

调查研究

贵州省市售香辛料霉菌及真菌毒素污染状况研究

向婧姝,吴玉田,张德著,周倩,孟春杨,周贻兵,罗信旭,黄靖宇,刘琳,张黎黎,周黎
(贵州省疾病预防控制中心,贵州 贵阳 550004)

摘要:目的 了解贵州省市售香辛料的霉菌及毒素污染状况,为制定污染控制措施提供科学依据。方法 2022—2023年采集贵州省市售香辛料260份,按照食品安全国家标准检测方法(GB 4789.15—2016)进行霉菌计数,采用形态学和质谱对分离霉菌进行种属鉴定。并随机从阳性样品中抽取52份检测黄曲霉毒素B₁、B₂、G₁、G₂和赭曲霉毒素。结果 72.31%(188/260)的样品检出霉菌,污染水平平均值为 5.1×10^3 CFU/g。所有种类、不同包装类型的香辛料样品均检出霉菌,不同季度采集的样品检出率差异有统计学意义($P < 0.05$)。样品主要污染曲霉属、根霉属、毛霉属和青霉属的霉菌,其中34.14%(155/454)为产毒霉菌。真菌毒素的总检出率为48.08%(25/52),主要污染AFTB₂和OTA,13.46%(7/52)的样品同时检出两种及以上真菌毒素。预包装样品的AFTG₁的检出率显著高于散装样品,AFTB₁的超标率为5.77%(3/52)。结论 贵州省市售香辛料样品存在霉菌及其毒素污染,建议加强对香辛料的监测与管理,为开展风险评估,发展与完善相关标准提供科学依据。

关键词:香辛料;霉菌;真菌毒素;污染;种属鉴定

中图分类号:R155

文献标识码:A

文章编号:1004-8456(2024)10-1153-08

DOI:10.13590/j.cjfh.2024.10.008

Contaminations of mold and mycotoxin in spices sold in Guizhou Province

XIANG Jingshu, WU Yutian, ZHANG Dezhu, ZHOU Qian, MENG Chunyang, ZHOU Yibing,
LUO Xinxu, HUANG Jingyu, LIU Lin, ZHANG Lili, ZHOU Li

(Guizhou Provincial Center for Disease Control and Prevention, Guizhou Guiyang 550004, China)

Abstract: Objective To understand the mold and mycotoxin contamination status of spices sold in Guizhou Province, and to provide scientific basis for formulating pollution control measures. **Methods** A total of 260 samples of sold spice were collected from 2022 to 2023 in Guizhou Province. Mold counting of these samples were detected according to the national food safety standard (GB 4789.15—2016), and isolated molds were identified using morphology and mass spectrometry methods. Fifty-two mold positive samples were randomly selected to detect aflatoxin B₁, B₂, G₁, G₂ and ochratoxin. **Results** 72.31% (188/260) of the samples were contaminated with mold, with an average contamination level of 5.1×10^3 CFU/g. Molds were detected in all types and different packaging types of spice samples. There was a statistically significant difference in the detection rate of samples collected in different quarters ($P < 0.05$). The samples mainly contaminated mold of genera *Aspergillus*, *Rhizopus*, *Mucor* and *Penicillium*, of which 34.14% (155/454) were toxin producing mold. The total detection rate of mycotoxins was 48.08% (25/52), mainly including AFTB₂ and OTA. Two or more mycotoxins were detected simultaneously in 13.46% (7/52) of the samples. The detection rate of AFTG₁ in prepackaged samples was significantly higher than that in bulk samples. The exceeding rate of AFTB₁ was 5.77% (3/52). **Conclusion** There was mold and mycotoxin contamination in spices sold in Guizhou Province. It is recommended to strengthen the monitoring and management of spices to provide scientific basis for risk assessment and developing relevant standards.

Key words: Spice; mold; mycotoxin; contamination; species identification

收稿日期:2024-05-03

基金项目:贵州省卫生健康委科学技术基金项目(gzkwkj2023-491);贵州省传染病预防与控制人才基地科研团队(RCJD2105);贵州省科技支撑计划项目(黔科合支撑[2021]一般435号);贵州省微生物组与传染性疾病预防重点实验室(ZDSYS[2023]004)

作者简介:向婧姝 女 副主任技师 研究方向为食品微生物检验 E-mail: 437593452@qq.com

通信作者:周黎 女 主任技师 研究方向为食品安全风险监测与评估 E-mail: zhoul0812@126.com

香辛料是日常烹饪不可或缺、能赋予食物辛、香、麻、辣等气味的天然植物性调味品。香辛料在贵州人民的饮食中,除了作为烹饪的调味品外,也会作为蘸料直接食用。我国香辛料以农户和作坊的小规模生产为主,在生长、收获、加工、储藏和运输等环节中管理相对粗放,容易受到霉菌等微生物污染^[1]。贵州省天气潮湿,香辛料极易吸湿回潮导致生霉。霉菌不仅会破坏香辛料的风味,其生长代谢过程中还会产生有毒代谢产物真菌毒素^[2],这些毒素往往具有致毒致癌性^[3],造成食品安全风险。香辛料的消毒灭菌方式目前主要采用辐照处理的方式^[4],由于真菌毒素具有较为稳定的化学结构和性质,辐照技术对香辛料的处理只能降低霉菌含量,无法破坏真菌毒素的结构从而消除其毒性。香辛料虽食用量小,但食用频率高,若长期食用被霉菌或毒素污染的香辛料,会给人体健康带来隐患。

目前食品安全国家标准体系中并没有专门针对香辛料霉菌的限量标准,真菌毒素的限量标准仅有黄曲霉毒素 B₁,关于香辛料霉菌污染的研究也较少,相关科学数据较为缺乏。本研究对贵州省市售香辛料中霉菌及毒素污染状况开展调查研究,分析霉菌的种类、数量与产生毒素的关联,为进一步掌握贵州省香辛料的霉菌污染规律,从而评估其健康风险,为制定污染控制措施提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 样品采集

