2013年 第8卷 第2期 230-237

Vol. 8, 2013 No.2, 230-237

DOI: 10.7524/AJE.1673-5897.20121229001

孙洪欣,王伟,刘昕然,等. 菊花茶中砷含量特征及砷健康风险评价[J]. 生态毒理学报,2013,8(2):230-237

Sun H X , Wang W , Liu X R , et al. Arsenic concentrations in chrysanthemum tea and assessment of arsenic risk to human [J]. Asian Journal of Ecotoxicology , 2013 , 8(2): 230-237 (in Chinese)

菊花茶中砷含量特征及砷健康风险评价

孙洪欣, 王伟, 刘昕然, 杨树深, 王正行, 刘文菊*

河北农业大学资源与环境科学学院 保定 071000

摘要: 菊花茶是深受人们喜爱的一种饮品,但其干燥过程及加工工艺不当会造成菊花茶的重金属污染,尤其是和硫磺矿伴生的重金属砷。以市售菊花茶为研究对象,采用硝酸—双氧水消解体系,高压密闭消解系统和原子荧光光谱法分析测定了其中砷 (As)含量,对典型超标菊花茶样品进行不同冲泡方式的筛选,确定其适宜的饮用方式,并根据我国绿色代用茶行业标准和 WHO 砷最大日允许摄入量(ADI)对菊花茶中砷的人体健康风险做出评价。结果表明,菊花茶中砷的含量范围在 $0.01 \sim 3.52 \, \text{mg} \cdot \text{kg}^4$ 91.1%的样品符合绿色代用茶的《中华人民共和国农业行业标准》(0.5 mg $\cdot \text{kg}^4$),其中砷含量最高的为药用祁菊花达 3.52 mg $\cdot \text{kg}^4$,所有样品中超标的 8 个菊花茶样品种类分别为祁白菊(2 个) 杭白菊(2 个) 黄山贡菊(1 个)和野菊花(1 个) 杯菊和药用祁菊各 1 个 75%的超标样品为散装饮品;选择超标的 2 个典型菊花茶样品(杭白菊和药用祁菊花)进行冲泡方式筛选,得出适宜的饮用方式为:用水茶质量比例为 25:1 的开水清洗菊花茶 5 min 然后用开水冲泡 5 \sim 20 min 再饮用。随菊花茶进入人体的最大日摄入量(极限值)为 43.7 \sim 169 μ g \cdot d \cdot 其占 ADI (allowable daily intake)的比值范围在 34.1% \sim 132%,其中随药用祁菊花进入人体的 As最大日摄入量与 ADI 的比值超过 100% 这表明砷经菊花茶饮品摄入人体内所潜在的健康风险不容忽视。砷超标的菊花茶经过冲泡后饮用,砷的人体日摄入量 13.1 \sim 36.3 μ g \cdot d \cdot 其占 ADI 的比值范围在 10.3% \sim 28.4%。因此 经过洗茶后再冲泡饮用,砷的日摄入量显著降低(P < 0.01) 建议饮用菊花茶时洗 1 次茶后再冲泡饮用。

关键词: 菊花茶; 砷; 冲泡方式; 风险评价; 人类健康

文章编号: 1673-5897(2013)2-230-08 中图分类号: X56; X820.4 文献标识码: A

Arsenic Concentrations in Chrysanthemum Tea and Assessment of Arsenic Risk to Human

Sun Hongxin, Wang Wei, Liu Xinran, Yang Shushen, Wang Zhengxing, Liu Wenju^{*} College of Resources and Environmental Science, Agricultural University of Hebei, Baoding 071000, China **Received** 29 December 2012 accepted 3 January 2013

Abstract: Chrysanthemum tea is a kind of popular tea around China. However, the improper dryness and producing processing of chrysanthemum might form the heavy-metals contamination, especially for arsenic combined with sulfur mines. Contents of As in samples of chrysanthemum tea from markets were investigated using HNO₃/H₂O₂ mixture in the high pressure sealed container and measured using atomic fluorescence spectrometry (AFS). Moreover, screening of the optimum ways of making tea was conducted using the samples with As contents above the safety standard (standard of agriculture of the People's Republic of China: green food herb-tea).

