

doi:10.3969/j.issn.2095-1035.2024.07.017

菊花茶中重金属和微量元素溶出特性研究

唐宁 杨永贵 熊嘉成 高娜 胡静 赵首萍 叶雪珠*

(浙江省农业科学院 农产品质量安全与营养研究所, 杭州 310000)

摘要 为了探究菊花茶和茶汤中重金属及微量元素含量,指导菊花茶的饮用,对浙江主要菊花茶品种皇菊和金丝皇菊的重金属和微量元素含量及其溶出特性进行了分析。通过电感耦合等离子体质谱法(ICP-MS)和电感耦合等离子体发射光谱(ICP-OES)测定 Cd、Cr、Cu、Pb、Zn、Ni、As 等 7 种重金属和 K、Na、Ca、Mg、Se、Fe 和 Mn 等 7 种微量元素的含量,并参照传统泡茶方式对不同浸泡时间及不同浸泡次数条件下的皇菊和金丝皇菊中重金属和微量元素的溶出特性进行研究。结果发现,两种菊花中 Cd 含量均超标,但茶汤中的 Cd 与其他重金属符合生活饮用水标准,随着浸泡时间延长,菊花中重金属和微量元素的溶出率逐渐增加,Cd 的总溶出率仅 9.9%~11.8%,Cr、Pb 的总溶出率也在 10% 以下,但 Cu、Zn、Ni、As 溶出率较高,在 45.0%~71.6%,微量元素的溶出率在 1.7%~84.0%,其中 K、Na、Se 元素的溶出率较高,最高分别达到了 84.0%、72.9%、78.0%;随着浸泡次数增加,菊花中重金属和微量元素的溶出率逐渐降低,在第一次浸泡后,菊花中 Cd、Cr、Pb 的溶出率较低,分别在 0.3%~8.0%,Cd、Cr、Pb 的初次溶出量占溶出总量 50%~100%,Cu、Zn、Ni、As 在第一次浸泡后,溶出量占总量的 28%~63%,第一次浸泡后,菊花中的 K 和 Se 的溶出率较高,达到 30.6%~65.8%,Na、Ca、Mg、Mn 的溶出率在 5.8%~29.4%。微量元素第一次浸泡溶出量占溶出总量的 41%~100%。两种菊花中,金丝皇菊第一次浸泡溶出的重金属和微量元素比例均较高。通过延长浸泡时间可增加茶汤中重金属和微量元素的溶出,弃去初泡水的方式,虽然去除了过半含量的重金属,但同时也损失了大量微量元素,建议泡茶时延长浸泡时间。

关键词 皇菊;金丝皇菊;重金属;微量元素;溶出特性

中图分类号:O657.31 文献标志码:A 文章编号:2095-1035(2024)07-0995-11

Study on Dissolution Characteristics of Heavy Metals and Trace Elements in Chrysanthemum Tea

TANG Ning, YANG Yonggui, XIONG Jiacheng, GAO Na, HU Jing, ZHAO Shouping, YE Xuezhu*

(Institute of Agro-product Safety and Nutrition, Zhejiang Academy of Agricultural Sciences, Hangzhou, Zhejiang 310000, China)

Abstract In order to investigate the contents of heavy metals and trace elements in chrysanthemum tea and tea soup, and guide the drinking of chrysanthemum tea, this article analyzed the content and dissolution characteristics of heavy metals and trace elements in the main chrysanthemum tea varieties Huangju and Jinsi Huangju in Zhejiang. The contents of seven heavy metals, including Cd, Cr, Cu, Pb, Zn, Ni, and As, and

收稿日期:2023-10-12 修回日期:2024-02-21

基金项目:浙江省重点研发计划项目(2015C02042)

作者简介:唐宁,女,硕士研究生,主要从事农业环境安全研究。E-mail: tndyx1995@163.com

* 通信作者:叶雪珠,女,研究员,主要从事农产品质量安全方面的研究。E-mail: yexz@zaas.ac.cn

引用格式:唐宁,杨永贵,熊嘉成,等.菊花茶中重金属和微量元素溶出特性研究[J].中国无机分析化学,2024,14(7):995-1005.

TANG Ning, YANG Yonggui, XIONG Jiacheng, et al. Study on Dissolution Characteristics of Heavy Metals and Trace Elements in Chrysanthemum Tea[J]. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2024, 14(7): 995-1005.

seven trace elements, including K, Na, Ca, Mg, Se, Fe, and Mn, were determined by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) and inductively coupled plasma emission spectroscopy (ICP-OES). The dissolution characteristics of heavy metals and trace elements in Huangju and Jinsi Huangju under different soaking times and conditions were studied by referring to traditional tea brewing methods. The results showed that the Cd content in both types of chrysanthemums exceeded the standard, but the Cd and other heavy metals in tea soup met the standard for drinking water. As the soaking time prolonged, the dissolution rates of heavy metals and trace elements in chrysanthemums gradually increased, with a total dissolution rate of only 9.9%—11.8% for Cd, and a total dissolution rate of Cr and Pb below 10%. However, the dissolution rates of Cu, Zn, Ni and As were relatively high, ranging from 45.0%—71.6%. The dissolution rates of trace elements were between 1.7%—84.0%, among which K, Na and Se elements having higher dissolution rates, reaching the highest of 84.0%, 72.9%, and 78.0%, respectively. As the soaking times increased, the dissolution rates of heavy metals and trace elements in chrysanthemums gradually decreased. After the first soaking, the dissolution rates of Cd, Cr, and Pb in chrysanthemums were relatively low, ranging from 0.3% to 8.0%, respectively. The initial dissolution rates of Cd, Cr, and Pb accounted for 50% to 100% of the total dissolution rates. Cu, Zn, Ni, and As accounted for 28% to 63% of the total dissolution rate after the first soaking. After the first soaking, the dissolution rates of K and Se in chrysanthemums were relatively high, reaching 30.6% to 65.8%, while Na, Ca, Mg and Mn ranged from 5.8% to 29.4%. The first soaking dissolution of trace elements accounted for 41%—100% of the total dissolution. Among the two types of chrysanthemums, the proportion of heavy metals and trace elements released by the first soaking of golden chrysanthemum was relatively high. By extending the soaking time, the dissolution of heavy metals and trace elements in tea soup were increased. By discarding the initial soaking water, although more than half of the heavy metals were removed, a large amount of trace elements were also lost. It is recommended to extend the soaking time when brewing tea.

