·实验研究·

不同冲泡条件下普洱茶稀土元素析出水平及其影响因素分析*

余超，周洪伟，何洁仪，李迎月，林晓华，张维蔚，梁伯衡，刘于飞

【摘　要】**目的**　了解不同冲泡条件下普洱茶稀土元素析出水平及其影响因素，评估人群经普洱茶摄入稀土元素健康风险。**方法**　以 2013 — 2015 年广东省广州市售普洱茶稀土元素监测结果为基础，根据稀土元素含量将茶叶样品分为 0 ~ 2.0、> 2.0 ~ 5.0 和 > 5.0 mg/kg 3 个层级，从每个层级中随机选取 5 份普洱茶，每份 50 g，充分混匀后制成 1 份总重量为 750 g 的混合样品，模拟普洱茶在餐饮消费环节及功夫茶冲泡方式，开展茶汤冲泡实验，采用电感耦合等离子体质谱法测定冲泡后茶渣、冲泡用水以及冲泡茶汤中稀土元素含量。**结果**　餐饮消费环节茶叶冲泡方式下，稀土元素从普洱茶析出至茶汤的平均比例为 5.73 %，冲泡过程中普洱茶稀土元素析出水平受茶叶量、水温、时间 3 个因素的影响，析出率与茶叶量呈反比，与冲泡间隔时间和水温呈正比。功夫茶冲泡方式下，稀土元素从普洱茶析出至茶汤的平均比例为 7.01 %，以第 3 泡茶茶汤稀土元素析出率最高（1.80 % ~ 3.13 %）。**结论**　不同冲泡方式下，稀土元素从普洱茶析出至茶汤中的比例较低，人群经普洱茶摄入稀土元素的量很少，按照消费者日常饮茶习惯，经饮用普洱茶汤摄入稀土元素产生健康风险的概率很小。

【关键词】普洱茶；稀土元素；冲泡；茶汤
中图分类号:R 151.3　**文献标志码:**A　**文章编号:**1001-0580(2018)11-1527-05　**DOI:**10.11847/zgggws1118192

Water dissolution of rare earth elements in Pu′er tea and its influencing factors under various brewing conditions

YU Chao, ZHOU Hong-wei, HE Jie-yi, et al (*Department of Surveillance on Foodborn Disease and Food Safety Risk*, *Guangzhou Municipal Center for Disease Control and Prevention*, *Guangzhou*, *Guangdong Province* 510440, China)

【**Abstract**】**Objective**　To examine the dissolution of rare earth elements (REEs) in Pu′er tea and its influencing factors under different brewing conditions and to assess health risk associated with rare earth element exposure due to Pu′er tea drinking. **Methods**　Based on studies conducted between 2013 – 2015 in Gaungzhou city, we identified 3 categories of market available Pu′er tea with the REEs concentration of 0 – 2.0, > 2.0 – 5.0, and > 5.0 mg/kg and collected 5 samples (50 g for each) for each of the three categories of Pu′er tea and blended all the 15 collected samples into a mixed Pu′er tea sample (750 g). Then we simulated the process of kungfu tea making and daily Pu′er tea consumption to make Pu′er tea infusion samples under various brewing conditions. The contents of REEs in tea leafs, water used, and infusion were determined with inductively coupled plasma-mass spectrometry (ICP-MS). **Results**　The mean percentage of Pu′er tea REEs dissolved in the infusions was 5.73% under the brewing condition in daily Pu′er tea consumption. The content of REEs dissolution in Pu′er tea infusion was mainly affected by the amount of tea used, water temperature, and brewing time; the percentage of REEs dissolved was correlated reversely with the amount of Pu′er tea used and positively with water temperature and time of brewing. The mean percentage of Pu′er tea REEs dissolved in the tea infusions was 7.01% under the brewing condition in kungfu tea making and the percentage was the highest for the infusion of third time brewing among the infusions of a total of seven brewings. **Conclusion**　The dissolution ratio of REEs in Pu′er tea is low in tea infusion under various brewing methods and the amount of REEs intake via drinking Pu′er tea is very small in general populations; therefore the probability for health risk due to Pu′er tea drinking is very low for populations having Pu′er tea drinking under general consumption pattern.