收稿日期: 2012-12-29 录用日期: 2013-01-03

基金项目: 全国大学生科技创新活动基金项目; 河北省世纪优秀人才支持计划(CPRC028);

作者简介: 孙洪欣(1990-) ,女 学士 研究方向为环境毒理学 .E-mail: sunhongxin0303@163.com;

^{*} 通讯作者(Corresponding author) ,E-mail: liuwj@hebau.edu.cn

Allowable daily intake (ADI) standard value from Food and Agriculture Organization/World Health Organization (FAO/WHO) was used for preliminary assessment of As risk to human health. Results showed that As contents in chrysanthemum tea ranged from 0.01 to 3.52 mg • kg 1. As contents in 91.1% of samples was lower than the limited standard of green food herb-tea (0.5 mg·kg⁻¹). The highest As content in all samples was 3.52 mg·kg⁻¹ in Qi chrysanthemum for herbal medicine. Arsenic contents in 8 samples exceeded the standard of green food herb-tea, which are Qi white chrysanthemum (2 samples), Hangzhou chrysanthemum (2 samples), Huangshan chrysanthemum (1 sample), wild chrysanthemum (1 sample), Qi chrysanthemum for herbal medicine (1 sample) and chrysanthemum morifolium (1 sample). 75% of all samples with As contents above the safety standard are not packed. The samples of Hangzhou chrysanthemum and Qi chrysanthemum for herbal medicine with high As contents were used to study the brewing and drinking method. Specifically, boiling water at the mass ratio of water to tea of 25:1 was poured into cup for 5 min to wash the tea; then boiling water was added into cup and kept for 5 min to 20 min. Maximun daily intake of arsenic through chrysanthemum tea ranged from 43.7 to 169 μg·d¹, and the percentage of the daily intake of arsenic in chrysanthemum tea to ADI established by FAO/WHO was in the range of 34.1% to 132%. The maximum daily intake of arsenic via Qi chrysanthemum for herbal medicine to ADI was higher than 100%, indicating that arsenic in some types of chrysanthemum tea from markets had an unnegligible potential risk to human health. The daily intake of arsenic from chrysanthemum tea after being washed was in the range of 13.1 and 36.3 μg·d¹, and accordingly the percentage of the daily intake of arsenic in chrysanthemum tea to ADI wasfrom 10.3% ~ 28.4%. After chrysanthemum was washed, the level of arsenic daily intake decreased significantly (P < 0.01). Therefore, it is better to wash chrysanthemum once before drinking chrysanthemum tea.

Keywords: chrysanthemum tea; arsenic; infusing options; risk assessment; human health

菊花茶性甘味寒,具有散风热、平肝明目的功效,成为老少皆宜的茶饮品和人们普遍喜爱的保健饮品。菊花茶中虽然含有对人体有益的一些微量元素,但在其种植和加工过程中有些菊花茶会受到重金属污染,据调查,一些市售的菊花茶中含有对人体存在健康风险的重金属元素,甚至出现重金属超标的现象[14]。

砷作为一种类金属元素广泛存在于环境中,目前已经公认人体低剂量的砷暴露便可致癌^[5]。饮用水和食品已被确认为砷进入人体的主要途径,菊花茶作为植物性饮品或者保健性药用饮品,其饮用的安全性不容忽视。张晖芬等^[6]对黄芪等 5 种生长周期长的补益类药材的砷含量进行测定后发现,黄芪和当归中砷含量分别为 23.5 和 7.5 mg·kg⁻¹,远超出我国对药用植物及制剂中砷的限量(2.0 mg·kg⁻¹)^[7];而菊花茶作为茶饮品,其中重金属含量应该遵循2012 颁布的绿色食品—代用茶《中华人民共和国农业行业标准》(NY/T2140—2012)规定的各种重金属的限量标准(砷为 0.5 mg·kg⁻¹)^[8],该砷限量标准远低于我国绿色药用植物的限量标准,因此,新标准对市售菊花茶中砷等重金属的含量要求更为严格。此

外,菊花茶作为饮品,其冲泡方式势必会影响饮用茶水中砷浓度的高低及其对人体的健康风险,目前,一些研究多集中在菊花茶中砷等微量元素的测定方法方面,对市售菊花茶中砷的含量状况、特征及其合适的冲泡方式和其中砷的人体健康风险评价等方面开展的系统研究工作较少。

基于此 本研究采用样品采集和室内分析相结合的方法 以市售菊花茶作为研究对象 利用原子荧光光谱法对菊花茶及其冲泡液中砷的含量进行分析 并根据世界卫生组织(WHO)最大日允许砷摄入量(ADI)对菊花茶中砷的人体健康风险进行了初步评价。

1 材料与方法(Materials and methods)

1.1 菊花茶样品的采集

采集对象: 贡菊、杭白菊、胎菊、野菊花、祁白菊 和药用菊花等市场上常见的菊花茶种类。

采集的原则:在保定的3个市区(南市区、北市区和新市区)的主要超市、药店、零售店以及街边茶摊,分别选取价格和包装不同的菊花茶进行样品采集。采样点具体分布见图1。

采集样品数量: 共采集菊花茶样品 90 个 ,取样点 35 个 ,菊花茶种类主要有贡菊 37 个 ,杭白菊 14

个 胎菊 13 个 黄金菊 8 个 野菊花 10 个(包括药用菊花) 洋甘菊 3 个 祁白菊 2 个 其他品种 3 个。

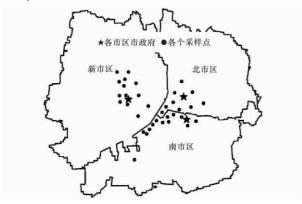


图1 采样点分布图

Fig. 1 Distribution of sampling sites

1.2 样品的处理

将采集的每个样品充分混匀后采用四分法和随机取样法 取 10 g左右的样品用不锈钢的粉碎机粉碎成 100 目左右的粉末 ,用于样品全量砷的分析测定 剩余的样品装入自封袋冷藏干燥保存,用于菊花茶适宜冲泡方式的筛选实验。