Keywords Huangju; Jinsi Huangju; heavy metals; trace elements; dissolution characteristic

现代经济的快速发展使得人们越来越重视健康养生, 饮茶已经成为人们的生活习惯, 花茶作为集花香和茶香为一体的保健饮料深受不同年龄群体的喜爱^[1-2], 其中, 菊花茶具有药食两大功效, 有消炎、抗菌、降血压、降血脂和平肝明目等作用^[3-5]。然而菊花在种植和加工过程中有可能会引入重金属^[6-7], 重金属元素通过茶汤直接被人体吸收, 参与人体各种代谢, 即使是人体必需的重金属, 也有建议摄入量, 过度摄入反而影响正常代谢^[8-9]。同时菊花茶中也有部分对人体有益的微量元素^[10]。菊花茶作为饮料, 不能直接食用, 只能作为茶汤饮用, 因此检测茶叶中有多少重金属和微量元素能通过沸水浸泡进入茶汤才有意义^[11]。

目前对于菊花品质的检验主要集中在干菊花、菊花与水混合物、挥发油等^[12], 对茶汤的研究较少。王雪萍等^[13]对于绿茶的微量元素进行了较为简单的研究, 陈天宇等^[14]就饮茶对于去除水中重金属离子进行了探讨, 但目前就皇菊和金丝皇菊在重金属和微量元素溶出特性方面的研究较少。因此, 本文

对两种市售袋装菊花茶中重金属和微量元素进行了检测, 并结合多数地区的饮茶习惯, 研究了菊花茶中重金属和微量元素的溶出量随着浸泡时间和浸泡次数不同的关系, 同时用拟合方程描述其溶出特性, 以期评估菊花茶饮用的安全性以及提出合理的饮用建议。

1 材料与方法

1.1 仪器与设备

样品粉碎机(DFT-200A, 温岭市林大机械有限公司), 电热恒温鼓风干燥箱(DGG-9240B, 上海森信实验仪器有限公司), 电子天平(PHY-B220, 美国华志), 电热板(HT-300, 中国广州分析测试中心), 微波消解仪(Mars X, 美国 CEM 公司), 电感耦合等离子体原子发射光谱仪(710 Series ICP-OES, 安捷伦公司), 电感耦合等离子质谱仪(iCAP Q, 美国 Thermo 公司), 超纯水仪(Direct-Q3UV, Millipore)。

1.2 供试样品

选用浙江杭州市场购置的皇菊和金丝皇菊。

1.3 实验方法

1.3.1 样品预处理

样品于 80 ℃ 烘箱干燥至恒重,部分用不锈钢高速粉碎机粉碎过 100 目(150 μm)尼龙筛后,室温保存备用,另一部分直接装入自封袋中备用。

1.3.2 样品测定

重金属和微量元素按照 GB 5009.268—2016《食品安全国家标准食品中多元素的测定》中电感耦合等离子体质谱法进行测定:样品中加入 5 mL HNO₃ 浸泡过夜后用微波消解仪消解,消解后用电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS, X-series 2, Thermo Fisher Scientific Inc., USA)测定。样品消煮同时设置 3 个空白实验和标准样品进行检测质量控制。

1.3.3 菊花样品中重金属和其他微量元素的溶出特性实验

1) 浸泡时间对溶出特性影响

设置浸泡时间分别为 5、10、20、30、60、90、240 min,准备 2 L 烧杯,分别称取 10 g(精确至 0.001 g)菊花样品于烧杯中,加入 833 mL 100 ℃ 超纯水,从加水开始计时,时间到即从大烧杯中倾倒出 10 mL 过滤,留存浸出液待测。

2) 浸泡次数对溶出特性影响

分别称取 0.6 g(精确至 0.000 1 g)菊花样品于 250 mL 烧杯中,加入 50 mL 100 ℃ 超纯水,计时 10 min 后,倾出所有茶水过滤,记为第一泡,用同样的方法继续冲泡 3 次,分别留存浸出液待测。

1.3.4 计算公式

菊花中各元素溶出率是指样品中各元素的溶出量占样品中该元素总量的百分比,计算公式如式(1)所示。元素溶出量占溶出总量百分比指该元素单次浸泡溶出量占浸泡 4 次溶出总量的百分比,计算公式如式(2)所示。

溶出率=(元素溶出量/菊花茶中该元素总量)×100% (1)

溶出量占溶出总量百分比=(单次溶出量/浸泡 4 次后的溶出总量)×100% (2)

1.4 评价标准

《中国药典》2020 年版中对于菊花药材重金属限度没有具体要求,本文参考《中国药典》中金银花、黄芪等部分药材的重金属限量,茶汤部分与重金属有关的国内各项卫生标准中只有在《生活饮用水卫生标准》(GB 5749—2022)对重金属有限值要求。具体如表 1 所示。

表 1 《中国药典》中部分药材重金属限量标准和《生活饮用水卫生标准》中重金属限量标准
Table 1 The limit standard of heavy metals in some medicinal materials in Chinese Pharmacopoeia and the limit standard of heavy metals in Drinking Water Sanitation Standard

Standard order	Cd	Cr	Cu	Pb	Zn	Ni	As
‘Chinese Pharmacopoeia Standard’/(mg·kg ⁻¹)	1		20	5			2
‘Drinking Water Sanitation Standard’/(mg·L ⁻¹)	0.005	0.05	1	0.01	1	0.02	0.01

1.5 数据处理

实验数据采用 Microsoft excel 2016 和 IBM SPSS Statistics 25.0 软件处理分析,并建立数学模型,作图采用 Origin 2018。

2 结果与分析

2.1 样品中重金属和微量元素测定结果

两种菊花茶中的重金属和微量元素含量如表 2 所示,菊花茶中各种元素均有检出,重金属元素含量由高到低依次为:Zn>Cu>Ni>Cd>Cr>Pb>As;微量元素含量由高到低依次为:K>Ca>Mg>Na>Fe>Mn>Se。

两种菊花中重金属含量略有差异,皇菊中的重金属 Cd、Pb、Zn、Ni 的含量较高,其中 Pb 和 Ni 的含量比金丝皇菊分别高出 104.7% 和 73.8%。金丝皇菊中的重金属 Cr、Cu、As 的含量较高,其中 Cr 的含

量比皇菊高出 87.7%。与标准限量相比,皇菊和金丝皇菊中的 Cd 含量分别超标 41.4% 和 31.2%,应重点关注,其他指标均符合限量规定。

皇菊中的微量元素 Mg、Se、Mn 的含量较高,其中 Mn 的含量比金丝皇菊分别高出 113.2%。金丝皇菊中的元素 K、Na、Ca、Fe 的含量较高,其中 Na 的含量比皇菊高出 146.2%。

2.2 浸泡时间对重金属和微量元素溶出量的影响

将溶出量与浸泡时间进行对数函数拟合,其中 t 为浸泡时间, min, y 为溶出量, mg/kg。由表 3 可以看出,各元素的溶出量随着浸泡时间的延长呈对数线性增加,每种元素之间的增幅有所差别。拟合模型的相关性都较好,除了 Pb 以外,其他元素拟合的相关性都在 0.75 以上,皇菊中相关性最大的为 Ni,相关性系数为 0.999,金丝皇菊中相关性最大的为 Ca,相关性系数为 0.988。