【**Key words**】Pu′er tea; rare earth element; brewing; tea infusion

稀土元素是化学元素周期表中的镧系元素，以及与镧系元素密切相关的钪（scandium, Sc）和钇（yttrium, Y）元素的总称。过量摄入稀土元素会给人体带来一定的危害，流行病学调查显示，稀土元素可改变血液生化指标，引起皮肤病，阻碍儿童正常的生长发育与智商形成，降低儿童免疫功能，具有潜在的致突变作用[1 – 4]。广东省是全国最大的茶叶消费省份，人均茶叶消费量居全国首位，普洱茶

* **基金项目:**广州市医学重点学科建设项目（2017 – 2019 – 07）；广州市医药卫生科技项目（20161A010055）
作者单位:广州市疾病预防控制中心食源性疾病与食品安全风险监测部，广东 510440
作者简介:余超（1985 – ），男，湖南望城人，主管医师，硕士，主要从事食品安全风险监测工作。
数字出版日期: 2018 - 06 - 11 11:19
数字出版地址: http://kns.cnki.net/kcms/detail/21.1234.R.20180611.1119.008.html

消费量占据全国七成。近年来，茶叶中稀土残留问题引起了政府、公众、媒体的高度关注，但由于人群暴露于茶叶稀土元素的途径为摄入茶汤，茶叶中稀土元素残留高低并不能真实体现其对人体的危害程度，因此分析茶叶冲泡后茶汤中稀土元素析出水平能更合理地反映人群暴露情况。2013 — 2015 年，广州市疾病预防控制中心模拟消费者饮茶习惯，开展茶汤冲泡实验，通过测定不同冲泡方式及条件下普洱茶稀土元素析出量及比例，评估人群经普洱茶摄入稀土元素风险，为居民健康饮茶提供指导。

1 材料与方法

1.1 样品来源 2013 — 2015 年，在广东省广州市区域范围内超市、批发市场、零售店、餐饮单位、网店采集 418 份普洱茶样品，进行稀土元素检测，课题组于 2015 年底开展普洱茶汤冲泡实验，根据稀土元素（以稀土总氧化物计）检测结果将普洱茶样品分为 0 ~ 2.0、> 2.0 ~ 5.0 和 > 5.0 mg/kg 3 个等级，从每个等级中随机选取 5 份普洱茶样品，每份样品 50 g，充分混匀后制成重量为 750 g 的混合样品。

1.2 主要仪器与试剂 Agilent 7700 Series 电感耦合等离子体质谱仪（inductively coupled plasma-mass spectrometer, ICP-MS）（美国安捷伦公司）、高压密闭微波系统、天平、煮水器、量杯、温度计、样品预处理瓶。硝酸（nitric acid, HNO_3）（BVⅢ级，北京化学试剂研究所），高纯氩气（> 99.999 %），稀土元素贮备液（10 μg/mL, Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu）、内标贮备液（10 μg/mL, Rh、In、Re）、仪器调谐贮备液（10 ng/mL, Li、Co、Ba、Ti），贮备液均从国家标准物质研究中心购置，超纯水、矿泉水。

1.3 实验方案（表 1） 参考普洱茶常见冲泡方法[5 – 6]，冲泡水温分别为 90 ℃ 和 100 ℃，第 1 种冲泡方式下，每次冲泡用水量为 250 mL，第 2 种冲泡方式下，每次冲泡用水量为 250 mL（冲泡 7 次总用水量为 1 750 mL）。冲泡使用茶叶量分别为 10 g 和 20 g。第 1 种冲泡方式[5]：参照餐饮消费环节常见茶叶冲泡方法，设置不同冲泡条件（详见表 1），进行茶汤冲泡实验（特点为浸泡时间较长），经过投茶、浸泡、分茶 3 个步骤后将茶汤收集至样品预处理瓶备检。第 2 种冲泡方式[6]：参照功夫茶常见茶叶冲泡方法，进行茶汤冲泡实验（特点为浸泡时间短）。经投茶、润茶后倒出的茶汤为第 1 泡茶，冲茶浸润 10 s 后倒出第 2 泡茶，依次步骤，收集至第 7 泡茶，每泡茶汤分别倒入样品预处理瓶备检。取 250 mL 冲泡用水作为空白对照备检。