1.3 试剂与仪器

1.3.1 试剂

硝酸和盐酸为优级纯 购自天津永飞化工厂; 硫脲、抗坏血酸、和硼氢化钾均为分析纯 ,购自国药集团; 氢氧化钠分析纯 ,购自天津市标准科技有限公司 ,实验所用水均为超纯水。

1.3.2 主要仪器及条件

AFS202E 双道原子荧光分光光度计(北京科创海光仪器有限公司),与其配套的空心阴极灯; ZX-9140 MEB 电热鼓风干燥箱(上海博讯实业有限公司医疗设备厂);分装式高压密封消化罐(沈阳市铁西区森华理化仪器研究所),内胆为聚四氟乙烯(PTFE)材料 容积30 mL; EH45A Plus 电热板(北京莱伯泰科仪器有限公司); ACY-6000-u 纯水仪(重庆颐洋企业发展有限公司)。

优化后的测定砷的 AFS仪器条件为: 灯电流 40 mA; 负高压 280 V; 原子化器温度 200° ; 原子化器高度 8 mm; 载气流量 400 mL·min⁻¹; 屏蔽气体流量 900 mL·min⁻¹。砷的定量条件为: 读数时间 12 s; 延迟时间 1.0 s; 进样量 0.5 mL; 读取峰面积 采用标准曲线法定量。

1.4 样品中砷全量的分析方法

砷全量的分析方法参照文献[9] 称取混合均匀

的粉末状菊花茶样品 0.5 g(精确至 0.0001 g)置于干燥且干净的聚四氟乙烯内胆中,加入 5 mL 优级纯浓硝酸放置过夜,次日装入外胆后放入不锈钢外套中,旋紧密封,置于烘箱中,消解程序如下: 升温到 100℃ 在此温度下保持 1 h 后继续升温至 140℃,保持 4 h ,关闭烘箱使其自然冷却至室温。闷罐冷却后取出内胆放置在加热板上于 160℃继续消煮至剩余约 1 mL 液体,冷却,用超纯水转移至 100 mL容量瓶中定容待测。每批次加标样(GBW07603 灌木枝叶标准物质)2 个,空白样 2 个。空白和标准样品的处理操作程序同上,以确保消煮前处理及测定的准确度。消解液中的 As 用原子荧光分光光度计测定。

1.5 适宜冲泡方式筛选实验

1.5.1 恒温 100℃下不同冲泡时间对菊花茶液中砷含量的影响

分别称取样品 2 g 放于 100 mL 锥形瓶中,用 50 mL 的 100℃的水分别冲泡 5、10 和 20 min(实验过程在 100℃水浴锅中进行操作),滤出上清液后放置至室温,每个浸提液取 20 mL 分别装入离心管中备用待测。每个时间段做 3 次重复。

1.5.2 自然条件下冲泡时间和冲泡次数对菊花茶 液中砷含量的影响

分别称取样品 2 g 放于 100 mL 锥形瓶中,用 50 mL 的 100℃的水分别冲泡5、10 和 20 min,依次滤出上清液后放置至室温,收集每个时段的茶液样品 20 mL 分别装入离心管中备用待测。将剩余的茶液过滤倒掉,在茶渣中再加入 50 mL 的 100℃的水冲泡5、10 和 20 min 以进行第 2 次冲泡,依次滤出上清液后放置至室温,收集每个时段的茶液样品 20 mL 分别装入离心管中备用待测。第 3 次冲泡重复第 2 次冲泡的操作,最终得到 3 次冲泡面段的样品进行测定。每个样品做 3 次重复。

1.6 菊花茶中砷的人体健康风险评价方法

WHO 现已明确规定每日最大允许摄入砷量为 128 μg•kg⁴•d⁴(以单位体质量计)^[10]。为评价饮用 茶水的砷摄入对普通人群健康的潜在风险,采用的方法是计算出每日饮用茶水摄入总砷的量和每日摄入量占 ADI 的百分比。

每日饮用茶水摄入 As 全量 $(\mu g^{\bullet} d^{-1}) =$ 菊花茶中 As 的全量 $(mg^{\bullet} kg^{-1}) \times h$ 冲泡茶的砷浸提率(%)

×摄入剂量(g•d¹)

