pISSN 1229-1153 / eISSN 2465-9223 *J. Food Hyg. Saf.*
Vol. 36, No. 2, pp. 172~179 (2021)
https://doi.org/10.13103/JFHS.2021.36.2.172

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

광주광역시 유통 커피류의 카페인, 벤조피렌, 유해중금속 함량 비교

류근영 · 강경리 · 박혜민 · 이재린 · 최수연 · 조은혜 · 조배식 · 김진희*
광주광역시보건환경연구원 식품분석과

Comparison of Caffeine, Benzopyrene, and Hazardous Metals in Brewed Coffee Selling in Gwangju Metropolitan City

Keunyoung Ryu, Gyungri Gang, Hyemin Park, Jaerin Lee, Suyeon Choi, Eunhye Jo, Baesik Cho, Jinhee Kim*
Department of Food Analysis, Health and Environment Research Institute of Gwangju Metropolitan City, Gwangju, Korea

(Received March 17, 2021/Revised April 6, 2021/Accepted April 15, 2021)

ABSTRACT - In this study, we evaluated the content of caffeine, benzo[a]pyrene, lead, and cadmium in coffee drinks sold at coffee shops in Gwangju, Korea. A total of 114 coffee samples (100 Americano coffees and 14 cold-brew coffees) were purchased at each of 100 coffee shops including the large (12) and mid-sized (13) franchises and other types of local coffee shops (75). It was confirmed that the single-serving sizes of coffee drinks were 175 to 460 mL (Americano 220 to 460, cold-blew 175 to 400). The result of the analysis to content of caffeine in coffee drinks to be 0.25 to 1.49 mg/mL, which is higher than the 0.15 mg/mL standard for 'high caffeine content beverages', and based on the single-serving volume, some coffee drinks were found to exceed the recommended adult caffeine intake of 400 mg/day even if only two cups were consumed. The detection of benzo[a]pyrene (B[a]P) was found to range from not detected (ND) to 55.35 ng/kg. However, there is currently no standard for B[a]P content in coffee drinks, but it was found to be lower than that of special-purpose foods (1.0 μg/kg or less), which has the lowest standard among other food types in the food code. As for heavy metals, lead (Pb) and cadmium (Cd) were confirmed from ND to 29.00 μg/kg and ND to 12.0 μg/kg, respectively, although most samples had no detectable levels. As a result of this study, caffeine content should be considered when ingesting coffee drinks. Moreover, labeling of caffeine content on coffee products is needed for the safety of consumers in the future.

Key words: Caffeine, Benzo[a]pyrene, Heavy metals, Coffee, Cold-brew

커피는 세계적으로 가장 인기 있는 음료로, 우리나라의 커피 수입량은 2018년 145,051톤으로 2015년에 비해 10.7%(15,484톤) 증가하는 등 매년 증가 추세에 있다. 1인당 커피 소비량은 2018년을 기준으로 연간 353잔으로 추정되고 있을 만큼 많고[1], 커피 시장 규모는 약 6.8조 원으로 매년 증가하고 있으며, 그 중 커피전문점의 판매가 2016년 59%에서 2018년 63%로 꾸준히 증가하고 있다[2].

커피는 알칼로이드의 일종인 카페인(caffeine; 1,3,7-trimethylxanthine)을 함유하고 있는 대표적인 음료로 이는 세계적으로 가장 널리 소비되는 흥분제 성분 중 하나이다[3,4]. 적당량 섭취된 카페인은 말초신경계와 중추신경계를 자극하여 각성효과를 일으키고, 신경활동을 활발하게 하여 긴장감을 유지시켜 주는 등 우리 몸에 긍정적인 작용을 하지만, 과잉섭취 시 소화불량, 심계항진, 신경과민, 불면증, 무기질 결핍 등 부정적인 작용을 일으키기도 한다[5,6]. 카페인은 소비 대상에 따라 건강상 위해가 다르게 나타날 수 있어 우리나라 식품의약품안전처에서는 성인(400 mg 이하), 임산부(300 mg 이하), 어린이(2.5 mg/kg.bw 이하) 등 일일 섭취권고량을 다르게 설정하고 있다[7]. 특히 체격이 작은 어린이 및 청소년의 경우 빠른 성장발달과 개인차를 고려하여 단위체중당 카페인 섭취기준을 제시하고 있는데, 카페인에 상당히 민감한 이들은 신경과민이 발생할 수 있고 숙면에 방해를 받을 수 있으며, 금단현상에 취약할 수 있다고 보고되고 있다[8].

커피를 섭취하기 위해서는 커피 생두를 배전(로스팅, roasting)하는 과정이 필수적이다. 로스팅은 커피에 특유의

*Correspondence to: Jinhee Kim, Department of Food Analysis, Health and Environment Research Institute of Gwangju Metropolitan City, Gwangju 61954, Korea
Tel: +82-62-613-7560, Fax: +82-62-613-7567
E-mail: ju9510@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.

향과 맛을 부여하는 과정으로 로스팅 방법에 따라 커피의 품질이 결정된다. 커피콩의 로스팅은 220°C 전후의 고온에서 일정한 시간 동안 진행되는데, 이 과정에서 furan, acrylamide 그리고 다환방향족탄화수소(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs) 등 여러 가지 유해한 성분들이 생성된다[9]. 대표적인 PAHs인 벤조피렌(benzo[a]pyrene, B[a]P)은 화석연료나 식물의 유기물 그리고 식품 중의 탄수화물, 단백질, 지질 등이 300-600°C의 고온에 노출되었을 때 불완전연소에 의해 생성되며[10], 흡입, 섭취 등에 의해 체내에 흡수되면 각종 암 등을 유발할 수 있어 WHO/IARC에서는 B[a]P을 Group 1(인체 발암물질)로 분류하고 있다[11,12]. 그러나 원두의 로스팅 과정 중 생성된 B[a]P은 커피음료를 통해 우리 몸에 섭취될 가능성이 있지만, 아직 커피의 B[a]P 함량 기준은 정해져 있지 않아 커피음료 중 B[a]P 등 유해물질에 대한 연구가 필요하다. 현재까지 연구를 살펴보면 커피에 대한 B[a]P 등 다환방향족화합물들(PAHs)의 분석은 주로 생두를 직접 로스팅하여 원두와 이를 추출한 커피를 분석한 연구와[13,14] 로스팅된 원두를 구입하여 함량을 확인하는 연구가 주를 이루고 있으나[6,9,13,15,16], 소비자에게 직접 제공되는 원두커피 추출 커피음료에 대한 연구는 매우 미약한 실정이다.