表 1 餐饮消费环节冲泡方式下冲泡参数设置

组别	茶叶样品量（g）	冲泡水温（℃）	浸泡时间（min）
冲泡组 1	10	90	5
冲泡组 2	20	90	5
冲泡组 3	10	90	10
冲泡组 4	20	90	10
冲泡组 5	10	90	30
冲泡组 6	20	90	30
冲泡组 7	10	100	5
冲泡组 8	20	100	5
冲泡组 9	10	100	10
冲泡组 10	20	100	10
冲泡组 11	10	100	30
冲泡组 12	20	100	30

1.4 统计分析 茶渣样品经高速粉碎机粉碎、混匀、称取、加酸消解，取样、定容后混匀后备用，茶汤样品加入 HNO_3 后溶解、取样、定容后混匀后备用。按照 GB 5009.94 – 2012《食品安全国家标准植物性食品中稀土元素的测定》[7]要求设置参考条件并制作标准曲线，将试样溶液注入电感耦合等离子体质谱仪中，得到相应的信号值，根据标准曲线得到待测液中相应元素的浓度，最后进行换算得到稀土总氧化物含量。

1.5 统计分析 按照上述检验方法分别检测泡茶用水、茶汤、茶渣中稀土元素含量，用茶汤中稀土元素含量减去泡茶用水中稀土元素本底值，即为每次冲泡茶汤中稀土元素析出量。冲泡茶渣稀土元素残留量加上冲泡过程中稀土元素析出量作为茶叶样品稀土元素总含量。析出率 = 茶汤稀土元素析出量/茶叶样品稀土元素总含量 × 100 %；茶叶样品稀土元素总含量 = 茶汤稀土元素析出量 + 冲泡后茶渣稀土元素残留量；第 1 泡茶汤析出率 = 第 1 泡茶汤稀土元素析出量/第 1 ~ 7 泡茶汤稀土元素析出总量 + 冲泡后茶渣稀土元素残留量 × 100 %；第 2 泡茶汤析出率 = 第 2 泡茶汤稀土元素析出量/第 2 ~ 7 泡茶汤稀土元素析出总量 + 冲泡后茶渣稀土元素残留量 × 100 %（依次计算）；总析出率 = 第 1 ~ 7 泡茶汤稀土元素析出总量/（第 1 ~ 7 泡茶汤稀土元素析出总量 + 冲泡后茶渣稀土元素残留量）× 100 %。

2 结 果

2.1 餐饮消费环节茶叶冲泡方法下普洱茶汤稀土元素析出结果（表 2） 参考餐饮消费环节常见茶叶冲泡方法，分别选择 10、20 g 茶叶量，在 90 ℃、

100 ℃ 条件下间隔 5、10、30 min 进行冲泡实验。实验结果显示，该种冲泡方式下普洱茶汤稀土元素平均析出率为 5.73 %，冲泡组 11 析出率最高，为 26.01 %，冲泡组 2 析出率最低，为 2.18 %。

表 2　餐饮消费环节茶叶不同冲泡方法下普洱茶汤稀土元素析出结果

组别	茶汤稀土元素析出量(μg)	茶渣稀土元素残留量(μg)	茶叶样品稀土元素总含量(μg)	析出率(%)
冲泡组 1	0.31	9.53	9.84	3.13
冲泡组 2	0.59	26.40	26.99	2.18
冲泡组 3	0.46	8.58	9.04	5.11
冲泡组 4	0.93	25.41	26.34	3.55
冲泡组 5	0.73	6.88	7.62	9.61
冲泡组 6	1.35	14.12	15.47	8.71
冲泡组 7	0.43	8.82	9.25	4.60
冲泡组 8	0.88	24.16	25.04	3.50
冲泡组 9	0.62	6.86	7.48	8.29
冲泡组 10	1.27	29.21	30.48	4.18
冲泡组 11	1.33	3.77	5.10	26.01
冲泡组 12	1.82	12.44	14.26	12.76