2022—2023年,在贵州省采集市售香辛料样品共260份,其中2022年采样152份,2023年采样108份。第一季度采样31份,第二季度采样93份,第三季度采样107份,第四季度采样29份。共采集花椒40份,辣椒40份,胡椒40份,孜然40份,八角20份,五香粉20份,陈皮15份,茴香15份,肉桂10份,香叶10份,咖喱粉5份,十三香5份。260份样品中预包装样品共66份,散装样品共194份。

1.2 主要仪器与试剂

恒温恒湿培养箱(美国MMM公司);MALDI-TOF飞行时间质谱仪(德国Bruker公司);光学显微镜(德国Leica公司);SCIEX QTRAP 6500+三重四极杆串联质谱仪(美国AB SCIEX公司)。

孟加拉红琼脂、马铃薯葡萄糖琼脂、查氏培养基、沙氏液体培养基(广东环凯公司);氯化钠(分析纯,国药集团);甲酸(色谱纯,上海阿拉丁公司)、乙腈(色谱纯,美国Thermo Fisher公司);黄曲霉毒素

B₁、B₂、G₁、G₂和赭曲霉毒素OTA标准品(青岛普瑞邦公司)。

1.3 方法

1.3.1 霉菌计数及鉴定

按照国标GB 4789.15—2016^[5],采用平板计数法对所有样品进行霉菌计数。采用形态学和质谱两种方法对分离的霉菌进行鉴定:参考国标GB 4789.16—2016^[6]对霉菌进行形态学鉴定;将霉菌纯培养物接种至沙氏液体培养基中震荡培养至足够的菌量,离心收集培养物,采用甲酸和乙腈处理沉淀后,用飞行时间质谱鉴定霉菌。

1.3.2 真菌毒素检测

从检出霉菌的香辛料样品中,随机选取不同种类、不同包装类型以及检出不同种属霉菌的样品共52份。按照国标GB 5009.22—2016^[7],采用同位素稀释液相色谱串联质谱法检测样品中的黄曲霉毒素B₁、B₂、G₁和G₂(Aflatoxin B₁, B₂, G₁ and G₂, AFTB₁, AFTB₂, AFTG₁, AFTG₂)含量。按照国标GB 5009.96—2016^[8],采用免疫亲和层析净化液相色谱串联质谱法检测样品中的赭曲霉毒素A(Ochratoxin A, OTA)含量。

1.4 评价标准

样品中的黄曲霉毒素B₁按照国标GB 2761—2017^[9]进行评价。

1.5 统计学分析

检测数据的统计分析采用SPSS 19.0软件,率的比较采用 χ^2 检验, $P < 0.05$ 为差异有统计学意义。

2 结果

2.1 香辛料样品的霉菌污染状况

2.1.1 不同种类样品的霉菌污染状况

260份香辛料样品中188份检出霉菌,检出率为72.31%,不同种类样品的霉菌检出情况详见表1。所有种类的香辛料均检出霉菌,五香粉检出率最高为90.00%(18/20),八角检出率最低为50.00%(10/20),十二种香辛料样品的检出率差异无统计学意义($\chi^2=14.12, P=0.23$)。检出样品的霉菌计数范围主要集中在100~1 000 CFU/g(平均值为 5.1×10^3 CFU/g),占比为34.23%(89/260),其中五香粉样品比例最高为50.00%(10/20),茴香样品比例最低为13.33%(2/15)。以香辛料种类为横坐标,霉菌计数结果的lg值为纵坐标,对188份检出霉菌的香辛料样品作箱线图,结果详见图1。胡椒的污染程度最高,八角最低。同一种类香辛料不同样本的霉菌污染状况各不相同,其中胡椒不同样本间差异最大,高达3.93个数量级,而十三香不同样本间的

差异最小,仅 0.67 个数量级。

表 1 2022—2023 年贵州省 260 份不同种类香辛料样品的霉菌污染状况

Table 1 Mold contamination in 260 different types of spice samples in Guizhou Province from 2022 to 2023

香辛料种类	样品数量/份	检出样品数/份	检出率/%	霉菌计数平均值/(CFU/g)	<10 CFU/g		≥10~100 CFU/g		≥100~1 000 CFU/g		≥1 000 CFU/g	
					样品数量/份	占比/%	样品数量/份	占比/%	样品数量/份	占比/%	样品数量/份	占比/%
花椒	40	31	77.50	6.5×10 ³	9	22.50	4	10.00	15	37.50	12	30.00
辣椒	40	25	62.50	2.2×10 ³	15	37.50	8	20.00	13	32.50	4	10.00
胡椒	40	29	72.50	1.1×10 ⁴	11	27.50	5	12.50	14	35.00	10	25.00
孜然	40	33	82.50	1.1×10 ³	7	17.50	9	22.50	15	37.50	9	22.50
八角	20	10	50.00	4.5×10 ²	10	50.00	4	20.00	5	25.00	1	5.00
五香粉	20	18	90.00	1.2×10 ⁴	2	10.00	1	5.00	10	50.00	7	35.00
陈皮	15	12	80.00	1.6×10 ³	3	20.00	4	26.67	4	26.67	4	26.67
茴香	15	10	66.67	3.2×10 ³	5	33.33	3	20.00	2	13.33	5	33.33
肉桂	10	7	70.00	7.0×10 ³	3	30.00	0	0.00	4	40.00	3	30.00
香叶	10	7	70.00	1.5×10 ³	3	30.00	1	10.00	4	40.00	2	20.00
咖喱粉	5	3	60.00	5.7×10 ²	2	40.00	1	20.00	1	20.00	1	20.00
十三香	5	3	60.00	6.9×10 ²	2	40.00	0	0.00	2	40.00	1	20.00
合计	260	188	72.31	5.1×10 ³	72	27.69	40	15.38	89	34.23	59	22.69