表 2 菊花茶中重金属和微量元素的含量

Table 2 Contents of heavy metals and trace elements in chrysanthemum tea

Elements	/(mg · kg ⁻¹)	
	Huangju	Jinsi Huangju
Cd	1.414	1.312
Cr	0.594	1.116
Cu	13.08	15.38
Pb	0.559	0.273
Zn	29.5	28.2
Ni	2.083	1.199
As	0.081 5	0.096 6
K	20 095	26 474
Na	97.9	241.1
Ca	2 461	3 592
Mg	1 619	1 564
Se	0.029	0.015
Fe	96.8	97.3
Mn	29.1	13.6

图 1 为两种菊花的重金属在不同浸泡时间的溶出率,除 Pb 外,其他重金属的溶出率均随着浸泡时间的延长而增加,不同元素在不同时间的溶出率也有所不同。斜率代表了重金属的溶出速度,两种菊花的各元素均在前 10 min 溶出速度最大,随后溶出速度逐渐减缓。大部分重金属在 240 min 前的溶出率已经平稳,在 240 min 溶出率达到最大值,个别有下降趋势。两种菊花在浸泡 240 min 时,超标元素 Cd 的溶出率仅 9.9%~11.8%,Cr 和 Pb 的溶出率也较低,分别为 3.15%~3.80%、3.94%~5.45%,而 Cu、Zn、Ni、As 的溶出率较高分别为 63.97%~65.57%、44.95%~47.49%、48.86%~71.64%、67.45%~69.54%。可能是 Cd、Cr、Pb 元素在菊花中与有机大分子结合率较高,大多数 Cr、Pb、Cd 以有机态存在不易溶出。两种菊花中重金属的溶出率也有差异,皇菊中的 Pb、Zn、Ni 溶出率高于金丝皇菊,而 Cd、Cr、Cu、As 的低于金丝皇菊。

表 3 不同浸泡时间与菊花中重金属和微量元素的溶出关系

Table 3 Relationship between different soaking time and dissolution of heavy metals and trace elements in chrysanthemum

Elements	Huangju		Jinsi Huangju	
	Logarithmic equation	Correlation coefficient(<i>r</i>)	Logarithmic equation	Correlation coefficient(<i>r</i>)
Cd	$y=0.046+0.18\ln t$	0.986	$y=0.016+0.027\ln t$	0.960
Cr	$y=0.002+0.009\ln t$	0.881	$y=0.017+0.006\ln t$	0.877
Cu	$y=-0.398+1.677\ln t$	0.998	$y=1.585+1.688\ln t$	0.924
Pb	$y=0.043-0.004\ln t$	0.455	$y=0.009+0.002\ln t$	0.212
Zn	$y=8.219+1.250\ln t$	0.908	$y=6.382+1.508\ln t$	0.765
Ni	$y=0.215+0.237\ln t$	0.999	$y=0.089+0.101\ln t$	0.939
As	$y=0.047+0.002\ln t$	0.915	$y=0.022+0.010\ln t$	0.869
K	$y=9944.967+1489.916\ln t$	0.879	$y=7958.537+2841.259\ln t$	0.854
Na	$y=26.012+8.694\ln t$	0.991	$y=31.279+24.545\ln t$	0.944
Ca	$y=243.884+45.130\ln t$	0.988	$y=50.783+178.992\ln t$	0.988
Mg	$y=288.316+56.908\ln t$	0.954	$y=110.018+115.952\ln t$	0.958
Se	$y=0.013+0.001\ln t$	0.805	$y=0.003+0.002\ln t$	0.850
Fe	$y=1.403+0.325\ln t$	0.893	$y=0.612+0.414\ln t$	0.890
Mn	$y=1.960+0.961\ln t$	0.996	$y=0.190+0.643\ln t$	0.974

两种菊花的微量元素在不同浸泡时间的溶出率如图 2 所示,各元素的溶出率也随着浸泡时间的延长而增加。从斜率看,各元素也在前 10 min 溶出速度最快且在 240 min 时的溶出率达到最大值。在浸泡 240 min 时,微量元素的溶出率在 1.7%~84.0%,其中 K、Na、Se 元素的溶出率较高,分别达到了 80.2%~84.0%、64.0%~72.9%、62.8%~78.0%,而 Fe 的溶出率均较低,仅 2.5%~3.0%。两种菊花微量元素的溶出率也有差异,皇菊中的 K、Na、Fe 最大溶出率高于金丝皇菊,而金丝黄菊

中的 Ca、Mg、Se、Mn 的溶出率最大高于皇菊。

综上,在浸泡过程中,随着时间的延长,重金属和微量元素溶出量均在增加,整体重金属元素溶出比例较低,微量元素溶出的比例较高。两种菊花均在前 10 min 达到了最大的溶出速率,Cd、Cr、Pb 的溶出率均较低,大多在 10%以下,Cu、Zn、Ni、As 的溶出率较高,在 44.95%~71.64%。微量元素的溶出率在 1.7%~84.0%,其中 K、Na、Se 元素的溶出率较高,分别达到了 80.2%~84.0%、64.0%~72.9%、62.8%~78.0%。

