pISSN 1229-1153 / eISSN 2465-9223 *J. Food Hyg. Saf.*
Vol. 36, No. 2, pp. 148~153 (2021)
https://doi.org/10.13103/JFHS.2021.36.2.148

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

천연 당류에서 탄소동위원소비율 분석을 통한 C4슈가 혼입 여부 모니터링

최희진* · 이재규 · 김애경 · 정보경 · 이윤정 · 이경아 · 이용철 · 신기영
서울특별시보건환경연구원

Detection of Adulterated Natural Sweeteners by Carbon Isotopic Ratio Analysis

Hee-jin Choi[1]*, Jae-kyoo Lee, Ae-kyung Kim, Bo-kyeng Jung, Yun-jeong Yi, Kyung-ah Lee, Yong-cheol Lee, Gi-young Shin
Seoul Metropolitan Government Research Institute of Public Health and Environment, Gwacheon, Korea

(Received January 26, 2021/Revised February 4, 2021/Accepted February 25, 2021)

ABSTRACT - Analyses of stable carbon isotope, major sugar composition and artificial sweeteners of 124 sugar products were conducted to evaluate authenticity. Based on the measured δC values, 3 of the 23 circulated honey samples were considered adulterated with C4 sugar. None of the 23 local honey products of Seoul was adulterated; δC was from -26.09 to -22.99‰. In addition, the range for sugar-fed honeys was from -14.58 to -11.52 at the C4 origin (n=11). In the case of coconut sugar, the range of δC was from -25.72 to -15.87‰ and 3 samples were considered adulterated with C4 sugar. Of 12 maple syrups just one was adulterated. Agave syrup, a CAM plant sugar showed C4 origin with values, from -11.42 to -10.92‰ (n=12); values of cane sugar ranged from -12.60 to -11.40‰ (n=10) and values for corn taffy syrup ranged from -11.70 to -10.93‰ (n=5). Based on measured fructose/glucose ratios, some agave syrups were considered authentic at 3.2-49.7 (17.3±13.7), and none of the samples contained artificial sweeteners.

Key words: Stable carbon isotope ratio, Honey, Coconut sugar, Maple syrup, Adulteration

건강에 대한 소비자들의 관심이 높아지면서 정제설탕(사탕수수당) 대신 코코넛슈가, 꿀, 메이플시럽 등 천연당류에 대한 소비가 늘고 있다. 특히 코코넛슈가, 아가베시럽 등은 혈당지수가 설탕보다 낮아 건강에 도움이 된다고 알려져 있다[1,2]. 그러나 천연당류는 사탕수수당에 비해 10-20배 정도 가격이 높고 생산량이 적어 일부 사탕수수당이나 고과당옥수수시럽(high fructose corn syrup, HFCS) 등이 혼입된 부정 당류가 유통될 가능성이 있다[3]. 미국 의회조사국에 따르면 보고된 전체 가짜 식품 가운데 꿀, 천연당류가 차지하는 비율이 4.6%이며, 이는 주로 꿀, 메이플시럽 등 고가의 당류에 옥수수시럽, 설탕시럽 등 저가의 당류를 혼입하는 방법으로 시장질서를 교란하고 있다[4]. 이를 확인하기 위하여 자당, 포도당, 과당 등 당조성을 분석하여 혼입된 설탕이나 옥수수시럽을 확인하는 방법이 사용되어 왔으나 교묘하게 조성을 맞추는 경우 혼입여부를 알 수 없다[3]. 안정동위원소기법은 원산지를 판별하거나 혼입여부를 감별하는 데 뛰어난 도구로, 벌꿀, 육류, 유제품, 과일주스 등의 당 혼입여부 판별에 적용하려는 연구가 유럽 등 국외에서 활발히 진행되고 있으나 국내 연구는 많지 않다[5-14]. 식품공전에서는 2017년부터 벌꿀의 규격기준 중 탄소동위원소비율을 두고 있고 Association of official analytical chemists (AOAC)에서도 벌꿀과 메이플시럽에 탄소동위원소비율을 근거한 기준을 두고 있다[15,16].