2.1.1　不同茶叶量对茶汤析出稀土元素的影响(图 1 ~ 3)　实验结果显示，在相同冲泡用水量、水温、时间条件下，普洱茶稀土元素析出水平与茶叶量呈反比，10 g 茶叶组中稀土元素析出率均比 20 g 组高。

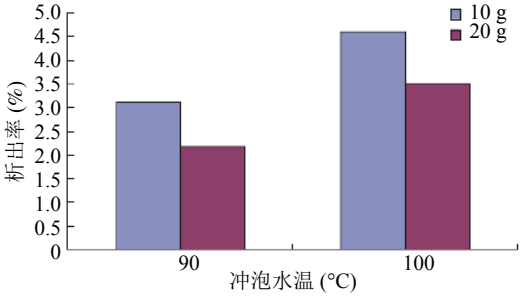

图 1　不同冲泡茶叶量稀土元素析出率变化展示图(冲泡时间 5 min)

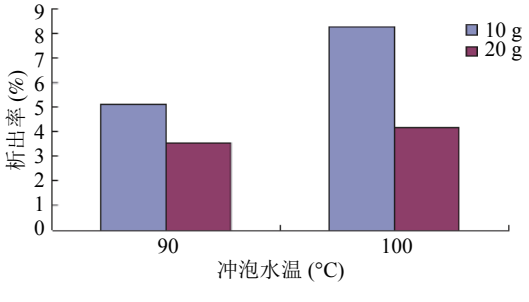

图 2　不同冲泡茶叶量稀土元素析出率变化展示图(冲泡时间 10 min)

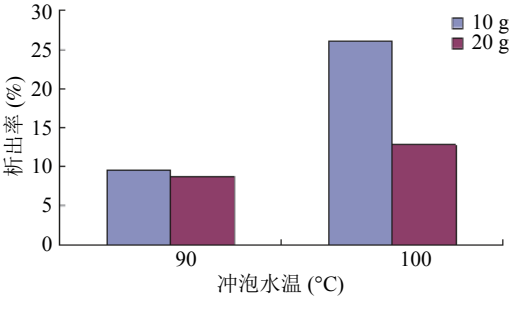

图 3　不同冲泡茶叶量稀土元素析出率变化展示图(冲泡时间 30 min)

2.1.2　不同冲泡时间对茶汤析出稀土元素的影响(图 4、5)　实验结果显示，在相同冲泡用水量、水温、茶叶量条件下，普洱茶稀土元素析出水平与冲泡时间呈正比，30 min 茶叶组稀土元素析出率比 10 min 组高，10 min 茶叶组稀土元素析出率又比 5 min 组高。

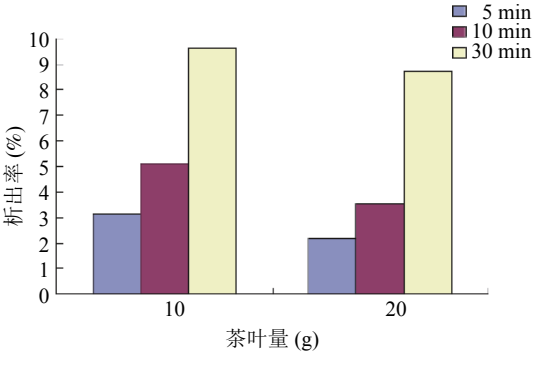

图 4　不同冲泡时间稀土元素析出率变化展示图(冲泡水温 90 ℃)