따라서 본 연구에서는 프렌차이즈 업체 및 개인 커피전문점에서 소비자들에게 직접 제공되는 커피음료들에 대한 카페인, B[a]P, 중금속 함량을 조사하여 커피음료 선택에 대한 올바른 정보를 제공하고자 하였다.

Materials and Methods

실험재료

2020년 2월 기준, 각 회사 홈페이지 광주지역 가맹점수를 바탕으로 전국 규모 프랜차이즈 가맹점의 매장 규모 및 인지도, 커피음료 판매가격 등을 참조하였다. 이에 대형 프렌차이즈 커피전문점(이하 대형) 13곳, 중형 프렌차이즈 커피전문점(이하 중형) 12곳까지 총 25곳을 선정하였고, 지역 커피전문점(이하 지역)은 광주광역시 '오매광주' 사이트[17]를 참고하여 75곳을 선정하였다. 본 연구에 사용한 시료는 단순 추출 커피음료인 아메리카노 100건과 콜드브루 14건으로 하였다. 선정된 매장의 시료는 2월부터 9월까지 수거하였고, 수거 즉시 전처리 및 분석을 하였다.

시약 및 기구

본 연구에서는 Caffeine (Sigma-Aldrich Co., St. Louis, MO, USA), Benzo[a]pyrene (Supelco/Sigma-Aldrich, Bellefonte, PA, USA), 3-Methylcholanthrene (Dr. Ehrenstorfer GmbH, Augsburg, Germany), 그리고 Lead 및 Cadmium (Merck KGaA, Darmstadt, Germany)을 표준품으로 사용하였다. 시료 전처리에는 Hexane과 Dichloromethane (Fujifilm Wako Co., Osaka, Japan)을, 유해금속 측정용으로 Nitric acid (Daejung Co., Siheung, Korea)를 사용하였다. 이동상 용매는 Acetic acid (Sigma-Aldrich Co., St. Louis, MO, USA), HPLC용 Methanol (Merck, Darmstadt, Germany), HPLC용 Acetonitrile (Sigma-Aldrich Co., St. Louis, MO, USA)을 사용하였고, 실험에 사용한 증류수는 초순수제조장치(ELGA DV 35, VWS(UK) Ltd, High Wycombe, UK)의 저항값이 18 MΩ 이상인 조건에서 취하여 사용하였다.

표준용액 조제

카페인 분석은 caffeine 표준물질 약 0.1 g을 취한 후, 100 mL의 용량플라스크에 증류수로 정용하여 1,000 mg/L 수준으로 조제한 것을 표준원액으로 하였다. 표준원액을 증류수로 희석한 후 10, 50, 100 mg/L의 농도로 표준용액을 제조하여 검량선을 작성하였다. B[a]P 분석은 Benzo[a]pyrene 표준용액 1,000 μg/mL를 acetonitrile을 이용하여 0.5-5 ng/mL 범위로 조제하고, 여기에 3-Methylcholanthrene을 첨가하여 내부표준물질법으로 측정하고 검량선을 작성하였다. 중금속 분석은 ICP-OES용 calibration solution (lead, cadmium 등 50 mg/L)을 2% 질산용액으로 희석하여 0.05, 0.1, 0.2, 0.5 mg/L 범위의 검량선을 작성하였다.

시료 전처리 및 분석조건

카페인

본 연구에서는 식품공전 일반시험법[18] 중 카페인 시험법에 의거하여 카페인 함량을 분석하였다. 카페인을 효과적으로 추출하기 위해 별도의 전처리 없이 커피음료를 증류수로 10배 희석하여 0.2 μm syringe filter (Advantec, 13HP, 020AN, Tokyo, Japan)로 여과한 액을 최종 시험용액으로 하였으며, 시험용액은 Table 1의 조건에 따라 high-performance liquid chromatography/photodiode array detector (HPLC/DAD) (1290 Infinity II, Agilent, Santa Clara, CA, USA)를 사용하여 측정하였다.

벤조피렌

B[a]P 분석은 식품공전 일반시험법 중 식용유지 중 벤조피렌의 제1법과, Hu 등[19] 및 Kruijf 등[14]의 방법을 변형하여 Nam 등[16]의 액/액 추출법을 이용하였다. 커피음료 중 B[a]P의 추출을 위해 균질화된 검체 약 100 mL에 내부표준용액을 첨가하여 분액깔대기에 넣고, 여기에 n-hexane 일정량을 넣어 교반기(SR-2DW, TAITEC, Saitama, Japan)로 약 2시간 흔들어 섞은 후 n-hexane을 취한다. 그리고 다시 물층에 n-hexane 50 mL씩을 넣고 흔드는 과정을 2회 반복하였다. 층 분리 과정 중 에멀젼이 생성된 경우에는 적당량의 에탄올을 첨가하여 에멀젼을 제거한 후 물층은 버린다. n-hexane층은 무수황산나트륨 약 20 g을 넣은 여과지를 사용하여 탈수여과한 후, 감압농축기(JP/NE-1001,

Table 1. The operation conditions of caffeine (HPLC/PDA), benzo[a]pyrene (HPLC/FLD), and hazardous metals (ICP-OES)

Instrument	Parameter	Operation conditions		
HPLC/PDA	Column	Capcell Pak C18 (4.6 × 250 mm, 5 μm, Shiseido, Tokyo, Japan)		
	Mobile phase	20% MeOH containning 1% Acetic acid		
	Wavelength	280 nm		
	Flow rate	1.0 mL/min		
	Injection volume	10 μL		
HPLC/FLD	Column	Supelcosil LC-PAH column (25 cm × 4.6 mm, 5 μm, Supelco, Oakville, Ontario, Canada)		
	Column Temp.	35°C		
	Flow rate	1.0 mL/min		
	Solvent system	Time	Acetonitrile	H_2O
		0-30 min	85%	15%
	Injection volume	10 uL		
	Wavelength (Excitation/Emission)	294/404 nm		
ICP-OES	RF power (W)	1200		
	Nebulizer gas flow rate (L/min)	0.75		
	Auxiliary gas flow rate (L/min)	0.80		
	Plasma gas flow rate ($1min^{-1}$)	12.50		
	Pump speed (rpm)	12		
	Replicates	3		
	Wavelength (nm)	Pb 220.353, Cd 214.439		

