 발생장치는 Nitrostation (Labsolutions, Gwangmyeong, Korea)를 사용하였다. 분석기기는 GC-MS/MS (TSQ9000, Themofisher scientific, Waltham, MA, USA)를 이용하였으며 분석조건은 Table 1과 같다

분석방법

50 mL 용량의 코니칼 튜브에 시료 약 10 g을 취한 후 아세토니트릴 20 mL을 가하여 3,200 rpm에서 2분간 vortexing 하였다. 이어서 4°C, 4,000 rpm에서 10분간 원심분리 한 후 -20°C 에서 24시간 냉동하여 유지를 최대한 냉동시켰다. 상층의 아세토니트릴 15 mL를 QuEChERS Extraction salts (4 g $MgSO_4$, 1 g NaCl, 1 g Na_3Citrate, 0.5 g Na_2HCitrate)가 담겨져 있는 튜브에 가한 후 충분히 혼합하고 4°C에서 10분간 4,000 rpm으로 원심분리하였다[10,12]. 상층액 10 mL를 시험관에 취하여 40°C에서 질소를 이용하여 농축하고 아세토니트릴 2 mL에 용해시켰다. 이 용액을 QuEChERS PSA-MIX-4EN (150 mg PSA, 150 mg C18, 900 mg $MgSO_4$)가 담겨져 있는 튜브에 가하고 30초간 vortexing한 후 0.2 μm 멤프레인필터로 여과하여 GC-MS/MS용 시험용액으로 사용하였다.

Table 1. Analytical condition of GC-MS/MS

Parameters		Condition		
Injection temp.		280°C		
Injection vol.		1 μL		
Injection mode		splitless		
Column		TG-5 (30 m × 0.25 mm, 0.25 μm)		
Flow rate		1.0 mL/min		
Oven temp.		Rate (°C/min)	Temperature (°C)	Hold (min)
	initial		70	0
	1	20	160	0
	2	5	300	5
Detector temp.		Transfer line: 280°C Source temp.: 280°C		

유효성 검증

잔류농약이 검출되지 않은 유기농 올리브유를 대상으로 하여 국제식품규격위원회 가이드라인(Codex Alimentarius Commission, CAC/GL 40-1993)의 잔류농약 분석 기준[13] 및 국내 '식품 등 시험법 마련 표준절차에 관한 가이드라인(2016)'에 따라 유효성을 검증하였다[14].

혼합표준용액, 올리브유 무처리 시료, 표준용액을 첨가한 회수율 시료의 크로마토그램, RT (retention time) 및 질량 대 전하비(*m/z*) 등을 비교하여 선택성을 확인하였고, 올리브유 무처리시료를 이용하여 0.005-0.2 μg/mL 농도로 제조한 혼합표준용액 검량선의 결정계수(coefficient of determination, R^2)로 직선성을 확인하였다. 국제의약품규제조화위원회(International Council for Harmonisation of Technical Requirements for Pharmaceuticals for Human Use, ICH)[15]에서 제시한 방법에 따라 3.3×σ/S(σ: the standard deviation of the response, S: the slope of the calibration curve)로 산출한 값을 검출한계(LOD, limit of detection)로 하고 10×σ/S로 산출한 값을 정량한계(LOQ, limit of quantification)로 하였다. 회수율(recovery)은 시료에 혼합표준용액을 0.01-0.02, 0.1, 0.5 mg/kg 수준으로 처리 후 각 5회 반복시험하여 측정하였다.

검출 농약의 노출량 조사

올리브유에서 유래되는 농약의 인체노출량은 1일 섭취허용량(ADI, Acceptable Daily Intake) 및 1일섭취추정량(EDI, Estimated Daily Intake) 등을 이용한 %ADI로 평가하였으며, 국민평균체중은 66.6 kg[16], 올리브유의 섭취량은 2020년 국민영양통계 일일섭취량인 0.43 g/person/day를[17] 적용하여 산출하였다.

