

调查研究

2023年河南省小麦及其制品中交链孢毒素抽查复检结果分析与评价方法建立

张洁, 翟志雷, 张秀丽, 马青青, 王谢, 苏永恒
(河南省疾病预防控制中心, 河南 郑州 450016)

摘要:目的 分析 2023 年河南省小麦及其制品中 4 种交链孢毒素监测的复检结果, 建立简单的质量评价方法。方法 国家常规及省专项应急项目共抽检省内 15 个地市的小麦及其制品 51 份。利用液相色谱-串联质谱内标法同时对样品中交链孢菌酮酸(TeA)、T-2 毒素(TEN)、交链孢酚(AOH)、交链孢酚单甲醚(AME)进行复测, 对两次检测结果的相对偏差(RD)进行归类统计分析, 评价不同检测机构及检测项目的检测情况。**结果** 省疾控实验室在控制数据变异性方面表现较好, 60.4%RD 数据点在 30% 以内, 专项实验室次之, 9 个地市实验室最低; 4 个检测项目中 TeA 和 TEN 灵敏度高, 响应好, 比较稳定, 64.7% 的 RD 数据点在 30% 以内, AOH 和 AME 相对较差; 结果数值的数量级越高, 检测结果的一致性和可靠性越佳。**结论** RD 分层表示检测数据良好度可以反映检测过程的一致性和准确性, 以及检测项目的质量控制水平。通过分析不同检测项目的 RD, 可以有效地识别检测质量, 大部分样品的检测结果具有较高的一致性, 表明检测机构整体表现良好, 某些检测项目或地区存在较高的 RD, 需要更多的关注或改进, 进一步调查原因, 并采取相应的措施来减少变异性, 为后续的质量控制提供依据。

关键词: 小麦; 交链孢毒素; 复检; 结果; 分析

中图分类号: R155 文献标识码: A 文章编号: 1004-8456(2025)01-0055-05

DOI: 10.13590/j.cjfh.2025.01.008

Analysis and invaluation method establishment of aflatoxin re-inspection results in wheat and its products in He'nan Province in 2023

ZHANG Jie, ZHAI Zhilei, ZHANG Xiuli, MA Qingqing, WANG Xie, SU Yongheng
(He'nan Provincial Center for Disease Control and Prevention, He'nan Zhengzhou 450016, China)

Abstract: Objective To analyze the re-inspection results of 4 types of aflatoxins in wheat and its products inspected in He'nan Province in 2023, a simple evaluation method was attempted to establish. **Methods** A total of 51 samples of wheat and its products were sampled from 15 cities within the province for national routine and provincial emergency monitoring projects. Simultaneous retesting of aflatoxin tricothecene A (TeA), T-2 toxin (TEN), ochratoxin A (AOH) and ochratoxin A methyl ester (AME) in the sample was conducted using liquid chromatography-tandem mass spectrometry with internal standard method. The relative deviation (RD) between the two detection results was classified and statistically analyzed to evaluate the detection performance of different detection institutions and projects. **Results** The provincial disease control laboratory showed better performance in controlling data variability, with 60.4% of RD data points within 30%, followed by the special project laboratory and the nine prefecture-level city laboratories showed the lowest performance. Among the four detection projects, TeA and TEN showed high sensitivity and good response, with 64.7% of RD data points within 30%, while AOH and AME showed relatively poor performance. The higher the order of magnitude of the result value, the better the consistency and reliability of the detection results. **Conclusion** The stratification of RD indicates the quality of detection data, reflecting the consistency and accuracy of the detection process and the level of quality control of the detection projects. By analyzing the RD of different detection projects, the detection quality can be effectively identified. Most of the detection results of the samples have high consistency, indicating that the detection institutions have performed well overall. However, some detection projects or areas have higher relative deviations,

收稿日期: 2024-07-19

基金项目: 河南省医学科技攻关计划联合共建项目(LHGJ20240613; LHGJ20240621)

作者简介: 张洁 女 副主任技师 研究方向为食品安全风险监测 E-mail: yuli2009@163.com

通信作者: 翟志雷 男 副主任技师 研究方向为食品安全风险监测 E-mail: H52462673@163.com

requiring more attention and improvement. Further investigation of the causes and adoption of corresponding measures to reduce variability is needed to provide a basis for subsequent quality control.