每日摄入量占 ADI 的百分比(%) = 每日摄入量 $(\mu g^* d^1)/ADI \ \text{值}(\mu g^* d^1)$

在成年人(体质量 60 kg)每日摄入菊花茶饮用水 1.2 L 的情况下,以不同冲泡方式对菊花茶中砷的平均浸提率(%)为冲泡茶的砷浸提率(%),对冲泡后的茶水中 As 的含量进行人体健康风险评价,以饮用冲泡的菊花茶每日摄入 As 全量占 ADI 的比例评价其对人体的风险程度。

1.7 数据统计分析

所有数据的统计分析主要采用 Microsoft Excel 2003 进行。

2 结果与讨论(Results and discussion)

2.1 菊花茶样品中砷含量特征分析

采集的 90 个菊花茶样品中砷含量范围在 0.01 ~3.52 mg·kg⁻¹ 91.1%的样品符合 2012 颁布的绿色食品-代用茶《中华人民共和国农业行业标准》 (NY/T2140—2012)^[8] 其中砷含量最高的为药用祁菊花 达 3.52 mg·kg⁻¹ (表 1)。

表 1 菊花茶样品中砷含量
Table 1 Contents of arsenic in samples of chrysanthemum tea

米刑	样品	超标	最大值/	最小值/	平均值/	超标率
大王	数	样品数	(mg•kg ⁻¹)	(mg•kg ⁻¹)	(mg•kg ⁻¹)	/%**
W]贡菊	37	1	0.91	0.01	0.12	2.70
杭白菊	14	2	1.44	0.07	0.37	15.40
胎菊	13	0	0.26	0.02	0.14	-
金菊	8	0	0.23	0.05	0.10	-
野菊゛	10	2	3.52	0.04	0.60	20.00
洋甘菊	3	0	0.31	0.26	0.29	-
祁白菊	2	2	1.46	1.23	1.35	100.00
其他	3	1	1.93	0.04	0.68	33.30
有包装	24	2	1.44	0.01	0.21	8.33
散装	66	6	3.52	0.01	0.28	9.09
0 ~ 0.10	9	5	3.52	0.09	1.10	55.60
0.11 ~ 0.2	037	3	1.44	0.01	0.22	8.11
0.21 ~ 0.3	026	0	0.43	0.02	0.15	-
0.31 ~ 0.4	013	0	0.47	0.01	0.01	-
		0	0.06	0.06	0.06	-
0.51 ~ 0.6	0 5	0	0.17	0.06	0.12	-
	杭胎金野洋祁其包 有数。0.11~0.2 0.21~0.3 0.31~0.4 0.41~0.5	数 W 5	类型 数 样品数 W 页菊 37	数 样品数 (mg·kg ⁻¹) W 页菊 37 1 0.91 杭白菊 14 2 1.44 胎菊 13 0 0.26 金菊 8 0 0.23 野菊 10 2 3.52 洋甘菊 3 0 0.31 祁白菊 2 2 1.46 其他 3 1 1.93 有包装 24 2 1.44 散装 66 6 3.52 0~0.10 9 5 3.52 0.11~0.20 37 3 1.44 0.21~0.30 26 0 0.43 0.31~0.40 13 0 0.47 0.41~0.50 1 0 0.06	类型 数 样品数 (mg*kg³) (mg*kg³) (mg*kg³) W 页菊 37 1 0.91 0.01 杭白菊 14 2 1.44 0.07 胎菊 13 0 0.26 0.02 金菊 8 0 0.23 0.05 野菊 10 2 3.52 0.04 洋甘菊 3 0 0.31 0.26 祁白菊 2 2 1.46 1.23 其他 3 1 1.93 0.04 有包装 24 2 1.44 0.01 0~0.10 9 5 3.52 0.09 0.11~0.20 37 3 1.44 0.01 0.21~0.30 26 0 0.43 0.02 0.31~0.40 13 0 0.47 0.01 0.41~0.50 1 0 0.06 0.06	数 样品数 (mg·kg¹) (mg·kg²)

注:* 野菊花中包括药用祁菊花 其砷含量为 $3.52~\text{mg}^{\bullet}\text{kg}^{\bullet}$; ** 参考 2012 颁布的绿色食品-代用茶 《中华人民共和国农业行业标准》 (NY/ T2140—2012)中的砷限量标准 $0.5~\text{mg}^{\bullet}\text{kg}^{\bullet}$; -表示未超标。

根据菊花茶的不同种类、包装类型和价格等分类,分别对菊花茶样品中砷的含量特征进行了统计分析和比较 结果如表 1 所示。首先 从菊花茶的种类来看 所采集的胎菊、金菊和洋甘菊等 24 个样品中砷含量全部符合绿色代用茶农业部行标; 市售贡

