

调查研究

云南省临沧市茶叶放射性水平调查与分析

唐丽,武国亮,樊芳,徐文萍,牟胜

(云南省疾病预防控制中心,云南 昆明 650022)

**摘要:**目的 调查云南省临沧市茶叶的放射性水平,评估对公众健康的影响,为茶叶放射性水平分布积累基线数据。方法 2014—2015 年,采用生物样品中放射性核素的  $\gamma$  能谱分析方法监测 28 份成品茶叶和 15 份鲜茶叶的  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{40}\text{K}$  和  $^{137}\text{Cs}$  放射性水平。结果 普洱茶的天然放射性核素  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{40}\text{K}$  和人工放射性核素  $^{137}\text{Cs}$  放射性水平均最低 [ (0.95±0.99)、(1.17±0.78)、(571.33±9.10)、<0.001 Bq/kg(鲜重)]。鲜茶叶放射性核素  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{40}\text{K}$  和  $^{137}\text{Cs}$  放射性水平呈现出季节性特点,秋季 [ (0.72±0.12)、(1.07±0.22)、(161.16±13.35)、(0.12±0.06) Bq/kg(鲜重)] 高于春季 [ (0.52±0.11)、(0.73±0.17)、(133.35±30.74)、(0.09±0.05) Bq/kg(鲜重)]。结论 成品茶叶和鲜茶叶的  $^{238}\text{U}$  放射性水平均低于探测下限。茶叶中天然放射性核素  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{40}\text{K}$  和人工放射性核素  $^{137}\text{Cs}$  的放射性水平均在国家标准限值内。

**关键词:**成品茶叶;鲜茶叶;放射性水平

中图分类号:R155 文献标识码:A 文章编号:1004-8456(2019)06-0566-04

DOI:10.13590/j.cjfh.2019.06.012

Analysis and investigation of radioactivity levels of tea-leaves in Lincang, Yunnan

TANG Li, WU Guoliang, FAN Fang, XU Wenping, MOU Sheng

(Yunnan Center for Disease Control and Prevention, Yunnan Kunming 650022, China)

**Abstract: Objective** To investigate the radioactivity levels of tea-leaves in Lincang, Yunnan Province, estimate their influence on public health and accumulate base-line data of radioactivity levels of tea-leaves. **Methods** Radioactivity levels of 28 ripe tea-leaves and 15 fresh ones were measured in 2014 and 2015 with  $\gamma$  spectrometry method for analyzing radionuclides in biological samples. **Results** Natural ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) and man-made ( $^{137}\text{Cs}$ ) radioactive nuclides of the Pu'er tea held the lowest radioactivity levels [ (0.95±0.99), (1.17±0.78), (571.33±9.10), <0.001 Bq/kg (fresh weight) ]. Radioactivity levels of fresh tea-leaves presented seasonal characteristics and were higher in autumn [ (0.72±0.12), (1.07±0.22), (161.16±13.35), (0.12±0.06) Bq/kg (fresh weight) ] than spring [ (0.52±0.11), (0.73±0.17), (133.35±30.74), (0.09±0.05) Bq/kg (fresh weight) ]. **Conclusion** Radioactivity levels of  $^{238}\text{U}$  in ripe and fresh tea-leaves were below the limit of detection. Radioactivity levels of natural ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) and man-made ( $^{137}\text{Cs}$ ) radioactive nuclides in the tea-leaves were lower than the relevant national limits.

**Key words:** Ripe tea-leaves; fresh tea-leaves; radioactivity levels

茶树属于亚热带常绿植物,多伴生于亚热带的常绿阔叶雨林和季雨林的森林群落之中。茶叶的生长和品质受到光照强度、空气温度和湿度、土壤肥力等生态环境因子变化的影响<sup>[1]</sup>。随着国民经济、国防、科研、医疗事业的发展,核电站和矿山的开采冶炼、辐射育种和食品保鲜等都会对环境产生放射性污染。放射性核素进入生物圈后,通过多种方式沉积在食物中,造成食品的放射性核