탄소동위원소비율분석법은 식물이 대기 중의 이산화탄소를 당으로 고정시키는 광합성 방법에 따라 탄소동위원소의 비율($^{13}C/^{12}C$)이 달라지는 것에 근거한 방법으로 Calvin cycle을 이용하는 C3식물은 -35에서 -20‰(중앙값 -27‰), Hatch-Slack cycle을 이용하는 C4식물은 -18에서 -7‰(중앙값 -14‰), Crassulacean acid metabolism의 CAM식물은

*Correspondence to: Hee-jin Choi, Seoul Metropolitan Government Research Institute of Public Health and Environment, Gwacheon 13818, Korea
Tel:+82-2-570-3118, Fax: +82-2-570-3112
E-mail: merryyear@seoul.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.

-22에서 -10‰의 범위를 가진다[3,7]. 95%의 식물은 C3식물에 속하여 벌꿀, 코코넛슈가, 메이플시럽 등이 C3당으로 분류되며, C4식물인 사탕수수와 옥수수를 원료로 하여 생산되는 설탕과 고과당옥수수시럽은 C4당으로, *Agave salmiana, A. tequilana* 등 CAM식물로 만든 아가베시럽은 CAM당에 속한다[2,9]. 본 연구는 유통 고가 당류에 탄소동위원소비율 분석법을 적용하여 혼입여부를 검증하여 건전한 유통질서 확립에 기여하고 분석법 제정을 위한 기초자료를 제공하고자 한다.

Materials and Methods

시료

시중에 유통되는 코코넛슈가 20건, 벌꿀제품 23건(기타 가공품 2건 포함), 사양벌꿀 11건, 서울시에서 만든 도시영농벌꿀 23건, 메이플시럽 12건, 아가베시럽 12건, 설탕(사탕수수당) 10건, 옥수수전분으로 만든 물엿 5건, 쌀로 만든 물엿 및 올리고당 8건까지 총 124건을 대상으로 실험을 수행하였다.

표준물질 및 시약

탄소동위원소비율 분석을 위한 표준물질로는 국제원자력기구(international atomic energy agency, IAEA)에서 인증한 sucrose (IAEA-CH-6, IAEA, Vienna, Austria)를 사용하였고, 당 분석용 표준물질로 S-(-)-fructose (Sigma, St. Louis, MO, USA), D-(+)-glucose (Sigma, St. Louis, MO, USA), sucrose (Sigma, St. Louis, MO, USA), D(+)-maltose monohydrate (Wako, Osaka, Japan)를 사용하였고, 인공감미료 표준물질로 saccharine sodium salt (TRC, Toronto, Canada), acesulfame potassium (Dr. Ehrenstorfer Gmbh, Augsburg, Germany), aspartame (Wako, Osaka, Japan)을 사용하였다. 추출용 시약과 용매는 sodium tungstate (Sigma, St. Louis, MO, USA), sulfuric acid (Wako, Osaka, Japan), acetonitrile (Merck, Darmstadt, Germany)을 사용하였다.

안정탄소동위원소비율 기기조건 및 분석방법

탄소동위원소비율분석은 식품공전과 AOAC 984.23을 따랐으며[15,16], 분석기기는 원소분석기(variao ISOTOPE cube, Elementar, Langenselbold, Germany)가 장착된 안정동위원소질량분석기 (Isoprime, PrecisION, Langenselbold, Germany)를 사용하였다. 표준기체로 이산화탄소를, 운반기체로 헬륨을 사용하였다(순도 99.9999%). 시료는 수분에 의한 간섭을 줄이기 위하여 분말시료는 75°C, 3 h 건조 후 측정하였고, 액상시료는 분석 직전 개봉하여 바로 측정하였다. 시료 100-200 μg을 tin boat에 감싸서 분석하였으며, 산화관 1050°C, 환원관 850°C이고, 총 5회 분석하여 평균값을 사용하였다.

C4슈가 함량 분석

혼입된 C4당의 함량을 분석하기 위해 AOAC 998.12 및 Cengiz 등[17] 의 방법을 따라 단백질을 침전시켜 탄소동위원소비율을 측정하였다. 약술하면, 검체 10 g에 증류수 20 mL첨가하여 80°C 수욕조에서 완전히 용해한 후, 10% sodium tungstate 5 mL, 0.335 M sulfuric acid 5 mL을 첨가하여 섞고, 80°C 수욕조에서 2시간 정치하여 단백질을 침전시킨다. 1시간이 지나도 floc이 형성되지 않으면 10% sodium tungstate 4 mL을 추가한다. 300 g, 20분 동안 원심분리하여 상등액은 버리고 증류수 40 mL을 첨가하여 원심분리 5회 반복한 후, 당을 완전히 제거하고 남은 pellet을 75°C, 3시간 건조하여 탄소동위원소비를 측정한다. 계산식은 다음과 같다.