菊和杭白菊中砷含量的超标率分别为 2.70% 和 15.40% 其中超标的 2 个杭白菊样品均为有正式包 装和厂家生产批号的产品,而所有散装的杭白菊中 砷含量均符合国家绿色代用茶标准; 野菊花中砷含 量超标率高达 20.00%; 尤其是 2 个祁白菊(保定安 国地产)样品全部超标。其次 从茶的包装类型来分 析,有包装的样品仅占采样总量的26.70%,砷含量 超标率为8.33%;大部分菊花茶样品为散装饮品, 砷含量超标率为 9.09% .且散装样品砷含量差别较 大 最低为0.01 mg·kg⁻¹ 最高可达 3.52 mg·kg⁻¹(超 出标准 7 倍) 因此 ,选择散装菊花茶饮品时应该注 意分辨其质量的高低。最后,从市售菊花茶的价格 来看 菊花茶中砷的超标率与其单位质量的价格呈 反比 即随着菊花茶饮品单价的升高其中砷的含量 降低。当其单价在0~0.1 元·g⁻¹ 超标率高达50% 以上 而单价 >0.2 元·g¹的菊花茶饮品砷含量全部 符合标准(表 1)。

表 2 As 含量超标的菊花茶样品指标
Table 2 Parameters of chrysanthemum tea samples with As contents exceeding safety limit

				,	
品名	产地	价格/	包装类型	总砷含量/	超标
ш т) 16	(元•g ⁻¹)	已衣天至	(mg•kg ⁻¹)	倍数 [*]
贡菊	黄山	0.20	散装	0.91	1.82
杭白菊	杭州	0.18	袋装	1.14	2.28
杭白菊	杭州	0.12	袋装	1.43	2.86
祁白菊	安国	0.10	散装	1.46	2.92
怀菊	安国	0.10	散装	1.93	3.86
野菊花	不详	0.10	散装	1.04	2.08
祁白菊	安国	0.10	散装	1.23	2.46
药用祁菊	安国	0.06	散装	3.52	7.04

注: * 参考 2012 颁布的绿色食品-代用茶 《中华人民共和国农业行业标准》 (NY/T2140—2012)中的砷限量标准 $0.5~{\rm mg}^{\bullet}{\rm kg}^{4}$ 。

表 2 统计分析了砷含量超标的 8 个菊花茶样品,分别为祁白菊 2 个,杭白菊 2 个,黄山贡菊、怀菊、野菊花和药用祁菊各 1 个,其中 75%的超标菊花茶样品为散装饮品; 超标的菊花茶样品中砷的含量范围在 0.91~3.52 mg·kg¹ 超标倍数为 1.82~7.04(表 2)。菊花茶中的砷来源于其种植生境和干燥加工过程等。由表 2 可以看出,超标的 8 个菊花茶样品中有 50%产自河北安国,特别是药用祁菊花砷含量最高,超过标准值 7 倍。

在前人的研究结果中也存在市售祁菊花中砷含量

过高的情况[2,11] 但柳晓娟等[2]的结果还显示 采自种植区的没有经过干燥和加工的样品中砷含量并未超标,因此 砷超标可能的原因是从农民采收到市场销售的环节中砷含量增加了 即菊花采收之后的干燥加工炮制或者运输等环节增加了其砷含量。因为干燥菊花的传统方法中 需用硫黄熏制菊花再晒干 所用硫磺矿是伴生矿物 其中含有砷等重金属元素[4]。尽管此方法已经禁用 但是从目前采集的市售祁菊花和祁白菊的砷含量状况来看 很可能仍有一些农民或者厂家采用硫磺熏蒸干燥的方法。目前 菊花已被认为是重金属及其他有害元素超标现象较普遍的中草药或者饮品之一[12]。综上所述 种植环境和加工工艺是影响菊花中砷含量的因素 所以必须严格控制菊花生长环境 以及其贮存和炮制过程 保证其饮用的安全性。

2.2 菊花茶不同冲泡方式的筛选

2.2.1 不同冲泡时间的筛选

(1)100℃恒温条件

控制温度为 100℃的理想状态下冲泡超标的两种菊花茶: 杭白菊和药用祁菊花 ,冲泡的时间分别为 5、10 和 20 min ,结果如图 2 所示。对于两种砷超标的菊花茶而言 ,冲泡时间在 5~10 min 时 ,浸提出的 砷浓度呈上升趋势 ,在 10~20 min 时 ,砷浓度略升高

(a)或略有下降(b)。但方差分析的结果显示,对于每种种超标的菊花茶 在不同冲泡时间从茶中浸提出的砷浓度之间差异不显著(P>0.05),并且不同时间的浸提效率之间也没有明显差异(P>0.05)(图 2)。也就是 超标菊花茶中的一部分砷可以在短时间内(5 min)浸泡出来 再延长冲泡的时间也不会有更多的砷被浸提出来。可以推测 能浸提出来的那部分砷没有和菊花茶的组成成分紧密结合 而仅是沉积或者吸附在茶的表面或者菊花细胞外的自由空间中。