Eyela, Japan)로 40°C 이하의 수욕상에서 감압하여 약 2 mL로 농축하였다. 정제를 위해 florisil cartridge (500 mg/6 mL)를 dichloromethane 10 mL와 n-hexane 20 mL로 활성화한 후 농축액을 가하고, n-hexane 5 mL와 n-hexane:dichloromethane (3:1) 15 mL로 차례로 용출시켰다. 정제가 끝난 용출액은 수욕조(35°C)에서 질소가스로 농축한 후, 잔사를 acetonitrile 1 mL로 녹인 후 0.2 μm membrane filter를 통과시켜 HPLC/fluorescence detector (FLD)용 시험용액으로 사용하였다. B[a]P의 최종 분석을 위해 Table 1의 조건에 따라 HPLC (ACQUITY UPLC, Waters, Milford, MA, USA)를 사용하여 측정하였다.

중금속

중금속 분석을 위해 inductively coupled plasma-optical emission spectrometer (ICP-OES, Agilent 5100, Agilent, Mulgrave, Australia)를 사용하였으며, 시료는 커피음료 검체 1 g에 질산 5 mL를 첨가하여 마이크로웨이브로 습식분해한 후 질산을 완전히 휘발시킨 다음 증류수를 첨가하여 최종 10 mL로 하였다. 분석은 식품공전 일반시험법 중 납(Pb) 분석법인 유도결합플라즈마-발광광도법[20]에 따라 Table 1의 조건으로 분석하였다.

검출한계 및 정량한계

검출한계(limit of detection, LOD)와 정량한계(limit of quantification, LOQ)는 각 농도별 표준용액을 사용하여 4회 시험 후 아래의 식으로부터 측정하였고, 검출한계 미만의 결과는 ND (not detected) 처리하였다. 모든 농도 결과는 검출한계(LOD) 및 정량한계(LOQ)를 적용하였고, 검출한계 미만은 ND (not detected)로 표시하고, 검출한계 값을 제시하였다[21].

$$LOD = \sigma/S \times 3$$
$$LOQ = LOD \times 3.3$$

(* σ = The standard deviation of the response)
(* S = The slope of the calibration curve)

검출된 카페인, B[a]P 그리고 중금속의 LOD와 LOQ 값은 Table 2와 같이 확인되었다.

통계처리

분석결과는 IBM SPSS Statistics 20.0 (SPSS Inc, Chicago, IL, USA)을 사용하여 카페인, B[a]P, 중금속(납, 카드뮴) 함량에 대한 평균, 표준편차, 최대값 및 최소값 등의 기술통계량을 산출하였다. 매장 규모별, 커피 종류별 통계적 유의성 검증은 독립표본 t-test 및 One-Way ANOVA를 이용하였으며, One-way ANOVA의 사후분석은 Duncan의 다중검정법을 이용하였다. 유의수준은 $P<0.05$에서 검증하였다.

Table 2. Limit of detection (LOD) and limit of quantification (LOQ) of each compound

Analytes	LOD	LOQ	Linearity	Recovery[1)](%)
Caffeine	0.06 mg/L	0.19 mg/L	1.0000	99.3±1.1
Benzo[a]pyrene	6.5 ng/kg	19.8 ng/kg	0.9995	98.9±2.8
Lead	0.48 μg/kg	1.59 μg/kg	0.9990	98.3±2.8
Cadmium	0.10 μg/kg	0.32 μg/kg	0.9999	95.7±2.1

1) Mean±S.D.

Table 3. Comparison of caffeine, benzopyrene and hazardous metals in Americano coffee

Compound / Group	Caffeine (mg/mL)		Benzo[a]pyrene (ng/kg)		Lead (μg/kg)		Cadmium (μg/kg)	
	Conc.[1)]	Range	Conc.	Range	Conc.	Range	Conc.	Range
Large franchise	0.49±0.14	0.26-0.75	7.43±4.24	0.95-16.91	1.00±2.31	ND[2)]-7.00	ND	ND
Mid-end franchise	0.50±0.10	0.37-0.67	7.05±2.82	ND-10.84	0.38±0.96	ND-3.00	0.08±0.28	ND-1.00
Local	0.49±0.12	0.25-0.78	11.65±9.78	0.14-55.35	3.59±6.88*	ND-29.00	0.29±1.56	ND-12.00
Total	0.49±0.12	0.25-0.78	10.73±9.18	ND-55.35	2.84±6.14	ND-29.00	0.22±1.21	ND-12.00

Compound / Group	Caffeine (mg/cup)		Benzo[a]pyrene (ng/cup)		Lead (μg/cup)		Cadmium (μg/cup)	
	Conc.	Range	Conc.	Range	Conc.	Range	Conc.	Range
Large franchise	146.02±52.45	72.58-258.53	2.21±1.29	0.29-4.74	0.28±0.65	ND-1.96	ND	ND
Mid-end franchise	167.50±41.08	86.89-240.95	2.24±0.84	ND-3.58	0.16±0.42	ND-1.38	0.16±0.42	ND-0.29
Local	143.84±37.27	73.55-242.54	3.43±2.79	0.04-15.22	1.07±2.04*	ND-8.37	0.10±0.58	ND-4.74
Total	147.17±40.14	72.58-258.53	3.18±2.59	ND-15.22	0.85±1.82	ND-8.37	0.07±0.45	ND-4.74

1) Conc.: average concentration.
2) ND: not detected (Under LOQ value).
Data were analysed by independent samples t-test. All concentration are expressed as mean±SD (standard deviation).

