

돼지고기 삼겹살의 무기성분을 활용한 원산지 판별

특수검사팀

장미라* · 김남훈 · 조주연 · 박주현 · 김애경 · 유인실 · 신용승

Discrimination of Geographical Origin by Inorganic Elements in Pork Belly

Special Inspection Team

**Mi-ra Jang*, Nam-hoon Kim, Ju-yeon Jo, Ju-hyun Park,
Ae-kyung Kim, In-sil Yu and Yong-seung Shin**

Abstract

This study was conducted to determine the geographical origin of pork belly by combining energy dispersive X-ray fluorescence spectrometry with statistical analysis. In 2019, 100 pork belly samples(50 Korean domestic samples and 50 Imported samples) were collected for building geographical origin models. The concentrations of 15 detected inorganic elements were applied to perform canonical discriminant analysis for the determination of geographical origin. The sensitivity, specificity, and efficiency for the above method were 98.0, 98.0, and 98.0%, respectively. As a result of verifying the geographical origin with 30 domestic and 30 imported samples collected in 2019, the domestic predictive rate was 100% and the foreign predictive rate was 93.3%. The results showed that the combination of energy dispersive X-ray fluorescence spectrometry and chemometrics could be used to discriminate the geographical origin of pork belly effectively.

Key words : discrimination, geographical origin, pork belly, ED-XRF

서 론

우리나라에서 가장 소비량이 많은 육류는 돼지고기이다. 돼지고기는 양질의 단백질 공급원으로 섬유소가 가늘어 소화가 잘 되고 영양소 중 비타민 B₁, B₂, 니아신이 소고기나 곡류보다 많이 들어 있다. 지난 1980년 6.3kg이었던 우리나라의 1인당 돼지고기 소비량은 매년 3.9%씩 증가해 2018년에는 연평균 27.0kg에 달한다(1, 2). 또한 WTO 출범 이후 돼지고기의 수입량은 매년 늘어나고 국내 시장의 수입산 돼지고기 유통량도 계속 증가하는 추세이다. 2019년 5월 기준 국내산 돼지고기 소매가격은 수입 삼겹살에 비해 약 2배 비싸지만 유통과정에서 원산지 검증이 어렵기 때문에 외국산 돼지고기를 국내산으로 판매하는 부정 유통으로 인해 소비자와 생산농가들의 피해가 발생하고 있다(3). 원산지 검정법에는 주로 유전자분석 및 동위원소 분석을 이용한 이화학적 분석 등이 개발되어 있다. 우리나라에서 돼지고기는 주로 흰색계통의 랜드레이스종, 요크셔종, 유색계통의 듀록종, 버크셔종이 사육되고 있으며 1908년을 전후하여 외래종과 재래종의 교배가 이루어져 유전자적으로 국내산과 외국산의 구분이 어려운 실정이다. 이에 따라 돼지고기의 경우 품종 개량, 도입종과 재래종의 교배로 인해 유전자 분석을 통한 검정방법은 한계가 있다. 또한 육류는 부위 및 등급이 다양하여 육안으로 원산지 식별이 쉽지 않으며 포장유통과 복잡한 유통 경로 때문에 과학적이고 신속한 원산지 검정법이 필요하다(4). 소비자와 국내축산업자, 국산 제품 보호를 위해서도 원산지 표시위반을 분별하기 위한 농식품의 원산지 검정법은 필수적으로 요구된다.