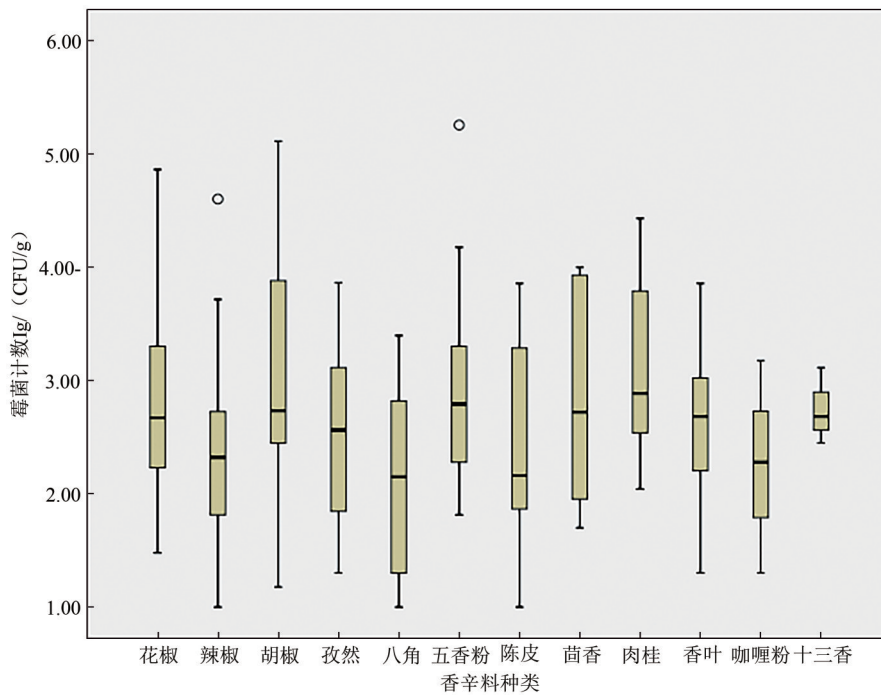


图 1 2022—2023 年贵州省 188 份不同种类香辛料样品的霉菌计数结果

Figure 1 Mold counting results in 188 different types of spice samples in Guizhou Province from 2022 to 2023

2.1.2 不同包装类型样品的霉菌污染状况

预包装样品的检出率为 74.24%(49/66),散装样品的检出率为 71.65%(139/194),两种包装类型的检出率差异无统计学意义($\chi^2=0.17, P=0.68$),不同包装类型样品的霉菌污染状况详见表 2。霉菌计数结果大多集中在 100~1 000 CFU/g 范围,其中预

包装样品比例为 34.85%(23/66),而散装样品的比例为 34.02%(66/194),差异无统计学意义($\chi^2=0.01, P=0.90$)。散装样品的污染程度略高于预包装样品,散装样品霉菌计数平均值为 6.2×10^3 CFU/g,最大值为 1.8×10^5 CFU/g;预包装样品霉菌计数平均值为 2.0×10^3 CFU/g,最大值为 3.2×10^4 CFU/g。

表 2 2022—2023 年贵州省 260 份不同包装类型香辛料样品的霉菌污染状况

Table 2 Mold contamination of spice samples in 260 different packing types in Guizhou Province from 2022 to 2023

包装类型	样品数量/份	检出样品数/份	检出率/%	霉菌计数平均值/(CFU/g)	<10 CFU/g		≥10~100 CFU/g		≥100~1 000 CFU/g		≥1 000 CFU/g	
					样品数量/份	占比/%	样品数量/份	占比/%	样品数量/份	占比/%	样品数量/份	占比/%
预包装	66	49	74.24	2.0×10 ³	17	25.76	13	19.70	23	34.85	13	19.70
散装	194	139	71.65	6.2×10 ³	55	28.35	27	13.92	66	34.02	46	23.71
合计	260	188	72.31	5.1×10 ³	72	27.69	40	15.38	89	34.23	59	22.69

2.1.3 不同季度采集样品的霉菌污染状况

不同季度采集的香辛料样品均检出霉菌。第一季度样品检出率最高为87.10%(27/31),第四季度样品的检出率最低为48.28%(14/29),第二季度样品的检出率为70.97%(66/93),第三季度样品的检出率为75.70%(81/107),不同季度采集的香辛料样品检出率差异有统计学意义($\chi^2=12.45, P=0.01$)。第一季度样品霉菌计数值主要集中在100~1 000 CFU/g,占比54.84%(17/31)。第二季度样品大多未检出霉菌(计数结果<10 CFU/g),占比29.03%(27/93),检出样品计数值集中在 $\geq 1 000$ CFU/g,占比26.88%(25/93)。第三季度样品霉菌计数值集中在100~1 000 CFU/g,占比37.38%(40/107)。第四季度样品大多未检出霉菌,占比51.72%(15/29),检出样品的计数值集中在100~1 000 CFU/g,占比27.59%(8/29)。以采样季度为横坐标,霉菌计数结果的lg值为纵坐标,对188份检出霉菌的样品作箱线图,结果详见图2,第二季度样品的污染程度最高。同一季度采集的香辛料不同样本的霉菌污染状况各不相同,其中第二季度不同样本间差异最大,达4.26个数量级,而第一季度不同样本间的差异最小,相差2.38个数量级。

2.2 霉菌鉴定结果

2.2.1 霉菌属水平分析

188份检出霉菌的香辛料样品中共分离出454株霉菌,其中曲霉属(*Aspergillus* spp.)187株,根霉属(*Rhizopus* spp.)81株,毛霉属(*Mucor* spp.)35株,青霉属(*Penicillium* spp.)32株,横梗霉属(*Lichtheimia* spp.)20株,交链孢霉属(*Alternaria* spp.)11株,丝衣霉属(*Byssoschlamys* spp.)8株,木霉属(*Trichoderma*