Results and Discussion

카페인 함량 분석

카페인은 무색, 무취, 쓴맛을 지닌 식물성 알칼로이드로 감기약이나 두통약 등 의약품 뿐만 아니라 식품의 원료로도 널리 이용되고 있다[4)]. 카페인을 적당량 섭취하면 피로감이 감소하고 머리가 맑아져 기억력, 집중력이 강화되는 효과가 나타나며[22)], 미국 국립암연구소에서는 커피를 마시는 사람은 마시지 않는 사람보다 심장질환, 호흡기 질환, 뇌졸중 등으로 사망할 가능성이 더 낮아진다는 연구 결과를 발표하기도 하였다. 그러나 카페인을 과잉 섭취하면 신경과민, 불면증 등이 유발될 수 있으며 특히 신장질환이나 위궤양 환자에게 나쁜 영향을 줄 수 있으므로 섭취에 주의하여야 한다[5,6)].

광주지역 커피판매점 100개 지점에서 총 114건(아메리카노 100건, 콜드브루 14건)의 커피음료를 구매하여 카페인 함량을 분석하였다. 아메리카노 100건에 대한 분석 결과(Table 3), 대형의 카페인 함량은 평균 0.49±0.14 mg/mL (146.02±52.45 mg/cup), 중형은 0.50±0.10 mg/mL (167.50±41.08 mg/cup), 그리고 지역은 0.49±0.12 mg/mL (143.84±37.27 mg/cup)로 분석되어 커피전문점 규모별 유의성은 나타나지 않았다(Fig. 1). 또한 콜드브루 14건의 카페인 함량 분석결과 (Table 4) 대형이 평균 0.75±0.22 mg/mL (166.89±46.12 mg/cup), 중형은 0.79±0.47 mg/mL (187.70±71.33 mg/cup)로 분석되어 그룹간 유의성은 확인되지 않았다(Fig. 1).

반면 아메리카노와 콜드브루의 카페인 함량은 콜드브루(0.76±0.29 mg/mL, 172.84±52.36 mg/cup)가 아메리카노(0.49±0.12 mg/mL, 147.17±40.14 mg/cup)보다 유의적으로 높게 검출되었는데(Fig. 2), 이는 2017년 한국소비자원에서 실시한 테이크아웃 원두커피 안전실태 조사[23)]의 카페인 분석 결과, 아메리카노가 0.44 mg/mL, 콜드브루가 0.89 mg/mL로 콜드브루의 카페인 함량이 높았다는 보고와 유사한 경향을 나타내었다. 그러나 Eun 등[24)]의 연구 결과에서는 찬물을 이용해 워터드롭 방식으로 추출한 커피음료의 카페인 함량이 0.39 mg/mL로 여러 방식(0.39-2.65 mg/mL)으로 추출한 커피음료 중 가장 낮게 검출 되었다고 하여 추출 온도가 높을수록 카페인 함량이 높았다는 본 연구와 다른 결과를 보고하였다. 하지만 카페인의 추출을 위한 조건은 단순히 온도만이 작용하는 것이 아니며, 원두의 분쇄 정도, 추출 시간 등 여러 요인이 작용한다고 Fuller 등[25)]은 보고하였다. 본 연구에서도 상온 이하의 물로 장시간(수시간-수일) 추출하는 방법으로 조제된 콜드브루가 고온에서 추출한 아메리카노 보다 높은 카페인 함량을 보여

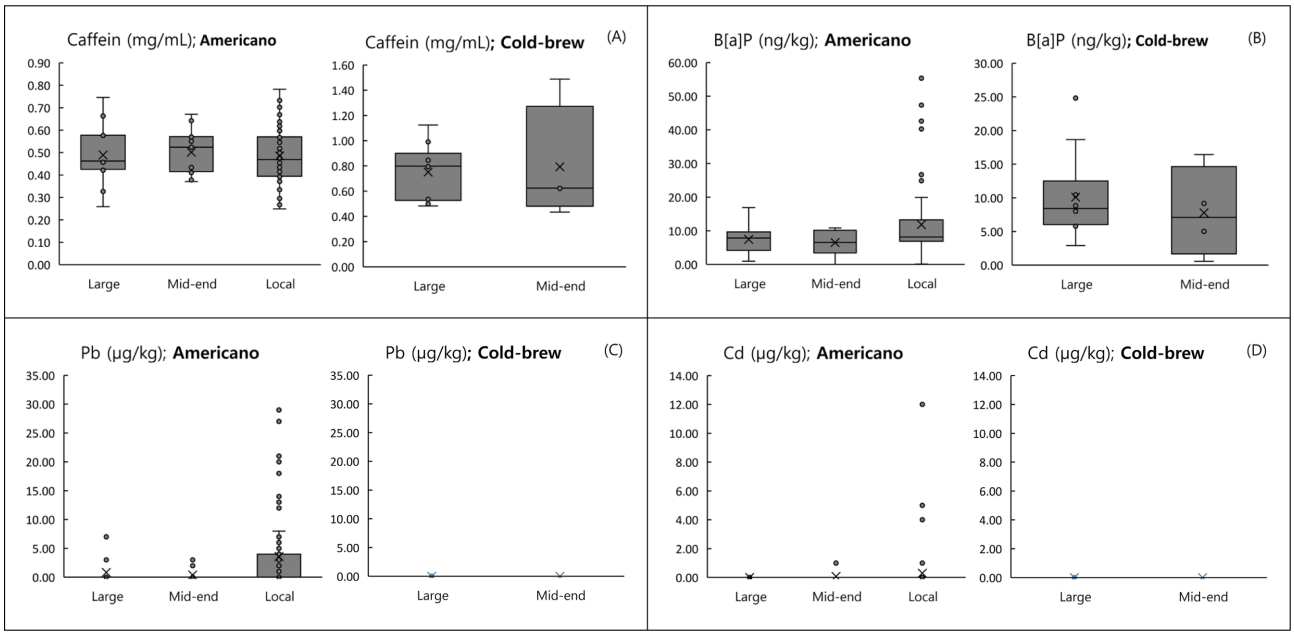

Fig. 1. Comparison of caffeine (A), benzo[a]pyrene (B), lead (C) and cadmium (D) content in coffee drinks by coffee shop group. Each bar represents the mean±SD of groups contents, and data were analysed by independent samples t-test. The asterisk marks a significant in difference between Americano and Cold-brew at the level of $P<0.05$.

