

ISÓTOPOS ESTÁVEIS E PRODUÇÃO DE BEBIDAS: DE ONDE VEM O CARBONO QUE CONSUMIMOS?¹

Ana Cristina B. Oliveira², Cleber I. SALIMON², Débora Fernandes CALHEIROS²,

Fernando Antonio FERNANDES², Ivan VIEIRA², Luiz Fernando CHARBEL², Luiz Fernando Pires²,

Marcos S.M.B. SALOMÃO², Sandra Furlan NOGUEIRA², Simone VIEIRA²,

Marcelo Zacharias MOREIRA³, Luiz Antônio MARTINELLI³, Plínio Barbosa de CAMARGO^{3,*}

RESUMO

A composição isotópica do carbono ($\delta^{13}\text{C}$) foi utilizada na determinação da origem botânica (C3 x C4) de amostras de café, vinho, cerveja e vodka, de diferentes marcas e procedências, comercializadas no Brasil. Dentre as marcas de café analisadas, apenas uma apresentou um elevado percentual de plantas C4 em sua composição, evidenciado pelo valor de $\delta^{13}\text{C}$ (-16,2‰). Os valores de $\delta^{13}\text{C}$ das amostras de vinhos brasileiros, variaram entre -25,1 e -17,1‰, indicando a presença de carbono de origem C4 nas amostras que tiveram os maiores valores de $\delta^{13}\text{C}$. Duas marcas de vinhos importados, por sua vez, apresentaram $\delta^{13}\text{C}$ característico de planta C3 (-27,1 e -26,3‰). Os valores de $\delta^{13}\text{C}$ das vodkas importadas variaram entre -26,4 e -23,9‰, e as brasileiras entre -12,8 e -11,8‰, excetuando-se uma marca que apresentou valor -23,1‰. As marcas de cervejas importadas, em sua maioria, apresentaram valores mais negativos (-27,3 a -20,7‰) que as nacionais (-25,9 a -18,4‰). Estes resultados evidenciam a eficiência desta metodologia na determinação da origem do C e percentual de mistura destas bebidas.

Palavras-chave: isótopo estável; carbono; café; vinho; vodka; cerveja.

SUMMARY

STABLE ISOTOPES AND BEVERAGE PRODUCTION: WHERE DOES THE CARBON WE DRINK COME FROM? We used the carbon isotopic composition ($\delta^{13}\text{C}$) to determine the botanical origin (whether C3 or C4) of coffee, wine, beer and vodka samples from different brands and origins commercialized in Brazil. Only one coffee sample showed a $\delta^{13}\text{C}$ typical of a mixture with C4 plants ($\delta^{13}\text{C}$ -16.2‰). The Brazilian wine samples varied from $\delta^{13}\text{C}$ -25.1 to -18.6‰, indicating the presence of carbon from C4 plants in samples with greater values, while the imported wine showed $\delta^{13}\text{C}$ characteristic of C3 plants (-27.1 and -26.3‰). Imported vodka also showed $\delta^{13}\text{C}$ typical of C3 plants (-26.4 and -23.9‰), while Brazilian counterparts were typically made from C4 plants (-12.8 to -11.8‰), except for one sample (23.1‰). Most of the imported beers showed more negative $\delta^{13}\text{C}$ (-27.3 to -20.7‰) than did the Brazilian beers (-25.9 to -18.4‰). These results demonstrate the method's efficiency for tracing the carbon origin and determining the extent of blending in beverages.

Keywords: stable isotope; carbon; coffee; wine; vodka; beer.

1 – INTRODUÇÃO

No controle e inspeção de alimentos são utilizadas várias metodologias de análise de qualidade e determinação da composição de acordo com as necessidades regulamentares específicas para cada alimento.