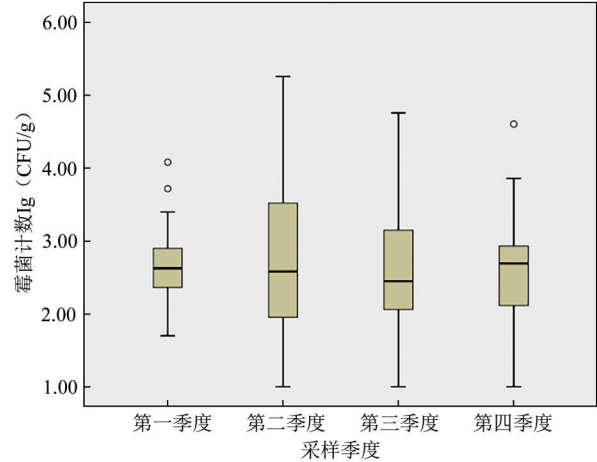


图2 2022—2023年贵州省188份不同季度采集的香辛料样品霉菌计数结果

Figure 2 Mold counting results of 188 spice samples collected in different quarters in Guizhou Province from 2022 to 2023

spp.)4株,附球菌属(*Epicoccum* spp.)4株,枝孢霉属(*Cladosporium* spp.)4株,茎点霉属(*Phoma* spp.)3株,毛壳菌属(*Chaetomium* spp.)3株,帚霉属(*Scopulariopsis* spp.)3株,共头霉属(*Syncephalastrum* spp.)2株,镰刀菌属(*Fusarium* spp.)2株,节菱孢属(*Arthrinium* spp.)1株,拟青霉属(*Purpureocillium* spp.)1株,裂褶菌属(*Schizophyllum* spp.)1株,旋孢腔菌属(*Cochliobolus* spp.)1株,其他51株。不同种类的香辛料样品属分布详见图3。花椒、胡椒、辣椒、八角、五香粉、陈皮、茴香、肉桂、香叶、十三香被霉菌曲霉属污染最多,而孜然主要被曲霉属和根霉属污染,肉桂主要被曲霉属和青霉属污染,咖喱粉主要被根霉属和毛霉属污染。

2.2.2 霉菌种水平分析

分离的187株曲霉属中共有15个不同的种,其

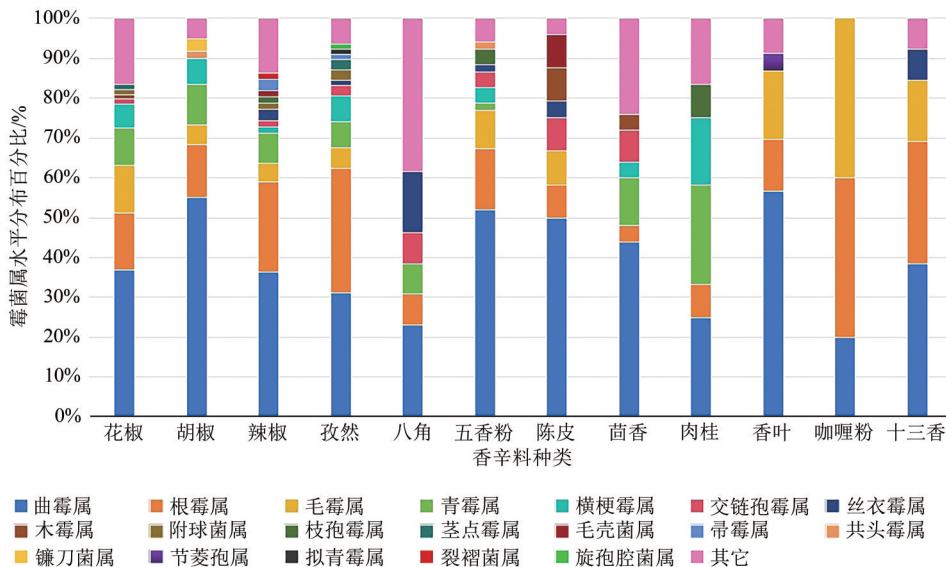
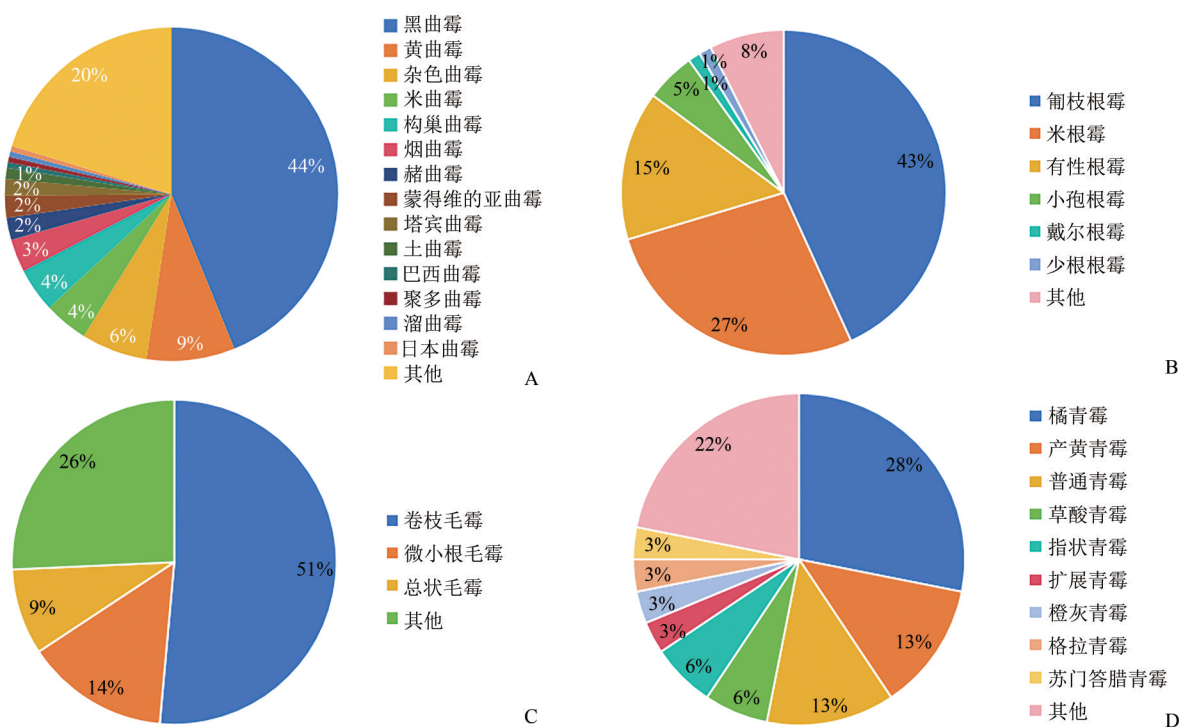


