

## 风险评估

# 我国市售典型食品中交链孢霉毒素污染状况和膳食暴露风险评估

杨欣<sup>1</sup>,闫兆凤<sup>2</sup>,潘峰<sup>1</sup>,郭垣<sup>1</sup>,黄常刚<sup>3</sup>,邵懿<sup>1</sup>,杨大进<sup>1</sup>

(1. 国家食品安全风险评估中心,国家卫生健康委员会食品安全风险评估重点实验室,北京 100021;  
2. 威海市疾病预防控制中心,山东 威海 264200;3. 武汉市疾病预防控制中心,湖北 武汉 430024)

**摘要:**目的 了解我国市售典型食品中交链孢霉毒素的污染状况,评估膳食暴露风险。方法 在河南省、黑龙江省、湖北省等14个监测地区采集小麦粉、面包和番茄酱等11种典型食品共计7 694,采用同位素稀释-高效液相色谱-串联质谱法检测交链孢酚、交链孢酚单甲醚、细交链孢菌酮酸和腾毒素4种交链孢霉毒素,结合我国居民膳食消费量数据,采用点评估法计算膳食暴露量,并与欧洲食品安全局推荐使用的毒理学关注阈值进行比较,评价其膳食暴露健康风险。结果 小麦粉和番茄酱中交链孢霉毒素检出率>95%,番茄酱中含量平均值最高,为118 μg/kg;番茄检出率和含量平均值均最低,分别为6.05%和0.07 μg/kg。检出率最高的毒素是细交链孢菌酮酸(68%)。我国普通人群膳食交链孢酚、交链孢酚单甲醚、细交链孢菌酮酸和腾毒素每日平均暴露量分别为3.67、4.39、139和25.1 ng/(kg·BW/d)。结论 小麦粉及其制品和番茄酱普遍存在交链孢霉毒素污染,细交链孢菌酮酸和腾毒素平均暴露量未超过其对应的TTC值,交链孢酚和交链孢酚单甲醚平均暴露量超过其对应的TTC值,需关注其慢性毒性风险。小麦粉及其制品为主要贡献食品。由于TTC是高度保守的筛选性评估,待毒理学资料完善后需进一步开展评估。

**关键词:**交链孢霉毒素;食品污染物;膳食暴露;风险评估

**中图分类号:**R155    **文献标识码:**A    **文章编号:**1004-8456(2025)08-0735-07

**DOI:**10.13590/j.cjfh.2025.08.007

## Alternaria toxins in various food marketed in China and dietary exposure assessment

YANG Xin<sup>1</sup>, YAN Zhaofeng<sup>2</sup>, PAN Feng<sup>1</sup>, GUO Yuan<sup>1</sup>, HUANG Changgang<sup>3</sup>, SHAO Yi<sup>1</sup>, YANG Dajin<sup>1</sup>

(1. China National Center for Food Safety Risk Assessment, NHC Key Laboratory of Food Safety Risk Assessment, Beijing 100021, China; 2. Weihai Center for Disease Prevention and Control, Shandong Weihai 264200, China; 3. Wuhan Center for Disease Prevention and Control, Hubei Wuhan 430024, China)

**Abstract:** **Objective** To investigate occurrence of alternaria toxins various food marketed in China, and to evaluate dietary exposure and their potential health risks. **Methods** A total of 7 694 samples of 11 types foods, including wheat flour, bread, and tomato sauce and so on, were randomly collected in 14 Provinces including He'nan, Heilongjiang, and Hubei Province and so on. Those samples analyzed for alternariol (AOH), alternariol monomethyl ether (AME), tenuazonic acid (TeA) and tentoxin (TEN) by isotope dilution-ultra-high performance liquid chromatography-mass spectrometry. Based on the survey of dietary consumption of residents in China, and dietary exposure of alternaria toxin was calculated by point estimate model. Comparison between dietary exposure and toxicological threshold of concern (TTC) recommended by European Food Safety Authority (EFSA), those were used to evaluate the health risks. **Results** The occurrence of alternaria toxin in wheat flour and tomato sauce was higher than 95%, the average concentration (118 μg/kg) in tomato sauce was the highest. The detection rate (6.05%) and average concentration (0.07 μg/kg) in tomato were the lowest. The most frequently found alternaria toxin was TeA (68%). The average daily exposure of AOH, AME, TeA and TEN in Chinese general population was 3.67, 4.39, 139 and 25.1 ng/(kg·BW/d), respectively. **Conclusion** There are commonly contaminated with alternaria toxin in wheat flour, wheat-based products and tomato sauce. The health risk of

收稿日期:2024-12-06

基金项目:国家重点研发计划(2019YFC1605200、2019YFC1605202)

作者简介:杨欣 女 研究员 研究方向为食品安全风险监测 E-mail: yangxin@cfsa.net.cn

通信作者:邵懿 女 研究员 研究方向为食品安全风险管理 E-mail: shaoyi@cfsa.net.cn

杨大进 男 研究员 研究方向为食品安全风险监测 E-mail: yangdajin@cfsa.net.cn

邵懿和杨大进为共同通信作者

dietary intake of TeA and TEN was low. There was a certain chronic toxicity risk associated with long-term low-dose exposure to AOH and AME, wheat flour and its products were the main contribution foods. The average exposure levels of TeA and TEN did not exceed their respective TTC values, while the average exposure levels of AOH and AME exceeded their respective TTC values, thus the chronic toxicity risks of these two substances need to be paid attention to. As TTC is a highly conservative screening assessment, further evaluation is required after the toxicological data is complete.