O uso da razão isotópica do carbono ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$), tem sido largamente empregado. A metodologia isotópica é especialmente útil quando a composição de bebidas e alimentos baseia-se em misturas de compostos produzidos a partir de plantas do tipo C3 e C4, pois existe uma grande diferença entre a composição isotópica destes dois tipos de plantas. Por exemplo, utiliza-se a composição isotópica para se detectar a adição de açúcar de cana (uma planta C4) durante o processo de fermentação (chaptalização) ou adição de álcool produzido a partir de cana em vinhos e *brandies* [8, 10, 11, 13, 15, 18]. O mesmo princípio é utilizado para detecção de açúcares de origem C4 em sucos de frutas naturais [5,

9, 11, 16] e adulteração de amostras de mel com açúcares C4 comerciais tanto produzidos a partir da cana como de milho, que também é uma planta C4 [4, 14, 19, 20].

A importância que esta metodologia vem assumindo pode ser avaliada pelo fato da mesma ser a metodologia oficial empregada nos Estados Unidos da América nas análises de controle de qualidade de pureza do mel e sucos de frutas naturais. Além disso, a União Européia, com a finalidade de detectar adição de açúcares comerciais no mosto, introduziu a partir de 1990 [6], um rígido controle da qualidade dos vinhos baseado na análise isotópica do etanol e da água extraídos de vinhos produzidos pelos países da comunidade européia.

No Brasil, os isótopos estáveis são pouco empregados no controle de adulteração de bebidas [14]. Visando mostrar as potencialidades dessa metodologia em nosso país, determinamos a composição isotópica de algumas amostras de café, vinho, cerveja e vodka, de diferentes marcas e procedências, comercializadas no Brasil.

2. MATERIAL E MÉTODOS

A composição isotópica do carbono é expressa pela fórmula:

$$\delta^{13}\text{C} = \left(\frac{R_{\text{amostra}} - R_{\text{padrão}}}{R_{\text{padrão}}} \right) * 1000 \quad (1)$$

¹ Recebido para publicação em 06/07/2001. Aceito para publicação em 06/03/2002.

² Alunos do curso de pós-graduação do Centro de Energia Nuclear na Agricultura – Universidade de São Paulo. Av. Centenário, 303, Caixa Postal 96, Piracicaba, CEP 13400-970 SP.

³ Professores do Laboratório de Ecologia Isotópica do Centro de Energia Nuclear na Agricultura – Universidade de São Paulo. Av. Centenário, 303, Caixa Postal 96, Piracicaba, CEP 13400-970 SP.

* A quem a correspondência deve ser enviada.

onde $R_{amostra}$ é a razão isotópica $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ da amostra e $R_{padrão}$ é a razão isotópica $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ do padrão. O padrão utilizado internacionalmente é a rocha calcárea (PDB) da formação Peedee do Grand Canyon nos Estados Unidos.

A base de variação isotópica em plantas resulta do fracionamento isotópico durante a fotossíntese. As plantas terrestres podem ser divididas em três grupos fotossintéticos principais, cada um com seu padrão de fracionamento isotópico específico: C3, C4 e MAC (metabolismo ácido das crassuláceas). A composição isotópica destes diferentes tipos fotossintéticos são em geral resultado de: (1) propriedades bioquímicas da fixação primária de CO_2 por ação enzimática; (2) limitações da difusão do CO_2 dentro das folhas [2] e (3) relação entre a pressão interna de CO_2 na câmara estomatal e a pressão externa da atmosfera [7]. As plantas com via fotossintética C3 (ex.: uva, arroz, maçã, cevada, etc.), reduzem o CO_2 para fosfoglicerato (um composto de três carbonos) através da enzima RuBP-carboxilase. Esta enzima discrimina o $^{13}\text{CO}_2$, resultando em valores de $\delta^{13}\text{C}$ relativamente baixos, entre -32 e -23‰, com média de -27‰ [2]. Por outro lado, plantas C4 (ex.: cana-de-açúcar, milho, sorgo, etc.) reduzem o CO_2 a ácido aspártico ou ácido málico, ambos compostos com quatro carbonos, através da enzima PEP-carboxilase. Esta enzima não discrimina o ^{13}C como a RuBP-carboxilase, desta forma plantas C4 têm valores de $\delta^{13}\text{C}$ relativamente mais altos. Tais valores variam entre -15 e -9‰, com média de -13‰ [2]. Assim, as espécies C3 e C4 têm valores distintos de $\delta^{13}\text{C}$, que não se sobrepõem, sendo possível, portanto, a utilização desses valores na determinação da fonte de carbono.