Energy Dispersive X-ray Fluorescence Spectrometry(ED-XRF)는 고전압으로 발생한 강한 X-선을 시료에 조사하여 형광현상에 의해 함유된 무기원소별로 방출되는 고유의 형광 X-선을 검출하는 방법이다. 이 결과로 나타난 원소의 종류와 양을 그룹별로 판별분석하여 검정시료의 원산지를 판별하는데 활용될 수 있다. ED-XRF는 분말 형태의 시료 이외 별도의 전처리 과정이 필요하지 않다. 따라서 전처리 과정에서 발생하는

오차가 적고 분석 비용이 저렴하며 분석 소요 시간이 짧고 여러 무기원소의 동시 분석이 가능한 비파괴 분석법이다(5). 일반적으로 국내산과 외국산 농식품은 재배되는 토양 특성의 차이, 관리방법, 기후 등에 따라 무기질 함량차이가 있어 ED-XRF를 이용하여 국산과 외국산 농식품 및 한약재의 다량 무기질 함량을 분석하여 원산지 판별이 가능하다(3, 4). 최근 ED-XRF를 사용하여 Lee 등(7)이 콩의 원산지 판별을 수행하였고 조 등(8)이 땅콩, Worku 등(9)이 커피, Opati 등(10)이 마늘, Choi 등(11)이 참깨, Kang 등(12)이 청국장, Bae 등(13)이 숙지황, Moon 등(14)이 황금 등 다양한 농산물과 한약재에 대해 원산지 판별을 수행하였다. 사회적 소비트렌드 변화에 따라 소비자들은 원산지에 대한 정확한 정보를 알고 싶어 하며 이는 식품구매에 많은 영향력을 미친다.

본 연구에서는 무기성분 함량이 높은 원소를 선정하여 다변량 통계분석법의 하나인 정준판별분석(Canonical Discriminant Analysis)으로 판별식을 설정하였다. 이 판별분석법은 두 개 이상의 모집단에서 추출된 다변량 분석 정보를 이용하여 판별함수를 만들고, 이를 적용하여 판별이나 예측에 활용하는 통계분석 방법이다(15). 이에 따라 유통 중인 돼지고기의 무기성분 분석 자료를 활용하여 신속하게 원산지 판별을 하고자 ED-XRF와 통계분석을 이용하여 국산과 외국산 돼지고기 삼겹살의 원산지 판별 정도를 확인하였다.

재료 및 방법

1. 시험재료

2019년도 국립농산물품질관리원에서 수집한 돼지고기 삼겹살 총 100건(국산 50건, 외국산 50건)을 원산지 판별식 작성을 위하여 사용하였다. 국산 시료는 제주도를 제외한 전국 8도에서 6건이나 7건씩 농협을 통해 수집되었으며, 외국산은 유통업체에서 기간 차이를 두고 5개 수입국가에서 50건을 골고루 구매한 시료를 사용하였다. 외국산은 미국 10건, 캐나다 9건, 칠레 11건, 스페인 9건,

독일 11건으로 구성되어 있다. 또한 판별식을 검증하기 위하여 국산 돼지고기 삼겹살 30건, 외국산 돼지고기 삼겹살 30건을 수집하여 총 60건을 사용하였다. 검증용 시료의 선정은 랜덤 샘플링 방법을 적용하였다. 국산, 외국산 시료를 구입순서에 따라 임의로 번호를 1번부터 80번까지 부여하여 정렬하였다(4).

2. 시료 전처리

돼지고기 삼겹살은 시료 1개당 약 340 g씩 채취하였으며 복부 쪽 삼겹살의 지방이 최대한 포함되지 않도록 채취하였다. 세라믹 칼을 이용하여 지방을 제거하면서 0.5 cm 정도로 잘게 자르고 다진 후 동결건조 전용 봉투(24.5 cm × 35.5 cm × 0.05 mm)에 넣고 동결 건조하였다. 동결 건조 후 수분 함량이 5% 이하가 되는지 확인한 후 분쇄기 작동 시간은 최대 2분 이내로 분쇄하고 균질화한 후 시료로 사용하였다(4).

3. 기기분석

시료 5 g을 칭량하여 플라스틱 XRF 시료 용기(30 mm diameter, Chemplex, USA)에 담아 에너지 분산형 X-선 형광분석기(Applied Rigaku Technologies, Inc., USA)를 이용하여 무기성분 함량을 분석하였다. 총 56종의 원소에 대해 표 1과 같은 조건으로 측정하였다. 50 W Pd X-ray tube와 4개의 secondary target(RX9, Cu, Mo, Al)으로 진공상태(< 50 Pa)에서 분석하였다.