$$\text{C4 sugar}(\%) = \frac{\delta^{13}C_p - \delta^{13}C_H}{\delta^{13}C_p - (-9.7)} \times 100$$

$\delta^{13}C_H$: 검체의 탄소동위원소비,
$\delta^{13}C_p$: 침전시킨 단백질의 탄소동위원소비

당 조성 및 인공감미료 분석

당 조성은 식품공전법을 수정하여 사용하였다[15]. 시료 1-2 g을 증류수 50 mL에 용해시킨 후 acetonitrile을 가하여 100 mL로 정용한 후, 0.45 μm 실린지 필터로 여과하여 액체크로마토그래피(high-performance liquid chromatography, HPLC) (ACQUITY HPLC H-Class, Waters Co., Ltd., Milford, MA, USA)로 분석하였다. 검출기는 evaporative light scattering detector (ELSD)이며 주입량 20 μL, 이동상은 75% acetonitrile, 유속 1.0 mL/min, carbohydrate (250 mm, 4.6 mm) 컬럼을 사용하였으며, 분석조건은 drift tube 50°C, 컬럼 35°C, nebulizer cooling mode이다.

인공감미료는 식품공전 제8.3.2.2 아세설팜칼륨, 사카린나트륨, 아스파탐 동시분석법으로 분석하였다[15]. 시료 약 5 g에 증류수를 가하여 50 mL로 하여 0.45 μm 필터로 여과한 후 자외선흡광검출기를 장착한 HPLC (Agilent 1200, Agilent Technologies, Santa Clara, CA, USA)를 사용하여 파장 210 nm에서 분석하였다.

Results and Discussion

탄소동위원소비율 측정값은 Fig. 1과 같다. 쌀로 만든 물엿 및 올리고당, 메이플시럽, 코코넛슈가, 벌꿀은 C3당, 아가베시럽은 CAM당이고, 벌에게 설탕을 먹여 만든 사양벌꿀, 옥수수로 만든 물엿, 사탕수수당은 C4식물 유래 당이다. C4당류인 옥수수물엿은 평균 -11.35±0.34‰로 가장 높았으며, 사탕수수당은 -12.07±0.32‰로 다른 문헌과 유사하였다[7,10]. 비교적 저가인 C3당류인 쌀물엿 및 올리고당은 -27.05±0.26‰로 다른 C3당류보다 가장 낮았다. Jahren

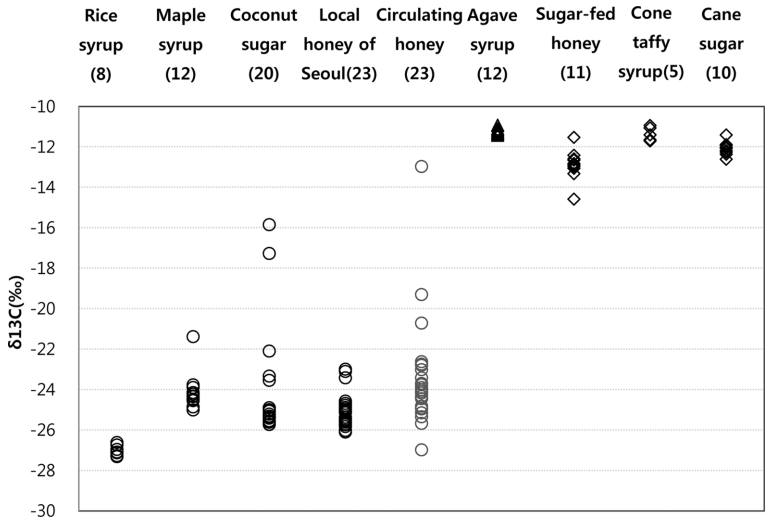

Fig. 1. Carbon stable isotope analysis of C4 (○), C3 (◇), and CAM sugar (△). Numbers in parentheses represent the number of food items analyzed in each category.

등[7]은 옥수수제품에서 -11.66 에서 -10.22‰, 사탕수수당에서 -12.71에서 -11.59‰, 쌀에서 -26.54에서 -26.88‰로 보고하였다. 사탕수수당은 흑설탕과 비정제설탕에서 미량의 glucose와 fructose가 검출되었으며 이외에는 전부 sucrose만 검출되었고, 옥수수물엿에서는 maltose만이 356.2-408.9 mg/g, 쌀엿 및 쌀 올리고당에서는 glucose와 maltose가 검출되었다(Fig. 2). 모든 시료에서 인공감미료인 사카린나트륨, 아세설팜칼륨, 아스파탐은 검출되지 않았다.