A determinação da razão isotópica permite uma comparação dos valores de $\delta^{13}\text{C}$ das fontes com o valor de $\delta^{13}\text{C}$ do produto. Assim, quando existem somente duas fontes isotopicamente distintas, o valor de $\delta^{13}\text{C}$ do produto refletirá a quantidade das duas fontes presentes no produto, que pode ser quantificado pela equação de mistura ou diluição isotópica:

$$\%C_3 = \frac{\delta^{13}\text{C}_{amostra} - \delta^{13}\text{C}_4}{\delta^{13}\text{C}_3 - \delta^{13}\text{C}_4} \quad (2)$$

onde, $\delta^{13}\text{C}_3$ e $\delta^{13}\text{C}_4$ são a composição isotópica de plantas C3 e C4, respectivamente.

No Laboratório de Ecologia Isotópica do Centro de Energia Nuclear na Agricultura (USP) foram analisadas 22 amostras de cerveja, 14 de vinho, 7 de vodka e 20 de café, que foram adquiridas em estabelecimentos comerciais entre agosto e setembro de 2000.

A composição isotópica destas amostras foi determinada em um espectrômetro de massa de razão isotópica (IRMS) Finnigan MAT Delta Plus. No momento da análise, os frascos de cervejas, vinhos e vodkas foram abertos e uma alíquota coletada diretamente, por meio de um capilar de vidro. A seguir, metade do volume do capilar foi recebido em uma cápsula de estanho contendo o fundo coberto por uma pequena quantidade de fase sólida CHROMOSORB W (30 - 60 mesh). Logo a seguir,

para evitar evaporação, foi realizado o empacotamento apropriado da cápsula e sua colocação imediata no amostrador do analisador elementar (Carlo Erba EA 1110 CHNS). As amostras de café em pó foram pesadas e colocadas também em cápsulas de estanho. Após a oxidação da matéria orgânica presente nas amostras e separação cromatográfica do gás CO_2 , este foi carregado para o espectrômetro e as concentrações isotópicas do C medidas.

3 - RESULTADOS E DISCUSSÃO

O café é uma planta do tipo fotossintético C3, portanto, seus valores isotópicos, caso não haja nem um tipo de mistura, devem seguir os valores normalmente encontrados em plantas C3. A maioria dos valores de $\delta^{13}\text{C}$ de amostras de café variaram de -28,2 a -26,1‰ (Tabela 1), comparando-se estes valores com o valor de referência encontrado na Tabela 2, conclui-se que nenhum material de origem C4 foi misturado ao café. O fato de se ter valores isotópicos em amostras de café que foram cerca de 2‰ mais negativos que a referência, pode ser atribuído a diferentes graus de fracionamento isotópico entre o CO_2 atmosférico e as plantas. Este fracionamento distinto entre variedades de plantas de café pode ser atribuído as condições de cultivo, como estresse hídrico, ou diferenças climáticas entre regiões de cultivo. Por exemplo, variedades de café que foram irrigadas tiveram valores de $\delta^{13}\text{C}$ entre -28,3 e -26,5‰, enquanto aquelas submetidas a estresse hídrico tiveram valores de $\delta^{13}\text{C}$ variando entre -26,0 e -24,1‰ [12]. A exceção a este padrão foi a amostra número 20, que teve um valor de $\delta^{13}\text{C}$ igual a -16,2‰, indicando claramente a presença de plantas de origem C4 misturadas ao café (Figura 1).

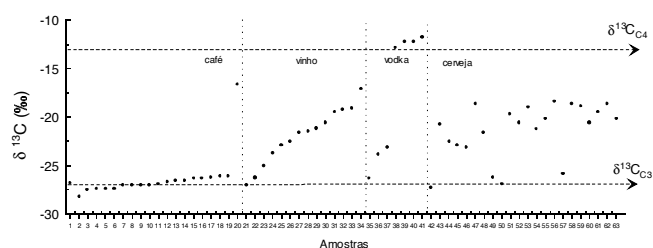


FIGURA 1. Valores isotópicos ($\delta^{13}\text{C}$ ‰) das amostras do presente trabalho. Ver Tabela 1 para detalhes sobre cada amostra. As duas linhas pontilhadas horizontais mostram os valores padrões de $\delta^{13}\text{C}$ para plantas C3 e C4.