4. 통계 처리

ED-XRF로 시료를 3회 반복 측정하여 얻은 무

기성분 농도 값을 통계분석에 사용하였다. 국산과 외국산의 판별에 결정적으로 영향을 주는 변수를 선택하기 위해 국산, 독일산, 캐나다산, 미국산, 스페인산, 칠레산 돼지고기 삼겹살의 무기성분 함량에 대해 ANOVA 분석 후 Duncan의 사후검정을 실시하였다. 원산지 판별식 작성을 위하여 무기성분 함량을 독립변수로 하여 정준판별분석(Canonical Discriminant Analysis, CDA)을 실시하였다. One-way Analysis of Variance(ANOVA), Duncan의 사후검정과 정준판별분석은 IBM SPSS Statistics 24(SPSS Inc., USA)를 이용하였다. 판별식은 정성분석법의 유효성 검증방법(16)에 따라 감응도(sensitivity), 선택성(selectivity), 효율성(accuracy)을 산출하였다.

$$\text{Sensitivity}(\%) = \frac{\text{TD}}{\text{TD} + \text{FF}} \times 100$$

$$\text{Selectivity}(\%) = \frac{\text{TF}}{\text{TF} + \text{FD}} \times 100$$

$$\text{Efficiency}(\%) = \frac{(\text{TD} + \text{TF})}{(\text{TD} + \text{FF} + \text{FD} + \text{TF})} \times 100$$

TD(True Domestic Product)는 실제 국산 시료이며 판별결과가 국산으로 판정되는 시료이다. FD(False Domestic Product)는 실제 외국산 시료이나 판별결과 국산으로 판정되는 시료이다. TF(True Foreign Product)는 실제 외국산 시료이며 판별결과 외국산으로 판정되는 시료이다. FF(False Foreign Product)는 실제는 국산 시료이나 판별결과 외국산으로 판정되는 시료이다. 감응도는 판별식이 국산 시료를 올바르게 국산으로 인식할 수 있는 능력이며, 선택성은 판별식이 외국산 시료를 올바르게 외국산으로 인식할 수 있는 능력을 말한다. 확립된 판별식의 예측 능력을 평

Table 1. Conditions of the secondary target in ED-XRF

Secondary target	Tube voltage(kV)	Measurement time(sec)
RX9	25	100
Cu	50	100
Mo	50	100
Al	50	200

가하기 위해 검증 시료를 판별식에 대입하였다. 국산 시료를 국산으로 판정하는 비율인 국산 예측률(Domestic Predictive Rate)과 외국산 시료를 외국산으로 판정하는 비율인 외국산 예측률(Foreign Predictive Rate)을 산출하였다. 판별 분석을 수행한 결과를 바탕으로 무기성분 함량에 따른 원산지 판별 가능성을 검토하였다.

결과 및 고찰

1. 국산과 외국산 돼지고기 삼겹살의 무기성분 함량 분석 결과

ED-XRF로 56종의 무기성분 함량을 분석하여 함량이 높은 원소 15종을 선정하였다. 국가별로 15종의 무기성분 함량 차이를 확인하기 위해

Table 2. Element concentrations in pork belly from domestic, Germany, Canada, US, Spain, and Chile

