

调查研究

2016—2017年河南省小麦粉中4种交链孢毒素污染情况调查

卢素格,张榕杰,马青青,翟志雷,张二鹏

(河南省疾病预防控制中心,河南 郑州 450016)

摘要:目的 了解2016—2017年河南省市售小麦粉中4种交链孢毒素的污染情况。方法 采集2016—2017年河南省粮食主产区中9个地市的182份小麦粉样品,按照《国家食品污染和有害因素风险监测工作手册》方法进行检测,对检测数据采用卡方检验和相关性分析进行统计学分析。结果 9个地区的182份小麦粉样品中均检出4种交链孢毒素,其中交链孢酚(AOH)检出范围为0.50~14.21 μg/kg,检出率为10.4%(19/182);交链孢酚单甲醚(AME)检出范围为0.05~38.73 μg/kg,检出率为42.9%(78/182);交链孢菌酮酸(TeA)检出范围为0.50~134.23 μg/kg,检出率为91.2%(166/182);腾毒素(TEN)检出范围为0.05~17.42 μg/kg,检出率为45.6%(83/182)。结论 河南省省内流通环节(农贸市场和商店)小麦粉中均存在交链孢毒素的污染,但污染水平与文献报道相比,处于较低水平。

关键词:交链孢毒素;霉菌毒素;食品污染物;小麦粉;超高效液相色谱-三重四级杆串联质谱;河南

中图分类号:R155 **文献标志码:**A **文章编号:**1004-8456(2018)06-0612-04

DOI:10.13590/j.cjfh.2018.06.012

Investigation on contamination of 4 alternaria toxins in wheat flour in Henan Province in 2016-2017

LU Suge, ZHANG Rongjie, MA Qingqing, ZHAI Zhilei, ZHANG Erpeng

(Henan Center for Disease Control and Prevention, Henan Zhengzhou 450016, China)

Abstract: Objective To understand the contamination of 4 alternaria toxins in wheat flour sold in Henan Province in 2016-2017. **Methods** Totally 182 wheat flour samples were collected from 9 cities in the main grain producing areas of Henan Province from 2016 to 2017. The samples were detected with national handbook for monitoring food contamination and hazardous factors. The data were analyzed by chi-square test and correlation analysis. **Results** Among the 182 samples of wheat flour in 9 regions, 4 kinds of alternaria toxins were all detected. The detection rate of alternariol (AOH) was 10.4% (19/182) with concentration range from 0.50 to 14.21 μg/kg; the detection rate of alternariol methyl ether (AME) was 42.9% (78/182) with concentration range from 0.05 to 38.73 μg/kg; the detection rate of tenuazonic acid (TeA) was 91.2% (166/182) with concentration range from 0.50 to 134.23 μg/kg and the detection rate of tentoxin (TEN) was 45.6% (83/182) with concentration range from 0.05 to 17.42 μg/kg. **Conclusion** The contamination of the alternaria toxins of wheat flour in the circulation link (farm trade market and store) was exit in Henan Province, but the level of contamination was lower than reported in the literature.

Key words: Alternaria toxin; mycotoxin; food contaminants; wheat flour; ultra-high performance liquid chromatography-triple four-stage tandem mass spectrometry; Henan

交链孢毒素是由交链孢霉产生的一类有毒代谢产物,交链孢霉广泛分布于自然界,具有腐生和植物致病性,最常污染小麦、高粱、大麦、葵花籽、油菜籽、番茄、苹果、柑橘类和橄榄等。由于该菌能在

低温下生长,因此也是造成冷藏条件下贮存和运输的食品发生腐败变质的重要原因。小麦中污染的交链孢霉种类繁多,以互隔交链孢霉最常见,且互隔链格孢是链格孢属中产毒能力最强的。在美国,互隔链格孢是污染小麦、大麦和黑麦的主要链格孢,其检出率分别高达74.6%、85.3%和71.8%,此外还检出了其他7种链格孢,且检出的8种链格孢均可产生链格孢毒素^[1]。LOGRIECO等^[2]的研究显示,互隔链格孢和小麦链格孢是污染地中海国家大麦、小麦、大米和燕麦等农作物的优势链格孢。