벌꿀

유통벌꿀 23건 중 식품공전의 탄소동위원소비율기준인 -22.5‰를 초과하는 것은 총 3건으로 그 값은 -12.96, -19.29, -20.70‰ 이었으며, 부적합을 제외한 제품의 평균은 -24.24±1.09‰이었다. 서울시 도시영농사업으로 제조된 벌꿀 23건은 모두 기준 이내였으며 -26.09에서 -22.99‰ (25.04±0.84)이었다. 꽃이 피지 않는 계절에 설탕시럽을 먹여 만든 사양벌꿀은 -12.89±0.73‰로 사탕수수당(-12.07±0.32‰)과 유사하였다(Fig. 1). Tosun[13]은 순수한 벌꿀의 탄소동위원소비율을 -25.73±0.29‰로 보고하였고, Dorner 등[14]은 평균 -25.4±3.7‰, Banergee 등[5]은 -25.7±1‰로 보고하였는데, 이는 도시영농벌꿀의 결과와 유사하였다. 그러나 다른 당류에 비해 유통 벌꿀의 탄소동위원소비율의 표준편차가 비교적 크고(유통벌꿀 1.09, 서울시도시영농벌꿀 0.84, 유통사양벌꿀 0.73) 기존의 보고된 벌꿀에 비해서도 평균값이 높았다. 이는 겨울철 설탕으로 사양하던 기간에 생산한 벌꿀이 이후 계절에도 영향을 미치기 때문인 것으로 보인다. F/G값의 경우 도시영농벌꿀은 1.3-2.2 (1.6±0.3), 유통벌꿀은 0.9-1.6 (1.3±0.2) 사양벌꿀은 1.0-1.3 (1.1±0.1)으로 비교적 일정하였다(Fig. 2). 모든 벌꿀을 탄소동위원소비율을 기준으로 나누었을 때, 적합인 -22.5이하인 벌꿀의 F/G비율은 1.5±0.3, 사양벌꿀 및 부적합인 벌꿀의 F/G비율은 1.1±0.1 이었다(Fig. 3). Jung 등[6]은 대구 유통 벌꿀 40건을 분석한 결과, 벌꿀의 F/G 비율은 1.4-1.7(평균 1.58), 사양벌꿀은 1.14-1.17 (평균 1.15)로 보고하여 본 연구와 유사하였다.

코코넛슈가

C3 당류인 코코넛슈가 20건의 탄소동위원소비율은 -25.72에서 -15.87‰로 일부가 C3식물의 범위를 초과하였다(Fig. 1). 식품공전의 벌꿀의 탄소동위원소비율기준인 -22.5‰을 적용하였을 경우, 3건이 C4당류가 혼입된 것으로 보이며(-15.87‰, -17.27‰, -22.10‰), AOAC의 메이플시럽 기준인 -23.49‰ 적용 시 1건이 더 추가되어 (-23.33‰) 총 4건이 C4당류가 혼입된 것으로 보인다.

코코넛슈가의 단백질을 추출 후 탄소동위원소비율을 측정하여 C4당류 혼입량을 측정한 결과는 Table 1과 같다. 혼입 추정량은 9.5-63.4%로 AOAC의 벌꿀 기준인 7%를 적용하면 모두 혼입된 것으로 보인다. 이는 코코넛꽃의 수액을 농축시켜 결정화시키는 과정 중 결정핵으로 저렴한 설탕인 사탕수수당을 첨가했을 가능성을 보여 준다.