Results and Discussion

분석법 검증

검출된 농약을 중심으로 혼합 표준용액과 무처리시료, 회수율 시료 등을 비교한 결과 분석에 방해가 되는 물질이 검출되지 않아 선택성을 확인할 수 있었으며 검출한계,

Table 2. LOD, LOQ, linearity and recovery rate of analyzed pesticides

Pesticides	LOD (mg/kg)	LOQ (mg/kg)	Concentration (mg/kg)	Recovery±RSD (%)	Determination coefficient (R^2)
Difenoconazole	0.004	0.012	0.01	86.8±3.9	0.9991
			0.1	86.4±3.8	
			0.5	84.5±4.1	
Deltamethrin	0.005	0.015	0.02	112.6±4.5	0.9985
			0.1	115.7±4.8	
			0.5	119.5±4.9	
Oxyfluorfen	0.005	0.015	0.02	86.8±4.5	0.9989
			0.1	84.0±4.5	
			0.5	84.1±4.0	
kresoxim-methyl	0.006	0.017	0.02	85.9±2.7	0.9999
			0.1	87.4±4.1	
			0.5	89.3±3.4	
Phosmet	0.004	0.013	0.01	111.8±5.3	0.9991
			0.1	112.5±4.8	
			0.5	114.9±5.4	
Pyrimethanil	0.004	0.013	0.01	74.2±5.3	0.9998
			0.1	72.8±4.0	
			0.5	75.4±5.7	
Tebuconazole	0.005	0.014	0.01	68.1±3.4	0.9999
			0.1	66.8±3.2	
			0.5	67.7±4.5	
Trifloxystrobin	0.006	0.017	0.02	79.6±3.5	0.9999
			0.1	79.8±4.3	
			0.5	79.3±4.4	

정량한계와 회수율 등의 시험결과를 통하여 분석법의 유효성을 평가할 수 있었다. Table 2에서와 같이 검출한계는 0.004 mg/kg-0.006 mg/kg, 정량한계는 0.012 mg/kg-0.017 mg/kg로 잔류농약분석법실무해설서[18]에서 잔류허용기준이 0.05 mg/kg일 때 식품에 대한 잔류농약분석법의 정량한계를 0.02 mg/kg 이하로 규정한 기준에 적합한 수준으로 나타났다. 검량선의 결정계수(coefficient of determination, R^2)는 0.9985-0.9999로 나타났으며, 0.01-0.02, 0.1, 0.5 mg/kg의 농도로 5회 반복 수행한 평균회수율은 0.01-0.02 mg/kg일 때 68.1-112.6%, 0.1 mg/kg일 때 66.8-115.7%, 0.5 mg/kg일 때 67.7-119.5%로 나타났다. 상대표준편차는 모두 ±5.7% 이하로 나타나 국제식품규격위원회 가이드라인의 잔류농약 분석 기준 및 식품의약품안전평가원의 식품 등 시험법 마련 표준절차에 관한 가이드라인에서 제시한[12,13] 조건에 부합하여 유효한 분석법임을 확인할 수 있었다.

잔류농약 분석 결과

경기지역에서 유통된 올리브유 100건에 대한 잔류농약 실태를 조사한 결과 Table 3에서와 같이 8종의 농약이 151회 검출된 것으로 나타났다. 총 검출건수는 64건(검출률 64%)으로 검출범위는 0.01-0.30 mg/kg이었다. 주로 검출된 농약은 oxyfluorfen (40회), phosmet (40회), tebuconazole (29회)이었으며 검출된 농약 중 tebuconazole (0.05 mg/kg 이하)과 trifloxystrobin (0.3 mg/kg이하)만 올리브(열매)에 한해 기준이 설정되어 있는 상태이다. 특히 tebuconazole이 일부제품에서 올리브(열매) 기준[1]을 초과한 것으로 나타났다. 올리브유의 잔류농약은 원료인 올리브 과실에 비해 잔류수준이 높아질 수 있는데 Cabras 등[19]의 보고에 따르면 6종의 농약을 시험한 결과 올리브유의 잔류농약 농도가 올리브과실에 비해 최대 7.0배 높아졌다고 보고한 바 있어 tebuconazole도 가공과정에서 농축되어 농도가 높아진 것으로 판단된다.