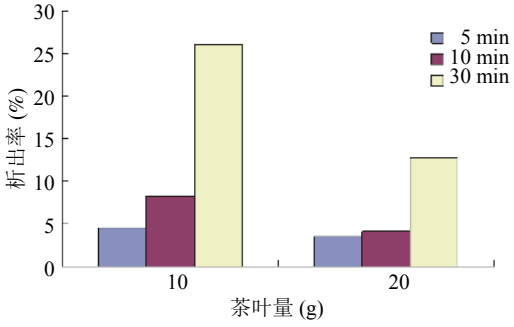

图 5 不同冲泡时间稀土元素析出率变化展示图(冲泡水温 100 ℃)

2.1.3 不同水温对茶汤析出稀土元素的影响(图 6、7)实验结果显示,在相同水量、茶叶量、时间冲泡条件下,普洱茶稀土元素析出水平与冲泡水温呈正比,100 ℃ 茶叶组稀土元素析出率比 90 ℃ 组高。

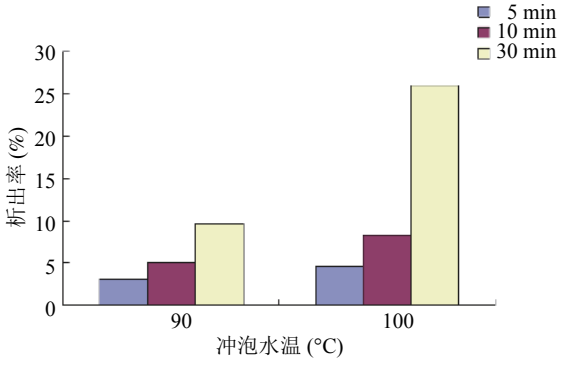

图 6 不同冲泡水温稀土元素析出率变化展示图(冲泡茶叶量 10 g)

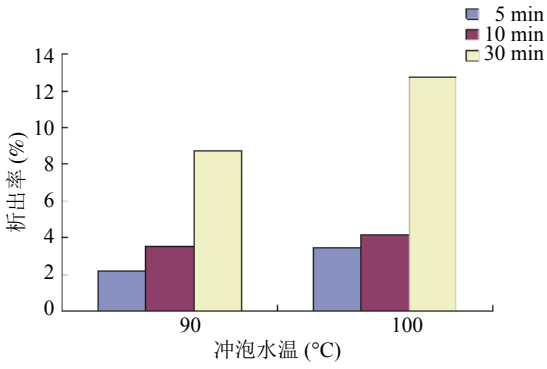

图 7 不同冲泡水温稀土元素析出率变化展示图(冲泡茶叶量 20 g)

2.2 功夫茶冲泡方法下稀土元素浸出结果(表 3、图 8)参考功夫茶常见冲泡方式[5],分别选择 10、20 g 茶叶量在 90 ℃、100 ℃ 条件下进行冲泡实验,每次冲泡间隔时间为 10 s。实验结果显示,功夫茶冲泡方式下茶汤稀土元素平均析出率为 7.01 %,其中 10 g、90 ℃ 组析出率为 10.06 %,10 g、100 ℃ 组析出率为 5.88 %,20 g 、90 ℃ 组析出率为 6.14 %,20 g、100 ℃ 组析出率为 7.22 %,析出率走势呈双峰状规律,第 1、第 4 和第 7 泡茶汤为析出率低值,第 3、第 5 泡茶汤为析出率峰值。