De acordo com a Associação Brasileira da Indústria de Café (ABIC), a legislação brasileira não permite nenhum tipo de mistura no pó-de-café comercializado, e aceita apenas 1% de impureza dos grãos, que consiste na mistura da casca do próprio fruto no processo de moagem. Apesar disso, os resultados de testes de qualidade realizados por esta associação detectaram adulteração pela adição de até 70% de milho em algumas marcas de café [1]. Baseando-se nos valores isotópicos en-

contrados, e utilizando-se a equação (2), estimamos que a amostra 20 teve aproximadamente 70% de plantas C4 em sua composição. Apesar de discriminar na embalagem a adição de amido, a empresa não discriminou o percentual de amido presente na mistura.

Nas amostras de vinho, dois grupos foram distinguidos: as amostras de vinho produzidas em outros países (amostras 21 e 22) e as produzidas no país. As amostras importadas tiveram valores de $\delta^{13}\text{C}$ mais negativos (-27,1 e -26,3‰) enquanto as nacionais variaram entre -25,1 e -17,1‰ (Tabela 1). Esta distinção provavelmente é devida ao fato de que no processo de fabricação do vinho, segundo a legislação brasileira, pode ser adicionado até 30% de açúcar de cana ao mosto antes da fermentação, processo conhecido como chaptalização. Por exemplo, baseando-se nesse percentual e utilizando-se a equação (2) e os valores de referência da Tabela 1, estima-se que um vinho contendo 30% de açúcar em seu mosto, deveria ter uma composição isotópica de -22,5‰. Valores isotópicos muito acima deste indicariam uma adição maior de açúcar no mosto. É interessante notar que foi observada uma relação inversa ($p > 0,01$; $R^2 = 0,52$) entre o preço das amostras de vinho e valores correspondentes de $\delta^{13}\text{C}$, indicando que quanto maior o teor de açúcar adicionado, menor o preço do vinho (Figura 2). O mesmo tipo de relação foi encontrado em amostras de brandies brasileiros [13].

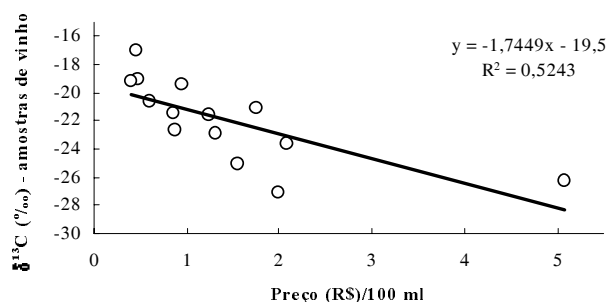


FIGURA 2. Relação entre valores de $\delta^{13}\text{C}$ e preço de aquisição dos vinhos.

A vodka é uma bebida alcoólica destilada produzida a partir do amido de fonte variável. Embora o centeio seja originalmente utilizado na fabricação da vodka, o processo também emprega outros cereais, como milho, arroz e trigo. A batata também é utilizada, assim como em pequenas proporções são utilizados açúcares fermentáveis, tais como melaço de cana ou beterraba [17]. Os valores isotópicos obtidos para as diferentes marcas de vodka variaram entre -26,4 e -11,8‰ (Figura 1). As marcas de vodka importadas apresentaram valores isotópicos característicos de plantas C3 ou com pequena participação de C4 (Tabela 1). Por outro lado, entre as marcas brasileiras, a maioria delas apresentaram valores isotópicos estritamente de plantas C4, variando seus valores isotópicos entre -12,8 e -11,8‰ (Tabela 1). Apenas a amostra 37 teve um valor isotópico

intermediário entre plantas C3 e C4 ($\delta^{13}\text{C} = -23,1‰$), indicando uma mistura desses dois tipos de plantas na sua composição.