타 연구 사례를 보면, Inaizumi 등[11]은 갓 짠 코코넛워터 13개의 탄소동위원소비율을 -26.40에서 -23.76‰로 보고하였고, 이에 비해 시판되는 코코넛워터 17개 가운데 11개에서 외부 유래 당이 혼입되어 있다고 보고하였다. Psomiadis 등[12]은 실험실에서 짠 코코넛워터 30건을 분석했을 때, 원심분리하여 얻은 펄프는 -27.7에서 -24.1‰, 상등액의 당에서는 -25.7에서 -22.9‰ 범위로 나왔고, 시판 코코넛워터 24건의 경우 펄프는 -26.3에서 -22.9‰, 당에서는 -25.1에서 -17.6‰로 당과 펄프의 탄소동위원소비 차이가 3‰ 이상이고 당의 값이 -21‰보다 큰 5개의 시료를 C3당

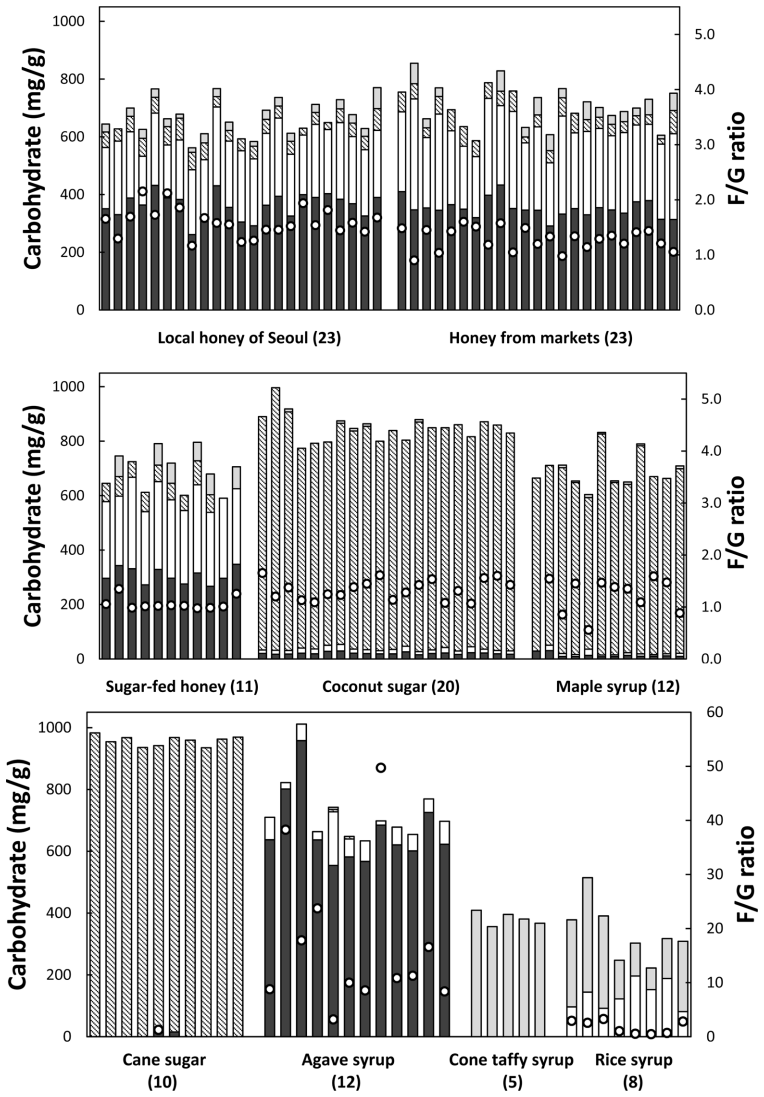

Fig. 2. Carbohydrates amount in honey, coconut sugar, cane sugar, maple syrup, agave syrup. ■ Fructose □ Glucose ▨ Sucrose ▩ Maltose ○ F/G ratio.

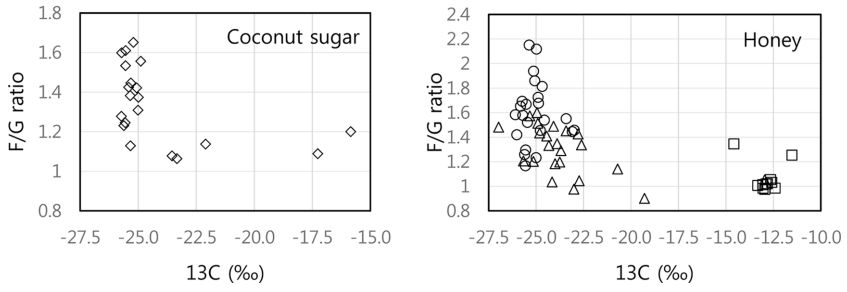

Fig. 3. Scattered plot of δ13C values and F/G ratios of coconut sugar (◇) and honey. ○ Local honey of Seoul △ Circulated honey □ Sugar-fed honey.