Key words: Wheat; aflatoxins; re-inspection; results; analysis

食品安全风险监测是一项复杂而艰巨的任务,监测数据的质量对于制定有效的监管措施和保障公众健康至关重要。复检是提升数据质量的一种关键手段,尤其是对初步检测结果为阳性的样品进行复检,可以避免因假阳性而导致的误判^[1-2]。然而,仅依赖阳性样品复检无法全面反映监测数据的整体质量,会限制数据的广泛利用和对整体评估风险的准确性。随机抽样复检可以作为一种补充方法,提供对监测数据质量的全面评估,及时发现风险因素并进行整改。目前随机抽样复检尚未被广泛采用^[3],这主要是由于几个原因。首先,随机抽样复检需要额外的资源和成本。其次,实施随机抽样复检面临着技术和管理上的挑战。此外,对复检结果的准确解读和有效应用需要精细和专业的分析能力。尽管存在这些挑战,但随着技术的发展和监管体系的不断完善,随机抽样复检有望成为提升食品安全风险监测数据质量的重要工具,为食品安全监管提供更加全面和可靠的数据支持。

2023年5月底,河南省遭遇了大范围的持续阴雨天气,导致部分地区麦田积水,小麦出现点片倒伏和发霉现象。鉴于河南省作为中国主要的小麦生产区,小麦及其制品的质量和状况引起了广泛关注。为了真实掌握小麦及其制品中交链孢毒素的污染现状,本机构按照国家和省监测任务要求,对省内小麦及其制品进行了系统地检测和分析,并对部分样品进行了随机抽查复检。

本文旨在探索并制定一套科学合理、操作性强的评价方法,以适应不同检测项目的需求,并为食品安全风险监测工作提供坚实的支撑^[4]。通过对复检结果的归类统计分析,采用相对偏差(Relative deviation, RD)作为量化度量,以显示数据点相对于平均值的离散程度。RD分层作为一种多维度的评估工具,不仅可以帮助识别检测过程中变异性的来源,如样品制备、仪器性能、操作者技巧等,而且可以反映检测过程的质量,并指导如何提高检测项目的性能精密度和可靠性。因此,检测机构应对存在问题的样品进行深入分析,并考虑优化检测流程和方法,以提高检测的准确性和一致性。

1 材料和方法

1.1 样品采集

2023年河南省共检测小麦及其制品中交链孢

毒素1202份,其中国家常规500份,省应急专项检测702份。国家常规项目由9个地市实验室独立完成初检310份,省疾控实验室独立完成190份,省专项应急项目均由专项实验室完成。本次共抽检样品51份,包含小麦和小麦粉,分别为省内的15个地市留样供复检的样品,由省疾控实验室检测。

1.2 检验方法

样品均参照检测方法《国家食品污染和有害因素风险监测工作手册》中食品中交链孢毒素测定的程序-同位素稀释液相色谱-串联质谱法进行,检测项目为4种交链孢毒素:交链孢菌酮酸(Aflatoxin tricothecene A, TeA)、T-2毒素(T-2 toxin, TEN)、交链孢酚(Ochratoxin A, AOH)、交链孢酚单甲醚(Ochratoxin A methyl ester, AME),检测机构为省疾控实验室、专门实验室和9个地市实验室,通过偏差及RD良好度对结果进行评价。

1.3 统计学分析

统计学软件为SAS9.4,用均值 $\pm$ 标准($\bar{X} \pm S$)差描述正态数据,用中位数(四分位距)[$M(P_{25}, P_{75})$]描述非正态数据,采用率(%)表示计数资料。正态性分析采用Shapiro-Wilk检验,差异性分析依据数据特点选用配对 t 检验、配对秩检验、 χ^2 检验等方法。检验水准 $\alpha=0.05$ 。