图3 2022—2023年贵州省188份不同种类香辛料样品的霉菌属水平分布情况

Figure 3 Distribution of mold genera in 188 different types of spice samples in Guizhou Province from 2022 to 2023

中以黑曲霉(*Aspergillus niger*)为主(82株、43.85%),其次为黄曲霉(*Aspergillus flavus*,16株、8.56%)、杂色曲霉(*Aspergillus versicolor*,12株、6.42%)、米曲霉(*Aspergillus oryzae*,8株、4.28%)和构巢曲霉(*Aspergillus nidulans*,8株、4.28%),详见图4A。81株根霉属中有7个不同的种,以匍枝根霉(*Rhizopus stolonifer*,35株、43.21%)、米根霉(*Rhizopus oryzae*,22株、27.16%)和有性根霉(*Rhizopus sexualis*,12株、14.81%)为主,详见图4B。35株毛霉属中以卷枝毛霉(*Mucor circinelloides*,18株、51.43%)、微小根毛霉

(*Rhizomucor pusillus*,5株、14.29%)和总状毛霉(*Mucor racemosus*,3株、8.57%)为主,详见图4C。32株青霉属共有10个不同的种,主要是橘青霉(*Penicillium citrinum*,9株、28.13%)、产黄青霉(*Penicillium chrysogenum*,4株、12.50%)和普通青霉(*Penicillium commune*,4株、12.50%),详见图4D。454株霉菌中产毒霉菌共有155株(34.14%),主要为黑曲霉(82株、52.90%)、黄曲霉(16株、10.32%)、杂色曲霉(12株、7.74%)、橘青霉(9株、5.81%)、构巢曲霉(8株、5.16%)等。



注:A为曲霉属;B为根霉属;C为毛霉属;D为青霉属

图4 2022—2023年贵州省188份香辛料样品霉菌主要属的种鉴定结果

Figure 4 Species identification of main genera of mold in 188 spice samples in Guizhou Province from 2022 to 2023

2.3 真菌毒素检出情况

52份霉菌阳性香辛料样品中25份样品检出真菌毒素,检出率为48.08%。其中,6份样品同时检出两种真菌毒素,分别为1份花椒、1份辣椒、1份胡椒、2份孜然和1份五香粉,检出的真菌毒素为AFTB₁+AFTB₂3份、AFTG₁+OTA2份、AFTB₂+AFTG₁1份。另外,1份孜然样品同时检出AFTG₁、AFTB₂、OTA3种真菌毒素,这份样品的霉菌计数值为160 CFU/g,检出的霉菌有曲霉属、青霉属、附球菌属、茎点霉属及其它。5种真菌毒素的检出率从高到低依次为AFTB₂(26.92%)、OTA(17.31%)、AFTG₁(11.54%)和AFTB₁(7.69%),未检出AFTG₂。检测的9种香辛料均检出真菌毒素,不同种类样品的真菌毒素检出情况详见表3。其中,检出AFTB₁的为胡椒、花椒和辣椒;除八角和茴香外,其余种类均检出AFTB₂;

检出AFTG₁的为孜然、花椒、胡椒和五香粉;检出OTA的为孜然、茴香、胡椒、八角、五香粉和香叶。25份真菌毒素阳性样品中16份样品(64.00%)检出产毒霉菌,多为曲霉属的霉菌。

两种包装类型的香辛料样品均检出真菌毒素,检出情况详见表4。预包装样品主要检出AFTG₁,检出率为26.67%(4/15)。散装样品主要检出AFTB₂,检出率为29.73%(11/37)。检出的四种真菌毒素中,仅AFTG₁的检出率差异有统计学意义($\chi^2=4.73$, $P=0.03$),其余三种真菌毒素的检出率差异均无统计学意义。OTA的平均污染水平最高,为24.90 $\mu\text{g}/\text{kg}$;AFTG₁的平均污染水平最低,为13.92 $\mu\text{g}/\text{kg}$;AFTB₁以及AFTB₂的平均污染水平分别为19.81 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 和14.47 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。污染最大值最高的为AFTB₂,为99.68 $\mu\text{g}/\text{kg}$;AFTB₁、AFTG₁和OTA的污染最大值

表3 2022—2023年贵州省52份不同种类香辛料样品的真菌毒素检测结果

Table 3 Detection results of mycotoxins in different types of 52 spices samples in Guizhou Province from 2022 to 2023