素污染,食入后对人体产生内照射<sup>[2-7]</sup>。茶树吸收放射性铯( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ )从土壤中快速转移到叶子上,一部分可以通过用水溶解快速去除,大部分残留在叶子中<sup>[8-10]</sup>。1986 年切尔诺贝利发电厂核泄漏事故严重污染了整个欧洲,黑海海岸的土耳其茶因事故的放射性核素沉降受到了直接污染, $^{134}\text{Cs}$  和  $^{137}\text{Cs}$  通过叶片和根系吸收转移到植物体内,活性高达 30 000 Bq/kg(干重),放射性锶( $^{90}\text{Sr}$ )高达 430 Bq/kg(干重)。在  $^{137}\text{Cs}$  和  $^{90}\text{Sr}$  的半衰期过后,2015 年一些土耳其茶仍然含有  $^{137}\text{Cs}$  [50 Bq/kg(干重)] 和  $^{90}\text{Sr}$  [38 Bq/kg(干重)]<sup>[11-12]</sup>。茶叶中放射性核素 ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) 可以采用干样法进行测量,装样后用  $\gamma$  能谱进行高分辨率分析茶叶的辐射水平。放射性

收稿日期:2019-09-29

作者简介:唐丽 女 副主任医师 研究方向为辐射监测与评价

E-mail: tangliyn@ qq.com

通信作者:牟胜 男 主任医师 研究方向为辐射监测与评价

E-mail: mousheng1966@ 163.com

核素( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ )也可以采用放化法进行测量,沉淀过滤后的沉淀物经  $\alpha/\beta$  闪烁计数后计算辐射水平<sup>[13-14]</sup>。

临沧市位于云南省的西南部,属横断山系怒山山脉的南延部分,已探明的主要矿种有 16 种 53 个矿属,中国核工业集团公司曾建立以采集铀矿为主的七六五矿,矿山为铀、锆、砷与煤的共生矿。

本研究旨在对云南省临沧市铀矿、非铀矿周围茶叶(鲜茶叶、成品茶叶)的放射性水平进行分析,了解放射性核素在各地食品中分布和变动趋势,评估对公众健康的影响,为茶叶放射性水平分布积累基线数据。

1 材料与方法

1.1 材料

1.1.1 样品采集

2014—2015 年共采集临沧市 8 个县(区)主要茶叶出厂地(商)成品茶叶样品 28 份,每份 3 kg,每年采集 1 次。其中 2015 年采样按照茶叶的制备方法与工序,分为蒸酶茶、烘青茶、红茶、切碎-撕裂-卷曲(CTC)红碎茶和普洱茶(各 4 份)。采集铀矿退役环境保护区周边 1 km 范围内茶园东南、南、西南、西、西北方向茶地的鲜茶叶样品 15 份,每份 10 kg,其中 2014 年采集 1 次,2015 年采集 2 次。采样选择主导风向向下风向区域作为采样点,采样前先对地面进行  $\gamma$  外照射剂量的测量,以确定地面放射性水平,然后用  $\alpha/\beta$  表面污染监测仪对采样对象进行污染检测,避免采样人员受到污染和样品间交叉污染。采集的样品做好双份识别标识和编号,并填写采样表格,记录采样日期、地点、样品名称、鲜重和采样人等内容。

1.1.2 主要仪器与试剂

BE3830 型高纯锆  $\gamma$  能谱仪(谱分析器为 DSA-1000,美国 Canberra)。

1.2 方法

参照 GB/T 16145—1995《生物样品中放射性核素的  $\gamma$  能谱分析方法》<sup>[15]</sup> 和 GB 14883.1—2016《食品安全国家标准 食品中放射性物质检验 总则》<sup>[16]</sup>,并确定样品实际测量条件下的仪器探测下限(LLD)<sup>[7]</sup>。

1.2.1 样品预处理

采集的鲜茶叶、成品茶叶样品经常温放置干燥、称重后(鲜茶叶需经清洗除去不可食部分),在样品采集地野外现场(开放式农户家庭现场厨房)进行炉火烘干、炭化、灰化和研磨。炭化过程中不时搅拌样品,防止着明火。炭化后样品在 200 ~