**Key words:** Alternaria toxins; food contamination; dietary exposure; risk assessment

交链孢菌(*Alternaria* spp.)是一类广泛分布于自然界中的植物病原真菌,具有寄生、腐生及植物致病性,可在生产前、生产中及生产后贮运过程中引起农作物、果蔬和经济作物的霉变和腐败。交链孢霉毒素(*Alternaria* toxins, ALTs)是由交链孢菌产生的一系列有毒代谢产物的总称,这类毒素对人和动物具有致癌、致畸、致突变和细胞毒性,会对人体健康产生危害<sup>[1-2]</sup>。已知的交链孢霉毒素超过70种,其中交链孢酚(Alternariol, AOH)、交链孢酚单甲醚(Alternariol monomethyl ether, AME)、细交链孢菌酮酸(Tenuazonic acid, TeA)和腾毒素(Tentoxin, TEN)是污染范围较广、毒性效应较高的4种链格孢毒素。交链孢霉毒素在小麦及其制品、果蔬及其制品(番茄、番茄酱、樱桃、葡萄酒等)和食用植物油(橄榄油、菜籽油)等多种食品中均有检出<sup>[3-5]</sup>。由于交链孢霉毒素的污染数据和毒理学数据有限,目前世界各国尚未对食品或饲料中交链孢霉毒素制定相关限量标准。但由于其化学结构明确,欧洲食品安全局(European Food Safety Authority, EFSA)建议使用毒理学关注阈值(Toxicological threshold of concern, TTC)开展膳食暴露风险评估,并设定AOH和AME的TTC值为2.5 ng/(kg·BW), TeA和TEN的TTC值为1 500 ng/(kg·BW)<sup>[6]</sup>。本文针对11类交链孢霉毒素污染的市售典型食品开展研究,并结合膳食消费量进行初步暴露评估,旨在为今后全面评估交链孢霉毒素与居民健康关系以及相关标准、政策等的制订提供参考依据。

## 1 材料与方法

### 1.1 样品采集

2018年1月—2021年9月,依据《国家食品污染和有害因素风险监测工作手册》中规定的采样技术要求,采用随机抽样的方法,在河南省、黑龙江省、湖北省、安徽省、北京市、广西壮族自治区、贵州省、湖南省、江苏省、内蒙古自治区、山西省、四川省、云南省和重庆市14个监测地区,从流通环节(超市、农贸市场、网店和路边摊位)采样,采集小麦粉(3 225份)、挂面(622份)、馒头(500份)、面包(564份)、饼干(566份)、油菜籽油(225份)、橄榄油(348份)、番茄

(248份)、番茄酱(317份)、樱桃(252份)、车厘子(479份)和葡萄酒(348份),样品共计7 694份。样品采集完成后均进行匀浆处理,-20℃冷冻保存待测。

### 1.2 方法

#### 1.2.1 检测方法

样品中的交链孢霉毒素经提取,离心过滤后,取上清液加入一定浓度氘标记的交链孢霉毒素同位素内标(AOH-D<sub>2</sub>, TEN-D<sub>3</sub>和TeA-D<sub>13</sub>)溶液,液相色谱-串联质谱仪多反应监测模式测定,采用稳定同位素稀释内标法定量。具体方法及仪器参数设置参照《2018年国家食品污染和有害因素风险监测工作手册》<sup>[7]</sup>中的食品中交链孢霉毒素测定的标准操作程序。TeA和AOH的检出限(Limit of detection, LOD)和定量限(Limit of quantitation, LOQ)分别为0.5和1.5 μg/kg, TEN和AME的分别为0.1和0.3 μg/kg。

#### 1.2.2 质量控制

采用空白试验、平行样品测试、加标回收试验等质量控制方法,确保实验室内部检测数据的准确性。将部分阳性样品(尤其是检出值异常高的样品)送其他实验室复核。

#### 1.2.3 数据处理

当毒素检测值大于其LOD即为检出该毒素(阳性);样品中只要检出TeA、AOH、TEN和AME中的任何一个即为检出ALTs。样品中ALTs的含量平均值是TeA、AOH、TEN和AME 4个毒素检测值加和后的算术平均值。计量资料描述采用均值(̄x)、中位数(P50)、第95百分位数(P95)和最大值。

#### 1.2.4 评估方法

采用点评估法,对典型食品中交链孢霉毒素进行暴露评估。暴露量的计算公式为:

$$Exp = \frac{\sum_{i=1}^n (F_i \times C_i)}{BW}$$

其中,其中Exp为交链孢霉毒素的膳食暴露量[ng/(kg·BW·d)];F<sub>i</sub>为第i种食品的消费量(g/d),C<sub>i</sub>为第i种食品中交链孢霉毒素的平均含量(μg/kg),n为个体消费的食物总数,BW为个体的体质量,以营养学概念上的标准人(体质量63 kg)来表征我国成年普通居民。根据本研究获得的污染数据,分别