表 3 功夫茶冲泡方式下稀土元素析出数据表

冲泡条件			第 1 泡茶汤		第 2 泡茶汤		第 3 泡茶汤		第 4 泡茶汤		第 5 泡茶汤		第 6 泡茶汤		第 7 泡茶汤		总析出量(μg)	残留量(μg)	总析出率(%)
茶叶量(g)	间隔时间(s)	水温(℃)	析出量(μg)	析出率(%)	析出量(μg)	析出率(%)	析出量(μg)	析出率(%)	析出量(μg)	析出率(%)	析出量(μg)	析出率(%)	析出量(μg)	析出率(%)	析出量(μg)	析出率(%)			
10	10	90	0.02	0.26	0.09	1.31	0.22	3.13	0.06	0.86	0.14	2.09	0.16	2.34	0.04	0.68	0.73	6.53	10.06
10	10	100	0.06	0.55	0.09	0.88	0.19	1.80	0.08	0.76	0.09	0.91	0.03	0.25	0.08	0.78	0.62	9.92	5.88
20	10	90	0.07	0.44	0.12	0.77	0.31	2.01	0.09	0.58	0.24	1.58	0.09	0.57	0.05	0.34	0.97	14.84	6.14
20	10	100	0.12	0.64	0.21	1.17	0.35	1.96	0.13	0.75	0.24	1.39	0.19	1.11	0.07	0.39	1.31	16.84	7.22

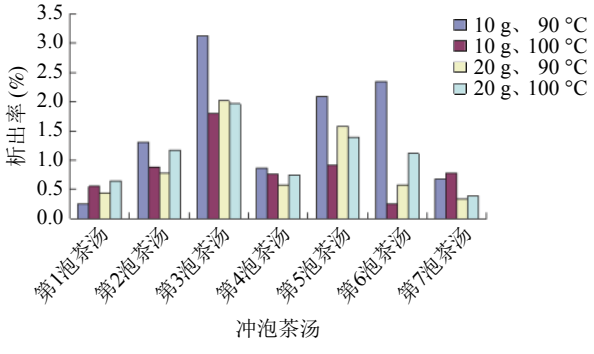

图 8 功夫茶冲泡方式下茶汤冲泡次数与稀土元素析出率关系展示图

3 讨 论

茶叶中稀土元素残留问题是近年来政府关注的焦点。广州对市售 418 份普洱茶样品进行检测,稀土元素超标样品 169 份,超标率为 40.43 %[8],云南对普洱茶主产地 150 份普洱茶样品进行检测,稀土元素超标样品 64 份,超标率为 42.67 %[9],监督部门抽检结果也表明,茶叶中稀土元素超标率较高[10 – 12]。

本次研究结果显示,餐饮环节和功夫茶冲泡方法稀土元素由茶叶析出至茶汤中的比例为 5.73 % 和 7.01 %,比其他研究报道的结果低[13 – 15],可能有

4 个方面的原因：首先是实验方案存在差异，本次实验充分考虑了泡茶用水中稀土元素本底值对实验结果的影响，由于茶汤中析出的稀土元素量以 μg 计，如果不考虑泡茶用水中稀土元素的本底含量，可能会使实验结果产生较大偏差；其次是分析方法存在差异，本次实验将冲泡后茶渣稀土元素含量与冲泡过程中稀土元素析出量之和作为原始茶叶样品中稀土元素含量，而其他研究者是从原始样品中直接取样进行检测，获得冲泡前茶叶样品稀土元素含量数据进行分析，由于茶叶样品本身稀土元素分布的不均匀性，茶叶叶片的新老程度、茶叶叶片不同部位，其稀土含量存在较大差异，即使是同一份茶叶样品进行平行取样，检测结果都会不同，而冲泡过程中稀土元素析出量极低，这种差异对最终结果影响很大；第 3 点是检测方法存在差异，本次实验分析的稀土含量包含了 16 种稀土元素，而其他研究者检测的稀土仅包含 5 种稀土元素；第 4 点是设置的冲泡条件存在差异，本次冲泡实验所涉及的茶叶量、冲泡水温、冲泡时间、冲泡次数等因素是参考居民日常茶叶冲泡习惯来确定的。