250  $^{\circ}\text{C}$  下灰化数小时,直到灰分呈白色或灰白色疏松颗粒或粉末状为止。灰化过程中用石英温度计严格控制温度,以避免放射性核素损失。经预处理的样品,装入采样袋后送回实验室进行测量。

1.2.2 样品测量

送回实验室的样品再经过电热板炭化、马弗炉 400  $^{\circ}\text{C}$  灰化至灰白色。样品灰冷却至室温称重,以计算样品灰鲜比。成品茶叶、鲜茶叶样品的灰鲜比分别为 40.0 和 11.8 g/kg。称重后的样品灰装入 75 mm $\times$ 35 mm 样品盒,密封保存后,进行  $\gamma$  能谱分析。

1.2.3 质量控制

科学考虑采样地点的设置、采样品种和数量等因素。严格按照技术规范要求开展样品的采集、处理工作。做好样品的唯一性编码,保证监测过程中不发生混淆。 $\gamma$  能谱自备标准源,按周期进行期间核查。用  $^{152}\text{Eu}$  进行能量刻度,半衰期 13.5 年, $\gamma$  射线能量为 121.8、344.3、964.1、1 112.1 和 1 408.0 keV,发射概率分别为 28.4%、26.6%、14.5%、13.4%和 20.9%;效率刻度的标准源由中国计量科学研究院生产,编号 9NSW151107,包括  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 、 $^{40}\text{K}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{152}\text{Eu}$  等核素。

1.3 统计学分析

试验结果以均数 $\pm$ 标准差( $\bar{x}\pm s$ )表示,采用统计软件 SPSS 18.0 和 Excel 对检测结果进行分析。

2 结果

2.1 成品茶叶放射性水平

2014 年采集到临沧市 8 个县(区)的成品茶叶样品 8 份,检测出天然放射性核素  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{40}\text{K}$  和人工放射性核素  $^{137}\text{Cs}$ ,检测结果见表 1。2015 年采集到临沧市 5 类不同制备方法与工序的成品茶叶样品 20 份,包括蒸酶茶、烘青茶、红茶、CTC 红碎茶和普洱茶,天然放射性核素放射性水平由低到高依次为  $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{232}\text{Th}$  和  $^{40}\text{K}$ ,检测出人工放射性核素  $^{137}\text{Cs}$ ,检测结果见表 2。2014 年临沧市成品茶叶中  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{40}\text{K}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  的放射性水平均值分别为(1.33 $\pm$ 0.78)、(545.63 $\pm$ 20.16)、(0.15 $\pm$ 0.08) Bq/kg(鲜重),2015 年分别为(1.65 $\pm$ 0.71)、(578.19 $\pm$ 37.02)、(0.25 $\pm$ 0.16) Bq/kg(鲜重),均略高于 2014 年的平均水平。5 种不同制备方法和工序的成品茶叶中,普洱茶的  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{40}\text{K}$  和  $^{137}\text{Cs}$  放射性水平最低[(0.95 $\pm$ 0.99)、(1.17 $\pm$ 0.78)、(571.33 $\pm$ 9.10)、<0.001 Bq/kg(鲜重)],CTC 红碎茶的  $^{232}\text{Th}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  放射性水平最高[(1.94 $\pm$ 0.08)、(0.41 $\pm$ 0.27) Bq/kg(鲜重)],烘青茶的  $^{226}\text{Ra}$  放射性水平最高[(1.68 $\pm$