2 结果

2.1 复检概况

初检和复检数据共计408个,初检整体检出率99.0%,复检整体检出率97.0%,检出率差别不大。TeA、AME、TEN、AOH检出限分别为:0.5、0.05、0.1、0.5 $\mu\text{g}/\text{kg}$,未检出样品按检出限参与统计分析。4种交链孢毒素检测值分布情况见表1。对初检值和复检值进行配对检验,两组差值 $M(P_{25}, P_{75})$ 为3.910(-6.355, 30.35),不符合正态性($W=0.511$, $P<0.05$),配对秩检验显示两组差值有统计学意义($S=2815.5$, $P<0.05$),RD的 $M(P_{25}, P_{75})$ 为12.25%(-19.50%, 36.80%),初检值略高于复检值,RD在可接受范围($-30\%<RD<30\%$)。综上所述,本次数据质量整体可靠,但有一定的高估风险。

2.2 RD分层相关因素分布比较

根据复检整体来看,将相关因素复检结果的RD取绝对值分为3个档次,依次为良好($RD \leq 30\%$ 、

表1 4种交链孢毒素检测值分布情况(μg/kg)

Table 1 Distribution of detection values of four alternaria toxins (μg/kg)									
检测类型	检测项目	份数	Min	P ₂₅	P ₅₀	P ₇₅	Max	平均值	标准差
初检	TeA	51	24.6	164	449	922	3 146	674	709
	AME	51	1.12	8.96	28.1	126	1 100	100	186
	TEN	51	5.41	30.8	70.9	126	300	83.2	64.4
	AOH	51	0.500	5.96	24.1	73.4	465	65.3	99.9
	合计	204	0.500	18.7	69.9	189	3 146	231	449
复检	TeA	51	13.9	186	386	769	3 900	603	656
	AME	51	0.304	13.4	33.0	79.8	984	100	196
	TEN	51	3.37	34.6	61.5	110	212	73.6	52.8
	AOH	51	0.500	5.59	16.4	47.0	427	51.3	88.9
	合计	204	0.304	15.5	61.9	177	3 900	207	413

注:TeA:交链孢菌酮酸;TEN:T-2毒素;AOH:交链孢酚;AME:交链孢酚单甲醚

可控(30%<RD<60%)、失控(60%≤RD≤200%),数据详见表2。对此数据进行χ²检测分析,在检测项目方面,构成比差异有统计学意义(χ²=35.587 1,*P*<0.000 1),TeA和TEN良好率较高,AME和AOH失控率较高,可能需要进一步的调查和改进方法。在数值数量级方面,构成比有统计学意义(χ²=33.542 1,

P<0.000 1),数值级别越大良好率越好,级别越小的失控数越多,提示这类数据不易做准确。在初检机构方面,构成比差异有统计学意义(χ²=9.510 6,*P*=0.049 5),省疾控实验室和专项实验室良好率较高,基本相当,地市实验室失控率较高,需进一步调查原因,并采取相应措施应对。

表2 RD分层相关因素分布比较[例(%)]

Table 2 Comparison of the distribution of stratified correlated factors of RD [n(%)]						
因素	总数量/个	RD≤30%(良好)	30%<RD<60%(可控)	60%≤RD≤200%(失控)	χ ² 值	<i>P</i> 值
检测项目					35.587 1	<0.000 1
TEN	51	33(64.7)	17(33.3)	1(2.0)		
TeA	51	33(64.7)	10(19.6)	8(15.7)		
AME	51	19(37.2)	15(29.4)	15(33.3)		
AOH	51	15(29.4)	13(25.5)	23(45.1)		
总计	204	100(49.0)	55(27.0)	49(24.0)		
数值数量级					33.396 8	<0.000 1
0~10	29	6(20.7)	5(17.2)	18(62.1)		
10~100	88	39(44.3)	29(32.9)	20(22.7)		
100~10000	87	55(63.2)	21(24.1)	11(12.6)		
初检实验室					9.510 6	0.049 5
省疾控实验室	48	29(60.4)	10(20.8)	9(18.7)		
专项实验室	80	42(52.5)	24(30.0)	14(17.5)		
地市实验室	76	29(38.2)	21(27.6)	26(34.2)		

注:TeA:交链孢菌酮酸;TEN:T-2毒素;AOH:交链孢酚;AME:交链孢酚单甲醚;RD:相对偏差

2.3 基质效应与相对相差相关性

液相色谱-串联质谱检测显示:TeA和TEN基质效应分别为12.2%和14.3%,AOH和AME分别为57.9%和56.8%,此基质效应为样品处理至氮吹近干步骤后加入内标物质所测其含量与纯溶剂溶解的相应浓度的内标物含量的比值,此时过程损失可忽略不计^[5],此数据与2.2中RD值良好区间相关,呈现负相关。见表3。