Table 4. Comparison of caffeine, benzopyrene and hazardous metals in Cold-brew coffee

Compound / Group	Caffeine (mg/mL)		Benzo[a]pyrene (ng/kg)		Lead (μg/kg)		Cadmium (μg/kg)	
	Conc.[1)]	Range	Conc.	Range	Conc.	Range	Conc.	Range
Large franchise	0.75±0.22	0.48-1.12	10.09±6.66	2.91-24.83	ND	ND	ND	ND
Mid-end franchise	0.79±0.47	0.43-1.49	7.79±6.76	0.55-16.44	ND	ND	ND	ND
Total	0.76±0.29	0.43-1.49	9.43±6.51	0.55-24.83	ND	ND	ND	ND

Compound / Group	Caffeine (mg/cup)		Benzo[a]pyrene (ng/cup)		Lead (μg/cup)		Cadmium (μg/cup)	
	Conc.	Range	Conc.	Range	Conc.	Range	Conc.	Range
Large franchise	166.89±46.12	106.15-260.82	2.30±1.53	0.67-5.46	ND	ND	ND	ND
Mid-end franchise	187.70±71.33	125.34-290.18	1.65±1.27	0.22-3.29	ND	ND	ND	ND
Total	172.84±52.36	106.15-290.18	2.11±1.44	0.22-5.46	ND	ND	ND	ND

1) Conc.: Concentration.
Data were analysed by independent samples t-test. All concentration are expressed as mean±SD (standard deviation).

커피음료 중 카페인 함량은 추출 시간뿐만 아니라 온도에도 영향을 받을 것으로 생각된다.

「식품 등의 표시·광고에 관한 법률」[26]에서는 소비자 안전을 위한 주의사항의 하나인 고카페인 함유 표시를 강화하려는 추세로, 휴게음식점영업 및 제과점영업(점포수가 100개 이상인 영업장)에 대하여 표시의무자로 추가하여 고카페인 함유 식품(1 mL당 0.15 mg 이상의 카페인을 함유한 액체 식품 등)의 경우 “고카페인 함유” 및 “총카페인 함량 000밀리그램” 및 “어린이, 임산부 및 카페인에 민감한 사람은 섭취에 주의해 주시기 바랍니다”라는 표시를 하도록 법 개정을 추진 중이다. 이에 따르면 본 연구에서 분석한 100곳의 커피전문점에서 구입한 모든 시료가 “고카페인 함유”제품인 것으로 확인 되었다. 국내를 비롯한 해외에서는 카페인 1일 최대 섭취권고량[7]이 설정되어 있는데, 성인의 경우 400 mg 이하로, 본 연구 결과와 비교해 볼 때 아메리카노, 콜드브루 모두 하루 2잔 정도 섭취하는 것이 최대 1일 권고량 이라고 볼 수 있다. 그 이상 음용할 경우 불면증, 신경과민 등 여러 부작용을 겪을 수 있는데, 1인당 커피 소비량이 매년 평균 7% 증가하고 시장규모 또한 14년부터 연평균 9.3%씩 증가하는 추세[22]를 고려할 때, 지역 커피숍에 대해서도 카페인 함량 표시를 유도하고 소비자들에게 과학적인 정보를 제공함으로써 현

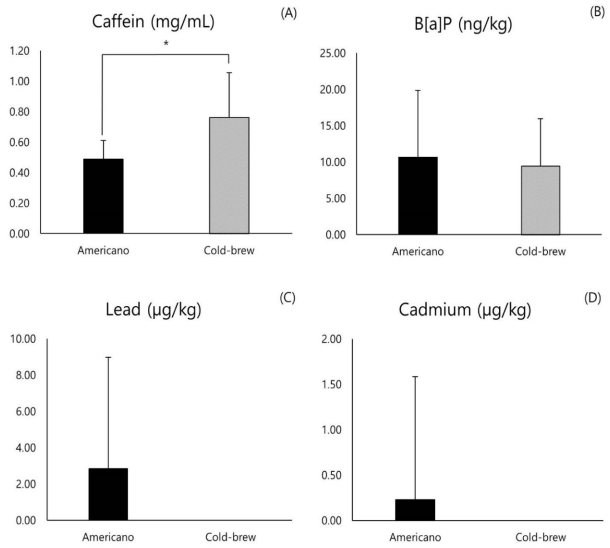

Fig. 2. Comparison of caffeine (A), benzo[a]pyrene (B), lead (C) and cadmium (D) content in coffee drinks between Americano and Cold-brew. Each bar represents the mean±SD of groups contents, and data were analysed by independent samples t-test. The asterisk marks a significant in difference between Americano and Cold-brew at the level of $P<0.05$.

명하고 안전한 소비를 유도하는 것이 바람직하다고 본다.

벤조피렌 함량 분석

커피음료 중 B[a]P 함량은 원두커피로 대표되는 아메리카노와 추출 방법이 다른 콜드브루 두 종류를 대상으로 분석하였다. 아메리카노 100건에 대한 분석결과는 대형이 7.43±4.24 ng/kg, 중형은 7.05±2.82 ng/kg, 그리고 지역은 11.65±9.78 ng/kg로 확인되었으며, 1곳(중형, ND)을 제외한 대부분의 커피음료에서 B[a]P가 확인되었다(Table 3). 그러나 커피전문점 그룹별 B[a]P 함량은 유의적인 차이는 보이지 않았으며(Fig. 1), 지역 커피전문점의 경우 0.14-55.35 ng/kg으로 그 편차 범위가 큰 편이었고 지역 내에서도 결과의 유의성은 확인되지 않았다. 커피음료 1회 제공량별 함량은 개별 커피전문점에서 일반적으로 판매하고 있는 용량을 기준으로 구매하였고, 검체의 용량 범위는 220-430 mL로 확인되었다. 커피전문점 그룹별 컵당 B[a]P 함량은 대형이 2.21±1.29 (0.29-4.74) ng/cup, 중형은 2.24±0.84 (ND-3.58) ng/cup, 그리고 지역은 3.43±2.79 (0.04-15.22) ng/cup의 범위로 확인되었다.