0.53) Bq/kg(鲜重)],蒸酶茶的<sup>40</sup>K 放射性水平最高[(595.59±25.48) Bq/kg(鲜重)]。

表 1 临沧市 8 个县(区)成品茶叶放射性水平

Table 1 Radioactivity levels of ripe tea-leaves in eight counties, Lincang

地点	样品 份数	<sup>238</sup> U/ [Bq/kg (鲜重)]	<sup>232</sup> Th/ [Bq/kg (鲜重)]	<sup>226</sup> Ra/ [Bq/kg (鲜重)]	<sup>40</sup> K/ [Bq/kg (鲜重)]	<sup>137</sup> Cs/ [Bq/kg (鲜重)]
耿马县	1	<0.012	0.80	1.84	542.90	<0.001
临翔区	1	<0.012	2.12	4.08	524.62	0.23
沧源县	1	<0.012	1.02	1.43	507.12	0.06
凤庆县	1	<0.012	2.15	3.57	557.18	0.29
双江县	1	<0.012	2.49	4.77	551.80	0.14
镇康县	1	<0.012	0.64	0.86	561.43	0.16
永德县	1	<0.012	0.57	1.06	553.64	0.11
云县	1	<0.012	0.86	0.90	566.32	0.09

注:“<”后面的数值为样品实际测量条件下的 LLD

### 2.2 鲜茶叶放射性水平

铀矿退役环境保护区周边 1 km 范围内共设 5 个鲜茶叶采样点,2014 年春季采集 5 份样品,2015 年春季秋季共采集 10 份样品。鲜茶叶样品中检测出

表 3 铀矿退役环境保护区周边鲜茶叶放射性水平( $\bar{x}\pm s$ )

Table 3 Radioactivity levels of fresh tea-leaves in around areas for retired environmental protection of the uranium mine

采样时间	样品份数	<sup>238</sup> U /[Bq/kg(鲜重)]	<sup>232</sup> Th /[Bq/kg(鲜重)]	<sup>226</sup> Ra /[Bq/kg(鲜重)]	<sup>40</sup> K /[Bq/kg(鲜重)]	<sup>137</sup> Cs /[Bq/kg(鲜重)]
2014、2015 年春季	10	<0.012	0.52±0.11	0.73±0.17	133.35±30.74	0.09±0.05
2015 年秋季	5	<0.012	0.72±0.12	1.07±0.22	161.16±13.35	0.12±0.06

注:“<”后面的数值为样品实际测量条件下的 LLD

### 3 讨论

开展云南省临沧市茶叶的放射性水平调查对了解茶叶的放射性水平基线数据、评估对公众健康的影响具有重要意义。本研究结果表明,茶叶中天然放射性核素<sup>232</sup>Th、<sup>226</sup>Ra、<sup>40</sup>K 和人工放射性核素<sup>137</sup>Cs 的放射性水平均在国家标准限值内<sup>[17]</sup>,与国内文献<sup>[18-23]</sup>报道水平相当。成品茶叶和鲜茶叶的<sup>238</sup>U 放射性水平均低于 LLD。由于成品茶叶制备方法和工序的影响,以及部分鲜茶叶灰化前进行了污物清洗,可能导致了<sup>238</sup>U 的检出水平低于 LLD。

在不同制备方法和工序的成品茶叶中,普洱茶的放射性核素<sup>232</sup>Th、<sup>226</sup>Ra、<sup>40</sup>K 和<sup>137</sup>Cs 放射性水平均最低。杀青后陈放或者渥堆工艺发酵处理的普洱茶,经自然陈放或者人为加水提温发酵后,促进了普洱茶中细菌的繁殖,加速茶叶熟化,去除生茶的苦涩,达到入口纯、汤色红浓的独特品性,同时具有较低的放射性水平。另外,不经发酵直接杀青的绿茶(蒸酶茶、烘青茶)和全发酵的红茶(红茶、CTC 红碎茶)具有不同的放射性水平。在高本底地区的相同采样点采集到的鲜茶叶,放射性核素<sup>232</sup>Th、

表 2 不同制备方法与工序的成品茶叶放射性水平  
[ $\bar{x}\pm s, n=4$ , Bq/kg(鲜重)]

Table 2 Radioactivity levels of ripe tea-leaves of different production methods and procedures