香辛料种类	样品数量/份	霉菌计数平均值/(CFU/g)	AFTB ₁			AFTB ₂			AFTG ₁			AFTG ₂			OTA			
			检出样品数/份	检出率/%	检出样品污染水平 $\bar{X}(X_{min}, X_{max})$ /($\mu\text{g}/\text{kg}$)	检出样品数/份	检出率/%	检出样品污染水平 $\bar{X}(X_{min}, X_{max})$ /($\mu\text{g}/\text{kg}$)	检出样品数/份	检出率/%	检出样品污染水平 $\bar{X}(X_{min}, X_{max})$ /($\mu\text{g}/\text{kg}$)	检出样品数/份	检出率/%	检出样品污染水平 $\bar{X}(X_{min}, X_{max})$ /($\mu\text{g}/\text{kg}$)	检出样品数/份	检出率/%	检出样品污染水平 $\bar{X}(X_{min}, X_{max})$ /($\mu\text{g}/\text{kg}$)	
花椒	14	9.7×10^2	1	7.14	24.83	7	50.00	7.90 (3.22, 9.85)	1	7.14	32.44	0	0.00	0	0.00	0	0.00	—
辣椒	1	10	1	100.00	8.76	1	100.00	8.59	0	0.00	—	0	0.00	0	0.00	0	0.00	—
胡椒	22	1.4×10^4	2	9.09	22.84(2.25, 43.42)	1	4.54	6.34	1	4.55	2.56	0	0.00	1	4.55	3.92	4.55	3.92
孜然	3	3.6×10^3	0	0.00	—	1	33.33	7.37	3	100.00	11.13(5.48, 16.03)	0	0.00	3	100.00	15.89(2.66, 41.02)	100.00	15.89(2.66, 41.02)
八角	1	20	0	0.00	—	0	0.00	—	0	0.00	—	0	0.00	1	100.00	77.15	100.00	77.15
五香粉	4	1.6×10^3	0	0.00	—	2	50.00	9.40 (8.61, 10.19)	1	25.00	15.11	0	0.00	1	25.00	20.84	25.00	20.84
茴香	2	4.3×10^3	0	0.00	—	0	0.00	—	0	0.00	—	0	0.00	2	100.00	2.07(1.63, 2.51)	100.00	2.07(1.63, 2.51)
肉桂	2	9.4×10^3	0	0.00	—	1	50.00	99.68	0	0.00	—	0	0.00	0	0.00	—	0.00	—
香叶	3	2.7×10^3	0	0.00	—	1	33.33	6.43	0	0.00	—	0	0.00	1	33.33	70.41	33.33	70.41
合计	52	7.2×10^3	4	7.69	19.81(2.25, 43.42)	14	26.92	14.47(3.22, 99.68)	6	11.54	13.92(2.56, 16.03)	0	0.00	9	17.31	24.90(1.63, 77.15)	17.31	24.90(1.63, 77.15)

分别为 43.42、16.03 和 77.15 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。GB 2761—2017^[9]中对调味品黄曲霉毒素 B₁的限量标准为 5 $\mu\text{g}/\text{kg}$,本次检测的样品中 AFTB₁的超标率为 5.77%(3/52),分别为 1 份辣椒(100.00%),1 份胡椒(4.55%)和 1 份花椒(7.14%),其中预包装样品 1 份(6.67%),散装样品 2 份(5.41%)。

3 讨论

香辛料是一种与日常饮食密切相关的调味品,有研究表明,大蒜、丁香等香辛料中的一些成分对金黄色葡萄球菌等食源性致病菌有抑制作用^[10],但是对霉菌的抑制作用较弱^[1]。霉菌含量高时会引起食物的腐败变质,而且在一定条件下会产生对人体有害的真菌毒素^[11]。

本次调查研究发现,贵州省市售香辛料样品中 72.31%(188/260)检出霉菌,计数范围主要集中在 100~1 000 CFU/g(平均值为 5.1×10^3 CFU/g),污染水平较高,与文献报道污染结果相似^[12]。有文献表明香辛料的霉菌污染可能发生在种植、采收和采收后环节,高温高湿可为霉菌生长提供适宜条件^[13]。本研究发现不同种类样品以及不同包装类型样品的检出率差异均没有统计学意义,不同季度采集的样品检出率差异具有统计学意义。本研究结果说明,原料种类与包装工艺对霉菌污染差异的影响不大,季节对污染差异的影响较大,可能与温湿度有关,推测霉菌污染发生在香辛料种植、采收和储存环节。这也指导课题组下一步开展加工、储藏、销售等不同环节的霉菌污染调查,分析霉菌污染的关键环节,从而为精准制定污染控制措施提供科学依据。

此次研究的香辛料样品主要被曲霉属、根霉属、毛霉属和青霉属的霉菌污染。孜然主要被曲霉属和根霉属污染,肉桂主要被曲霉属和青霉属污染,咖喱粉主要被根霉属和毛霉属污染,其余种类香辛料被曲霉属污染最多。有文献报道污染香辛料造成的霉菌多是曲霉属、青霉属、镰刀菌属、根霉属和毛霉属的一些种,其中最常见的是曲霉属和青霉属的霉菌^[14-15],与本次调查结果一致。曲霉属、青霉属、毛霉属和根霉属均是引起食品霉腐、果蔬腐烂的重要微生物,还能感染人群,并产生具有肾脏、肠道和免疫毒性的真菌毒素^[16-18]。形态学鉴定依然是目前霉菌鉴定的金标准,但是需依赖经验丰富的检验人员^[19]。质谱能快速鉴定霉菌,但其准确率很大程度上依赖于数据库^[20]。后续课题组将通过分子测序的方式开展香辛料的霉菌种属分析,获得更详细、准确的数据。

表4 2022—2023年贵州省52份不同包装类型香辛料样品的真菌毒素检测结果

Table 4 Detection results of mycotoxins in 52 different packing types of spices samples in Guizhou Province from 2022 to 2023

包装类型	样品数量/份	霉菌计数/平均值/CFU/g	AFTB ₁		AFTB ₂		AFTG ₁			AFTG ₂		OTA				
			检出样品数/份	检出率/%	统计	检出样品数/份	检出率/%	统计	检出样品数/份	检出率/%	统计	检出样品数/份	检出率/%	统计		
															分析	分析
预包装	15	1.3×10 ³	1	6.67	χ ² =0.03,	3	20.00	χ ² =0.51	4	26.67	χ ² =4.73,	0	0.00	2	13.33	χ ² =0.23,
散装	37	9.6×10 ³	3	8.11	P=0.86	11	29.73	P=0.47	2	5.41	P=0.03	0	0.00	7	18.92	P=0.63
合计	52	7.2×10 ³	4	7.69		14	26.92		6	11.54		0	0.00	9	17.31	