收稿日期:2018-10-30

基金项目:河南省科技厅项目(172102310339)

作者简介:卢素格 女 主管技师 研究方向为食品及食品安全风险监测 E-mail:lusuge@sina.com.cn

通信作者:张榕杰 男 主任技师 研究方向为食品及食品安全风险监测 E-mail:13903868287@163.com

我国王吉瑛^[3]研究仓储粮食中常见真菌时发现,新收小麦中微生物菌主要是交链孢菌。大多数交链孢毒素的急性毒性较低,但交链孢酚(AOH)和交链孢酚单甲醚(AME)却具有遗传毒性^[4]和致突变性^[5],是河南省林县地区食道癌高发的潜在因素之一^[6-7]。目前研究较多的 3 种主要链格孢毒素为 AOH、AME 和交链孢菌酮酸(TeA),但 TeA 比 AOH 和 AME 的毒性大,且具有急性毒性作用^[8],TeA 是唯一被美国国家职业安全与卫生研究所列入有毒化学物质登记册中的链格孢毒素。虽然能产生该毒素的链格孢菌株检出率低,但产毒能力相当强,其毒素水平居各种链格孢毒素之首。由于 TeA 的生物学活性多样,因此是链格孢毒素中被研究最多、对哺乳动物毒性最大的一种毒素。目前,国内外尚无交链孢毒素限量标准,为了解河南省流通环节小麦粉中交链孢毒素污染情况,同时也为监管部门制定政策及国家卫生标准限值提供理论及数据支持,本研究选择了河南省有代表性的 9 个地市作为采样点,初步调查了 2016—2017 年河南省小麦粉中 4 种交链孢毒素污染情况。

1 材料与方法

1.1 样品采集

本次采样根据河南省所辖市的不同地域特点,选择有代表性的 9 个地市作为监测采样点,包括濮阳市、新乡市、郑州市、洛阳市、许昌市、漯河市、周口市、驻马店市和南阳市。样品为当地自产且是居民主要食用品牌的小麦粉,共 182 份,其中 2016 年

为 90 份,2017 年为 92 份;主要针对流通环节的农贸市场(76 份)和商店(超市、便利店和专营店,106 份),包装类型有定型(98 份)和散装(84 份)。

1.2 方法

样品采集后交由检测能力较强的实验室集中检测,样品处理及检测方法参照《国家食品污染和有害因素风险监测工作手册》^[9]中小麦粉中交链孢毒素标准操作程序进行,检测项目包括 AME、AOH、TeA 和腾毒素(TEN)。为保证检测数据准确可靠,实验室在样品进行检验之前,首先进行方法学考查,对样品提取过程、色谱分离及质谱参数进行优化,以期得到更好的回收率及分离度。在样品检测过程中进行实验室内部及实验室间质量控制,并同时平行样品检测、阳性样品复测、样品加标回收试验及盲样考核等措施,以确保检测结果准确可靠。

1.3 统计学分析

采用卡方检验和相关性分析对检测数据进行统计学分析,统计分析软件为 SAS 9.2,以 $P < 0.05$ 为差异有统计学意义。

2 结果

2.1 2016—2017 年河南省小麦粉中 4 种交链孢毒素检测结果

由于目前国内外尚无交链孢毒素限量标准,本研究只统计检出率,不统计超标率。2016—2017 年河南省 9 个地市共检测小麦粉样品 182 份,4 种交链孢毒素具体检测结果见表 1。