검출된 농약을 사용용도별로 분류하면 살충제인 deltamethrin과 phosmet이 57회(37.7%), 살균제인 difeno-conazole, pyrimethanil, tebuconazole, trifloxystrobin, kresoxim-methyl이 54회(35.8%) 제초제인 oxyfluorfen이 40회(26.5%) 검출되었다. 살충제는 2성분, 제초제는 1성분의 농약이 검출된 것에 비해 살균제는 여러종류의 농약이 검출된 것으로 나타났다. 제초제의 경우 1성분이 검출된것에 비해 검출비율이 40.0%로 높게 나타났는데 이는 최근 5년간 경기도 유통농산물에서 검출된 살충제(58.4%), 살균제(33.6%), 제초제(7.3%)의 검출비율에[20] 비하면 상당히 높은 수준으로 올리브 재배시 제초제인 oxyfluorfen을 광범위하게 사용하는 것으로 추정된다. Oxyfluorfen은 주로 발아전 잡초방제에 사용되고 있는 농약으로[21] 올리브에 설정된 국내 기준이 없으며 견과류, 대두, 면실, 아보카도 등에 0.05 mg/kg으로 기준이 설정되어 있다. Phosmet은 올리브 과일파리 방제 등에 사용되는 농약으로 국내 미등록 농약이다[22]. 현재 올리브에 대한 기준은 없으며 수출국의 요청으로 감귤류에 3.0 mg/kg, 블루베리에 10 mg/kg, 크랜베리에 3.0 mg/kg 으로 기준이 설정되어 있다[1]. Tebuconazole은 triazole계 살균제로 탄저병 등에 대한 예방 및 방제 효과가 우수하여 감, 고추, 사과, 포도 등의 작물에 광범위하게 사용되고 있으며[23] 올리브(열매)는 0.05 mg/kg으로 기준이 설정되어 있다[1].

한편, 본 연구에서 검출된 농약은 기존 보고와는 다소 차이를 보였는데 Botitsi 등[7]은 1999-2002년 그리스 Corfu 섬에서 생산된 올리브 오일 제품 48건을 조사한 결과 41건에서 fenthion이 0.007-1.57 mg/kg이 검출되었다고 보고하였으며, Razzaghi 등[24]은 이란에서 유통중인 올리브유 37건을 조사한 결과 11건에서 2,4 DDT등 4종류의 잔류농약이 0.008-0.046 mg/kg 수준에서 검출되었다고 보고하였다. Amvrazi 등[25]은 그리스의 농장과 시중에서 유통중인 100개의 시료에서 omethoate 등 20종류의 잔류농약이 0.01-0.44 mg/kg 범위에서 검출되었다고 보고하였다. 본 연구에서는 Amvrazi 등[25]이 검출되었다고 보고한 deltamethrin (0.04-0.05 mg/kg)외에는 공통적으로 검출된 농약이 없는 것으로 나타났다. 이러한 결과는 재배시기, 분석방법 및 검사항목 등의 차이인 것으로 판단된다. 본 연구결과 검출된 농약은 미량으로 나타났으나 검출률을 고려하면 올리브 생산과정 및 올리브유 제조과정에서 철저한 잔류농약 관리가 필요할 것으로 판단된다.