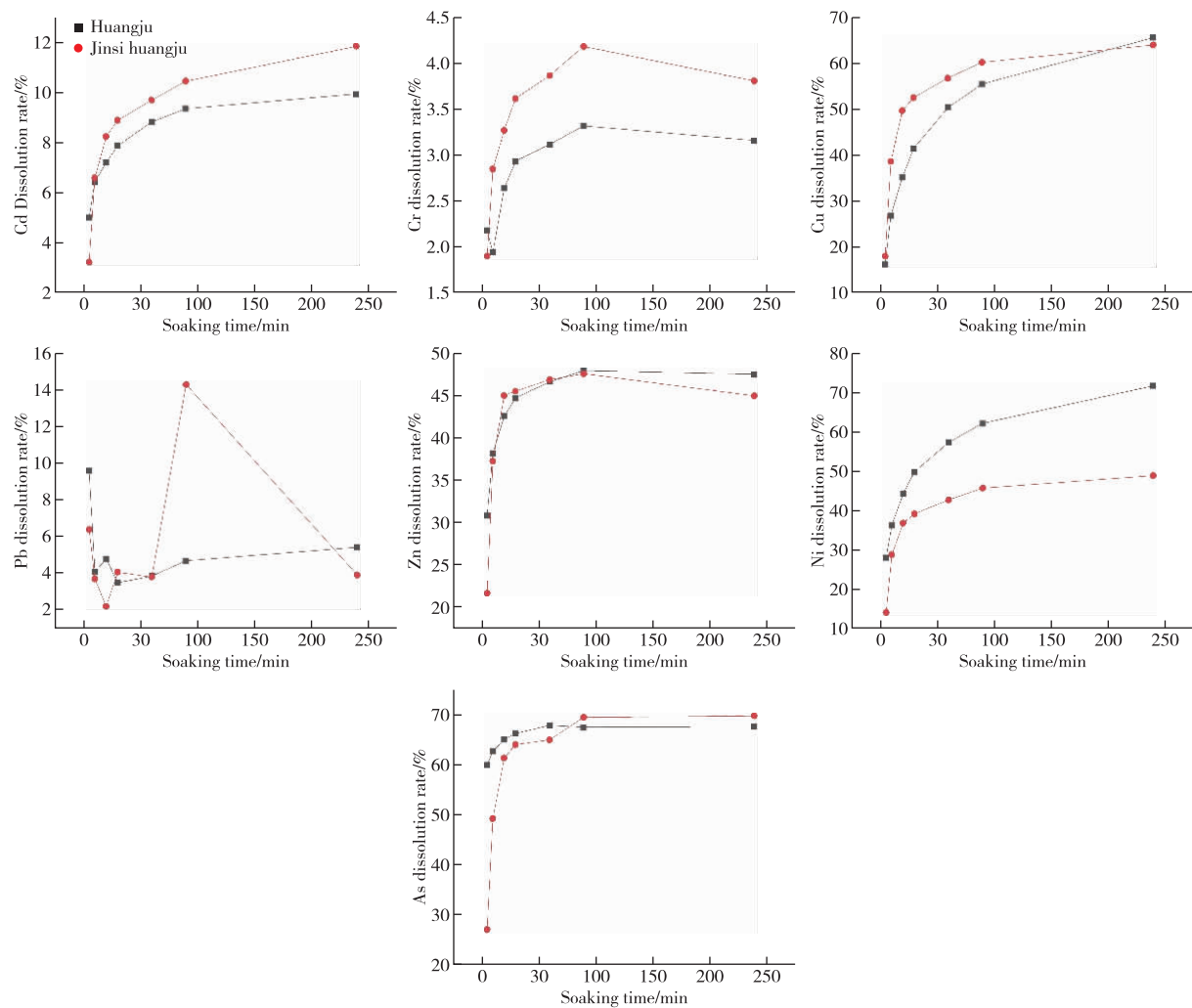


图 1 重金属在不同浸泡时间下的溶出率

Figure 1 Dissolution rates of heavy metals under different soaking time.

2.3 浸泡次数对重金属和微量元素溶出量的影响

将溶出量与浸泡次数进行对数函数拟合,其中 A 为浸泡次数;B 为元素的溶出量,mg/kg。由表 4 可知,各元素的溶出量均随着浸泡次数的增加呈对数线性减

少,拟合模型的相关性均较好,除皇菊的 Cu 相关性为 0.681 以外,两种菊花其他元素拟合的相关性均在 0.881 以上,皇菊中相关性最大的为 Ca,相关性系数为 1.000,金丝皇菊中相关性最大的为 K,相关性系数为 0.946。

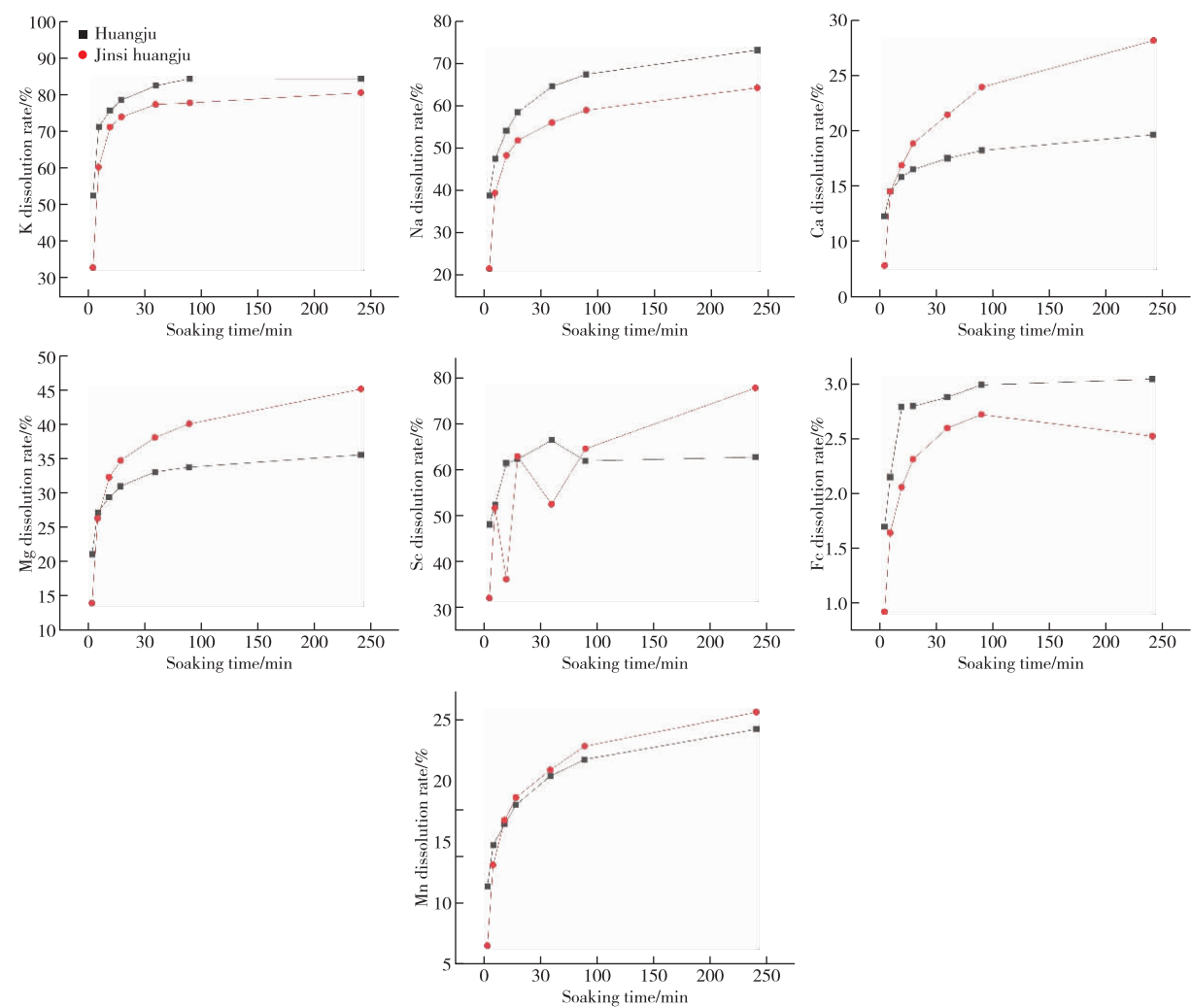


图 2 微量元素在不同浸泡时间下的溶出率

Figure 2 Dissolution rates of trace elements under different soaking time.