计算暴露量下界(LB)、中界(MB)和上界(UB)。在下界情况下,所有<LOD的检测值均设定为0;在中界情况下,所有<LOD的检测值均设定为1/2LOD;在上界情况下,所有<LOD的检测值均设定为LOD。一般来说,UB方案高估了污染和暴露量,而LB方案低估了污染和暴露量。本研究采用EFSA建议的TTC值评价AOH、AME、TeA和TEN膳食暴露健康风险。

### 1.3 统计学分析

数据由Excel 2016录入并整理,采用SPSS 21.0进行数据的统计分析。因数据不符合正态分布,采用Mann-Whitney U检验比较两组样品含量的差异,计数资料以率(%)表示,组间比较采用 $\chi^2$ 检验比较两组的差异,所有统计学检验均为双侧检验,以 $\alpha=$

0.05为检验标准, $P<0.05$ 为差异有统计学意义。

## 2 结果与分析

### 2.1 总体污染状况

不同类别食品中ALTs检出率和含量水平差异较大,其中番茄酱、小麦粉和挂面检出率>93%,番茄酱含量平均值最高(118  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ),且高于其他10种食品,差异有统计学意义( $P<0.05$ );番茄检出率和含量平均值最低,分别为6.05%和0.07  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ;樱桃和车厘子检出率小于18%,油菜籽油、橄榄油和葡萄酒的检出率为60%~80%,含量平均值<9  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ;结果见表1。所有食品中,TeA检出率最高(68%),TEN、AME和AOH的检出率依次66%、36%和11%。

表1 不同食品中交链孢霉毒素(总)的污染状况

Table 1 Occurrence of alternaria mycotoxins in different foods

食品类别	样品数	检出情况		含量/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )		
		阳性样品数/阳性率/%	95%CI	平均值	$P_{50}$	$P_{95}$
小麦粉	3 225	3 073(95.3)	94.6~96.0	57.5	8.1	43.7
挂面	622	579(93.1)	91.1~95.1	38.2	5.81	30.2
馒头	500	447(89.4)	86.7~92.1	26.4	3.06	17.5
面包	564	484(85.8)	82.9~88.7	17.4	2.31	15.0
饼干	566	503(88.9)	86.3~91.5	32.6	3.97	25.2
油菜籽油	225	142(63.1)	56.8~69.4	5.72	0.16	3.27
橄榄油	348	270(77.6)	73.2~82.0	3.23	0.49	2.86
番茄	248	15(6.05)	3.10~9.00	0.07	0.00	0.03
番茄酱	317	304(95.9)	93.7~98.1	118	57.8	451
樱桃	252	29(11.5)	7.60~15.4	0.61	0.00	1.51
车厘子	479	82(17.1)	13.7~20.5	0.82	0.05	2.94
葡萄酒	348	278(79.9)	75.7~84.1	8.97	3.72	30.8

### 2.2 小麦粉及其制品检出情况

小麦粉及其制品(挂面和馒头)中TeA和TEN检出率为77.4%~89.1%,AME检出率为43.2%~54.8%,AOH检出率为12.6%~20.3%。TeA平均值为22.4~48.5  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,TEN平均值为2.82~7.33  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,AME平均值为0.75~1.24  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,AOH平均值为0.37~0.73  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。小麦粉中TeA的检出率和平均值>馒头和挂面,差异有统计学意义( $P<0.05$ ),结果见表2。

### 2.3 烘烤食品

饼干和面包中AME、AOH、TeA和TEN污染趋势和小麦粉一致,检出率和含量平均值最高的均是TeA。饼干和面包TeA检出率均>70%,含量平均值分别为25.1和12.3  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ;AOH检出率<15%,含量平均值<1  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。小麦粉中TeA的检出率和平均值大于饼干和面包,差异有统计学意义( $P<0.05$ ),结果见表3。

### 2.4 油菜籽油和橄榄油检出情况

橄榄油中AME检出率和含量平均值分别为74%和2.64  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,是所研究的11种食品中最高的,而AOH、TeA和TEN含量平均值均<0.40  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ;

菜籽油中AME检出率仅为16.0%,含量平均值为0.17  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,结果见表3。

### 2.5 番茄和番茄酱检出情况

番茄酱中TeA和AOH检出率和含量平均值是所检测的11种食品中最高的,分别为92%和105  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,39%和8.56  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ;番茄中检出率最高的毒素是TeA,仅为1.6%,含量平均值为0.049  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。番茄酱中AOH、AME、TeA和TEN检出率和含量平均值均>番茄,差异均有统计学意义( $P<0.05$ ),结果见表3。

### 2.6 樱桃和车厘子检出情况

除车厘子中TeA检出率(12.5%)和含量平均值(11.29  $\mu\text{g}/\text{kg}$ )显著高于樱桃以外( $P<0.05$ ),车厘子和樱桃中AOH、AME和TEN的污染趋势基本一致,检出率<5%,含量平均值<0.5  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ,结果见表3。