Table 3. Number of samples and range of concentration for pesticides detected in olive oil (mg/kg)

Pesticide	No. of detected sample	Range of conc. (mg/kg)
Difenoconazole	14	0.01-0.08
Deltamethrin	17	0.01-0.02
Oxyfluorfen	40	0.01-0.10
Kresoxim-methyl	2	0.04
Phosmet	40	0.01-0.30
Pyrimethanil	1	0.16
Tebuconazole	29	0.01-0.11
Trifloxystrobin	8	0.01-0.05

검출 농약의 노출량 조사

본 연구결과 검출된 농약 8종의 인체 노출량을 알아보기 위해 각 농약의 평균 검출량, 2021년 국민평균체중(66.6 kg)과 올리브유의 일일섭취량(0.43 g) 및 Park 등[27]의 보고를 참고하여 Table 4와 같이 %ADI를 산출하였다. 검출빈도가 높은 것으로 나타난 농약의 %ADI는 oxyfluorfen이 0.1346, phosmet이 0.0796, tebuconazole이 0.0084이었

Table 4. Exposure assessment of residual pesticides in olive oil

Pesticide	Average of detection value (mg/kg)	ADI[a)26)] (mg/kgb.w./day)	EDI[b)] (mg/day)	MPI[C)] (mg/person/day)	%ADI[d)]	%MPI[e)]
Difenoconazole	0.0055	0.01	2.37E-06	0.67	0.0237	0.0004
Deltamethrin	0.0031	0.01	1.34E-06	0.67	0.0134	0.0002
Oxyfluorfen	0.0094	0.003	4.04E-06	0.20	0.1346	0.0020
kresoxim-methyl	0.0007	0.40	2.86E-07	26.64	0.0001	0.0000
Phosmet	0.0185	0.01	7.96E-06	0.67	0.0796	0.0012
Pyrimethanil	0.0016	0.20	7.02E-5507	13.32	0.0004	0.0000
Tebuconazole	0.0059	0.03	2.52E-06	2.00	0.0084	0.0001
Trifloxystrobin	0.0029	0.04	1.23E-06	2.66	0.0031	0.0000

[a)] Acceptable Daily Intake.
[b)] Estimated Daily Intake, Residual concentration (mg/kg)×daily food intake (g/day)1000.
[c)] Maximum Permissible Intake = ADI×66.6 kg.
[d)] %ADI (Hazard index) = (EDI/ADI)×100.
[e)] %Maximum permissible intake = (EDI/MPI)×100.

고 전체적으로도 0.0001-0.1346로 낮게 나타나 올리브유를 통해서 체내에 흡수될 수 있는 농약의 위해성은 낮은 수준으로 평가되었다. 한편 본 연구와 달리 LC/MS/MS로[1)] 분석가능한 농약을 추가 조사하면 더 많은 종류의 농약이 검출될것으로 판단된다. 특히 올리브유는 일반농산물과 달리 세척과정이 없고 샐러드 드레싱용 등으로 많이 소비하는 식품이기 때문에 미량이라도 지속적으로 섭취하면 건강에 위해가 될 수도 있어 앞으로 지속적인 연구 및 안전성 관리가 필요할 것으로 판단된다.

국문요약

시중 유통 중인 올리브유 100건의 잔류농약을 조사한 결과 64건에서 8종(difenoconazole, deltamethrin, oxyfluorfen, kresoxim-methyl, phosmet, pyrimethanil, tebuconazole, trifloxystrobin)의 잔류농약이 검출되었다. 검출된 농약을 중심으로 확인한 시험법의 결정계수(R^2)는 0.998 이상 이었으며, 검출한계는 0.004 mg/kg-0.006 mg/kg, 정량한계는 0.012 mg/kg-0.017 mg/kg이었다. 0.01-0.02, 0.1 0.5 mg/kg 수준으로 측정한 회수율(n=5)은 66.8-119.5%, relative standard deviation (RSD)는 ±5.7% 이하로 나타나 식품등 시험법 마련 표준절차에 관한 가이드라인'에 적합한 수준임을 확인하였다. 검출된 농약 8종의 %ADI는 0.0001-0.1346으로 안전한 수준으로 나타났다.