Elements (mg kg ⁻¹)	Domestic (n=50)	Imported(n=50)				
		Germany (n=11)	Canada (n=9)	US (n=10)	Spain (n=9)	Chile (n=11)
Mg ¹⁾	578.2±193.5 ^{2)c}	413.9±151.7 ^{ab}	377.2±175.0 ^a	564.7±128.3 ^{bc}	470.4±97.3 ^{abc}	538.3±104.5 ^{bc}
Al	154.4±89.6	154.1±95.5	147.9±86.6	149.8±47.4	133.7±108.1	104.2±78.5
Si	45.3±18.8 ^{ab}	69.2±11.4 ^c	56.4±21.0 ^{bc}	60.5±8.0 ^{bc}	56.5±13.5 ^{bc}	31.0±24.5 ^a
P	3498.1±316.4 ^{bc}	3593.0±180.9 ^c	3289.6±119.1 ^{ab}	3157.0±294.4 ^a	3237.0±232.1 ^a	3401.8±279.7 ^{abc}
S	5615.7±531.6	5974.8±268.2	5588.5±137.8	5287.0±512.4	5488.5±309.8	5503.6±525.7
Cl	1511.4±179.7 ^{ab}	1527.9±133.6 ^{ab}	1661.5±110.8 ^b	1441.6±151.1 ^a	1639.3±172.3 ^b	1408.5±202.0 ^a
K	11324.9±1030.6 ^{cd}	11875.8±368.2 ^d	10657.4±688.2 ^{bc}	10079.0±344.6 ^{ab}	9863.0±360.3 ^a	10576.1±494.7 ^b
Ca	142.9±15.7 ^{ab}	182.7±20.9 ^c	192.4±20.4 ^c	182.9±13.7 ^c	155.0±13.8 ^b	140.1±11.5 ^a
Fe	28.0±3.2	28.8±1.8	28.0±2.8	26.5±2.7	28.3±1.9	29.1±2.7
Cu	6.2±0.5	6.3±0.2	6.0±0.2	6.0±0.4	6.3±0.4	6.3±0.4
Zn	74.2±14.0	83.5±6.5	82.7±9.3	74.6±9.5	74.7±3.7	75.8±10.0
Se	0.5±0.2 ^b	0.3±0.2 ^a	0.6±0.2 ^b	1.1±0.1 ^c	0.2±0.1 ^a	0.3±0.2 ^a
Br	3.8±1.2 ^c	2.2±1.1 ^b	0.7±0.3 ^a	2.0±0.3 ^b	2.5±0.4 ^b	1.6±1.7 ^{ab}
Rb	13.2±2.8	9.9±2.6	11.5±1.7	7.7±1.1	10.2±0.9	19.4±7.6
Sn	2.7±2.0 ^c	3.1±1.6 ^{ab}	3.9±1.7 ^{bc}	2.2±1.4 ^a	2.2±1.7 ^{ab}	2.4±1.7 ^d

¹⁾ The experimental values in this table are shown by mean±standard deviation

²⁾ One way ANOVA test(α=0.05), a,b,c,d,e : Duncan's multiple range test(p < 0.05)

ANOVA 분석 후 Duncan의 사후검정 결과는 표 2와 같다. 국가별로 Mg, Si, P, Cl, K, Ca, Se, Br, Sn 9종이 유의한 차이를 나타내었으며 Al, Fe, Cu, Zn, Rb 5종은 차이를 보이지 않았다. 특히 Mg, Br은 국산 삼겹살에서 각각 578.2 ± 193.5 , $3.8 \pm 1.2 \text{ mg kg}^{-1}$ 으로 독일산, 캐나다산, 미국산, 스페인산, 칠레산에 비해 유의적으로 높은 수준을 나타내었다. Mg, Br 외 Si 등 7종에서는 국산 삼겹살이 다른 5개 나라에 비해 유의성 있게 모두 높거나 낮은 차이를 보이지 않았다. 15종 무기성분 중 K 함량이 가장 높게 나타났으며 그 다음으로 S, P, Cl, Mg 순이었다. 국산과 외국산으로 구분하여 분석한 결과 국산의 K, Mg, Al 함량 등이 외국산에 비해 높게 나타났으며 반면 Ca과

Si 함량은 외국산이 국산에 비해 높게 나타났다 (그림 1).