茶叶类别	<sup>238</sup> U	<sup>232</sup> Th	<sup>226</sup> Ra	<sup>40</sup> K	<sup>137</sup> Cs
蒸酶茶	<0.012	1.88±0.61	1.61±0.68	595.59±25.48	0.16±0.01
烘青茶	<0.012	1.77±0.52	1.68±0.53	586.72±31.56	0.20±0.03
红茶	<0.012	1.73±0.86	1.48±0.92	575.13±65.83	0.21±0.04
CTC 红碎茶	<0.012	1.94±0.08	1.43±0.19	562.18±41.23	0.41±0.27
普洱茶	<0.012	0.95±0.99	1.17±0.78	571.33±9.10	<0.001

注:“<”后面的数值为样品实际测量条件下的 LLD

放射性核素<sup>232</sup>Th、<sup>226</sup>Ra、<sup>40</sup>K 和<sup>137</sup>Cs,检测结果见表 3。鲜茶叶的天然放射性核素<sup>232</sup>Th、<sup>226</sup>Ra 和<sup>40</sup>K 的放射性水平分别为(0.59±0.15)、(0.84±0.25)、(142.62±29.03) Bq/kg(鲜重)。<sup>232</sup>Th、<sup>226</sup>Ra、<sup>40</sup>K 和<sup>137</sup>Cs 放射性水平呈现季节性特点,秋季[(0.72±0.12)、(1.07±0.22)、(161.16±13.35)、(0.12±0.06) Bq/kg(鲜重)]高于春季[(0.52±0.11)、(0.73±0.17)、(133.35±30.74)、(0.09±0.05) Bq/kg(鲜重)]。

<sup>226</sup>Ra、<sup>40</sup>K 和<sup>137</sup>Cs 放射性水平表现出季节性特点,秋季高于春季。

为全面了解云南省茶叶放射性水平,科学评估对居民健康的影响,还需进一步扩大监测范围和内 容,包括开展放射性 Cs 监测、对照点监测、饮用水和土壤放射性水平监测。另外,通过此次调查积累了茶叶放射性水平基线数据,为进一步研究茶叶品质及其生物学效应奠定了基础。

(志谢 临沧市疾病预防控制中心的大力支持)

### 参考文献

[1] 巩雪峰,余有本,肖斌,等.不同栽培模式对茶园生态环境及茶叶品质的影响[J].西北植物学报,2008,28(12):2485-2491.

[2] 马驰,张宪党,张侃,等.国家批准具有抗辐射功能的保健食品[J].中国辐射卫生,2004,13(3):240.

[3] 吴文晞,王丹红,蔡春平,等.进口鱼粉的放射性监测[J].中国辐射卫生,2005,14(3):196.

[4] 苏旭.中国放射卫生进展报告[M].北京:原子能出版社,2011.

[5] 姜德智,涂彧,刘犁,等.放射卫生学[M].苏州:苏州大学出版社,2004.

[6] 段妮桢,贺良国,李林御,等.2015 年四川省核设施周边食品

放射性核素含量及所致居民剂量[J].职业卫生与病伤, 2018,33(3):143-147.

[ 7 ] HAYRETTIN E, SINAN Y, NUHOĞLU C, et al. An environmentally friendly process; adsorption of radionuclide Tl-201 on fibrous waste tea [J]. Journal of Hazardous Materials, 2009, 163 (2/3): 607-617.

[ 8 ] TAKASHI I, YOSHIFUMI N, MIZUHO K, et al. Radiocesium uptake through leaf surfaces of tea plants (*Camellia sinensis* L.) [J]. Environ Radioact, 2018, 182: 70-73.

[ 9 ] YASUHISA O, HIROMICHI U, KENSUKE T, et al. Dissolution behavior of <sup>137</sup>Cs absorbed on the green tea leaves[J]. Radioanal Nucl Chem, 2015, 303(2): 1539-1542.

[ 10 ] KEIKO T, SHIGEO U, NOBUYOSHI I, et al. Translocation of radiocesium from stems and leaves of plants and the effect on radiocesium concentrations in newly emerged plant tissues[J]. Environ Radioact, 2012, 111(9): 65-69.

[ 11 ] ZEHRINGER M. Radioactivity in food: experiences of the food control authority of Basel-City since the Chernobyl accident[J]. Radiation Effects in Materials, 2016: 132-160.