본 연구는 유통 중인 올리브유의 잔류농약을 모니터링 함으로서 올리브유의 안전확보를 위한 기초자료를 제공하고자 하였으며 본 연구에서 이용한 분석법은 식품 자체가 기름으로 구성되어 있는 올리브유 등 식용유지에서 잔류농약을 효과적으로 분석할 수 있는 방법으로 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

Conflict of interests

The authors declare no potential conflict of interest.

ORCID

Mi-Hui Son https://orcid.org/0000-0002-3841-4861
Jae-Kwan Kim https://orcid.org/0000-0002-7844-8062
You-Jin Lee https://orcid.org/0000-0002-4258-0459
Ji-Eun Kim https://orcid.org/0000-0002-5552-4165
Eun-Jin Baek https://orcid.org/0000-0003-2886-0603
Byeong-Tae Kim https://orcid.org/0000-0002-2812-2240
Seong-Nam Lee https://orcid.org/0000-0003-4242-9932
Myoung-Ki Park https://orcid.org/0000-0002-9056-5499
Yong-Bae Park https://orcid.org/0000-0003-2596-8520

References

1. MFDS, (2023, July 17). Food code. Retrieved from https://various.foodsafetykorea.go.kr/fsd/#/
2. EI-Agaimy, M.A., Neff, W.E., EI-Sayed, M., Awatif, I.I., Effect of saline irrigation water on olive oil composition. *JAOCS*., **71**, 1287-1289 (1994).
3. Food information statistics system, (2023, July 17). Status of processed food segment market in 2022(Edible oil). Retrieved from https//www.atfis.or.kr/home/board/FB0027.do
4. Heo, W., Lee, S.Y., Lim, S.Y., Pan, J.H., Kim, H.M., Kim, Y.J., The functionalities and active constituents of olive oil. *Korean J. Food Sci. Technol.*, **44**, 526-531 (2012).
5. Food information statistics system, (2023, July 10). Household cooking oil segment market share. Retrieved from https://www.atfis.or.kr/home/sales.do
6. Sobhanzadeh, E., Bakar, N.K., Abas, M.R., Nemati, K., An