2. 원산지 판별식 작성

판별식 설정을 위해 국산 50건과 5개 국가로 구성된 외국산 50건에 대해 15종의 무기성분 함량을 독립변수로 구성하여 정준판별분석을 수행하였다 (표 3). 15종의 무기성분 함량을 적용하여 판별한 결과 감응도 98.0%, 선택성 98.0%, 효율성 98.0%를 나타내었으며 판별식의 정확도가 각각 95%이상으로 기준에 부합하였다(17). 외국산 삼겹살 중 칠레산 1건이 국산으로 잘못 판별되었고 국산 삼겹살 1건이 외국산으로 판별되었다. 판별 점수(Discriminant score)는 두 그룹이 가장 잘

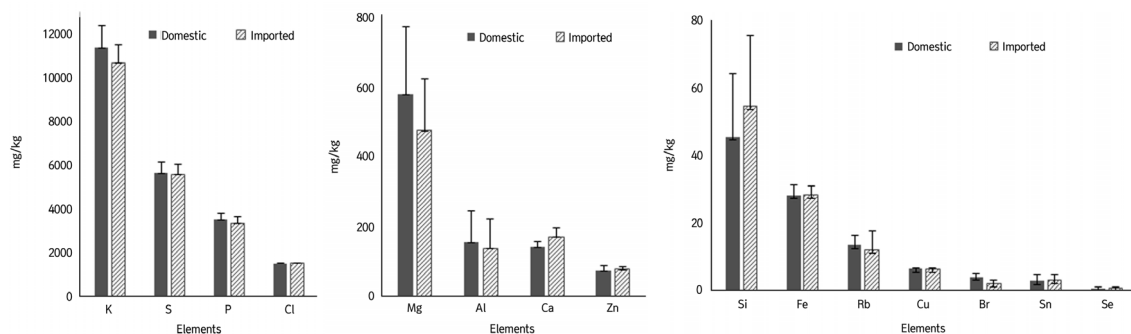


Fig. 1. Comparisons of element concentrations in domestic and imported pork belly using ED-XRF.

Table 3. Summary of analytical results for the geographical origin of pork belly by canonical discriminant analysis

Statistic values		15 kinds of element	5 kinds of element
Correlation		0.880	0.821
Distance between centroid		3.678	2.852
Discriminant score	Domestic	1.839	1.426
	Imported	-1.839	-1.426
Classification	Sensitivity	49/50(98.0%)	50/50(100%)
	Selectivity	49/50(98.0%)	46/50(92.0%)
	Efficiency	98/100(98.0%)	96/100(96.0%)

구분될 수 있는 각 그룹의 중심 값을 의미하며 두 그룹을 판별하기 위한 함수 값으로부터 산출된다. 국산 돼지고기의 판별점수는 1.839이었고, 외국산 돼지고기 삼겹살의 판별점수는 -1.839로 국산은 양의 방향, 외국산은 음의 방향 값을 나타내었다. 거리 값은 클수록 두 그룹이 구분이 잘 된 것으로 판단하며 2 이상이면 두 그룹의 구분이 가능하다. 두 그룹간의 거리 값은 3.678로 두 그룹의 구분이 잘 되는 것으로 나타났다. 그림 2에서도 국산과 외국산 돼지고기 삼겹살을 15종의 무기성분으로 판별하면 2개 그룹으로 구분되었다. 무기성분별 구조행렬 값(Structure matrix)은 Br(0.474), Ca(-0.348), K(0.195), Mg(0.163), P(0.141), Si(-0.124), Zn(-0.094), Rb(0.081), Al(0.053), Se(0.029), Cl(-0.026), Cu(0.022), S(0.022), Fe(-0.016), Sn(-0.013) 순으로 높았다. 구조행렬 값은 각 변수와 CDA 함수 간의 상관관계를 나타내는 것으로 절대값이 클수록 판별에 미치는 영향력이 크다. 무기성분 15종에서 구조행렬 값이 높은 상위 5종(Br, Ca, K, Mg, P)을 적용하여 판별분석을 수행할 때 감응도는 100%로 증가하였으나 선택성은 92.0%, 효율성은 96.0%로 감소하