(2)自然条件

采用 100%的开水在常温自然条件下冲泡超标的 2 种菊花茶: 杭白菊和药用祁菊花,冲泡的时间分别为 $5 \cdot 10$ 和 20 min ,结果如表 3 所示。对于每种砷超标的菊花茶而言,不同冲泡时间从茶中浸提出的砷的浓度之间差异不显著(P > 0.05),并且不同时间的浸提效率之间也没有明显差异(P > 0.05)(表 3)。比较图 2 和表 3 的结果可知,自然温度下用100%的开水冲泡菊花茶与控温100%浸泡相比,冲泡时间相同,前者的提取率明显低于后者。但无论是理想状态 100%提取过程还是自然状态下用开水冲泡菊花茶,提取或者冲泡 $5 \cdot 10$ 和 20 min 对菊花茶中砷的提取率没有明显差异。

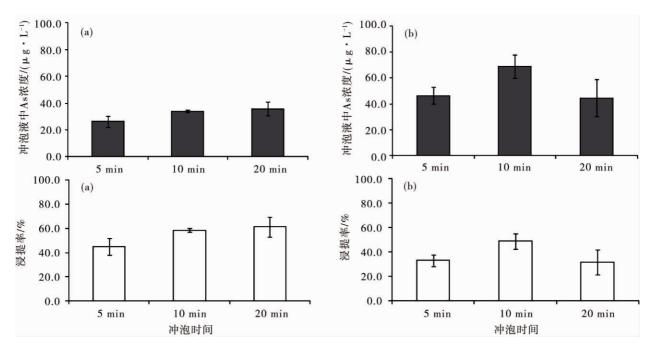


图 2 100℃不同冲泡时间对菊花茶液中 As 浓度及 As 浸提率的影响

注: a 和 b 分别代表含 As 1.44 mg•kg⁴的杭白菊和 3.52 mg•kg⁴的药用祁菊花。

Fig. 2 Effect of soaking time on As concentrations in extracted solution of chrysanthemum tea and As extraction efficiencies under controlled temperature of $100\,^{\circ}$ C

2.2.2 不同冲泡次数的筛选

冲泡次数对菊花茶浸出液中砷浓度和砷提取率存在明显影响。从图 3 可以看出,砷超标的杭白菊和药用祁菊花第 1 次冲泡且泡茶时间为 5、10 和 20 min 时,茶液中砷的浓度高于第 2 次和第 3 次相应冲泡时间内砷的浓度,尤其是第 3 次冲泡时,茶浸出液中砷的浓度很低。同样,冲泡次数及冲泡时间对菊花茶中砷提取率的影响趋势与提取液中砷浓度相似,因此,最好先洗茶 1~2 遍,然后再饮用茶水。但是,对于每种茶每一次冲泡时,不同冲泡时间对茶液中砷浓度及其提取率均无显著影响(P>0.05)。

综合分析以上 2 个实验结果并结合人们日常饮茶的习惯 ,筛选出菊花茶适宜的饮用方式为: 用水茶质量比为 25: 1 的开水清洗菊花茶 5 min ,然后用开水冲泡 5 到 20 min 再饮用。

2.3 菊花茶中砷的人体健康风险评价

前面的结果显示,采集的91.1%的市售菊花茶样品符合绿色代用茶的《中华人民共和国农业行业标准》,冲泡饮用这些菊花茶是安全的。因此,本研究仅对超过砷安全限量标准的茶品,以 FAO/WHO(联合国粮食与农业组织/世界卫生组织)规定的砷的ADI为依据进行砷对人体的健康风险评价。

表 3 自然条件下不同冲泡时间对菊花茶液中 As 浓度及 As 浸提率的影响

Table 3 Effect of soaking time on As concentrations in extracted solution of chrysant – hemum tea and As extraction efficiency

菊花茶种类	冲泡时间/min	As浓度/(μg•L ⁻¹)	As浸提率/%	
杭白菊	5	23.6 ± 0.08	32.2 ± 7.19	
(As 含量 1.44	10	18.0 ± 5.69	30.3 ± 9.88	
mg•kg ⁻¹)	20	16.8 ± 8.68	40.9 ± 15.1	
药用祁菊花	5	19.2 ± 4.53	10.1 ± 0.09	
(As含量 3.52 mg•kg ⁻¹)	10	18.2 ± 2.74	12.7 ± 1.93	
	20	22.9 ± 3.33	15.9 ± 2.06	

按照 FAOWHO 的规定,计算菊花茶中砷的每日摄入量占 ADI 的百分比是现阶段一种普遍采用且较为科学的评价方法。因此,本研究根据此方法对超标菊花茶砷的人体健康风险进行了初步评价(表 4)数据显示砷随菊花茶进入人体的最大日摄入量(极限值)为 43.7~169 μg•d¹,其占 ADI 的比值范围在 34.1%~132%,其中药用祁菊花对人体健康存在较大风险;在不洗茶的情况下饮用菊花茶 砷的人体日摄入量为 13.1~36.3 μg•d¹ 其占 ADI 的比值范围在 10.3%~28.4%,该两项指标均明显高于柳晓娟