表 4 不同浸泡次数与菊花中重金属和其他微量元素的溶出关系

Table 4 Relationship between different soaking times and dissolution of heavy metals and other trace elements in chrysanthemum

Elements	Huangju		Jinsi Huangju	
	Logarithmic equation	Correlation coefficient(<i>r</i>)	Logarithmic equation	Correlation coefficient(<i>r</i>)
Cd	$B=0.033-0.021\ln A$	0.995	$B=0.092-0.070\ln A$	0.919
Cr	$B=0.001-0.001\ln A$	0.881	$B=0.028-0.025\ln A$	0.881
Cu	$B=-2.313-0.679\ln A$	0.681	$B=6.328-4.348\ln A$	0.931
Pb	$B=0.014-0.011\ln A$	0.982	$B=0.007-0.006\ln A$	0.881
Zn	$B=6.698-3.390\ln A$	0.991	$B=11.484-8.016\ln A$	0.926
Ni	$B=0.306-0.109\ln A$	0.942	$B=0.364-0.252\ln A$	0.921
As	$B=0.030-0.019\ln A$	0.994	$B=0.045-0.031\ln A$	0.918
K	$B=6295.43-3496.832\ln A$	0.992	$B=9701.267-6431.725\ln A$	0.946
Na	$B=19.114-9.529\ln A$	0.996	$B=62.644-42.582\ln A$	0.909
Ca	$B=179.884-99.884\ln A$	1.000	$B=576.48-398.30\ln A$	0.900
Mg	$B=193.259-117.977\ln A$	0.999	$B=358.474-266.923\ln A$	0.913
Se	$B=0.009-0.006\ln A$	0.975	$B=0.009-0.007\ln A$	0.912
Fe	$B=0.080-0.070\ln A$	0.881	$B=0.652-0.574\ln A$	0.881
Mn	$B=1.670-0.959\ln A$	0.994	$B=2.210-1.589\ln A$	0.877

两种菊花不同浸泡次数后重金属的溶出率如图 3 所示,随着浸泡次数的增加,两种菊花重金属的溶出率均在减少。在初次浸泡后,菊花中 Cd、Cr、Pb 的溶出率较低,分别在 2.9%~8.0%、0.3%~3.1%、2.7%~3.2%,且两种菊花中 Cr 和金丝皇菊中 Pb 在第二次浸泡后未检出,Cd 在后面三次浸泡中的溶出率仅为 1.4%~1.8%、0.8%~1.2%和 0.4%~0.7%。Cu、Zn、Ni、As 在四次浸泡中均有检出,四次浸泡的溶出率分别为 13.9%~53.0%、8.3%~19.6%、7.1%~11.9%、5.0%~8.4%。计算菊花中重金属单次溶出量占溶出总量百分比可以看

出(图 4),菊花中 Cd、Cr、Pb 的溶出量在浸泡一次后,占溶出总量分别为 50%~71%、100%、71%~100%, Cu、Zn、Ni、As 在第一次浸泡后,溶出量分别占总量的 28%~61%、42%~63%、33%~63%、51%~62%。在第一次浸泡后,皇菊中重金属溶出量占溶出总量的 28%~100%,平均值为 53.6%,金丝皇菊中重金属溶出量占溶出总量的 61%~100%,平均值为 74.3%。说明在初次浸泡之后,菊花中的大部分重金属溶出量占溶出总量已经超过 50%,因此可以通过弃去初泡水的方式来控制重金属的摄入,且金丝皇茶弃去初泡水可以去除重金属的比例更高。

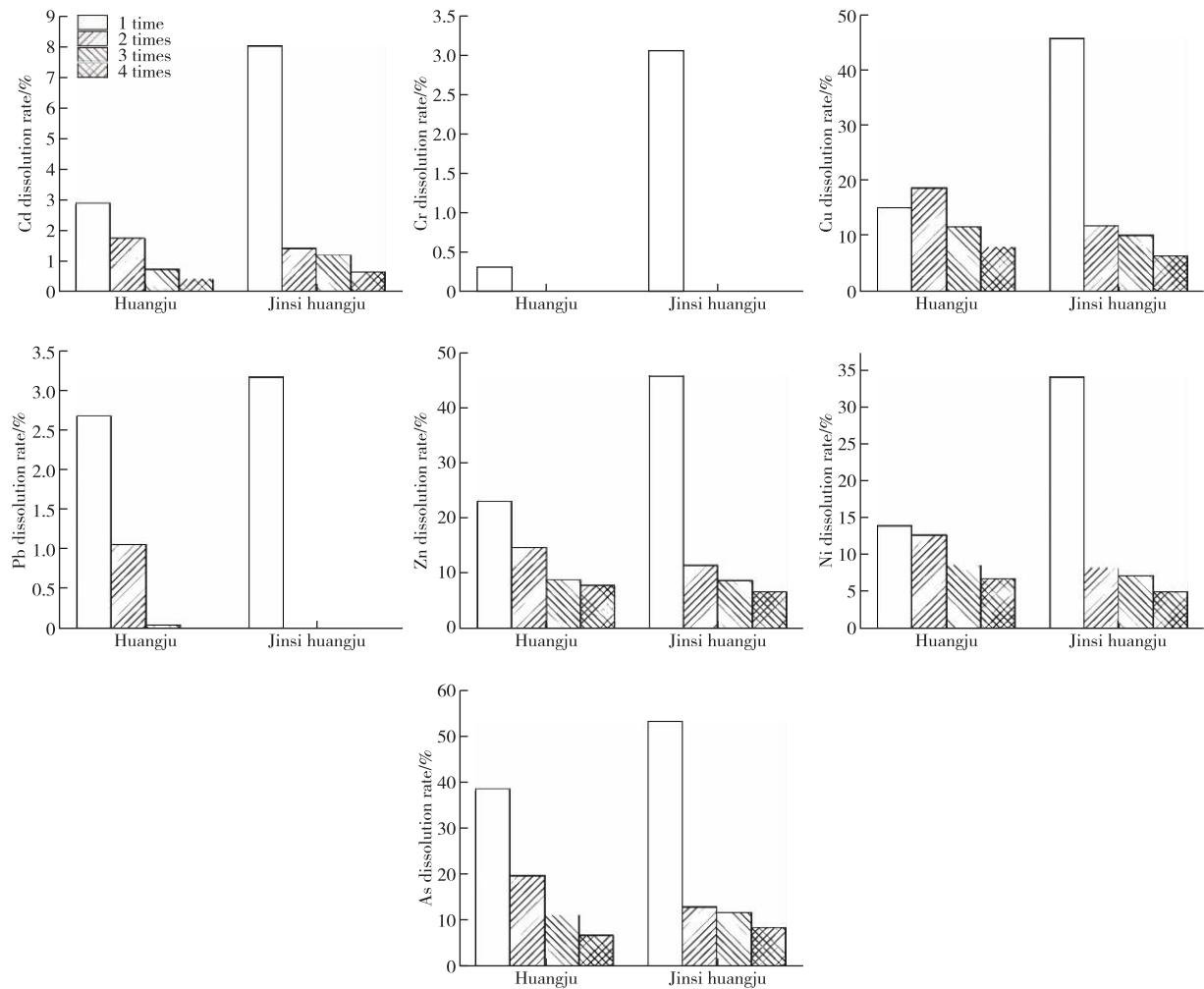


图 3 重金属在不同浸泡次数下的溶出率

Figure 3 Dissolution rates of heavy metals under different soaking times.