TABELA 1. Valores de $\delta^{13}\text{C}$ (‰), procedência e preço em amostras de bebidas, onde: o preço do café por 100g e o preço das demais bebidas por 100mL.

Nº	Descrição	Oriem	Preço (R\$)	$\delta^{13}\text{C}$
Amostras de Café				
1	Caneção	Campinas (SP)	1,00	-26,8
2	Do Norte	Manaus (AM)	0,58	-28,2
3	Carrefour	Franca (SP)	0,62	-27,5
4	Manaus	Manaus (AM)	0,70	-27,4
5	Tropical	Barueri (SP)	0,55	-27,4
6	Londrina	Londrina (PR)	0,58	-27,4
7	Maratá	Lagarto (SE)	0,55	-27,1
8	Do Ponto	Barueri (SP)	0,65	-27,1
9	Minas Rio	Belo Horizonte (MG)	0,57	-27,1
10	Garçonete	Manaus (AM)	0,60	-27,1
11	Morro Grande	Piracicaba (SP)	0,63	-26,9
12	Sabor Minas	Contagem (MG)	0,49	-26,7
13	3 Corações	Santa Luzia (MG)	0,58	-26,6
14	Petinho	Recife (PE)	0,65	-26,6
15	Lido	Prudentópolis (PR)	0,64	-26,4
16	Odebrecht	Londrina (PR)	0,63	-26,4
17	Minhouro	Manaus (AM)	0,65	-26,2
18	União	São Paulo (SP)	0,71	-26,1
19	São Paulo	Limoeiro (PE)	0,39	-26,1
20	Opção	Chorrochó (BA)	0,34	-16,6
Amostras de Vinho				
21	Concha Y Toro	Chile	1,86	-27,1
22	Chianti Rufino	Itália	4,73	-26,3
23	Marcus James	Brasil	1,44	-25,1
24	Baron de Lantier Dourado	Brasil	1,94	-23,7
25	Almaden	Brasil	1,23	-22,9
26	San Germain	Brasil	0,83	-22,6
27	Baron de Lantier Branco	Brasil	1,16	-21,6
28	Bella Aurora - São Roque	Brasil	0,80	-21,5
29	Miolo Sdeção	Brasil	1,64	-21,2
30	Piagentini	Brasil	0,57	-20,6
31	Chateau Duvalier	Brasil	0,88	-19,5
32	Chapinha	Brasil	0,37	-19,2
33	Sangue de Boi	Brasil	0,44	-19,1
34	Dom Bosco	Brasil	0,42	-17,1
Amostras de Vodka				
35	Wiborowa	Polônia	4,34	-26,4
36	Golernatokskaba	Rússia	3,67	-23,9
37	Polanski	Brasil	0,37	-23,1
38	Sputnik	Brasil	0,58	-12,8
39	Orloff	Brasil	1,08	-12,3
40	Baikal	Brasil	0,55	-12,3
41	Smirnoff	Brasil	1,16	-11,8
Marcas de Cerveja				
42	Guinness	Irlanda	1,07	-27,3
43	Sapporo	Japão	1,21	-20,8
44	Royal Dutch	Holanda	1,03	-22,6
45	Dutch Gold	Holanda	0,97	-22,9
46	Phoenix	Holanda	0,97	-23,1
47	Sol	México	0,62	-18,7
48	Corona	México	0,57	-21,6
49	Urquell	Rep. Tcheca	0,72	-26,2
50	Dab	Alemanha	0,29	-27,0
51	Caracu	Brasil	0,26	-19,7
52	Krill	Brasil	0,16	-20,6
53	Lecker	Brasil	0,16	-19,0
54	Cintra	Brasil	0,16	-21,3
55	Kronenbier	Brasil	0,26	-20,2
56	Bohemia	Brasil	0,25	-18,4
57	Heineken	Brasil	0,26	-25,9
58	Schincariol	Brasil	0,17	-18,7
59	Antártica	Brasil	0,19	-18,9
60	Skol	Brasil	0,19	-20,6
61	Brahma	Brasil	0,17	-19,5
62	Bavaria	Brasil	0,17	-18,6
63	Kaiser	Brasil	0,15	-20,2