表 1 2016—2017 年小麦粉中 4 种交链孢毒素检测结果

Table 1 Detection result of four alternaria toxins in wheat flour in 2016-2017

污染物	2016 年($n=90$)			2017 年($n=92$)		
	含量范围/($\mu\text{g}/\text{kg}$)	中位数/($\mu\text{g}/\text{kg}$)	检出份数(%)	含量范围/($\mu\text{g}/\text{kg}$)	中位数/($\mu\text{g}/\text{kg}$)	检出份数(%)
AOH	0.50 ~ 14.21	0.50	16(17.8)	0.50 ~ 11.05	0.50	3(3.3)
AME	0.05 ~ 38.73	2.42	70(77.8)	0.05 ~ 6.60	0.05	8(8.7)
TeA	0.50 ~ 134.23	6.26	76(84.4)	0.50 ~ 18.85	5.29	90(97.8)
TEN	0.05 ~ 17.42	2.11	76(84.4)	0.05 ~ 2.60	0.05	7(7.6)

注:计算中位数时,对于未检出的样品按检出限的一半计算

在 2016—2017 年抽检的小麦粉样品中,4 种交链孢毒素均有检出,且 TeA 在所有检出的交链孢毒素中,其检出含量及检出率均较高。利用卡方检验对 2016 和 2017 年小麦粉中 4 种交链孢毒素的检出率进行统计发现,2016 年小麦粉中 TEN、AME 和 AOH 的检出率均高于 2017 年,差异均有统计学意义($\chi^2 = 111.2227, P < 0.05$; $\chi^2 = 91.2490, P < 0.05$; $\chi^2 = 10.2544, P < 0.05$),2016 年 TeA 的检出率低于 2017 年,差异有统计学意义($\chi^2 = 9.0578, P < 0.05$)。2016 和 2017 年 4 种交链孢毒素的中位

数分别为 $\text{TeA} > \text{AME} > \text{TEN} > \text{AOH}$ 和 $\text{TeA} > \text{AOH} > \text{AME} = \text{TEN}$ 。由此可见,TeA 为最主要的污染物,其次是 AME 和 TEN, AOH 检出率和污染水平最低。2016—2017 年共有 166 份小麦粉样品检出 TeA,占样品总数的 91.2% (166/182),其污染水平为 0.50 ~ 134.23 $\mu\text{g}/\text{kg}$,最大值对应的样品为驻马店市的散装小麦粉。

2016 年 4 种交链孢毒素相关性分析显示, TEN 和 TeA 相关系数为 0.94, TEN 和 AME 相关系数为 0.81, TeA 和 AME 相关系数为 0.77, 差异均有统计

学意义($P < 0.05$),3种交链孢毒素之间均表现出较强的相关性。AOH与TEN、TeA和AME相关系数分别为0.39、0.40、0.55,差异均有统计学意义($P < 0.05$),表现出弱相关,这可能与AOH检出率低有关。

2.2 不同包装类型小麦粉中交链孢毒素的检测结果

本研究主要采集了散装和定型2种包装类型,散装样品中AOH、AME、TeA和TEN的检出率分别为10.7%(9/84)、40.5%(34/84)、94.0%(79/84)和44.0%(37/84),定型包装样品的检出率分别为10.2%(10/98)、46.9%(46/98)、89.8%(88/98)和48.0%(47/98)。

2.3 不同采样地点小麦粉中交链孢毒素的检测结果

农贸市场采集的样品中,AOH、AME、TeA和TEN的检出率分别为13.2%(10/76)、46.1%(35/76)、92.1%(70/76)和48.7%(37/76),商店采集样品的检出率分别为7.5%(8/106)、41.5%(44/106)、91.5%(97/106)和43.4%(46/106)。

3 讨论

河南省小麦收割时间自南向北大多集中在每年5~6月。2016年河南省小麦收割季多为阴雨寡照天气,这种气候条件有助于交链孢毒素的形成,2017年河南省小麦收割季多为晴朗天气。由检测结果可看出,2016年小麦粉中4种交链孢毒素检出率较高,而2017年检出率较低,TeA是最主要的污染物,但4种交链孢毒素的检出浓度及检出率普遍低于文献报道的结果^[10-11]。澳大利亚^[12]和我国^[13]的研究结果均显示,互隔链格孢是田间因气候因素导致小麦和高粱霉变的优势链格孢,同时从霉变粮食中检出高水平的相关毒素,其中以从中国小麦中分离到的互隔链格孢的产毒水平最高。1998年,北京郊区因小麦抽穗扬花至灌浆成熟期间出现了历史上罕见的阴雨寡照高温高湿天气,这种特殊的气候条件有利于霉菌对小麦的侵染,优势菌为链格孢,平均检出率为87.3%,其中又以互隔链格孢为主,毒素分析结果显示,TeA是污染该批小麦的主要链格孢毒素^[13]。