efficient extraction and clean-up procedure for pesticide determination in olive oil. *Eur. J. Lipid Sci. Technol.*, **113**, 862-869 (2011).
7. Botitsi, E., Kormali, P., Kontou, S., Mourkojanni, A., Stavrakaki, E., Tsipi, D., Monitoring of pesticide residues in olive oil samples: results and remarks between 1999 and 2002. *Intern. J. Environ. Anal. Chem.*, **84**, 231-239 (2004).
8. Sanchez, A.G., Martos, N.R., Ballesteros, E., Multiresidue analysis of pesticides in olive oil by gel permeation chromatography followed by gas chromatography-tandem mass-spectrometric determination. *Anal. Chim. Acta*, **558**, 53-61 (2006).
9. Hakme, E., Lozano, A., Ferrer, C., Díaz-Galiano, F.J., Fernández-Alba, A.R., Analysis of pesticide residues in olive oil and other vegetable oils. *Trends Anal. Chem.*, **100**, 167-179 (2018).
10. Garcia-Reyes, J.F., Ferrer, C., Gomez-Ramos, M.J., Fernández-Alba, A.R., García-Reyes, J.F., Molina-Diaz, A., Determination of pesticide residues in olive oil and olives. *Trends Anal. Chem.*, **26**, 239-251 (2007).
11. Ferrer, C., Gómez, M.J., García-Reyes, J.F., Ferrer, I., Thurman, E.M., Fernández-Alba, A.R., Determination of pesticide residues in olives and olive oil by matrix solid-phase dispersion followed by gas chromatography/mass spectrometry and liquid chromatography /tandem mass spectrometry. *J. Chromatogr. A*, **1069**, 183-194 (2005)
12. Chamkasem, N., Harmon, T., Analysis of pesticides in olive oil using a modified QuEChERS method with LC-MS/MS and GC-MS/MS. *JRS.*, **3**, 16-35 (2015).
13. CODEX Alimentarius Commission (CAC), (2023, July 10). Guidelines on good laboratory practice in pesticide residue analysis CAC/GL 40-1993. Retrieved from https://www.fao.org/fao-who-codexalimentarius/codex-texts/guidelines/en/
14. Ministry of Food and Drug Safety, (2023, July 10). Guidelines on standard procedures for preparing analysis method. Retrieved from http://www.nifds.go.kr/brd/m_15/view.do?seq=8215
15. The International council for harmonisation of technicalrequirements for pharmaceuticals for human use(ICH), (2023, July 10). Quality guidelines, validation of analytical procedures. Retrieved from https://database.ich.org/sites/default/files/Q2_R1__Guideline.pdf
16. Korean Statistical Information Service, (2023, July 10). Current status of average weight distribution by age and gender by city and province. Retrieved from https://kosis.kr/statHtml/statHtml.do?orgId=350&tblId=DT_35007_N132&cw_cd=MT_ZTITLE&list_id=350_35007_A007&conn_path=F0&path
17. Korea national health and nutrition examination survey, (2023, July 10). Intake by food. Retrieved from https://www.khidi.or.kr/kps/dhraStat/result2?menuId=MENU01653&year=2020
18. Ministry of Food and Drug Safety, Analytical practices manual for pesticide residues in foods, 6th ed, MFDS, Cheongju, Korea (2023).
19. Cabras, P., Angioni, A., Garau, V.L., Melis, M., Pirisi, F.M., Karim, M., Minelli, E.V., Persistence of insecticide residues in olives and olive oil. *J. Agr. Food Chem*., **45**, 2244-2247 (1997).
20. Gyeonggi Provincial Health and Environment Research Institute, 2023, 2022 Gyeonggi province agricultural products residual pesticide statistical yearbook, Suwon, Korea, pp. 20-23.
21. Peragón, J., Amores-Escobar, M.T., Olive tree glutathione stransferase and its response against the herbicides oxyfluorfen and glyphosate. *Sci. Hort.*, **231**, 194-200 (2018).
22. Cunha, S.C., Fernandes, J.O., Beatriz, M., Oliveira, P.P., Determination of phosmet and its metabolites in olives by matrix solid-phase dispersion and gas chromatography–mass spectrometry. *Talanta*, **73**, 514-522 (2007).
23. Kim, D.H., Stereoselective characteristics of propiconazole and tebuconazole in blueberry : Residual dissipation and processing effects, Master's thesis, Wonkwang University, Iksan, Korea (2022).
24. Razzaghi, N., Ziarati, P., Rastegar, H., Shoeibi, S., Amirahmadi, M., Conti, G.O., Ferrante, M., Fakhri, Y., Khaneghah, A.M., The concentration and probabilistic health risk assessment of pesticide residues in commercially available olive oils in Iran. *Food Chem. Toxicol.*, **120**, 32-40 (2018).
25. Amvrazi, E.G. Albanis, T.A., Pesticide residue assessment in different types of olive oil and preliminary exposure assessment of Greek consumers to the pesticide residues detected. *Food Chem.*, **113**, 253-261 (2009).
26. Ministry of Food and Drug Safety, (2023, July 10). Pesticides and Veterinary Drugs Information. Retrieved from https://www.foodsafetykorea.go.kr/residue/prd/info/list.do?menuKey=1&subMenuKey=9
27. Park, D.W., Kim, A.G., Kim, T.S., Yang, S.Y., Kim, G.G., Chang, G.S., Ha, D.R., Kim, E.S., Cho, B.S., Monitoring and safety assessment of pesticide residues on agricultural products sold via online websites. *Korean J. Pestic. Sci.*, **19**, 22-31 (2015).