### 2.7 葡萄酒

葡萄酒中交链孢霉毒素污染的报道相对较少。本研究发现葡萄酒中4种交链孢霉毒素中TEN检出率(73.3%)最高,仅次于小麦粉及其制品,但含量平均值仅为3.3  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。TeA、AOH和AME检出率依次为48.3%、23.9%和28.4%,含量平均值依次

表2 小麦粉及其制品中4种ALTs检出情况

Table 2 Occurrence of four ALTs in wheat flour and its products

食品	指标	AME	AOH	TeA	TEN
小麦粉(n=3 225)	阳性样品份数/%	1 768(54.8)	654(20.3)	2 823(87.5)	2 871(89.1)
	平均值	1.01	0.73	48.5	7.28
	含量/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	$P_{50}$ $P_{95}$	0.23 3.90	0.00 4.64	26.3 151
	最大值	45.3	59.1	4 241	214
挂面(n=622)	阳性样品份数/%	246(43.5)	101(17.8)	458(80.9)	448(79.2)
	平均值	1.24	0.69	28.9	7.33
	含量/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	$P_{50}$ $P_{95}$	0.00 4.73	0.00 2.32	18.8 92.7
	最大值	107	179	433	237
馒头(n=500)	阳性样品份数/%	216(43.2)	63(12.6)	395(79.0)	387(77.4)
	平均值	0.75	0.37	22.4	2.82
	含量/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	$P_{50}$ $P_{95}$	0.00 4.40	0.00 1.60	8.85 53.4
	最大值	20.5	151	105	16.7
合计(n=4 347)	阳性样品份数/%	2 230(51.3)	818(18.8)	3 676(84.6)	3 706(85.2)
	平均值	1.00	0.70	42.7	6.77
	含量/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	$P_{50}$ $P_{95}$	0.16 4.17	0.00 3.87	21.8 132
	最大值	107	179	4 241	237

表3 各种食品中4种ALTs检出情况

Table 3 Occurrence of four ALTs in various foods

食品	指标	AME	AOH	TeA	TEN	食品	指标	AME	AOH	TeA	TEN
饼干 (n=566)	阳性样品份数/%	212(38)	72(13)	446(79)	438(77)	番茄酱 (n=317)	阳性样品份数/%	173(55)	125(39)	292(92)	157(50)
	平均值	1.14	0.72	25.1	5.69		平均值	2.58	8.56	105	1.75
	含量/ ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	$P_{50}$ $P_{95}$	0 5.58	0 4.73	11.8 76.2		$P_{50}$ $P_{95}$	0.4 11.7	0 36.6	50.6 440	0.3 2.3
	最大值	28.5	42.3	1 503	104		最大值	96.2	379	1 520	205
面包 (n=564)	阳性样品份数/%	128(23)	18(3.2)	413(73)	401(71)	樱桃 (n=252)	阳性样品份数/%	3(1.2)	4(1.6)	10(4)	6(2.4)
	平均值	0.55	0.39	12.3	4.11		平均值	0.032	0.087	0.446	0.045
	含量/ ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	$P_{50}$ $P_{95}$	0 2.59	0 1.22	5.92 36.2		$P_{50}$ $P_{95}$	0 0	0 0	0 0	0 0.2
	最大值	37.7	90	476	87.6		最大值	6.85	8.67	54.9	4.96
油菜籽油 (n=225)	阳性样品份数/%	36(16)	1(0.4)	74(33)	103(46)	车厘子 (n=479)	阳性样品份数/%	7(1.5)	11(2.3)	60(12.5)	8(1.7)
	平均值	0.17	0.02	4.59	0.95		平均值	0.016	0.18	11.29	0.013
	含量/ ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	$P_{50}$ $P_{95}$	0 0.89	0 0	0 9.64		$P_{50}$ $P_{95}$	0 0	0 0	0 19.4	0 0
	最大值	2.43	4.54	313	38.8		最大值	1.39	56	2 674	1.66
橄榄油 (n=348)	阳性样品份数/%	256(74)	39(11.2)	14(4.0)	20(5.6)	葡萄酒 (n=348)	阳性样品份数/%	99(28.4)	83(23.9)	168(48.3)	255(73.3)
	平均值	2.64	0.39	0.16	0.05		平均值	0.09	0.57	5.01	3.3
	含量/ ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	$P_{50}$ $P_{95}$	1.79 8.79	0 2.7	0 1.3		$P_{50}$ $P_{95}$	0 0.48	0 3.33	0 17.9	0 10.3
	最大值	37.5	6.78	3.64	1.08		最大值	1.36	8.18	113	174
番茄 (n=248)	阳性样品份数/%	1(0.4)	1(0.4)	4(1.6)	2(0.8)						
	平均值	0.002	0.007	0.049	0.013						
	含量/ ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	$P_{50}$ $P_{95}$	0 0	0 0	0 0						
	最大值	0.47	1.76	5	1.15						