表3 各种毒素的基质效应的平均值/%

Table 3 Average values of matrix effects of various toxins/%				
项目	TeA	AOH	TEN	AME
基质效应	12.2	57.9	14.3	56.8
相对回收率	98.4	98.2	100.7	93.2
相对相差良好率	64.7	29.4	64.7	37.3

注:TTeA:交链孢菌酮酸;TEN:T-2毒素;AOH:交链孢酚;AME:交链孢酚单甲醚

3 讨论

影响数据质量的因素众多,涉及样品预处理、检测方法以及实验室的软硬件条件^[6-7]等。这些因素往往相互交织,使得数据质量的控制更为复杂。首先,本文通过对比初检和复检的数据,从3个维度对数据质量进行了评估,分析了检出率的波动情况,考察了检测结果的整体一致性,采用RD衡量监测数据的高估或低估程度。然后,通过对RD的初步分层归类,比较不同检测项目、数量级和初检实验室构成比的分布情况。重点识别了那些能做准确但实际失控的数据点,从而有效缩小了需要审核的数据范围,并显著减少了对原始数据的查询需求。

数据正态性检验结果显示,*P*值远小于0.05,

表明数据显著不符合正态分布。这一发现提示我们,在数据分析时不能简单依赖传统的基于正态分布的统计方法,当数据不呈正态分布,采用稳健性统计方法(中位数和四分位数)来描述数据分布是适当的,这有助于更准确地反映数据的实际变异情况。配对秩检验显示两组差值有统计学意义,说明初检和复检结果之间存在显著差异。这种差异可能源于多种因素,如仪器精度的微小差异、操作人员的技术熟练度、样品处理过程中的微小变化或样本本身的生物变异性。而两组RD的 $M(P_{25}, P_{75})$ 为12.25%(-19.50%, 36.80%)看,表明初检值略高于复检值,这种偏差在实验室检测中是常见的,尤其是在处理复杂基质和痕量分析时。偏差范围在可接受范围内,这可能对整体结果的影响有限。若进一步提高检测结果的准确性和可靠性,建议实验室采取一系列质量控制措施,加强仪器校准和维护,提高操作人员的技能和培训水平,优化样品处理方法和检测条件,定期进行内部和外部质量控制评估等。

RD是衡量数据点偏离平均值的程度,低RD表明数据点紧密围绕平均值分布,而高RD表明数据点分布更分散,是数据变异性的一种指标^[8],使用RD作为质量控制的指标,可确保数据的准确性和可靠性。检测项目的差异分析显示,TeA和TEN的检测结果显示在良好($RD \leq 30\%$)的比例上显著高于AME和AOH,这可能表明TeA和TEN的检测方法更为稳定或受干扰因素较少。AME和AOH的变异性较高,提示这两种检测项目可能存在较大检测方法问题。为了提升检测质量,需要对这些检测项目的操作流程、试剂质量、设备校准等方面进行全面审查,并考虑实施更严格的质控措施。从整体来看,大部分样本(75.98%)的RD低于60%,相对较少的样本(24.02%)RD位于60%~200%,这表明多数检测结果具有较好的一致性,考虑AOH和AME毒素在样品中的稳定性和提取效率,可能需要对这些检测方法进行优化或改进。

数值数量级增长显著提升检测结果的良好度,高数值检测因信号增强而减少误差,低数值检测(0~10级)失控率高,显示低浓度下变异性大,建议优化灵敏度、前处理技术及设备稳定性^[9]。检测机构间比较发现,省疾控与专项实验室表现优异,可能因有严格的质控和更好的设施。而地市实验室失控率高,可能与基础设施、人员技能和处理方法差异有关。核查发现,地市实验室存在检测方法错误、滤膜处理不当及内标添加量不一致等问题。