Kruijf 등[14]은 네델란드에서 판매되고 있는 로스팅된 원두와 이를 추출한 커피음료에 함유된 B[a]P를 분석하였으며, 그 결과 원두에서의 평균 함량은 0.20±0.17 μg/kg, 물로 추출한 커피음료는 0.8±0.4 ng/kg이라고 보고하였다. 로스팅된 원두에서의 B[a]P 함량은 본 연구 결과에서보다 높은 값이었으나, 커피음료의 경우는 더 낮은 값을 보였다. 그러나 Jimenez 등[15]의 연구에서 시중에 유통 중인 로스팅된 원두의 B[a]P 함량 측정 결과, Kruijf 등[14]의 연구 결과보다 더 높은 1.4-18.5 μg/kg 범위가 보고되어 로스팅된 원두에서도 커피의 품종 및 로스팅 조건 등이 B[a]P의 함량 차이에 큰 영향을 미치는 것으로 판단된다. 또한 부산지역 커피전문점에서 판매하고 있는 원두, 그리고 인스턴트 커피를 물로 추출한 커피음료의 B[a]P 함량을 분석한 Kwon 등[6]의 연구에서도 평균 0.027 (ND-0.103) μg/kg의 결과 값이 나타났고, 원두의 종류 및 제품별 결과 값의 편차가 커 본 연구와 유사한 경향을 보였다.

그러나 Kim 등[13]은 Arabica와 Robusta 2종의 커피 생두를 직접 단계별로 로스팅한 후 원두와 이를 물로 추출한 커피음료를 분석한 결과 강로스팅(230°C, 250초)한 원두에서만 B[a]P가 0.142-0.757 μg/kg으로 검출되었다고 보고하였으며, Hu 등[19] 또한 시중에 유통되고 있는 국민 다소비식품 중 원두커피 10종의 분석 결과 B[a]P를 포함한 다환방향족 탄화수소 8종 모두 불검출 되었다고 보고하였는데, 이처럼 다른 경향을 보이는 일부 연구 결과의 경우 시료의 종류, 로스팅 방법 등 여러 요인의 작용에 따른 차이로 판단된다.

콜드브루 커피음료는 지역 소규모 커피전문점에서는 찾기가 어려웠으며 대형 및 중형 프렌차이즈 중에서도 일부 매장에서만 판매하고 있어 14곳(대형 10, 중형 4)에서만 수거하여 분석하였다. B[a]P 분석 결과 대형은 10.09±6.66 (2.91-24.83) ng/kg, 그리고 중형은 7.79±6.76 (0.55-16.44) ng/kg으로 확인되었으나(Table 4), 두 그룹간 함량의 유의적인 차이는 없었다(Fig. 1). 1회 제공용량 범위는 각 판매점별 170-400 mL로 차이가 있었으며, 제공 방법도 원액을 제공하거나 물 또는 얼음을 넣어 주는 곳 등 다양하였다. 커피음료 용량을 고려한 컵당 B[a]P 함량은 대형이 평균 2.30±1.53 (0.67-5.46) ng/cup, 중형이 1.65±1.27 (0.22-3.29) ng/cup 범위를 보였다.

B[a]P 함량 비율로 보면 10 ng/kg 이하인 아메리카노는 67%(66건), 콜드브루는 71%(10건)였으며, 1회 제공량으로 환산한 컵당 함량은 5 ng/cup 이하인 아메리카노가 89%(88건), 콜드브루가 93%(13건)으로 시료 대부분이 유사한 값들을 보였다. 시료 수의 차이는 있지만 커피 종류별 전체 분석 결과는 아메리카노가 10.73±9.18 ng/kg, 콜드브루가 9.43±6.51 ng/kg으로 Fig. 2에서와 같이 유의적인 차이는 없었지만 아메리카노가 다소 높게 검출되었다. 이는 다환방향족 탄화수소인 B[a]P가 고온에서 더 잘 추출되기 때문으로 생각된다.

아메리카노와 콜드브루의 B[a]P 함량은 ND-55.35 ng/kg (ND-15.22 ng/cup)으로 현재 식품공전에 있는 식품유형 중 가장 낮은 기준인 특수용도식품(1.0 μg/kg 이하) 보다 낮은 검출량을 보였다. 이는 분석 시료 중 가장 높은 B[a]P 함량을 보인 커피(55.35 ng/kg)를 65잔 섭취해도 위 기준을 초과하지 않을 정도로 낮은 수준으로, 일상에서 섭취하는 수준 안에서는 안전한 것으로 생각된다.

중금속 함량 분석

광주지역 커피 전문점에서 판매되고 있는 아메리카노 검체 100개 중 37개에서 납(Pb) 또는 카드뮴(Cd)이 검출되었다. 중금속 종류별로는 납이 33개, 카드뮴이 5개가 검출되었고, 납과 카드뮴 모두 검출된 것은 1개의 검체 뿐 이었다. 커피전문점 그룹별 수거 검체 중 대형은 16.7%, 중형은 15.4% 그리고 지역 커피전문점은 38.7%에서 납이 검출되었고, 카드뮴은 대형은 불검출, 중형과 지역 커피전문점에서는 각각 7.7%, 5.3%가 검출되었다. 그러나 아메리카노와 다르게 콜드브루 커피에서는 납과 카드뮴이 모두 검출되지 않았는데(Table 4), 이는 중금속 자체도 미량으로 함유되어 있고, 커피음료가 만들어지는 방법의 차이가 결과값에 영향을 미친 것으로 생각된다.