为 5.01、0.57 和 0.09  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 结果见表 3。

## 2.8 多毒素同时检出情况

由于一种交链孢菌可能会产生多种交链孢霉毒素, 因此被交链孢霉菌污染的食品通常伴随多种交链孢霉毒素的检出。本研究中, 11 种食品均检出多种(2 种或 2 种以上的)交链孢霉毒素同时污染的样品, 其中 80%(4 840/6 051)的阳性样品同时检出多种交链孢霉毒素。同时检出 2 种毒素的样品占

阳性样品的比例最高, 为 43%; 同时检出 3 种和同时检出 4 种毒素的样品占阳性样品的比例分别为 26% 和 11%。同时检出 4 种交链孢霉毒素占比最高的食品是番茄酱, 为 26%(80/302), 同时检出 3 种交链孢霉毒素占比最高的样品是小麦粉, 为 31% (960/3 050)。樱桃、菜籽油、番茄和车厘子未检出 4 种毒素同时污染的样品, 番茄和车厘子仅检出 2 种毒素同时污染的样品, 具体结果见图 1。

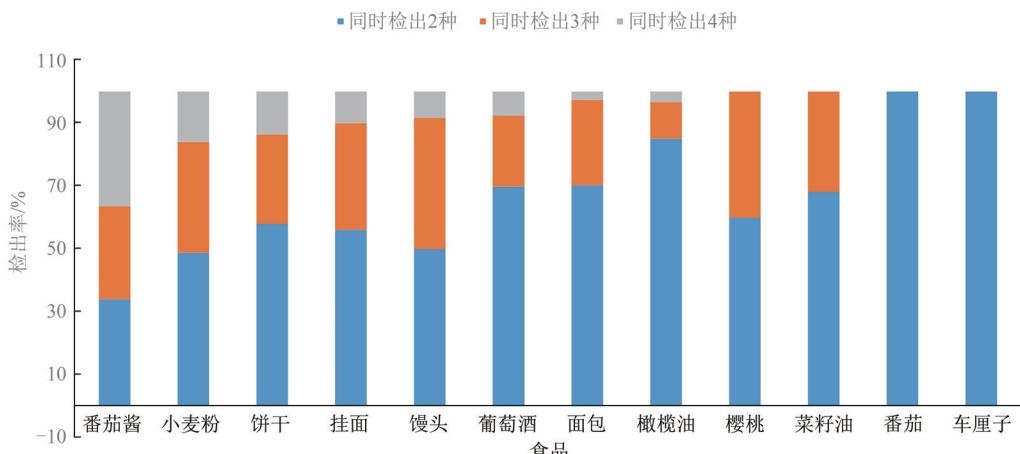


图1 各种食品中多种交链孢霉毒素共污染情况

Figure 1 Co-occurrence of multiple alternaria toxins in various foods

## 2.9 各类食物膳食中交链孢霉毒素暴露量及食物贡献率

本研究采用点评估法分别对 AOH、AME、TeA 和 TEN 的摄入量进行膳食暴露评估。我国居民不同食品平均消费量(g/d)如下:小麦粉及其制品<sup>[8]</sup>(238.8)、面包<sup>[9]</sup>(19.9)、饼干<sup>[9]</sup>(3.2);菜籽油(10.4)、橄榄油(0.3)、番茄(12.8)、番茄酱(0.1)、樱桃(0.045)和葡萄酒(0.3)来自国家食品安全风险评估中心开展2017—2020年中国居民食物消费状况调查研究项目。根据上述我国食物的平均

消费量和相应食物中 AOH、AME、TeA 和 TEN 的平均含量(表2~3),计算获得各类食物对全人群膳食中的暴露量(表4)。我国居民 AOH 的平均每日膳食摄入量为 3.67 ng/(kg·BW)(TTC 值的 1.47 倍),AME 为 4.39 ng/(kg·BW)(TTC 值的 1.76 倍),TeA 为 139 ng/(kg·BW)(TTC 值的 0.09 倍),TEN 为 25.1 ng/(kg·BW)(TTC 值的 0.02 倍)。对于具有基因毒性的 AOH 和 AME,长期低剂量暴露超过了其相应 TTC,对于没有基因毒性的 TeA 和 TEN,长期低剂量暴露未超过其相应 TTC。

表4 我国居民 AOH、AME、TeA 和 TEN 膳食平均暴露量/[ng/(kg·BW·d)]

Table 4 Estimated daily intake of AOH、AME、TeA and TEN of Chinese adults/[ng/(kg·BW·d)]

食品类别	EDI(LB~UB)			
	AOH	AME	TeA	TEN
小麦粉及制品	2.46~4.07	3.92~4.18	128~133	21.5~23.2
面包	0.134~0.286	0.182~0.206	4.09~4.13	1.36~1.371
饼干	0.039~0.061	0.061~0.064	1.338~1.343	0.303~0.305
菜籽油	0.004~0.09	0.029~0.042	0.832~0.849	0.164~0.173
橄榄油	0.002~0.004	0.013~0.013	0.001~0.003	0.001~0.001
番茄	0.002~0.108	0.001~0.022	0.011~0.116	0.003~0.023
番茄酱	0.014~0.015	0.004~0.004	0.175~0.175	0.003~0.003
樱桃(车厘子)	0.000~0.000	0.000~0.000	0.004~0.005	0.000~0.000
葡萄酒	0.003~0.005	0.005~0.005	0.161~0.167	0.027~0.029
合计	2.661~4.634	4.219~4.532	134.9~139.5	23.4~25.1