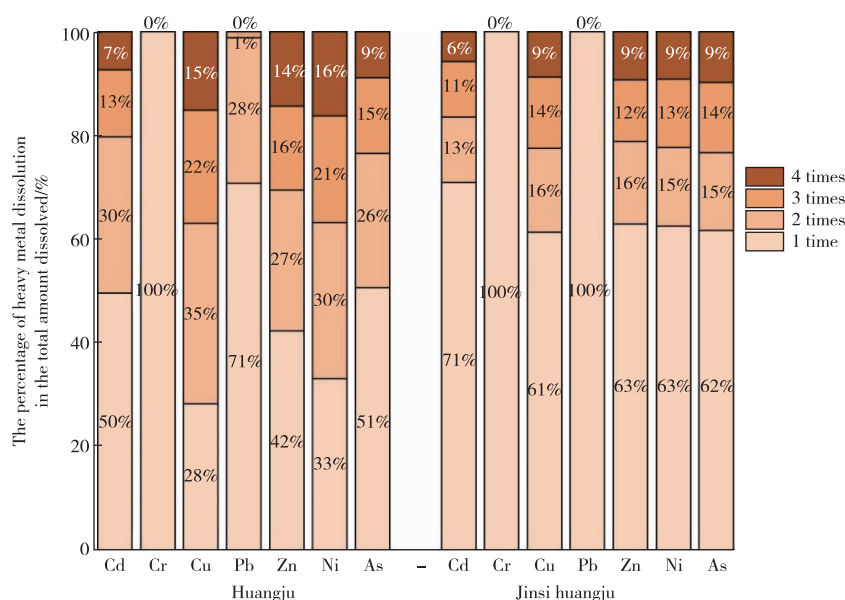


图 4 重金属单次溶出量百分比

Figure 4 Percentage of single dissolution of heavy metals.

图 5 为两种菊花不同浸泡次数后微量元素的溶出率,随着浸泡次数的增加,两种菊花微量元素的溶出率均在降低。初次浸泡后,菊花中的 K 和 Se 的溶出率较高,分别达到 30.6%~40.2%和 32.6%~65.8%,Na、Ca、Mg、Mn 的溶出率在 5.8%~29.4%。初次浸泡后两种菊花中 Fe 溶出率仅为 0.10%和 0.81%,且在第二次浸泡之后均未检出。同样将菊花中微量元素单次溶出量占溶出总量百分比计算如图 6 所示,K 和 Se 初次浸泡溶出量占溶出总量的 44%~58%和 58%~82%,Na、Ca、Mg、Mn 初次浸泡溶出量占溶出总量的 41%~70%,Fe 则占比 100%。在初次浸泡后,皇菊中微量元素溶出量占溶出总量的平均值为 54.6%,金丝皇菊中微量元素溶出量占溶出总量的平均值为 71.9%。说明在初次浸泡之后,菊花中的大部分微量元素溶出量占溶出总量也超过 50%,通过弃去初泡茶的方式会导致这些微量元素大量损失,且金丝皇菊损失的微量元素比例更高。

综上,随着浸泡次数增加,重金属和微量元素溶出量均在减少,在初次浸泡之后,菊花中的大部分重金属和微量元素溶出量已经占溶出总量超过 50%,

通过弃去初泡茶的方式可以控制重金属的摄入但会导致微量元素大量损失,且金丝皇菊损失的微量元素比例更高。

2.4 菊花中溶出重金属的超标情况

根据试验的茶水比将部分溶出量换算如表 5 所示,菊花的初次溶出含量和 240 min 溶出含量是模拟实验中可以测出的最大溶出含量,两种菊花中 Cd 虽超标 31.2%~41.4%,但初次溶出含量和 240 min 溶出含量均远小于限量标准,且其他在菊花中未超标的重金属,最大溶出含量也远小于限量标准,说明菊花茶在饮用过程中并无重金属超标风险。

2.5 菊花中重金属和微量元素含量的相关性分析

将菊花中溶出重金属与微量元素的含量进行相关性分析可得表 6 结果,除重金属 Pb 与微量元素无显著相关性外,其他重金属和微量元素之间大多存在极显著相关性($P < 0.01$)和显著相关性($P < 0.05$),且相关性系数均在 0.561 以上,说明在泡茶过程中,重金属和微量元素溶出量之间的相关性非常强,进一步佐证了当采用弃去初泡水方式去除重金属的同时,微量元素也同步在流失。