혼입으로 규정하여 코코넛워터의 혼입률이 20%에 달했다. 이를 종합해 보면, 20건의 코코넛슈가 중 3개(15%)에서 C4 유래 당이 혼입되었다고 볼 수 있다. 또한 이는 Turkey의 사분위수를 바탕으로 한 이상치(outlier)와 일치한다[18].

F/G값은 1.3±0.2로 비교적 일정하였으며, C4 당류가 혼입된 것으로 추정되는 3건의 시료의 F/G이 1.1±0.1로 비교적 낮은 편이었다(Fig. 3). 주 성분은 sucrose로 733.9-964.1 mg/g이었고 fructose가 15.8-29.5 mg/g, glucose가

Table 1. Estimation of the C4 sugar content of the coconut sugar samples

Sample	13C‰	Protein 13C‰	Estimate of C4 sugar content (%)
Coconut1	-25.21	-28.43	17.2
Coconut2	-15.87	-26.57	63.4
Coconut3	-25.00	-28.54	18.8
Coconut4	-25.34	-28.66	17.6
Coconut5	-17.27	-27.73	58.0
Coconut6	-25.56	-27.77	12.2
Coconut7	-25.62	-27.64	11.3
Coconut8	-25.35	-27.74	13.3
Coconut9	-25.32	-27.47	12.1
Coconut10	-25.54	-28.24	14.6
Coconut11	-22.10	-28.17	32.9
Coconut12	-25.73	-27.72	11.1
Coconut13	-25.07	-28.12	16.6
Coconut14	-25.55	-28.33	14.9
Coconut15	-23.55	-28.43	26.1
Coconut16	-25.01	-27.53	14.1
Coconut17	-23.33	-28.25	26.5
Coconut18	-24.89	-26.49	9.5
Coconut19	-25.72	-28.24	13.6
Coconut20	-25.41	-28.18	15.0

11.1-24.0 mg/g이었다.

메이플시럽

12건 중 1건이 탄소동위원소비율 -21.38‰로 AOAC 기준인 -23.49‰을 초과하여 C4당이 혼입된 것으로 확인되었다. 그외 메이플시럽의 평균 탄소동위원소비율은 -23.76에서 -25.99‰ (-24.37±0.37)이었다. Chartrand 등[19]은 캐나다산 메이플시럽의 탄소동위원소비율을 -23.69에서 -24.93‰으로 보고하였고, Banerjee 등[5]은 -26.2에서 -23.4‰로 보고하였다.

F/G값의 경우 탄소동위원소비율에서 부적합 판정을 받은 1건에서 glucose가 검출되지 않았고 나머지는 0.6-1.6 범위로 나타났다(Fig. 2). Mogica 등[20]은 0.59-0.90 범위로 보고하였다. 메이플시럽은 단백질 침전이 되지 않아 단백질의 탄소동위원소비율을 측정할 수 없었다. 당은 대부분 sucrose로 556.1-811.8 mg/g이었으며, fructose가 8.6-30.86 mg/g이었다. 미국 농무부 데이터베이스에 의하면[21] 메이플시럽은 100 g 당 단백질함량이 0 g으로, 단백질 침전법이 아닌 다른 함량추정법이 필요한 것으로 보인다. 메이플시럽은 12건 모두 캐나다산이다.

아가베시럽

12건의 탄소동위원소비율은 -11.42에서 -10.92‰ (-11.21±0.16)로 C4 식물과 비슷한 유형을 보였다. 아가베시럽의 원료인 용설란은 CAM식물로 성장환경에 따라 C3 및 C4와 유사한 광합성 경로를 나타낼 수 있다[18]. 사탕수수당(-12.07±0.32‰)이나 옥수수물엿(-11.35±0.34‰)과 통계적으로 유의한 차이는 있으나 혼입을 규정하기에는 어려움이 있었다. F/G 비율은 3.2-49.7로 편차가 매우 큰 편이었는데, 문헌상 8-10정도 임을 감안할 때[3,20], 혼입우려가 있는 것으로 사료된다(Fig. 2). 이 경우 단백질 함량이 0.1 g/100 g의 소량이므로 단백질침전법을 적용할 수 없었다. 코코넛슈가, 벌꿀의 단백질 함량이 각각 1.3 g/100 g, 0.3 g/100 g 수준이므로 전처리 시료량을 10 g에서 30 g으로 늘려보았으나 침전이 되지 않았다. 12건 모두 멕시코산이다.