는 것으로 나타났다(표 3). 또한 판별점수도 15종의 무기성분을 적용했을 때 보다 낮게 나타나 판별력이 떨어지는 것으로 나타났다. 상위 5종의 원소 중 Br과 Mg은 국산 삼겹살이 5개 국가의 외국산 삼겹살에 비해 유의적인 차이를 보였던 표 2의 결과와 일치한다. 무기성분을 상위 5종(Br, Ca, K, Mg, P)에서 4종(Br, Ca, K, Mg)으로 축소하여 판별분석을 수행해도 감응도, 선택성, 효율성의 변화는 없어 P의 함량은 판별에 영향을 크게 미치지 않는 것으로 판단된다. Bae 등(13)은 숙지황의 원산지 판별시 통계분석에 사용하는 원소 수를 35종에서 8종, 3종으로 줄였을 때 미량원소 검출 패턴의 영향으로 선택성은 크게 변화가 없었으나 감응도가 각각 89.9, 79.7%, 72.5%로 감소하는 것으로 나타났다. 반면, 본 연구에서는 원소수를 15종, 10종, 5종으로 하였을 때 감응도는 각각 98%, 100%, 100%로 증가하였으나, 선택성은 각각 98%, 92%, 92%로 감소하여 상위 5종의 원소에 추가한 5종의 무기원소(Si, Zn, Rb, Al, Se)도 원산지 판별에 뚜렷한 요소로 작용하지 않은 것으로 나타났다. 그러나 효율성은 15종의 원소를 모두 적용할 때 98%로 가장 높게 나타났다.

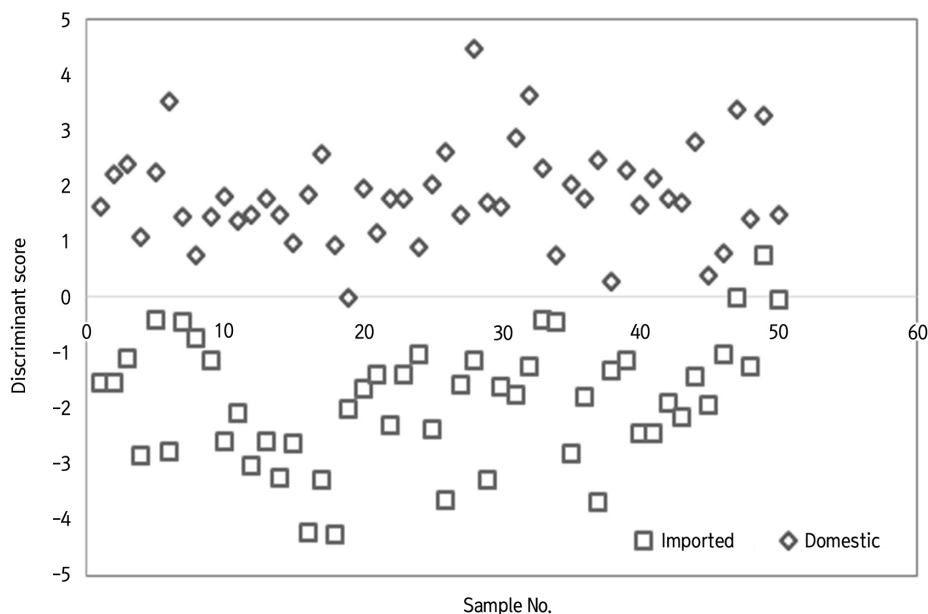


Fig. 2. Score plot of canonical discriminant analysis on geographical origin for pork belly using ED-XRF.