[ 12 ] ZEHRINGER M. Radioactivity in tea[R]. Annual Report of the State-laboratory Basel-city, 2015: 54-57.

[ 13 ] MARKUS Z, FRANZISKA K, MICHAEL W. Radionuclides in tea and their behavior in the brewing process [J]. Journal of Environmental Radioactivity, 2018, 192(6): 75-80.

[ 14 ] YELTEPE E, SAHIN N K, ASLAN N, et al. A review of the TAEA proficiency test on natural and anthropogenic radionuclides activities in black tea [J]. Appl Radiat Isot, 2017, 134(10): 40-44.

[ 15 ] 国家技术监督局, 中华人民共和国卫生部. 生物样品中放射性核素的  $\gamma$  能谱分析方法: GB/T 16145—1995[S]. 北京: 中国标准出版社, 1995.

[ 16 ] 中华人民共和国国家卫生和计划生育委员会. 食品安全国家标准 食品中放射性物质检验 总则: GB 14883.1—2016[S]. 北京: 中国标准出版社, 2016.

[ 17 ] 中华人民共和国卫生部. 食品中放射性物质限制浓度标准: GB 14882—94[S]. 北京: 中国标准出版社, 1994.

[ 18 ] 李忠平, 杨小柯, 刘祖森. 1994—2004 年核电站周围 20 km 深圳地区食品中放射性活度水平分析[J]. 中国食品卫生杂志, 2007, 19(4): 330-332.

[ 19 ] 朱昌寿, 李学成, 赵儒, 等. 中国环境放射性水平及卫生评价 [M]. 北京: 人民卫生出版社, 1992.

[ 20 ] 刘英, 秦斌. 中国放射性污染监测系统监测数据公报[R]. 北京: 中华人民共和国卫生部卫生法制与监督, 1999.

[ 21 ] 杨小勇, 余宁乐, 陈群, 等. 田湾核电站周围饮用水和食品放射性水平分析[J]. 中华放射医学与防护杂志, 2012, 32(4): 407-409.

[ 22 ] 路鹤晴, 朱国英, 高林峰, 等. 秦山核电站运行对上海环境放射性影响评价[J]. 中华放射医学与防护杂志, 2009, 29(3): 292-295.

[ 23 ] 石二为, 崔勇, 张谦, 等. 红沿河核电站运行前周边地区放射性水平及所致居民剂量[J]. 中华放射医学与防护杂志, 2013, 33(6): 648-652.

《药学研究》杂志 2020 年度征订启事

《药学研究》杂志由山东省药品监督管理局主管, 山东省食品药品检验研究院、山东省药学会主办, 山东省药师协会承办, 创刊于 1982 年, 现被《美国化学文摘》、英国 CABI 数据库、《中文科技期刊数据库》《中国期刊全文数据库》《中国核心期刊(遴选)数据库》收录, 入选为《中国学术期刊综合评价数据库》统计源期刊。《药学研究》集知识性、学术性、实用性、服务性于一体, 重点介绍国内外药学研究的新动态、新趋势、新理论和安全用药知识, 交流药品研发、检测技术、新知识和新方法, 为药品监督管理和药品研究、生产、经营、使用服务, 为医药经济快速、协调、健康发展服务, 为人民群众用药安全有效服务。

栏目设置: 专家论坛、实验研究、制剂研究、综述、临床药学、工业药学、药学教育、流通药学、药品不良反应、药物信息等。

《药学研究》为月刊, 大 16 开本, 每期定价 10.00 元, 全年定价 120.00 元(含邮资)。欲订购请直接通过银行汇款或支付宝转账至我刊编辑部。

汇款账号: 开户行: 招商银行济南解放路支行

开户名称: 山东省药师协会

银行账号: 633080541310001

联系地址: 山东省济南市历下区经十路 9999 号黄金时代广场 G 座 1909 室, 联系电话: 0531-81216586

官方网站: www.yaoxueyanjiu.org.cn, E-mail: yaoxueyanjiu@163.com; yaoxueyanjiu@sina.com