Por sua vez, a cerveja, segundo as Normas Técnicas Relativas a Alimentos e Bebidas [3], é um produto obtido através da fermentação alcoólica produzida pela levedura *Saccharomyces cerevisiae*, de um mosto preparado com cevada (planta C3) maltada, lúpulo, água, adicionado ou não de açúcares ou xaropes de cana, beterraba, arroz e milho. As amostras de cervejas brasileiras apresentaram $\delta^{13}\text{C}$ entre -25,9 e -18,4‰ (Tabela 1), denotando, portanto, uma contribuição variável de plantas do tipo C4. A presença de plantas C4 em cervejas parece ser uma constante mesmo em outros países. Das nove cervejas importadas, somente a amostra 42 apresentou

sinal isotópico típico de plantas C3 (*Tabela 1*). Os valores isotópicos das demais amostras indicaram que estas, como a maioria das cervejas nacionais, são compostas por uma mistura de fontes C3 e C4, com a contribuição de C4 podendo chegar até 60% em alguns casos. É interessante notar que, somente quatro amostras de cerveja (44, 45, 46 e 47) declaram a presença de milho (C4) em sua composição.

TABELA 2. Valores de $\delta^{13}\text{C}$ das referências utilizadas para cálculo de diluição isotópica.

Produto	$\delta^{13}\text{C}$	$\delta^{13}\text{C}_4$	Referência
Café	-26,8	-13,0	C3: Amostra certificada em grãos C4: o valor médio de plantas C4 (BOUTTON, [2]).
Vinho	-26,3	-11,8	C3: Vinho de origem italiana, onde a adição de açúcar é proibida por lei. C4: o valor de melão da cana-de-açúcar determinado por ROSSI <i>et al.</i> [14].
Vodka	-26,4	-11,8	C3: vodka polonesa C4: o valor de melão da cana-de-açúcar determinado por ROSSI <i>et al.</i> [14].
Cerveja	-27,3	-11,8	C3: cerveja irlandesa C4: o valor de melão da cana-de-açúcar determinado por ROSSI <i>et al.</i> [14].

4 – CONCLUSÕES

A metodologia de isótopos estáveis mostrou ser uma ferramenta útil para a identificação da origem do material e porcentagem de plantas C3 e C4 na composição de tipos de café e várias bebidas. A *Figura 1* demonstra claramente que amostras de várias bebidas contêm uma quantidade apreciável de material oriundo de plantas C4. Em alguns casos, como o do café, a presença de material C4 definitivamente altera o gosto da bebida e não é regularmente permitido. Por outro lado, para as bebidas em que a legislação permite uma composição variada, como cerveja e vodka por exemplo, a metodologia isotópica pode ser útil para detectar a presença de ingredientes não especificados no rótulo, mas que seria conveniente ou justo que o consumidor estivesse a par de sua presença.