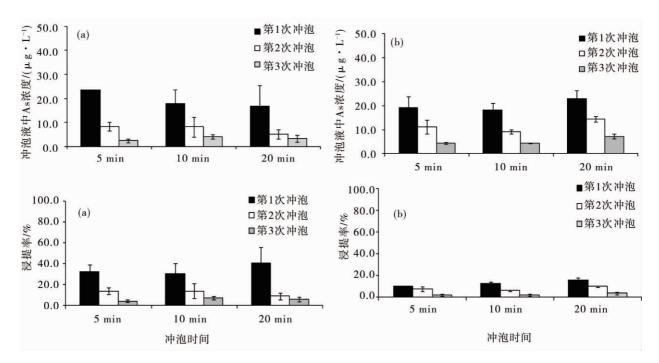


图 3 自然条件下不同冲泡次数对菊花茶液中 As 浓度及 As浸提率的影响注: a 和 b 分别代表含 As 1.44 mg·kg¹ 的杭白菊和 3.52 mg·kg¹ 的药用祁菊花。

Fig. 3 Effect of soaking frequency on As concentrations in extracted solution of chrysanthemum tea and As extraction efficiency

等^[2]报道的中草药饮品对人体的健康风险; 洗 1 次 茶后再冲泡饮用, 砷的人体日摄入量为 5.23 ~ 14.7 $\mu g^{\bullet} d^{-1}$,其占 ADI 的比值范围在 4.09% ~ 11.5%, 比 不洗茶平均降低 50% 以上; 菊花茶洗 2 次再饮用, 砷的人体日摄入量为 2.13 ~ 5.12 $\mu g^{\bullet} d^{-1}$,其占 ADI 的比值范围在 1.66% ~ 4.00%, 比洗 1 次茶后再饮用平均降低 60% ~ 65%。统计分析表明,直接饮用

菊花茶其 As 的每日摄入量占 ADI 值的百分比显著高于洗 1 次茶和洗 2 次茶再饮用的方式(P<0.01),健康风险较大。值得注意的是,人们日常生活中饮茶 尤其是在饭店等公共场所饮用菊花茶时,多未经洗茶程序而直接饮用,因此,决不能忽视通过直接饮用菊花茶可能导致的高砷摄入量对人体健康的风险。结合冲泡工艺[13] 建议饮用菊花茶时洗 1 次茶后再冲泡饮用。

表 4 菊花茶中 As 的每日摄入量及其占 FAO/WHO 规定 ADI 的百分比

Table 4 Daily intake of As from chrysanthemum tea and the ratio of daily intake of As to ADI established by FAO/WHO

名称	As浓度		每日 As 摄 <i>入</i>	、量/(μg•d ⁻¹)	摄入量占 ADI 比例/%				
	/(mg•kg ⁻¹)	最大值 [*]	不洗茶**	洗 1 次	洗2次	 最大值 [*]	不洗茶**	洗 1 次	洗2次
贡菊	0.91	43.7	13.1	5.23	2.13	34.1	10.3	4.09	1.66
杭白菊	1.14	54.7	29.0	10.6	4.26	42.8	22.6	8.27	3.33
杭白菊	1.43	68.6	36.3	13.3	5.35	53.6	28.4	10.4	4.18
祁白菊	1.46	70.1	21.1	8.19	3.68	54.8	16.5	6.40	2.87
怀菊	1.93	92.6	18.4	7.56	3.16	72.4	14.3	5.91	2.47
野菊花	1.04	49.9	15.0	5.98	2.43	39.0	11.7	4.67	1.90
祁白菊	1.23	59.0	17.7	6.90	3.10	46.1	13.9	5.39	2.42
药用祁菊	3.25	169	29.5	14.7	5.12	132	23.1	11.5	4.00

注:* 最大值;假设菊花茶中的砷全部被摄入人体,这是摄入量的极限值;** 多重比较结果显示,对于每一种菊花茶,每日砷摄入量及 ADI% 均为不洗茶显著高于洗 1 次茶 洗 1 次茶明显高于洗 2 次茶。

综合以上实验结果 结论概述如下:

- 1) 菊花茶中砷的含量范围在 0.01~3.52 mg·kg⁻¹ 91.1%的样品符合绿色代用茶的《中华人民共和国农业行业标准》其中砷含量最高的为药用祁菊花 达 3.52 mg·kg⁻¹ 75%的超标样品为散装饮品。
- 2) 菊花茶适宜的饮用方式: 用水茶质量比为 25: 1的开水清洗菊花茶 5 min ,然后用开水冲泡 5 min 到 20 min 再饮用。
- 3)砷超标的菊花茶经过冲泡后饮用,砷的人体日摄入量为13.1~36.3 µg·d¹ ,其占 ADI 的比值范围在10.3%~28.4%,这表明砷经菊花茶饮品摄入人体内所构成的潜在健康风险不容忽视。经过洗茶后再冲泡饮用,砷的日摄入量显著降低(P<0.01),建议饮用菊花茶时洗1次茶后再冲泡饮用。