Table 4. Validation results of discrimination models using element concentrations for pork belly with canonical discriminant analysis

Classification	No. of samples			Predictive Rate(%)
	Total	Domestic	Imported	
Total	60	30	30	96.7
Domestic	30	30	0	100
Imported	30	2	28	93.3

3. 원산지 판별식 검증

돼지고기 삼겹살에 대한 원산지 판별식의 활용 가능성을 판단하기 위해 작성된 판별식에 원산지가 확인된 시료를 적용하여 검증하였다. 국산 돼지고기 삼겹살 30건, 외국산 돼지고기 삼겹살 30건에 대해 15종의 무기성분을 이용한 판별식을 적용한 결과 국산 돼지고기 삼겹살 30건은 모두 국산으로 판별되었고 외국산 돼지고기 삼겹살은 2건이 국산으로 판별되었다(표 4). 국산 예측률은 100%, 외국산 예측률은 93.3%를 나타내었다. 이는 판별식의 검증 정확도 93%이상인 기준(17)을 만족하였다. 본 연구에서 작성한 판별식과 그 검증 결과를 종합하면 외국산 예측률(93.3%)이 국산 예측률(100%)보다 낮고 감응도(98.0%)와 선택성(98.0%)에 비해서도 낮아 외국산 시료를 외국산으로 판별하는 능력이 국산 시료를 국산시료로 판별하는 능력보다 약간 낮은 수준으로 나타났다. Lee 등(7)은 콩 원산지 판별을 위한 판별식 작성을 CDA방법으로 수행하여 국산 예측률이 93.3%, 외국산 예측률이 100% 수준으로 나타났다. Teye 등(18)은 코코아빈의 원산지 판별을 위해 같은 데이터를 여러 가지 통계적 분류기법을 적용하여 판별식의 효율성이 증가하였다. 따라서 다양한 통계알고리즘을 이용한 판별 능력을 비교한 후 최적의 판별법을 도입한다면 판별 효율을 더욱 향상시킬 것으로 보인다. 정확한 원산지 판별을 위해서는 우선적으로 생산지를 대표하는 표본시료 수집이 중요하며 원산지 판별의 오차를 최소화하기 위해서는 두 가지 이상의 분석 장비를 사용하여 비교분석하는 것이 판별도의 정확도와 신뢰도를 높일 수 있을 것으로 판단된다.

결론

돼지고기 삼겹살의 원산지 판별을 위해 2019년 국립농산물품질관리원에서 수집한 국산 50건과 독일, 캐나다, 미국, 스페인, 칠레로 구성된 외국산 50건에 대하여 ED-XRF를 이용하여 무기성분을 측정하였다. 검출된 총 15종 무기성분 함량을 적용하여 정준판별분석을 수행한 결과 감응도 98.0%, 선택성 98.0%, 효율성 98.0%로 판별식 정확도의 기준인 각각 95%이상을 모두 만족하였다. 2019년도에 수집한 국산 돼지고기 삼겹살 30건과 외국산 돼지고기 삼겹살 30건으로 원산지 판별식을 검증한 결과 국산 예측률은 100%, 외국산 예측률은 93.3%를 나타내었다. 복잡한 전처리과정 없이 ED-XRF를 이용한 정준판별분석을 통해 돼지고기 삼겹살의 국산과 외국산을 판별할 수 있는 판별 체계를 정립하였다.

감사의 글

본 연구는 농식품 원산지 검정법 유효성 검증 및 개선 과제를 위한 국립농산물품질연구원이 지원한 시료로 수행되었으며 그 지원에 감사드립니다.