由于2017年小麦粉中除TeA外,其他3种交链孢毒素检出率普遍较低,对于未检出的结果以检出限的1/2进行统计和相关性分析时,得出的结果对整体分析意义不大,故本研究仅对2016年小麦粉中交链孢毒素检测结果进行相关性分析。对2016年小麦粉中4种交链孢毒素的统计分析发现,TeA与

AME和TEN进行相关性分析时,表现出强相关,由于AOH在2016年的检出率较低,故与其他3种交链孢毒素之间表现出弱相关。由此可以得出,TeA是被交链孢毒素污染的小麦粉中最主要的链格孢毒素,在条件有限的情况下,需要调查小麦粉中交链孢毒素的污染时,可只检测小麦粉中TeA的污染情况。

本研究分析了不同包装类型和不同采样地点对小麦粉中4种交链孢毒素检出结果的影响,结果显示,不同包装类型和不同采样地点对小麦粉中4种交链孢毒素的检测结果影响不大。由此可以看出,能引起小麦粉中4种交链孢毒素含量变化的最主要因素是天气,这也与文献报道^[13]相符合。

2016和2017年的检测由不同单位承担,由于均是初次检测,在一定程度上影响检测人员对异常数据的敏感性。本次抽查样品数量有限,监测点只选择了一部分省辖市,故检测结果只能作为河南省小麦粉中交链孢毒素污染情况调查的初步结论,不足以说明河南省小麦粉中交链孢毒素的整体污染水平,为了解河南省小麦粉中交链孢毒素的整体污染水平,还需要加大采样量及采样点的分布,通过大量的检测数据和统计学分析,得出TeA与其他交链孢毒素的相关系数,以通过调查小麦粉中TeA的污染情况,得出其他交链孢毒素的污染情况。

参考文献

- [1] BRUCE V R, STACK M E, MISLIVEC P B. Incidence of toxic alternaria species in small grains from the USA[J]. *J of Food Science*, 1984, 49(6):1626-1627.
- [2] LOGRIECO A, BOTTALICO A, SOLFRIZZO M, et al. Incidence of alternaria species in grains from mediterranean countries and their ability to produce mycotoxins[J]. *Mycologia*, 1990, 82(4):501-505.
- [3] 王吉瑛. 甘肃仓储粮食中的常见真菌[J]. *兰州大学学报(自然科学版)*, 1992, 28(3):140-144.
- [4] PFEIFFER E, ESCHBACH S, METZLER M. Alternaria toxins: DNA strand-breaking activity in mammalian cells in vitro[J]. *Mycotoxin Res*, 2007, 23(3):152-157.
- [5] BRUGGER E M, WANGER J, SCHUMACHER D M, et al. Mutagenicity of the mycotoxin alternariol in cultured mammalian cells[J]. *Toxicol Lett*, 2006, 164(3):221-230.
- [6] 杨胜利,董子明,裴留成,等. 河南林县居民粮食中互隔交链孢霉及其毒素污染和人群暴露状况研究[J]. *癌变·畸变·突变*, 2007, 19(1):44-46.
- [7] 张鹏,刘桂亭. 交链孢霉代谢产物的致畸致突变致癌作用[J]. *微生物学杂志*, 1989, 9(2):49-51.
- [8] 杨欣. 链格孢霉毒素研究进展[J]. *国外医学卫生学分册*, 2000, 27(3):182-186.
- [9] 国家食品安全风险评估中心. 国家食品污染和有害因素风险监测工作手册[Z]. 2016.