黄曲霉毒素被划定为 I 类致癌物,是诱发肝癌的主要危险因素之一,由黄曲霉等霉菌产生^[21]。赭曲霉毒素为 II B 组的致癌物质,具有肝肾毒性、免疫毒性、致畸性和致癌性,由赭曲霉或黑曲霉等霉菌产生^[22]。有研究表明,黄曲霉毒素和赭曲霉毒素是香辛料最主要的污染毒素^[23-25],本研究显示 52 份霉菌阳性香辛料样品中的 AFs 和 OTA 检出率为 48.08% (25/52),7 份(13.46%)样品同时检出两种及以上的真菌毒素。本次调查香辛料样品污染的真菌毒素多为 AFTB₂ 和 OTA。预包装样品的 AFTG₁ 检出率显著高于散装样品,或是因加工包装过程中的温度、湿度和储存时间等因素为霉菌创造了更有利的产毒条件。AFTB₁ 的超标率为 5.77%,低于高博等^[26]对辣椒(14.35%)、陈宇航等^[12]对香辛料(73.3%)以及 BOSHRA 等^[27]对香辛料(13.3%)报道的超标率。有文献报道储存时温度和湿度的差异会影响 ATB₁ 的含量变化^[28],本次调查发现 AFTB₁ 的检出率及污染水平均低于 AFTB₂,推测贵州的温度和湿度更利于 AFTB₂ 的产生。检出毒素的样品应存在产毒霉菌污染,但产毒霉菌不一定代谢产生毒素^[11]。本研究真菌毒素阳性样品中 64.00% (16/25) 检出产毒霉菌,说明毒素与产毒霉菌存在一定的相关性,部分阳性样品未检出产毒霉菌或是由于产品经过辐照灭菌等过程,降低了产品中霉菌的污染水平。受经费和实验条件的限制,此次检测的样品数量及毒素种类较少,后续将扩大检测范围,获取更加全面的数据,从而进一步分析霉菌数量、种属和产生真菌毒素之间的关联。

本研究发现,贵州省市售香辛料存在霉菌污染,且能在一定条件下产生真菌毒素,但超标率较低。建议加强对香辛料的监测与管理,从而为开展风险评估,发展与完善香辛料的相关标准提供依据,以保证食品安全。

参考文献

- [1] 黄晓德,钱骅,朱羽尧,等. 香辛料霉菌污染现状及防控对策[J]. 中国野生植物资源, 2018, 37(5): 66-68.
HUANG X D, QIAN H, ZHU Y Y, et al. Pollution status and control countermeasures of fungus in spice [J]. Chinese Wild

Plant Resources, 2018, 37(5): 66-68.

- [2] 黄思瑜,董宪兵,周纯洁,等. 超高效液相色谱串联-质谱法同时测定香辛料中7种真菌毒素[J]. 食品工业科技, 2019, 40(14): 270-274, 279.
HUANG S Y, DONG X B, ZHOU C J, et al. Determination of 7 mycotoxin contaminants in spices by ultra-high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Science and Technology of Food Industry, 2019, 40(14): 270-274, 279.
- [3] ADEYEYE S A O. Aflatoxicogenic fungi and mycotoxins in food: a review[J]. Critical reviews in food science and nutrition, 2020, 60(5): 709-721.
- [4] 王家祺,王君. 国内外香辛料法规对比及主要问题分析[J]. 中国调味品, 2021, 46(2): 163-169.
WANG J Q, WANG J. Comparison of domestic and foreign spices regulations and analysis of main problems [J]. China Condiment, 2021, 46(2): 163-169.
- [5] 国家卫生和计划生育委员会. 食品安全国家标准 食品微生物学检验 霉菌和酵母计数: GB 4789.15—2016[S]. 北京: 中国标准出版社, 2017.
National Health and Family Planning Commission. National food safety standard-Food microbiological examination: Enumeration of moulds and yeasts: GB 4789.15—2016[S]. Beijing: Standards Press of China, 2017.
- [6] 国家卫生和计划生育委员会, 国家食品药品监督管理总局. 食品安全国家标准 食品微生物学检验 常见产毒霉菌的形态学鉴定: GB 4789.16—2016[S]. 北京: 中国标准出版社, 2017.
National Health and Family Planning Commission, National Food and Drug Administration. National food safety standard-Food microbiological examination: Morphological identification of common toxin producing mould: GB 4789.16—2016 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2017.
- [7] 国家卫生和计划生育委员会, 国家食品药品监督管理总局. 食品安全国家标准 食品中黄曲霉毒素 B 族和 G 族的测定: GB 5009.22—2016[S]. 北京: 中国标准出版社, 2017.
National Health and Family Planning Commission, National Food and Drug Administration. National food safety standard: Determination of aflatoxin B and G groups in food: GB 5009.22—2016[S]. Beijing: Standards Press of China, 2017.
- [8] 国家卫生和计划生育委员会, 国家食品药品监督管理总局. 食品安全国家标准 食品中赭曲霉毒素 A 的测定: GB 5009.96—2016[S]. 北京: 中国标准出版社, 2017.
National Health and Family Planning Commission, National Food and Drug Administration. National food safety standard: Determination of ochratoxin A in food: GB 5009.96—2016[S].