검출된 납의 함량은 대형과 중형에서 각각 1.00±2.31 μg/kg과 0.38±0.96 μg/kg으로 확인되었으나, 지역 커피전문점에서 3.59±6.88 μg/kg으로 확인되어 전국적인 판매망을 구축한 곳들 보다 지역 커피전문점에서 약 6배가량 유의적으로 높게 나타났다(Table 3). 아메리카노 전체 납 평균 함량은 2.84±6.14 μg/kg, 검출 범위는 ND-29 μg/kg으로 식품공전 식품별 기준 및 규격에 설정된 커피의 함량 기준인 2.0 mg/kg 이하보다 약 70배 이상 낮았다. 납 함량이 상대적으로 높게 검출된 지역 커피전문점의 경우에서도 커피음료 1회 제공량(cup)으로 계산했을 때 최대 함량이 14.55 μg/cup 정도로 확인되어 하루 137잔 이상을 섭취하여야 식품의약품안전처 기준을 초과하게 되는 수준이었다. 대형 및 중형 프랜차이즈보다 지역 커피전문점의 아메리카노에서 납 함량이 높게 나타난 정확한 이유를 본 연구에서는 확인할 수 없었으나, 커피음료가 만들어지는 과정 중 발생할 수 있는 다양한 조건의 차이에 의한 것으로 생각된다.

카드뮴은 대형에서는 검출되지 않았고, 중형에서 0.08±0.28 μg/kg, 지역에서 0.29±1.56 μg/kg으로 편차가 커 유의적인 차이는 확인하지 못하였다(Table 3). 아메리카노의 카드뮴 함량 평균값과 검출 범위 또한 각각 0.22±1.21 μg/kg, ND-12.00 μg/kg으로 매우 낮은 수치였으며, 카드뮴은 커피 내 기준 및 규격이 따로 없으나 비슷한 유형인 액상차의 기준 및 규격인 0.1 mg/kg과 비교하여도 현저히 낮은 수치임을 확인할 수 있었다. Mohammed 등[27]은 Misurata 지역 슈퍼마켓에서 판매하는 커피 원두 11개 시료 중 10개에서 납이 검출되었으며 검출 범위는 0.9-3.9 mg/kg였다고 보고하였고, da Silva 등[28]도 브라질 지역의 arabica L. 커피 시료 50개에서 0.075-1.575 mg/kg의 납이 검출되었다고 보고하였다. 이러한 연구 결과는 본 연구와 비교했을 때 적게는 약 2.6배, 많게는 134.5배 이상 높은 값이었는데, 이는 시료의 종류 및 추출 조건 등의 차이에 의한 것으로 생각된다. 비교적 높은 결과 값을 보인 Mohammed 등[27]의 연구에서는 커피 원두와 분말을 그대로 질산에 분해시켜 사용하였으나, 본 연구에서는 원두커피를 물로 추출한 커피음료인 아메리카노와 콜드브루를 시료로 사용해 물에 추출되어 나온 중금속만을 분석하였으므로 더 적은 양이 검출되었을 것으로 생각된다.

본 연구는 커피 원두 그 자체가 아닌, 실제 사람들이 섭취하는 가공 커피음료를 대상으로 중금속을 분석했다는 것에서 다른 연구들과 차별성을 지닌다. 연구 결과를 종합한 결과 현재 광주지역 커피 전문점에서 유통되고 있는 커피음료(아메리카노 및 콜드브루)의 중금속 함량은 비교적 안전한 수준으로 판단된다.

Acknowledgments

본 연구는 광주광역시 보건환경연구원 2020년도 연구사업의 지원으로 수행 하였습니다.

국문요약

본 연구는 광주지역 커피전문점에서 유통되고 있는 커피류 중 주요 성분인 카페인과 커피콩의 로스팅 과정에서 발생할 수 있는 유해 성분인 benzo[a]pyrene, 그리고 중금속(lead, cadmium) 등의 함량을 분석하였다. 커피음료는 대형(12), 중형(13) 프랜차이즈 그리고 지역 소규모 커피전문점(75) 등 100개 지점에서 총 114건(Americano 100건, Cold-brew 14건)을 구매하여 시험 검체로 하였고, 검체의 1회 제공량은 175-460 (Americano 220-460, Cold-brew 175-400) mL로 조사되었다. 커피음료의 성분 분석 결과 카페인은 0.25-1.49 mg/mL (72.58-290.18 mg/cup)으로 고카페인 함유 기준인 0.15 mg/mL를 상회하는 수준이었고, 1회 제공량 기준으로 일부 커피음료는 2잔만 섭취하여도 성인 카페인 최대 섭취 권고량인 400 mg/day를 초과하는 것으로 확인되었다. 벤조피렌(Benzo[a]pyrene)은 ND-55.35 ng/kg (ND-15.22 ng/cup)으로 분석되었다. 현재 커피음료에 대한 벤조피렌 함량 기준은 없으나 다른 식품유형의 기준인 1.0 μg/kg(특수용도식품) 이하 보다 낮은 수준으로 확인되었다. 중금속은 납(Pb)과 카드뮴(Cd)이 각각 ND-29.00 μg/kg (ND-8.4 μg/cup)과 ND-12.0 μg/kg (ND-4.7 μg/cup)의 분포를 보였으나 대부분이 불검출로 확인되었다. 본 조사를 통해 시중에 유통되고 있는 원두 추출 커피음료 중 벤조피렌과 중금속(납, 카드뮴)은 안전한 수준으로 확인되었으나, 카페인은 함량이 비교적 높게 확인되어 커피음료 섭취 시 카페인 함량에 대한 고려가 필요할 것으로 판단된다. 또한, 소비자를 위해 향후 커피음료에 카페인 함량 표시도 필요할 것으로 보인다.

Conflict of interests

The authors declare no potential conflict of interest.