- [10] 陈蓓,吉文亮,朱峰,等. 江苏省内小麦粉中4种交链孢毒素污染情况调查[J]. 中国公共卫生,2018,34(3):393-395. Australian harvest [J]. Aust J Agric Res, 1997, 48(8): 1249-1255.
- [11] 赵凯. 食品中交链孢毒素污染、生物利用及风险评估研究[D]. 北京:中国疾病预防控制中心,2015. [13] LI F Q, TOYAZAKI N, YOSHIZAWA T. Production of alternaria mycotoxins by alternaria alternata isolated from weather-damaged wheat [J]. J of Food Protection, 2001, 64(4): 576-580.
- [12] WEBLEY D J, JACKSON K L, MULLINS J D, et al. Alternaria toxins in weather damaged wheat and sorghum in the 1995-1996

调查研究

2017年我国沙门菌定性检验及血清学分型质量控制考核结果研判

胡豫杰¹,刘畅²,徐进¹,王美美¹,李志刚¹,余东敏¹,赵熙¹,张宏元¹,韩春卉¹,张靖¹,
李燕俊¹,李业鹏¹,裴晓燕¹,李宁¹,李凤琴¹

(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. 北京农学院食品科学与工程学院,北京 102206)

摘要:目的 评估我国食品安全风险监测体系各检验机构(简称检验机构)食源性沙门菌的定性检测能力,并全面了解各级检验机构实验室沙门菌血清学分型能力概况,确保沙门菌检验结果准确可靠,提升监测质量。方法 批量制备菌球样品(含6种我国常见血清型沙门菌和阴性对照)和样品基质,经稳定性等测试后发放至435家检验机构进行考核,使用点分数法对上报结果进行评价,Pearson卡方检验进行率的比较。结果 431家检验机构上报检验结果,初测所有指标完全正确率为72.6%(313/431),总体满意率为92.6%(399/431),结果不满意的主要类别为阴性样品假阳性(7.4%,32/431),区县级检验机构满意率(80.0%,52/65)低于省级(100.0%,32/32)和地市级(94.3%,315/334)。血清学分型考核完全正确比例为80.7%(348/431),不同级别检验机构间血清群正确率差异无统计学意义($P>0.05$),但地市级检验机构血清型正确率低于省级甚至区县级。结论 本次考核提示各级检验机构的沙门菌定性检验能力基本能够满足监测任务需求,但部分实验室仍需要加强质量控制以提升沙门菌检验水平,省级以下实验室血清型鉴定水平仍需进一步提高,本次质量控制考核为开展针对性的监测培训提供了数据支持。

关键词:食品安全; 风险监测; 质量控制; 考核; 沙门菌; 定性检验; 血清学分型; 检验机构

中图分类号:R155 文献标志码:A 文章编号:1004-8456(2018)06-0615-07

DOI:10.13590/j.cjfh.2018.06.013

Analysis on quality control assessment results of *Salmonella* qualitative detection and serotyping in China, 2017

HU Yujie¹, LIU Chang², XU Jin¹, WANG Meimei¹, LI Zhigang¹, YU Dongmin¹,
ZHAO Xi¹, ZHANG Hongyuan¹, HAN Chunhui¹, ZHANG Jing¹, LI Yanjun¹,
LI Yepeng¹, PEI Xiaoyan¹, LI Ning¹, LI Fengqin¹

(1. NHC Key Laboratory of Food Safety Risk Assessment, China National Center for Food Safety Risk Assessment, Beijing 100021, China; 2. Food Science and Engineering College, Beijing University of Agriculture, Beijing 102206, China)

Abstract: Objective A quality control assessment was conducted to assess the *Salmonella* qualitative detection capability of responsible unit in inspection institutions of food safety risk monitoring system in China, and to fully understand *Salmonella* serotyping ability of monitoring laboratories at different level, in order to guarantee reliable

收稿日期:2018-10-28

基金项目:国家食品安全风险评估中心高层次人才队伍建设“523”项目

作者简介:胡豫杰 男 助理研究员 研究方向为食源性沙门菌 E-mail:huyujie@cfsa.net.cn

通信作者:李凤琴 女 研究员 研究方向为食品微生物 E-mail:lifengqin@cfsa.net.cn