- Beijing: Standards Press of China, 2017.
- [9] 国家卫生和计划生育委员会, 国家食品药品监督管理总局. 食品安全国家标准 食品中真菌毒素限量: GB 2761—2017 [S]. 北京: 中国标准出版社, 2017.
- National Health and Family Planning Commission, National Food and Drug Administration. National food safety standard Limits of mycotoxins in food: GB 2761—2017 [S]. Beijing: Standards Press of China, 2017.
- [10] 杨轶滢, 崔钊伟, 王卫, 等. 香辛料提取物及其在肉制品抑菌防腐中的应用进展[J]. 现代食品科技, 2022, 38(3): 314-327.
- YANG Y X, CUI Z W, WANG W, et al. Spice extracts and their application of antimicrobial and preservation activities in meat products[J]. Modern Food Science and Technology, 2022, 38(3): 314-327.
- [11] 彭子欣, 杨欣, 李莹, 等. 我国熟制坚果与籽类食品中霉菌及其毒素污染状况研究[J]. 中国食品卫生杂志, 2023, 35(10): 1460-1467.
- PENG Z X, YANG X, LI Y, et al. Mold and mycotoxin contamination in cooked nuts and seeds in China [J]. Chinese Journal of Food Hygiene, 2023, 35(10): 1460-1467.
- [12] 陈宇航, 凌莉, 王溯源, 等. 2014年成都市售常见香辛料霉菌及真菌毒素污染状况[J]. 卫生研究, 2017, 46(2): 324-327.
- CHEN Y H, LING L, WANG S Y, et al. Mold and mycotoxin contamination of common spices sold in Chengdu in 2014 [J]. Journal of Hygiene Research, 2017, 46(2): 324-327.
- [13] PICKOVA D, OSTRY V, MALIR J, et al. A review on mycotoxins and microfungi in spices in the light of the last five years [J]. Toxins (Basel), 2020, 12(12): 789.
- [14] 叶丹, 王传明, 王红强, 等. 香辛料中微生物的污染情况及控制方法的研究进展 [J]. 中国调味品, 2020, 45(6): 198-200.
- YE D, WANG C M, WANG H Q, et al. Research Progress on microbial contamination situations in spices and control methods [J]. China condiment, 2020, 45(6): 198-200.
- [15] NORDIN S, SAMSUDIN N A, ESAH E M, et al. Prevalence, Identification and Mycotoxigenic Potential of Fungi in Common Spices Used in Local Malaysian Cuisines [J]. Foods, 2022, 11(17): 2548.
- [16] 黄晓静, 王少敏, 毛丹, 等. 曲霉属真菌毒素的毒性研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2017, 8(5): 1679-1687.
- HUANG X J, WANG S M, MAO D, et al. Research progress on toxicity of aspergillus mycotoxins [J]. Journal of Food Safety and Quality, 2017, 8(5): 1679-1687.
- [17] 王亚楠, 王志青, 祖琳, 等. 食品中展青霉素的研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2021, 12(18): 7410-7416.
- WANG Y N, WANG Z Q, ZU L, et al. Research progress of patulin in food [J]. Journal of Food Safety and Quality, 2021, 12(18): 7410-7416.
- [18] 许蕊, 陈芳艳, 赵静雅, 等. 毛霉菌病预防与控制研究进展 [J]. 中华医院感染学杂志, 2023, 33(13): 2075-2080.
- XU R, CHEN F Y, ZHAO J Y, et al. Progress of research on prevention and control of mucormycosis [J]. Chinese Journal of Nosocomiology, 2023, 33(13): 2075-2080.
- [19] 张春华, 胡明冬, 蒋敏, 等. 3种方法对曲霉菌鉴定结果对比研究[J]. 国际检验医学杂志, 2023, 44(23): 2938-2941.
- ZHANG C H, HU M D, JIANG M, et al. Comparison on the identification results of Aspergillus using three methods [J]. International Journal of Laboratory Medicine, 2023, 44(23): 2938-2941.
- [20] 中国临床微生物质谱共识专家组. 中国临床微生物质谱应用专家共识 [J]. 中华医院感染学杂志, 2016, 26(10): I-IV.
- Chinese Clinical Microbial Mass Spectrometry Consensus Expert Group. Expert Consensus on the Application of Clinical Microbial Mass Spectrometry in China [J]. Chinese Journal of Nosocomiology, 2016, 26(10): I-IV.
- [21] DAOU R, HOTEIT M, BOOKARI K, et al. Public health risk associated with the co-occurrence of aflatoxin B₁ and ochratoxin A in spices, herbs, and nuts in Lebanon [J]. Frontiers in public health, 2022, 10: 1072727.
- [22] SIRHAN A, ALRASHDAN Y, NAJDAWI M, et al. Quantification of Ochratoxin A in 90 spice and herb samples using the ELISA method [J]. Journal of Medicine & Life, 2023, 16(9): 1393-1399.
- [23] 黄思瑜, 董宪兵, 邓宇杰, 等. 重庆地区辣椒, 花椒, 八角中真菌毒素污染状况分析 [J]. 食品安全质量检测学报, 2020, 11(21): 8119-8124.
- HUANG S Y, DONG X B, DENG Y J, et al. Survey on mycotoxin contamination situation in pepper, prickly ash and star anise in Chongqing [J]. Journal of Food Safety and Quality, 2020, 11(21): 8119-8124.
- [24] DEMIRHAN B, DEMIRHAN B E. Analysis of Multi-Mycotoxins in Commonly Consumed Spices Using the LC-MS/MS Method for Assessing Food Safety Risks [J]. Microorganisms, 2023, 11(7): 1786.
- [25] CHALYY Z A, KISELEVA M G, SEDOVA I B, et al. Mycotoxins in spices consumed in Russia [J]. Voprosy pitaniia, 2023, 92(2): 26-34.
- [26] 高博, 王艳, 陈霄, 等. 贵州省辣椒制品中黄曲霉毒素B1的污染调查 [J]. 贵州农业科学, 2012, 40(1): 141-143.
- GAO B, WANG Y, CHEN X, et al. Investigation on aflatoxin B1 contamination in chilli products of guizhou province [J]. Guizhou Agricultural Sciences, 2012, 40(1): 141-143.
- [27] BOSHRA M H, EL-HOUSSEINY G S, FARAG M M S, et al. Evaluation of ELISA and immunoaffinity fluorometric analytical tools of four mycotoxins in various food categories [J]. AMB Express, 2023, 13(1): 123.
- [28] KABURI S A, APPIAH F, LAMPTEY F P, et al. Controlling aflatoxin in maize: The effects of varieties, packaging materials, and agroecological zones [J]. Heliyon. 2023, 9(11): e21645.