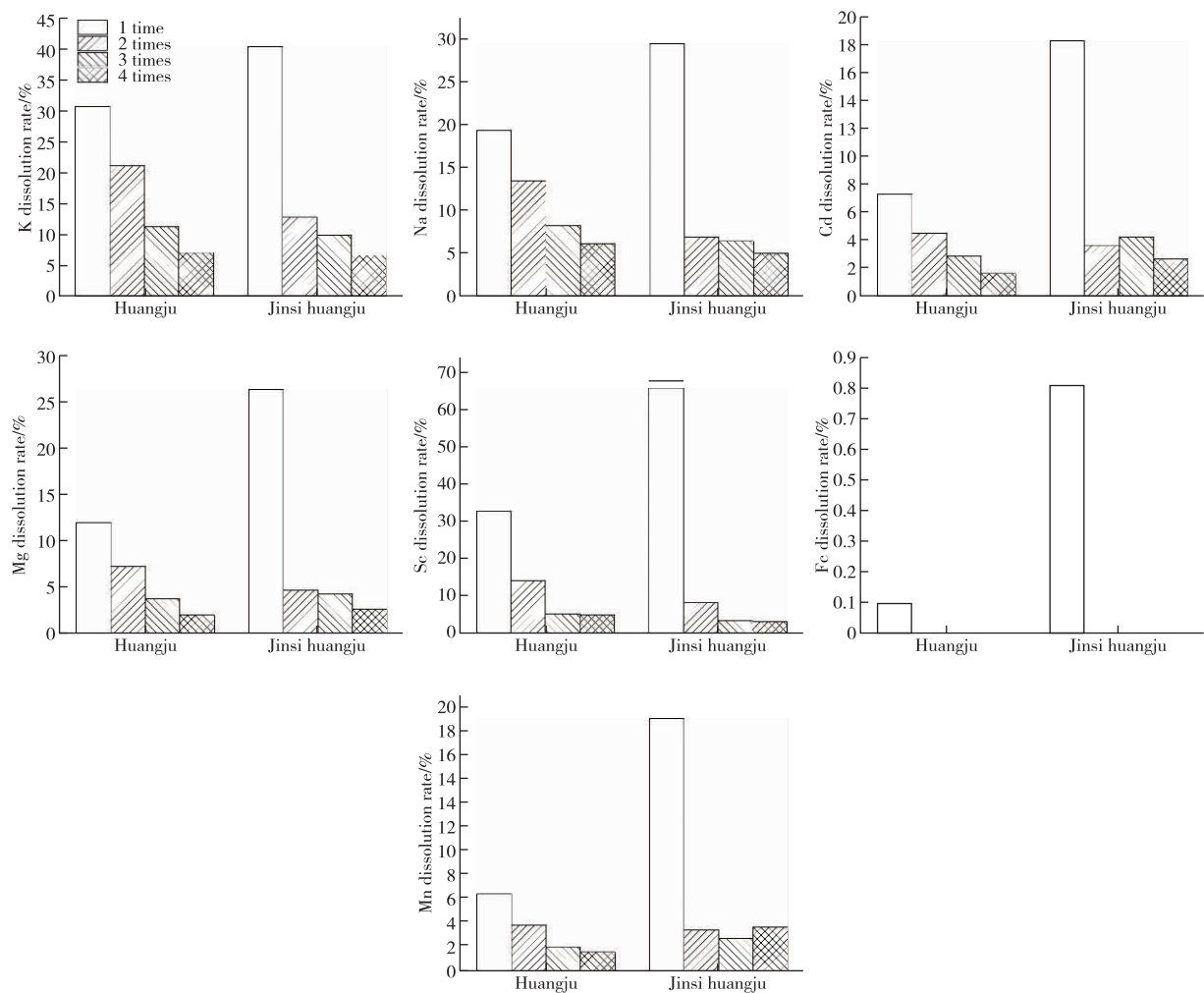


图 5 元素在不同浸泡次数下的溶出率

Figure 5 Dissolution rate of elements under different soaking times.

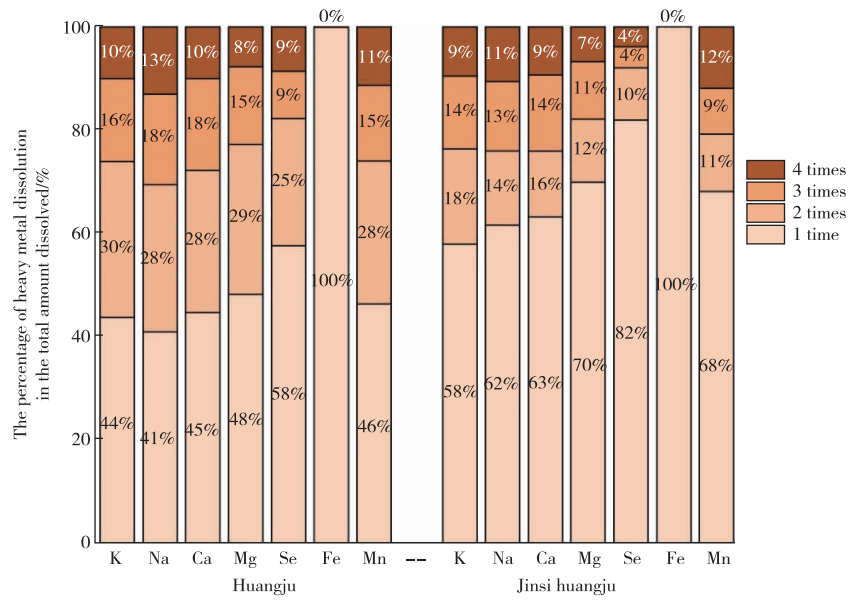


图 6 两种菊花单次溶出量占总溶出量百分比

Figure 6 Percentage of single dissolution of two kinds of chrysanthemum in total dissolution.

表 5 菊花中重金属溶出含量

Table 5 Dissolution of heavy metals in chrysanthemum

Elements	Initial dissolution content/(mg · L ⁻¹)		240 minutes dissolution content/(mg · L ⁻¹)	
	Huangju	Jinsi Huangju	Huangju	Jinsi Huangju
Cd	0.000 40	0.001 26	0.001 68	0.001 86
Cr	0.000 02	0.000 41	0.000 22	0.000 51
Cu	0.024 04	0.084 63	0.102 93	0.118 07
Pb	0.000 18	0.000 10	0.000 37	0.000 13
Zn	0.081 40	0.154 53	0.168 13	0.152 12
Ni	0.003 48	0.004 91	0.017 91	0.007 03
As	0.000 38	0.000 61	0.000 66	0.000 81

表 6 重金属和微量元素相关性分析

Table 6 Correlation analysis of heavy metals and trace elements

Items	Cd	Cr	Cu	Pb	Zn	Ni	As
K	0.877**	0.762**	0.936**	-0.400	0.793**	0.094	0.918**
Na	0.597 *	0.976**	0.844**	-0.457	0.370	-0.376	0.704**
Ca	0.714**	0.904**	0.862**	-0.340	0.452	-0.236	0.786**
Mg	0.981**	0.561 *	0.900**	-0.188	0.867**	0.358	0.930 *
Se	0.340	-0.644 *	-0.094	0.436	0.491	0.906**	0.139
Fe	0.857**	0.049	0.597 *	0.093	0.943**	0.787**	0.708**
Mn	0.531	-0.494	0.158	0.330	0.659 *	0.993**	0.260

Note: **- $P < 0.01$, *- $P < 0.05$.

3 结论

1)两种菊花中的 Cd 含量分别超标 41.4%和 31.2%,且不同菊花中重金属和微量元素之间含量有差异,其中皇菊中的重金属 Cd、Pb、Zn、Ni 和元素 Mg、Se、Mn 的含量较高,而金丝皇菊中的重金属 Cr、Cu、As 和元素 K、Na、Ca、Fe 的含量较高。

2)菊花茶中溶出的 Cd 及其他重金属含量远低于标准,可放心饮用。菊花中重金属溶出率随着浸泡时间延长而逐渐增加,Cd 总溶出率仅 9.9%~11.8%,Cr 和 Pb 的总溶出率也均在 10%以下,而其他重金属溶出率在 44.95%~71.64%;随着浸泡次数增加,菊花中重金属的溶出率逐渐降低,在初次浸泡后,菊花中 Cd、Cr、Pb 的溶出率较低,分别在 0.3%~8.0%,Cd、Cr、Pb 的初次溶出量占溶出总量 50%~100%,Cu、Zn、Ni、As 在第一次浸泡后,溶出量占总量的 28%~63%,两种菊花中,金丝皇菊初次浸泡溶出的重金属比例较高。说明在初次浸泡之后,菊花中的大部分重金属溶出量已经占溶出总量超过 50%,因此可以通过弃去初泡茶的方式来控制重金属的摄入,且金丝皇菊弃去初泡水可以去除重金属的比例更高。

3)微量元素溶出率随着浸泡时间延长而增加,范围在 1.7%~84.0%,其中 K、Na、Se 元素的溶出率较高,分别达到了 80.2%~84.0%、64.0%~

72.9%、62.8%~78.0%;随着浸泡次数增加,菊花中微量元素的溶出率逐渐降低,初次浸泡后,菊花中的 K 和 Se 的溶出率较高,达到 30.6%~65.8%,Na、Ca、Mg、Mn 的溶出率在 5.8%~29.4%。微量元素初次浸泡溶出量占溶出总量的 41%~100%,且金丝皇菊初次浸泡溶出的比例也较高。说明延长浸泡时间可增加微量元素的摄入,而弃去初泡水方式会损失大部分微量元素。