研究的各类食品中,AOH、AME、TeA 和 TEN 暴露贡献率最大的食品都是小麦粉及其制品(小麦粉、挂面、馒头、面包和饼干加和),其暴露量与总膳食暴露量之比为 91%~99%,贡献率远高于其他食品(表5)。

## 3 讨论

交链孢霉毒素主要污染小麦及其制品、番茄制品、水果及水果制品、油料种籽及植物油等人群消费量较大的食品。包括中国在内的许多国家(地区)<sup>[10~11]</sup>都有农作物和相关食品或加工品受到交链

表5 AOH、AME、TeA 和 TEN 膳食暴露各食品贡献率/%

Table 5 Contribution of dietary exposure to AOH、AME、TeA and TEN in various foods/%

食品类别	AOH	AME	TeA	TEN
小麦粉及制品(挂面、馒头、面包和饼干)	90.7	97.1	97.1	98.7
菜籽油		0.31	0.11	0.08
橄榄油		0.22	0.79	0.00
番茄		0.18	0.03	0.01
番茄酱		6.01	1.56	1.98
樱桃(车厘子)		1.21	0.20	0.53
葡萄酒		2.54	0.19	0.26

孢霉毒素污染的报道。阿根廷<sup>[12]</sup>小麦中交链孢霉毒素检出率为 100%,检出率远高于其他真菌毒素;

来自挪威<sup>[13]</sup>和加拿大<sup>[14]</sup>的谷物(小麦、大麦、燕麦和婴幼儿食品)的检测结果表明,AOH 和 AME 的污染率均超过了 80%;在中国,ZHAO 等<sup>[15]</sup>2013 年对我国小麦粉及其制品(挂面、馒头、面包)进行检测,181 份小麦粉样品中,TeA、AOH、TEN 和 AME 检出率依次为 99.4%、6.1%、97.2% 和 91.2%;52 份挂面样品中检出率依次为 96.2%、5.8%、88.5% 和 61.5%;50 份面包样品中,检出率依次为 98%、2%、82% 和 44%;40 份馒头样品中,检出率依次为 100%、0%、100% 和 72.5%。本研究中小麦粉、挂面、馒头和面包中 TeA、AOH、TEN 和 AME 总的污染趋势与 ZHAO 等<sup>[15]</sup>的结果基本一致,都是 TeA 的检出率和平均含量最高。有研究表明<sup>[16]</sup>,交链孢霉菌不是产生 TeA 的唯一来源,在高粱及其制品中检出水平较高的 Phoma 菌种和稻瘟病菌,同样也是产生 TeA 的源头,代谢产生途径广泛导致 TeA 在粮食中的污染情况严重,其在食品中的污染水平最高,常被用作判断交链孢霉侵染程度的重要指标。MÜLLER 和 KORN<sup>[17]</sup>以德国十年间新收小麦样品为研究对象,进行了交链孢霉毒素污染情况调查,结果发现 30.3% 样品 TeA 为阳性,各年份中 TeA 的最高含量达到了 4 224 μg/kg;在中国,XU 等<sup>[18]</sup>2015 年调查安徽省小麦中交链孢霉毒素也发现 TeA 的污染率为 100%,最高含量为 3 331 μg/kg,平均含量为 289 μg/kg。与谷物相比,含水量较高的水果蔬菜更容易污染链孢霉毒素,其中 TeA、AME 和 AOH 在番茄及其制品、水果及其制品等食品中检出率较高。番茄属于典型的呼吸跃变型果实,采后容易发生衰老,在生产、储藏、加工过程中极易受到交链孢菌等真菌病原的污染而腐烂变质。由于交链孢霉毒素会从腐烂病斑处向未腐烂部分渗透扩散,并在储存及加工过程中长期存在,番茄酱和番茄汁等番茄制品的工业生产过程中仅仅通过去除腐烂部位并不能有效控制或消除交链孢霉毒素,尤其是 TeA。意大利<sup>[19]</sup>番茄制品的 TeA 含量高达 425~81 592 μg/kg,中国<sup>[20]</sup>市售番茄酱 TeA 的检出率为 100%,最大值 1 787 μg/kg,巴西<sup>[21]</sup>和阿根廷<sup>[22]</sup>番茄制品中均是 TeA 的检出率最高,最大含量值达 4.0 mg/kg。