ORCID

Keunyoung Ryu	https://orcid.org/0000-0002-7542-4268
Gyungri Gang	https://orcid.org/0000-0001-7780-5569
Hyemin Park	https://orcid.org/0000-0002-5238-9463
Jaerin Lee	https://orcid.org/0000-0003-1421-9022
Suyeon Choi	https://orcid.org/0000-0003-1192-2783
Eunhye Jo	https://orcid.org/0000-0001-7362-017X
Baesik Cho	https://orcid.org/0000-0002-1903-3254
Jinhee Kim	https://orcid.org/0000-0002-6550-4627

References

1. Park, Y.J., Lee, J.W., Han, J.J., (2021, April 16). Changes and prospects of 5 trends in the coffee industry. Retrieved from http://hri.co.kr/board/reportView.asp?firstDepth=1&secondDepth=1&numIdx=30141&isA=1
2. Korea Agro-Fisheries & Food Trade Corporation, (2021, April 21). Processed food segment market status (Coffee), Retrieved from https://www.atfis.or.kr/article/M001050000/view.do?articleId=3375&page=&searchKey=&searchString=&searchCategory=
3. Yoon, J.I., A study on caffeine contained in favorite drink. Master's thesis, Wonkwang University, Iksan, Korea (2009).
4. Do, Y.S., Kang, S.H., Kim, H.T., Yoon, M.H., Choi, J.B., Investigation on the consumption of caffeinated beverages by high school students in Gyeonggi-do. *J. Food Hyg. Saf.*, **29**, 105-116 (2014).
5. Kwon, I.B., Lee, Y.S., Woo, S.K., Lee, C.Y., Suh, J.G., A study on the determination of caffeine in coffee, black tea and green tea by high performance liquid chromatography. *J. Food Hyg. Saf.*, **5**, 213-217 (1990).
6. Kwon, H.D., Kim, B.J., Ku, H.S., Park, S.H., Lee, Y.J., Lee, M.O., Study on the contents of harmful substance in the extractions of coffee bean. A*nn. Rep. Busan Metro. City Ins. Health Environ*., **19**, 42-51 (2009). Retrieved from https://www.busan.go.kr/PageDownload.do?savename=s19-5.pdf
7. Ministry of Food and Drug Safety, (2021, April 21). Assessment of caffeine intake from foods, Retrieved form https://scienceon.kisti.re.kr/commons/util/originalView.do?cn=TRKO201500007410&dbt=TRKO&rn=
8. Jeong, Y.S., A study on caffeine Intake by beverage and its parents recognition of elementary students. Master's thesis, Chonnam National University, Gwangju, Korea (2008).
9. Tfouni, S.A.V., Serrate, C.S., Leme, F.M., Camargo, M.C.R., Reles, C.R.A., Cipolli, K.M.V.A.B., Frlani, R.P.Z., Polycyclic aromatic hydrocarbons in coffee brew: Influence of roasting and brewing procedures in two Coffea cultivars. *LWT*, **50**, 526-530 (2013).
10. U.S. Department of Health and Human Services, (2021, April 16). Toxicological profile for polycyclic aromatic hydrocarbons. Retrieved from https://www.atsdr.cdc.gov/toxprofiles/tp69.pdf
11. Sadikovic, B., Rodenhiser, D.I., Benzopyrene exposure disrupts DNA methylation and growth dynamics in breast cancer cells. *Toxicol. Appl. Pharmacol.*, **216**, 458-468 (2006).
12. Kim, D.S., Lee, K.B., Changes in benzo(a)pyrene content during processing of corn oil. *Korean J. Food Preserv.*, **16**, 75-81 (2009).
13. Kim, S.E., Kim, J.G., Lee, S.W., Lee, M.J., A study of roasting conditions on benzo[a]pyrene content in coffee beans. *J. Korean Soc. Food Sci. Nutr.*, **42**, 134-138 (2013).
14. Kruijf, N.D., Schouten, T., Van der Stegen G.H.D., Rapid determination of benzo[a]pyrene in roasted coffee and coffee brew by high-performance liquid chromatography with fluorescence detection. *J. Agric. Food Chem.*, **35**, 545-549 (1987).
15. Jimenez, A., Adisa, A., Woodham, C., Saleh, M., Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons in roasted coffee. *J. Environ. Sci. Health B*, **49**, 828-835 (2014).
16. Nam, H.J., Seo, I.W., Shin, H.S., Analysis of polycyclic aromatic hydrocarbon content in coffee beans with different preparation method. *Korean J. Food Sci. Technol.*, **41**, 157-161 (2009).
17. Gwangju-city, (2020, February 1). Delicious restaurants & cafe, Retrieved from https://blog.naver.com/PostList.nhn?blogId=gwangju_city&from=postList&categoryNo=30
18. Ministry of Food and Drug Safety, 2020. Korea Food Code, Korea. pp. 1492-1493.
19. Hu, S.J., Jin, S.H., Lee, K.H., Choi, D.M., Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons in processed foods. *Anal. Sci. Technol.*, **23**, 196-204 (2010).
20. Ministry of Food and Drug Safety, (2021, April 28). Test procedure for methods for Lead (Pb). Retrieved from https://www.foodsafetykorea.go.kr/foodcode/05_03.jsp?idx=65
21. European Food Safety Authority, Management of left-censored data in dietary exposure assessment of chemical substances. *EFSA J.*, **8**, 1557 (2010).
22. Roh H.S., (2021, April 22). Is caffeine in coffee bad for Body? Retrieved from https://www.dbpia.co.kr/journal/articleDetail?nodeId=NODE02213407
23. Korea Consumer Agency, (2021, April 21). A study on the safety of take-out coffee. Retrieved from https://www.cis zs. go.kr/www/selectBbsNttView.do?bbsNo=84&nttNo=32308 &key=187
24. Eun, J.B., Jo, M.Y., Im, J.S., Physicochemical characteristics of coffee extracts using different extraction methods. *Korean J. Food Sci. Technol.*, **46**, 723-728 (2014).
25. Fuller, M., Rao, N.Z., The effect of time, roasting temperature, and grind size on caffeine and chlorogenic acid concentrations in cold brew coffee. *Sci. Rep.*, **7**, 17979 (2017).
26. Korea Ministry of Government Legislation, (2021, April 23). Act on Labeling and Advertising of Foods. Retrieved from https://elaw.klri.re.kr/eng_mobile/viewer.do?hseq=50140&type=sogan&key=31
27. Mohamed, H.O., Elsherif, K.M., Alkherraz, A., Heavy metals contents in some commercially available coffee, tea, and cocoa samples in Misurata City -Libya. *Prog. Chem. Biochem. Res.*, **2**, 99-107 (2019).
28. da Silva, S.A., Mendes, F.Q., Reis, M.R., Passos, F.R., de Carvalho, A.M.X., de Oliveria, K.R., Pinto, F.G., Determination of heavy metals in the roasted and ground coffee beans and brew. *Afr. J. Agric. Res.*, **12**, 221-228 (2017).