针对上述问题,三地市迅速采取了重检措施,结果均恢复正常,这充分说明了问题的可识别性与

可纠正性。此类情况不仅凸显了持续优化检测流程、提升技术人员专业技能的重要性,也强调了建立健全的质量控制体系对于保障数据准确性的关键作用。未来,各实验室应以此为鉴,不断优化内部管理,加强技术培训,以期达到更高的检测标准和数据质量水平。

基质效应是影响检测结果变异性的一个重要因素,低基质效应可能意味着样品处理过程中内标物质的稳定性较好,从而减少了变异性,提升了数据的准确性。基质效应与RD良好区间的负相关关系表明,RD分层提供了检测数据良好度的量化度量,是评估检测准确性、重复性和一致性的有力工具。

未来研究在优化复检评价方法的同时,应致力于推动技术标准化以确保结果的一致性,利用大数据和人工智能提升数据分析能力,完善质量控制流程以增强检测的可靠性。此外,加强国际合作,参与法规制定,开发新的风险评估模型,推广快速检测技术,普及公众食品安全教育,以及鼓励跨学科研究,以提升食品安全监管水平。这些为保障消费者健康、促进食品行业可持续发展提供坚实的科学基础和技术支持。

参考文献

- [1] 明双喜,孙丽萍,杨颖,等.对现行食品安全监督抽检复检制度的有关思考[J].中国食品药品监管,2019(5): 87-90.
MING S X, SUN L P, YANG Y, et al. Reflections on the current food safety supervision sampling and re-inspection system [J]. China Food and Drug Regulation, 2019(5): 87-90.
- [2] 吕品.食品复检和异议工作中的问题讨论与对策研究[J].质量探索,2023,20(1): 69-73.
LYU P. Discussion and countermeasure research on problems in food re-inspection and dispute work [J]. Quality Exploration, 2023, 20(1): 69-73.
- [3] 宋洋.食品安全监督抽样存在问题及思考[J].中国食品药品监管,2023(6): 96-101.
SONG Y. Problems and thoughts on food safety supervision sampling [J]. China Food and Drug Regulation, 2023(6): 96-101.
- [4] 刘万超,陈龙梅,朱良啸,等.迪瑞GMD-S600妇科分泌物分析系统显微镜复检规则制订及验证[J].国际检验医学杂志,2024(2): 229-233.
LIU W C, CHEN L M, ZHU L X, et al. Formulation and verification of microscopy re-inspection rules for the derry gmd-s600 gynecological secretion analysis system [J]. International Journal of Laboratory Medicine, 2024(2): 229-233.
- [5] 张洁,王谢,马青青,等.谷物中4种交链毒素污染情况及检验方法探讨[J].江苏预防医学,2021,32(2): 143-144, 152.
ZHANG J, WANG X, MA Q Q, et al. Discussion on the pollution situation and inspection methods of four types of aflatoxins in grain [J]. Jiangsu Preventive Medicine, 2021, 32(2): 143-144, 152.

- [6] 杜鹃. 自动化尿液及体液常规分析的复检规则制定及探讨[D]. 北京: 北京协和医学院, 2014.
DU J. Formulation and discussion of re-inspection rules for automated routine analysis of urine and body fluids[D]. Beijing: Peking Union Medical College, 2014.
- [7] 王力, 郝晓柯, 杨大千, 等. 尿液常规智能审核规则验证与改进的多中心研究[J]. 中华检验医学杂志, 2020, 43(8): 794-801.
WANG L, HAO X K, YANG D G, et al. Multicenter study on the verification and improvement of urine routine intelligent review rules[J]. Chinese Journal of Laboratory Medicine, 2020, 43(8): 794-801.
- [8] 陈百慧, 辛国斌, 闵涛, 等. 血液中6种常见毒品的GC-MS/MS定性结果评价探究[J]. 中国法医学杂志, 2024(3): 328-334.
CHEN B H, XIN G B, MIN T, et al. Exploration of qualitative evaluation of six common drugs in blood by GC-MS/MS[J]. Chinese Journal of Forensic Medicine, 2024(3): 328-334.
- [9] 何祺, 康李娜, 刘欢, 等. 不同检测原理尿液分析仪的临床应用及复检规则探讨[J]. 检验医学与临床, 2019, 16(13): 66-69.
HE Q, KANG L N, LIU H, et al. Clinical application and re-inspection rule discussion of urine analyzers with different detection principles[J]. Laboratory Medicine and Clinical Medicine, 2019, 16(13): 66-69.