通讯作者简介: 刘文菊(1971一),女,环境科学博士,教授,博导,主要研究方向为环境生物学和环境毒理学,发表 SCI 论文 20 余篇。

参考文献:

[1] 杨义钧. 3 种菊花茶中 6 种微量元素的初级形态及溶 出特性研究[J]. 光谱实验室, 2009, 26(4): 959 - 962

- Yang Y J. Study on the extracting characteristics and primary speciation of six trace elements in three kinds of chrysanthemum tea by ICP-AES[J]. Chinese Journal of Spectroscopy Laboratory, 2009, 26 (4): 959 962 (in Chinese)
- [2] 柳晓娟, 刘文菊, 林爱军, 等. 中草药砷含量特征及其健康风险初步评价[J]. 环境科学, 2010, 31(12): 205 211
 Liu X J, Liu W J, Lin A J, et al. Survey of arsenic concentrations in Chinese herbal medicine (CHMs) and preliminary risk assessment of As in CHMs on human health [J]. Environmental Science, 2010, 31(12): 205 211 (in Chinese)
- [3] 方军, 陈建平, 舒永红, 等. ICP MS法测定菊花茶中 砷镉铜铅锌[J]. 理化检验(化学分册), 2005, 41(12): 902-904
 - Fang J, Chen J P, Shu Y H, et al. ICP MS determination of As, Cd, Cu, Pb and Zn in chrysanthemum tea [J]. Physical Testing and Chemical Analysis Part B, Chemical Analysis, 2005, 41(12): 902 904 (in Chinese)
- [4] 李英霞. 菊花中铅与砷的含量测定[J]. 时珍国医国药, 2007, 18(9): 2161 2162
 - Li Y X. The determination of Pb and As in Flos chrysanthemi [J]. Lishizhen Medicine and Materia Medica Research, 2007, 18(9): 2161-2162 (in Chinese)

- [5] Williams P N, Islam M R, Adomako E E, et al. Increase in rice grain arsenic for regions of Bangladesh irrigating paddies with elevated arsenic in groundwaters
 [J]. Environmental Science & Technology, 2006, 40 (16): 4903 4908
- [6] 张晖芬, 赵春杰, 倪娜. 5 种补益类中药中重金属的含量测定[J]. 沈阳药科大学学报, 2003, 20(1): 8-11
 Zhang Y F, Zhao C J, Ni N. Determination of heavy metal elements in five beneficial traditional Chinese medicines [J]. Journal of Shenyang Pharmaceutical University, 2003, 20(1): 8-11 (in Chinese)
- [7] 中华人民共和国商务部. WM/T 2—2004 中华人民共和国外经贸行业标准: 药用植物及制剂外经贸绿色行业标准[S]. 北京: 中华人民共和国商务部, 2004
- [8] 中华人民共和国农业部. NY/T2140—2012 中华人民 共和国农业行业标准: 绿色食品 - 代用茶[S]. 北京: 中 华人民共和国农业部, 2012
- [9] 王莹, 赵全利,胡莹, 等. 上虞某铅锌矿区周边土壤植物重金属含量及其污染评价[J]. 环境化学, 2011, 30 (7): 1355 1360
 - Wang Y, Zhao Q L, Hu Y, et al. Survey and contamina-

- tion assessment of heavy metals in soil and plants around the Pb/Zn mine in Shengyu, Zhejiang Province [J]. Environmental Chemistry, 2011, 30 (7): 1355 1360 (in Chinese)
- [10] Lee H S, Cho Y H, Park SO, et al. Dietary exposure of the Korean population to arsenic, cadmium, lead and mercury [J]. Journal of Food Composition and Analysis, 2006, 19(s): \$31 - \$37
- [11] 苑春刚. 砷及典型区域底泥中重金属形态分析研究 [D]. 北京: 中国科学院研究生院, 2005: 86
- [12] 金红宇, 王莹, 孙磊, 等. 中药中外源性有害残留物监控的现状与建议[J]. 中国药事, 2009, 23(7): 639 642 Jin H Y, Wang Y, Sun L, et al. Current situation and suggestions on control of extrinsic harmful residues in Chinese medicinal materials [J]. Chinese Pharmaceutical Affairs, 2009, 23(7): 639 642 (in Chinese)
- [13] 姜慧, 王美萍, 田彤, 等. 菊花茶冲泡工艺优化[J]. 食品科学, 2011, 32(22):152 155

 Jang H, Wang M P, Tian T, et al. An optimized method for infusing chrysanthemum tea [J]. Food Science, 2011, 32(22): 152 155 (in Chinese)