鉴于交链孢霉毒素的毒性及污染食品的广泛性,2011 年 EFSA<sup>[6]</sup>开展了食品中交链孢霉毒素对人类健康影响的风险评估工作,结果表明,一般人群平均每日暴露 AOH 为 1.9~39 ng/(kg·BW)AME 为 0.8~4.7 ng/(kg·BW),TeA 为 36~141 ng/(kg·BW),TEN 为 0.01~7 ng/(kg·BW·d)。HICKERT 等<sup>[23]</sup>对德国市场食品(番茄制品、烘焙产品等共 96 份样品)进行的风险评估结果显示,AOH、AME、TeA 和

TEN 的平均每日暴露为 TTC 的 1 400%、280%、30% 和 1.4%;ZHAO 等<sup>[15]</sup>对我国市售的小麦粉及其制品中交链孢霉毒素的暴露评估结果表明,我国居民 AOH 平均每日暴露为 3.56~24.0 ng/(kg·BW·d),为 TTC 值 1 400%~9 600%,AME、TEN 和 TeA 的平均每日暴露量分别为 6.09 ng/(kg·BW)、54.5 ng/(kg·BW·d) 和 175 ng/(kg·BW·d),为对应 TTC 值的 2 436%、3.8% 和 11.7%。本研究和上述国内外研究结果基本一致,我国居民膳食中 TeA 和 TEN 平均暴露量未超过其对应的 TTC 值,AOH 和 AME 平均暴露量超过其对应的 TTC 值,需关注其慢性毒性风险。本研究基于 9 类食品中交链孢霉毒素的污染状况,采用 TTC 值用点评估法进行风险评估,由于 TTC 值是高度保守的筛选性评估,待毒理学资料完善后需进一步开展评估。

小麦粉及其制品作为我国居民重要主食,消费量大且交链孢霉毒素污染普遍,暴露贡献率超过 90%,远高于其他食物。因此,一方面需加强小麦及其制品中交链孢霉毒素的防控工作,另一方面建议居民主食多样化,适当减少小麦粉及其制品的摄入,可用稻谷和玉米等交链孢霉毒素水平较低的主食代替一部分的小麦类主食,降低交链孢霉毒素的暴露水平。此外,尽管因我国居民番茄酱的消费量不高,其对居民膳食中交链孢霉毒素暴露总的贡献不大,但番茄酱中的交链孢霉毒素污染状况应予以重视。本研究结果表明番茄的交链孢霉毒素污染并不高,但番茄酱的污染却相当普遍,这一现象提示有必要加强番茄酱的生产加工过程质控管理,开展溯源分析,控制污染源。

本研究存在一定的不确定性。首先,交链孢菌普遍存在于土壤、壁纸、纺织品甚至空气中<sup>[2]</sup>,苹果、橘子、柠檬<sup>[24]</sup>和红枣<sup>[25]</sup>等食品中也有检出,本研究仅考虑所研究食品的暴露量,未考虑由空气、皮肤和其他膳食等途径交链孢霉毒素的暴露量或累积暴露,某种程度上低估了人群的暴露量。其次,SCHWARZ 等<sup>[26]</sup>研究发现 AOH、AME 和 TeA 混合物在细胞中对 DNA 的损伤要远大于同浓度的单一毒素,表明各毒素之间可能产生协同作用从而增加了毒性。本研究结果显示,多毒素共污染普遍存在,80% 以上的阳性样品同时检出 2 种及以上的交链孢霉毒素,番茄酱阳性样品同时检出 4 种毒素的样品达 26%,小麦粉同时检出 3 种毒素的样品达 31%,而暴露评估仅仅是针对单一毒素开展,未考虑毒素之间存在的毒性协同效应,可能低估了健康风险。