Conclusion

탄소동위원소비율 분석 결과, 15%의 코코넛슈가에서 C4당 혼입을 확인하였다. 단백질침전법으로 C4당의 함량을 확인한 결과, 모든 코코넛슈가에서 C4당의 함량이 9.5-63.4%였다. 이는 영세공장이 코코넛슈가를 제조하는 과정에서 농축된 코코넛꽃 수액을 결정화시킬 때 설탕을 핵으로 사용하기 때문으로 사료되며, 반드시 이에 대한 기준을 수립해야 할 것으로 보인다. 벌꿀의 경우 도시영농으로 제조된 벌꿀은 모두 식품공전의 기준에 적합하였으나, 유통벌꿀의 경우 22건 중 3건(13.6%)이 부적합 판정되었다. 부적합 시료 중 1건은 기타가공품으로 함량이 아카시아벌꿀 99%와 프로폴리스 1%로 표시되어 있으나, 탄소동위원소비 결과 -12.96‰로 사양벌꿀이나 설탕과 유사한 값을 얻었다. 다른 기타가공품 1건은 -25.67‰로 적합하였다. 그 외 시료의 식품유형은 벌꿀로, 벌꿀류 하위에 벌꿀 가공품이 필요한 것으로 보이며 이에 단백질침전법을 사용한 함량기준의 설정이 필요한 것으로 판단되었다. 또한 메이플시럽 12건 중 1건이 AOAC의 메이플시럽 기준에 부합하지 않았다. 이에 식품공전 당시럽류의 하위로 메이플시럽을 설정하고 탄소동위원소비율 규격 추가가 필요한 것으로 판단되었다. 아가베시럽은 CAM 당으로 C4당류와 범위가 겹치기에 향후 추가 연구가 필요하다.

국문요약

유통 당류(n=124)에서 C4슈가 혼입여부를 확인하기 위하여 탄소동위원소비율(δC), 당조성, 인공감미료를 분석하였다. 탄소동위원소비율 분석 결과, 유통벌꿀(n=23) 중 3건(13.6%)에서 C4슈가가 혼입된 것으로 판정되었고 도시영농으로 제조된 벌꿀(n=23)은 모두 식품공전의 기준에 적합하였다(-26.09–-22.99‰). 사양벌꿀(n=11)의 탄소동위원

소비율 범위는 -14.58에서 -11.52‰로 C4당의 특성을 보였다. 코코넛슈가(n=20)의 δC값은 -25.72에서 15.87‰로 3건에서 C4당류가 혼입된 것으로 판단되었다. 단백질침전법으로 C4당의 함량을 확인한 결과, 모든 코코넛슈가에서 C4당이 최저 9.5%에서 최고 63.4% 검출되었다. 메이플시럽(n=12) 중 1건이 AOAC의 메이플 시럽 기준에 부합되지 않았다. CAM 당류인 아가베시럽(n=12)은 -11.42에서 -10.92‰ 범위로 C4당류와 범위가 겹쳐서 추가 연구가 필요하다. C4당인 사탕수수당(n=10)의 탄소동위원소비율은 -12.60에서 -11.40‰이었고, 옥수수물엿(n=5)은 -11.70에서 -10.93‰이었다. Fructose/glucose 비율 측정 결과, 일부 아가베시럽에서 혼입이 의심되었다(3.2-49.7). 모든 시료에서 인공감미료는 검출되지 않았다.

Conflict of interests

The authors declare no potential conflict of interest.

ORCID

Hee-jin Choi https://orcid.org/0000-0002-0711-5543
Jae-kyoo Lee https://orcid.org/0000-0002-6419-8445
Ae-kyung Kim https://orcid.org/0000-0001-7119-4648
Bo-kyeng Jung https://orcid.org/0000-0002-2986-4422
Yun-jeong Yi https://orcid.org/0000-0001-9989-1576
Kyung-ah Lee https://orcid.org/0000-0002-1930-8385
Yong-cheol Lee https://orcid.org/0000-0002-4771-1032
Gi-young Shin https://orcid.org/0000-0001-6825-5219