4)重金属和微量元素溶出量之间相关性大部分为极显著相关($P < 0.01$),进一步说明了当延长浸泡时间,菊花中的重金属和微量元素的溶出量都会增加,而采用弃去初泡水方式去除重金属时,会同时损失大部分微量元素,经过比较,茶汤中重金属溶出最大量也远小于限量标准,建议在泡茶时尽量延长浸泡时间,增加微量元素的摄入。

参考文献

- [1] 李脉泉,董云霞,张灿,等.常见花茶的功能成分与生物活性研究进展[J].现代食品科技,2022,38(9):361-373.
LI Maiquan, DONG Yunxia, ZHANG Can, et al. Research progress in functional components and bioactivity of common scented tea[J]. Modern Food Science and Technology, 2022, 38(9): 361-373.
- [2] 姚晶晶,崔文文,王明锐,等.湖北典型地区茶叶-土壤重金属相关性研究[J].中国无机分析化学,2023,13(12):

- 1282-1286.
- YAO Jingjing, CUI Wenwen, WANG Mingrui, et al. Correlation of heavy metal pollution in tea and soils in typical areas of Hubei[J]. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2023, 13(12): 1282-1286.
- [3] 宋佳慧, 夏熠珣, 沈慧娟, 等. 8种饮用菊茶汤的感官风味与活性成分比较[J]. 食品工业科技, 2021, 42(12): 24-31.
- SONG Jiahui, XIA Yixun, SHEN Huijuan, et al. Comparison of the sensory quality and active ingredients of 8 kinds of chrysanthemum tea infusion[J]. Science and Technology of Food Industry, 2021, 42(12): 24-31.
- [4] 熊冬梅, 郭素娟, 谢鑫, 等. 不同品种菊花茶中重金属含量检测及溶出率分析[J]. 中国卫生检验杂志, 2018, 28(19): 2420-2421, 2424.
- XIONG Dongmei, GUO Sujuan, XIE Xin, et al. Detection and dissolution rate analysis of heavy metals in chrysanthemum tea of different varieties[J]. Chinese Journal of Health Laboratory Technology, 2018, 28(19): 2420-2421, 2424.
- [5] 黄振, 慈惠婷, 柳志勇, 等. 基于主成分及聚类分析的药用菊花品种产量与品质综合评价[J/OL]. 食品工业科技, 2023: 1-15. [2023-10-16]. <https://doi.org/10.13386/j.issn1002-0306.2023050062>.
- HUANG Zhen, CI Huiting, LIU Zhiyong, et al. Comprehensive evaluation on yield and quality of medicinal chrysanthemum morifolium varieties based on principal component analysis and cluster analysis[J/OL]. Science and Technology of Food Industry, 2023: 1-15. [2023-10-16]. <https://doi.org/10.13386/j.issn1002-0306.2023050062>.
- [6] 费毅琴, 肖凌, 汪波, 等. 37种植物类药材中重金属和有害元素残留分析及风险评估[J]. 药物分析杂志, 2021, 41(6): 1000-1008.
- FEI Yiqin, XIAO Ling, WANG Bo, et al. Residue analysis and risk assessment of heavy metals and harmful elements in 37 plant medicinal materials[J]. Chinese Journal of Pharmaceutical Analysis, 2021, 41(6): 1000-1008.
- [7] 刘文政, 杨绍群, 殷忠, 等. 黔产市售绿茶重金属的含量特征及健康风险评估[J]. 中国无机分析化学, 2022, 12(6): 19-25.
- LIU Wenzheng, YANG Shaoqun, YIN Zhong, et al. Healthrisk assessment and characteristics of heavy metals in green tea samples from urban markets in Guizhou province[J]. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2022, 12(6): 19-25.
- [8] 赵志南. 凤凰单枞-土壤系统铊生物有效性及其茶叶暴露风险评估[D]. 广州: 广州大学, 2017.
- ZHAO Zhinan. The bioavailability of thallium in soil-Fenghuangdancong tea system and health risk assessment of thallium exposure[D]. Guangzhou: Guangzhou University, 2017.
- [9] 赵明明, 杨远. 云南东川区域重金属环境暴露健康风险评估[J]. 中国无机分析化学, 2022, 12(5): 26-33.
- ZHAO Mingming, YANG Yuan. Healthrisk assessment of heavy metals in the main river basins of Dongchuan, Yunnan province[J]. Chinese Journal of Inorganic Analytical Chemistry, 2022, 12(5): 26-33.
- [10] 张玲, 刘桂建. 不同品种药用菊花无机元素含量特征分析[J]. 中成药, 2022, 44(7): 2414-2417.
- ZHANG Ling, LIU Guijian. Analysis of inorganic elements content characteristics of different varieties of medicinal chrysanthemum[J]. Chinese Traditional Patent Medicine, 2022, 44(7): 2414-2417.
- [11] 张清海, 龙章波, 林绍霞, 等. 贵州云雾茶园土壤高含量重金属和砷在茶叶中的积累与浸出特征[J]. 食品科学, 2013, 34(8): 212-215.
- ZHANG Qinghai, LONG Zhangbo, LIN Shaoxia, et al. Distribution of heavy metals in soil and tea from yunwu tea area in guizhou province and diffusion characteristics of heavy metals in tea infusion[J]. Food Science, 2013, 34(8): 212-215.
- [12] 肖作兵, 范彬彬, 牛云蔚, 等. 菊花精油中特征风味物质的分析[J]. 中国食品学报, 2018, 18(3): 299-305.
- XIAO Zuobing, FAN Binbin, NIU Yunwei, et al. Analysis of flavor substances in chrysanthemum essential oils[J]. Journal of Chinese Institute of Food Science and Technology, 2018, 18(3): 299-305.
- [13] 王雪萍, 高士伟, 郑鹏程, 等. 不同产区绿茶氨基酸及矿物元素分析评价[J]. 食品工业, 2020, 41(2): 322-325.
- WANG Xueping, GAO Shiwei, ZHENG Pengcheng, et al. Analysis and evaluation of amino acid and mineral elements for green tea in different production areas[J]. The Food Industry, 2020, 41(2): 322-325.
- [14] 陈天宇, 陈钟, 冯桂学, 等. 饮茶能否减少人对饮水中重金属的摄入——以铅和铜为例[J]. 给水排水, 2016, 52(增刊1): 30-32.
- CHEN Tianyu, CHEN Zhong, FENG Guixue, et al. Can drinking tea reduce the intake of heavy metals in drinking water: lead and copper, for example[J]. Water & Wastewater Engineering, 2016, 52(Suppl. 1): 30-32.