참고문헌

1. Han, GP, Han, JS, Kozukue, N, Yeo, JS, Lee, SE and Minamide, T : A Comparative Study on Nutritional Com-

- position of Native and Hybrid Pork in Korea. *J. East Asian Soc. Dietary Life*, 13(3):185~190, 2003.
2. <http://www.sisanews.kr/news/articleView.html?idxno=56285>.
 3. Kim, SW, Li, Xiaoping, Lee, YM, Kim, JJ, Kim, TH, Choi, BH and Kim, KS : Development of SNP Markers for Domestic Pork Traceability. *Journal of Animal Science and Technology*, 52(2): 91~96, 2010.
 4. 한국화학융합시험연구원 : 농식품원산지검정법 유효성 검증 및 개선, p.1~30, 2019.
 5. Choi, JY, Bang, KH, Han, KY and Noh, BS : Discrimination Analysis of the Geographical Origin of Foods. *KOREAN J. FOOD SCI. TECHNOL.*, 44(5):503~525, 2012.
 6. Jeong, MS and Lee, SB : Discrimination of Geographical Origin for Herbal Medicine by Mineral Content Analysis with Energy Dispersive X-Ray Fluorescence Spectrometer. *KOREAN J. FOOD SCI. TECHNOL.*, 40(2):135~140, 2008.
 7. Lee, JH, Kang, DJ, Jang, EH, Hur, SH, Shin, BK, Han, GT and Lee, SH : Discrimination of geographical origin for soybeans using ED-XRF. *KOREAN J. FOOD SCI. TECHNOL.*, 52(2):125~129, 2020.
 8. 조성애, 김성단, 김지혜, 조주연, 박주성, 김무상, 신용승 : ED-XRF와 NIRS를 이용한 볶음 땅콩의 원산지 판별. *서울특별시보건환경연구원보*, 55:20~28, 2019.
 9. Worku, M, Upadhayay, HR, Latruwe, K, Taylore, A, Blake, W, Vanhaecke, F, Duchateau, L and Boeckx, P : Differentiating the geographical origin of Ethiopian coffee using XRF- and ICP-based multi-element and stable isotope profiling. *Food Chem.*, 290:295~307, 2019.
 10. Opatič, AM, Nečemer, M, Kocman, D and Lojen, S : Geographical origin characterization of Slovenian organic garlic using stable isotope and elemental composition analysis. *Acta Chim. Slov.*, 64:1048~1055, 2017.
 11. Choi, YH, Hong, CK, Park, GY, Kim, CK, Kim, JH, Jung, K and Kwon, JH : A nondestructive approach for discrimination of the origin of sesame seeds using ED-XRF and NIR spectrometry with chemometrics. *Food Sci. Biotechnol.*, 25: 433~438, 2016.
 12. Kang, DJ, Moon, JY, Lee, DG and Lee, SH : Identification of the geographical origin of cheonggukjang by using fourier transform nearinfrared spectroscopy and energy dispersive X-ray fluorescence spectrometry. *Korean. J. Food Sci. Technol.*, 48:1~6, 2016.
 13. Bae, HR, Lee, SK, Whang, IJ, Kang, JM, Lee, JH and Kim, JH : Discrimination of geographic origin by trace elements contents in *Rehmannia Radix Preparat* using X-ray fluorescence analysis. *J. Appl. Biol. Chem.*, 58:345~348, 2015.
 14. Moon, JY, Lee, YJ, Kang, JM, Cho, SJ and Noh, BS : Discrimination of geographical origin for *Scutellaria baicalensis* using energy dispersive X-ray fluorescence spectrometer. *Korean J. Food Sci. Technol.*, 44:484~487, 2012.
 15. Moon, JY : Development of discrimination for geographical origins of the domestic and chinese ginseng and it' products. p.19~20, Doctoral thesis of Seoul Women's Univ., 2015.
 16. López, MI, Callao, MP and Ruisánchez, I : A tutorial on the validation of qualitative methods : From the univariate to the multivariate approach. *Anal. Chim.*

- Acta., 891:62~72, 2015.
17. 농산물 등의 원산지 검정방법 및 세부기준에 관한 규정. 국립농산물품질관리원고시 제2020-13호, 2020. 7.
18. Teye, E, Huang, X, Han, F and Botchway, F : Discrimination of Cocoa Beans According to Geographical Origin by Electronic Tongue and Multivariate Algorithms. Food Anal. Methods, 7:360~365, 2014.