References

1. Trinidad, T.P., Mallillin, A.C., Avena, E.M., Godriguez, R.G., Borlagdan, M.S., Cid, K.B.B., Biona, K.T., Coconut sap sugar and syrup: A promising functional food/ingredient. *Acta Manilana*, **63**, 25-32 (2015).
2. Stewart, J.R., Agave as a model CAM crop system for a warming and drying world. *Front. Plant Sci.,* **6**, 684 (2015).
3. Thomas, F., Hammond, D., (2020, May 12). Plant-derived sugars and sweeteners. Retrieved from https://doi.org/10.32741/fihb.9.sugar
4. Johnson, R., 2014. Food Fraud and "Economically Motivated Adulteration" of Food and Food Ingredients, Congressional Research Service, Washington D.C., USA, pp. 23.
5. Banergee, S., Kyser, T.K., Vuletich, A., Leduc, E., Elemental and stable isotopic study of sweeteners and edible oil: Constraints on food authentication. *J. Food Compos. Anal.*, **42**, 98-116 (2015).
6. Jung, C., Cho, E., Lee, S., Chon, J.W., Quality characteristics of honey on the market: case study from Daegu-Gyeongbuk provinces. *J. Apic.*, **32**, 51-18 (2017).
7. Jahren, A.H., Saudek, C., Yeung, E.H., Kao, W.H.L., Kraft, R.A., Caballero, B., An isotopic method for quantifying sweeteners derived from corn and sugar cane. *Am. J. Clin. Nutr.,* **84**, 1380-1384 (2006).
8. Osorio, M.T., Moloney, A.P., Schmidt, O., Monahan, F.J., Multielement isotope analysis of bovine muscle for determination of international geographical origin of meat. *J. Agric. Food Chem.,* **59**, 3285-3294 (2011).
9. Cho, Y.J., Kim, J.Y., Chang, M.I, Kang, K.M., Park, Y.C., Kang, I., Do, J.A., Kwon, K., Oh, J.H., A study on stable isotope ratio of circulated honey in Korea. *Korean J. Food Sci. Technol.,* **44**, 401-410 (2012).
10. Padovan, G.J., Rodrigues, L.P., Lemo, I.A., Jong, D.D., Marchini, J.S., Presence of C4 sugars in honey samples detected by the carbon isotope ratio measured by IRMS. *Eur. J. Anal. Chem.,* **2**, 134-141 (2007).
11. Imaizumi, V.M., Sartori, M.M.P., Ducatti, C., Filho, W.G.V., Use of stable isotopes of carbon to detect coconut water adulteration. *Sci. Agric.,* **76**, 261-265 (2019).
12. Psomiadis, D., Zisi, N., Koger C., Horbath, B., Sugar-specific carbon isotope ration analysis of coconut waters for authentication purposes. *J. Food Sci. Technol.,* **55**, 2994-3000 (2018).
13. Tosun, M., Detection of adulteration in honey samples added various sugar syrups with 13C/12C isotope ratio analysis method. *Food Chem.,* **138**, 1629-1632 (2013).
14. Dorner, L.W., White, J.W., Carbon-13/carbon-12 ratio is relatively uniform among honeys. *Science,* **197**, 891-892 (1977).
15. Korean Ministry of Food and Drug Safety, 2020. Food Code. Retrieved from https://www.foodsafetykorea.go.kr/foodcode/01_01.jsp
16. Association of Official Analytical Chemists, 1990. Official Methods of Analysis of AOAC, 15th Edition. Maryland, USA. Retrieved from https://www.elementar.com/en/applications/application-explorer/detection-of-c4-adulteration-of-honey-according-to-aoac-99812
17. Cengiz, M.F., Durak, M.Z., Ozturk, M., In-house validation for the determination of honey adulteration with plant sugars (C4) by isotope ratio mass spectrometry (IR-MS). *LWT-Food Sci. Technol.,* **57**, 9-15 (2014).
18. Tukey, J.W., 1977. Exploratory Data Analysis. Addison-Wesley, MA, USA, pp. 43-47.
19. Chartrand, M.M.G., Mester, Z., Carbon isotope measurements of foods containing sugar: A survey. *Food Chem.,* **300**, 125106 (2019).
20. Mellado-Mojica, E., Seeram, N.P., López, M.G., Comparative analysis of maple syrup and natural sweeteners: Carbohydrates composition *and* classification (differentiation) by HPAEC-PAD and FTIR spectroscopy-chemometrics. *J. Food Compos. Anal.,* **52**, 1-8 (2016).
21. U.S. Department of Agriculture, (2021, April 28). FoodData central. Retrieved from https://fdc.nal.usda.gov/fdc-app.html#/food-details/170276/nutrients