最新颁布实施的国家食品污染物限量标准中，删除了茶叶中稀土元素的限量要求[16]，但由于普洱茶叶稀土元素残留情况较严重是客观存在的，且稀土元素摄入人体后具有一定潜在健康危害，因此部分公众对标准中稀土指标的删除不理解。由于居民饮茶摄入的是茶汤，茶叶并不会直接食入，茶叶中稀土元素的残留量并不能反映真实摄入量，人群经饮茶摄入稀土元素的量取决于冲泡后茶汤中的析出量，茶叶稀土元素残留量高但冲泡后析出至茶汤的量低，意味着人体经茶汤摄入稀土元素的量就少，对人体的健康危害就轻微。广州市监测的 418 份普洱茶样品稀土元素最大残留量为 6.70 mg/kg，以此残留量进行计算，功夫茶冲泡方式普洱茶析出至茶汤稀土元素含量仅为 0.47 mg/kg，餐饮环节冲泡方式普洱茶析出至茶汤稀土元素含量仅为 0.38 mg/kg，如果考虑到人体摄入消化吸收的影响，人群经普洱茶摄入稀土元素的量很少，根据日常茶叶消费习惯，经饮用普洱茶汤摄入稀土元素产生健康风险的概率很小[17]，上述研究结论也从侧面证实国家食品安全标准取消茶叶稀土元素限量指标是科学合理的。

参考文献

[1] 范广勤, 袁兆康, 郑辉列, 等. 儿童稀土暴露的健康效应研究[J]. 卫生研究, 2004, 33(1): 23 – 28.

[2] 白永利, 纪玉良, 刘亚静, 等. 稀土生产工人皮肤病调查[J]. 内蒙古科技与经济, 2000(3): 54 – 55.

[3] 范广勤, 郑辉烈, 刘勇, 等. 稀土暴露与儿童生长发育的相关性研究[J]. 中国公共卫生, 2003, 19(11): 1283 – 1284.

[4] 宋雁, 刘兆平, 贾旭东. 稀土元素的毒理学安全性研究进展[J]. 卫生研究, 2013, 42(5): 885 – 892.

[5] 米德发, 乔培育. 功夫茶艺[J]. 中国食品, 2008(2): 21.

[6] 段箐清, 鸥洋. 普洱茶的日常冲泡[J]. 普洱, 2010(2): 19.

[7] 中华人民共和国卫生部. GB 5009. 94 – 2012 植物性食品中稀土元素的测定[S]. 北京: 中国标准出版社, 2012.

[8] 余超, 何洁仪, 李迎月, 等. 广州市售普洱茶稀土元素残留现状分析[J]. 中国公共卫生, 2017, 33(12): 1749 – 1751.

[9] 宁蓬勃, 龚春梅, 张彦明, 等. 应用 ICP-AES 法研究云南普洱茶稀土含量[J]. 光谱学与光谱分析, 2010, 30(10): 2830 – 2833.

[10] 王辉. 北京曝光一批食品生产企业[N]. 中国质量报, 2006 – 12 – 28.

[11] 冯艳丹, 岳志轩. 25 批次茶叶不合格其中 96 % 稀土超标[N]. 新快报, 2012 – 01 – 20.

[12] 谭超. 广州对流通环节销售的茶叶袋泡茶等产品抽查 114 批次 13 批次茶产品稀土超标[N]. 羊城晚报, 2013 – 01 – 30.

[13] 王瑾, 邹新武, 周卫龙, 等. 不同茶类冲泡过程中稀土浸出率试验分析[J]. 中国茶叶加工, 2012(1): 12 – 13, 52.

[14] 杨秀芳, 孔俊豪, 赵玉香, 等. 不同稀土含量水平茶叶中稀土浸出率研究[J]. 中国茶叶加工, 2012(1): 14 – 17.

[15] 石元值, 韩文炎, 马立锋, 等. 茶叶中稀土氧化物总量现状及其溶出特性研究[J]. 茶叶科学, 2011, 31(4): 349 – 354.

[16] 中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会, 国家食品药品监督管理总局. GB 2762 – 2017 食品安全国家标准 食品中污染物限量[S]. 北京: 中国标准出版社, 2017.

[17] 余超. 广州市居民经普洱茶摄入稀土元素水平及风险研究[D]. 广州: 中山大学, 2016.

收稿日期: 2018 - 02 - 01　（吴少慧编校）