## 参考文献

- [1] POLLOCK G A, DISABATINO C E, HEIMSCH R C, et al. The subchronic toxicity and teratogenicity of alternariol monomethyl ether produced by *Alternaria solani* [J]. *Food and Chemical Toxicology*, 1982, 20(6): 899-902.
- [2] BATTILANI P, COSTA L G, DOSSENA A, et al. Scientific information on mycotoxins and natural plant toxicants [J]. *EFSA Supporting Publications*, 2009, 6(9): 1-467.
- [3] 杨玉莲, 周鸿媛, 刘虫虫, 等. 典型链格孢霉毒素的污染现状与毒理学性质研究进展 [J]. 中国食品学报, 2023, 23(3): 376-389.
- YANG Y L, ZHOU H Y, LIU C C, et al. Advanced progress in contamination status and toxicological properties of typical alternaria toxins [J]. *Journal of Chinese Institute of Food Science and Technology* 2023, 23(3): 376-389.
- [4] OSTRY V. *Alternaria mycotoxins: An overview of chemical characterization, producers, toxicity, analysis and occurrence in foodstuffs* [J]. *World Mycotoxin Journal*, 2008, 1(2): 175-188.
- [5] LOGRIECO A, MORETTI A, SOLFRIZZO M, et al. *Alternaria toxins and plant diseases: an overview of origin, occurrence and risks* [J]. *World Mycotoxin Journal*, 2009, 2(2): 129-140.
- [6] EFSA Panel on Contaminants in the Food Chain CONTAM. Scientific opinion on the risks for animal and public health related to the presence of *Alternaria* toxins in feed and food [J]. *EFSA Journal*, 2011, 9(10): 2407-2504.
- [7] 国家食品安全风险评估中心. 2018年国家食品污染物和有害因素风险监测工作手册(食品中交链孢霉毒素测定的标准操作程序) [M]. 北京: 国家食品安全风险评估中心, 2018.
- [8] SUN J F, WU Y N. Evaluation of dietary exposure to deoxynivalenol (DON) and its derivatives from cereals in China [J]. *Food Control*, 2016, 69: 90-99.
- [9] 李建文, 刘爱东, 张磊, 等. 北京及广州3岁以上居民焙烤食品中反式脂肪酸摄入量评估 [J]. 中国药理学与毒理学杂志, 2014, 28(2): 283-288.
- LI J W, LIU A D, ZHANG L, et al. Assessment of trans-fatty acids intake via bakery food among above three-year-old population in Beijing and Guangzhou city [J]. *Chinese Journal of Pharmacology and Toxicology* 2014, 28(2): 283-288.
- [10] SOLFRIZZO M. Recent advances on *Alternaria* mycotoxins [J]. *Current Opinion in Food Science*, 2017, 17: 57-61.
- [11] LI F, YOSHIZAWA T. *Alternaria* mycotoxins in weathered wheat from China [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2000, 48(7): 2920-2924.
- [12] AZCARATE M P, PATRIARCA A, TERMINIELLO L, et al. *Alternaria* toxins in wheat during the 2004 to 2005 Argentinean harvest [J]. *Journal of Food Protection*, 2008, 71(6): 1262-1265.
- [13] UHLIG S, ERIKSEN G S, HOFGAARD I S, et al. Faces of a changing climate: semi-quantitative multymycotoxin analysis of grain grown in exceptional climatic conditions in Norway [J]. *Toxins*, 2013, 5(10): 1682-1697.
- [14] SCOTT P M, ZHAO W, FENG S, et al. *Alternaria* toxins alternariol and alternariol monomethyl ether in grain foods in Canada [J]. *Mycotoxin Res*, 2012, 28(4): 261-266.
- [15] ZHAO K, SHAO B, YANG D, et al. Natural occurrence of *Alternaria* toxins in wheat-based products and their dietary exposure in China [J]. *PLoS One*, 2015, 10(6): e0132019.
- [16] OLIVEIRA R C, GONCALVES S S, OLIVEIRA M S, et al. Natural occurrence of tenuazonic acid and *Phoma* sorghina in Brazilian sorghum grains at different maturity stages [J]. *Food Chem*, 2017, 230: 491-496.
- [17] MÜLLER M E H, KORN U. *Alternaria* mycotoxins in wheat—a 10 years survey in the Northeast of Germany [J]. *Food Control*, 2013, 34(1): 191-197.
- [18] XU W, HAN X, LI F, et al. Natural occurrence of *Alternaria* toxins in the 2015 wheat from Anhui Province, China [J]. *Toxins*, 2016, 8(11): 308-321.
- [19] SANZANIS M, GALLONE T, GARGANESE F, et al. Contamination of fresh and dried tomato by *Alternaria* toxins in southern Italy [J]. *Food Addit Contam Part A Chem Anal Control Expo Risk Assess*, 2019, 36(5): 789-799.
- [20] ZHAO K, SHAO B, YANG D, et al. Natural occurrence of four *Alternaria* mycotoxins in tomato-and citrus-based foods in China [J]. *Agric Food Chem*, 2015, 63: 343-348.
- [21] Motta S D, Valente Soares L M. Survey of Brazilian tomato products for alternariol, alternariol monomethyl ether, tenuazonic acid and cyclopiazonic acid [J]. *Food Additives & Contaminants*, 2001, 18(7): 630-634.
- [22] TERMINIELLO L, PATRIARCA A, POSE G, et al. Occurrence of alternariol, alternariol monomethyl ether and tenuazonic acid in Argentinean tomato puree [J]. *Mycotoxin Research*, 2006, 22(4): 236-240.
- [23] HICKERT S, BERGMANN M, ERSEN S, et al. Survey of *Alternaria*, toxin contamination in food from the German market, using a rapid HPLC-MS/MS approach [J]. *Mycotoxin Research*, 2016, 32(1): 1-12.
- [24] STINSON E E, OSMAN S F, HEISLER E G, et al. Mycotoxin production in whole tomatoes, apples, oranges, and lemons [J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 1981, 29(4): 790-792.
- [25] 程家兴, 黎明阳, 杨雨希, 等. 红枣中4种链格孢菌毒素的检测及风险评估 [J]. 分析测试学报, 2018, 37(11): 1334-1338.
- CHENG J X, LI M Y, YANG Y X, et al. Determination and risk assessment of four *alternaria* mycotoxins in jujube [J]. *Journal of Instrumental Analysis* 2018, 37(11): 1334-1338.
- [26] SCHWARZ C, KREUTZER M, MARKO D. Minor contribution of alternariol, alternariol monomethyl ether and tenuazonic acid to the genotoxic properties of extracts from *Alternaria alternata* infested rice [J]. *Toxicology Letters*, 2012, 214(1): 46-52.