5. REFERÊNCIAS

- [1] ABIC. 2000. <http://www.abic.com.br/selodepureza/index.html>, Set/15/2000.
- [2] BOUTTON, T.W. Stable carbon isotope ratios of natural materials: II. Atmospheric, terrestrial, marine, and freshwater environments. In: COLEMAN, D.C.; FRY, B. (Ed.) **Carbon isotope techniques**. New York: Academic Press, 1991. cap.11, p. 173-185.
- [3] BRASIL. Leis, Decretos, etc. Decreto nº 55871, de 5 de março de 1965. **Diário Oficial da União**, Brasília, p. 231-232. 1965.
- [4] BROOKES, S.T.; BARRIE, A.; DAVIES, J.E. A rapid $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ test for determination of corn syrups in honey. **Journal Association Analytical Chemistry**, v. 74, n. 4, p. 627-629, 1991.
- [5] DURST, R.W.; WRÖLSTAD, R.E.; KRUEGER, D.A. Sugar, nonvolatile acid, $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratio, and mineral analysis for determination of the authenticity and quality of red raspberry juice composition. **Journal of AOAC international**, v. 78, n. 5, p. 1195-1204. 1995.
- [6] EUROPEAN COMMUNITY. Directive 2676/90, September 17, 1990.
- [7] FARQUHAR, G.D.; EHLERINGER, J.R.; HUBICK, K.T. Carbon isotope discrimination and photosynthesis. **Annual Review of Plant Physiology and Plant Molecular Biology**, v. 40, p. 503-537, 1989.
- [8] GIMÉNEZ-MIRALLES, J.E.; SALAZAR, D.M.; SOLANA, I. Regional origin assignment of red wines from Valencia (Spain) by ^2H NMR and ^{13}C stable isotope analysis of fermentative ethanol. **Journal Agricultural Food Chemistry**, v. 47, p. 2645-2652, 1999.
- [9] GUILLOU, C.; KOZIET, J.; ROSSMANN, A.; MARTIN, G.J. Determination of the ^{13}C content of organic acids and sugars in fruit juices: an inter-comparison study. **Analytica Chimica Acta**, v. 388, p. 137-143, 1999.
- [10] MARTIN, G.J.; GUILLOU, C.; MARTIN, M.L.; CABANIS, M.T.; TEP, Y.; AERNY, J. Natural factors of isotope fractionation and the characterization of wines. **Journal Agricultural Food Chemistry**, v. 36, p. 316-322, 1988.
- [11] MARTIN, G.G.; HANOTE, V.; LEES, M.; MARTIN, Y-LOIC. Interpretation of combines ^2H SNIF/MNR and ^{13}C SIRA/MS analyses of fruit juices to detect added sugar. **Journal of AOAC international**, v. 79, n. 1, p. 62-72, 1996.
- [12] MEINZER, F.C.; GOLDSTEIN, G.; GRANTZ, D.A. Carbon isotope discrimination in coffee genotypes grown under limited water supply. **Plant Physiology**, v. 92, p. 130-135, 1990.
- [13] PISSINATTO, L.; MARTINELLI, L.A.; VICTÓRIA, R.L.; CAMARGO, P.B.; CHEDID, J.J. Using stable carbon isotopic analyses to access the botanical origin of ethanol in Brazilian brandies. **Food Research International**, v. 32, p. 665-668, 1999.
- [14] ROSSI, N.F.; MARTINELLI L.A.; LACERDA, T.H.M.; CAMARGO, P.B.de; VICTORIA, R.L. Análise da adulteração de méis por açúcares comerciais utilizando-se a composição isotópica do carbono. **Ciênc. Tecnol. Aliment.**, v. 19, n. 2, p. 199-204, 1999.
- [15] ROBMANN, A.; SCHIMDT, H.L.; RENIERO, F.; GIUSEPPE, V.; MOUSSA, I.; MERLE, M.H. Stable carbon isotope content in ethanol of EC data bank wines from Italy, France and Germany. **Z Lebensm Unters Forsch**, v. 203, p. 293-301, 1996.
- [16] SIMPKINS, W.A.; PATEL, G.; HARRISON, M.; GOLDBERG, D. Stable carbon isotope ratio analysis of Australian orange juices. **Food Chemistry**, v. 70, p. 385-390, 2000.
- [17] VARNAM, A.H.; SUTHERLAND, J.P. **Beverages – Technology, chemistry and microbiology**. London: Chapman and Hall, 1994. 464p.
- [18] WEBER, D.; ROBMANN, A.; SCHWARZ, S.; SCHIMDT, H.L. Correlations of carbon isotope ratios of wine ingredients for the improved detection of adulterations: I. Organic acids and ethanol. **Z Lebensm Unters Forsch - A**, v. 205, p. 158-164, 1997.
- [19] WHITE JR, J.W. ; DONER, L. The $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratio in honey. **Journal of Apicultural Research**, v. 17, n. 2, p. 94-99, 1978.
- [20] WHITE JR, J.W. ; ROBINSON, F.A. $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratios of citrus honeys and nectars and their regulatory implications. **Journal Association Analytical Chemistry**, v. 66, n. 1, p. 1-3, 1982.