[上接第41页]

期刊文章:[序号] 主要责任者(外文人名首字母缩写,缩写名后不加缩写点). 文献题名[文献类型标志]. 刊名, 年,卷(期): 起页-止页.

举例 [1] 汪国华,马进,季适东,等. 急性出血坏死性胰腺炎的手术治疗[J]. 中级医刊,1995,30(8):22-25.

[2] BERRY R J,LI Z,ERICKSON J D,et al. Preventing neural tube defects with folic acid in China[J]. N Engl J Med,1999, 314: 1485-1490.

著作或编著:[序号] 主要责任者. 文献题名[文献类型标志]. 其他责任者. 版本项(版次为第一版的不用标明). 出版地:出版者,出版年:起页-止页.

举例 图书:[3] 吴阶平,裘法祖,黄家驷. 外科学[M]. 4版. 北京:人民卫生出版社, 1979: 82-93.

译著:[4] ZIEGLER E E, FILER L J. 现代营养学[M]. 闻之梅,陈君石,译. 7版. 北京:人民卫生出版社, 1998: 126-129.

著作中的析出文献:[序号] 析出文献主要责任者. 析出文献题名[文献类型标志]//原文献主要责任者. 原文献题名. 版本项. 出版地:出版者,出版年:析出文献起页-止页.

举例 [5] 白书农. 植物开花研究[M] // 李承森. 植物科学进展. 北京:高等教育出版社, 1998: 146-163.

会议文献中的析出文献:[序号]析出文献主要责任者. 析出文献题名[文献类型标志/文献载体标志]//会议文献主要责任者. 会议文献题名:其他题名信息. 出版地:出版者,出版年:析出文献起页-止页[引用日期]获取和访问路径.

举例 [6] 董家祥,关仲英,王兆奎,等. 重症肝炎的综合基础治疗[C]//张定凤. 第三届全国病毒性肝炎专题学术会议论文汇编,南宁,1984. 北京:人民卫生出版社, 1985: 203-212.

科技报告:著录格式同著作或编著.

举例 [7] World Health Organization. Factors regulating the immune response: report of WHO Scientific Group [R]. Geneva:WHO,1970:1-74.

法令、条例:[序号]主要责任者. 题名[文献类型标志]. 公布日期.

举例 [8] 中华人民共和国全国人民代表大会. 中华人民共和国著作权法[A]. 2012-03-31.

标准:[序号]主要责任者. 标准名称:标准编号[文献类型标志]. 出版地:出版者,出版年.

举例 [9] 全国文献工作标准化技术委员会第七分委员会. 科学技术期刊编排格式:GB / T 3179—1992 [S]. 北京:中国标准出版社,1992.

电子文献:[序号]主要责任者. 题名[文献类型标志 / 文献载体标志]. 出版地:出版者,出版年(更新或修改日期) [引用日期]. 获取和访问路径.

举例 [10] 肖钰. 出版业信息迈入快道 [EB/OL]. (2001-12-19) [2002-04-15]. <http://www.creader.com/news/20011219/200112190019.html>.

专利文献:[序号]专利申请者. 题名:专利国别,专利号[P]. 公告或公开日期.

3 声明

本刊已进入中国所有主要期刊数据库,本刊所付稿酬已包含这些数据库的稿酬。编辑部对来稿将作文字性修改,若涉及内容修改会与作者商榷。编辑部收到稿件后,于3个月内通知处理意见。投稿6个月后如未收到修稿或录用通知,作者可自行处理稿件,所收稿件纸质版概不退还。来稿一经采用,即收取版面费,按规定向作者支付稿酬,并赠送杂志。

4 投稿

投稿请登录《中国食品卫生杂志》网站 <http://www.zgspws.com>,并同时邮寄单位介绍信和稿件纸版1份(需第一作者、通信作者和副高以上作者签名)。来稿中应有清楚完整的作者通信地址、联系电话和E-mail地址。编辑部地址:北京市朝阳区广渠路37号院2号楼802室《中国食品卫生杂志》编辑部 邮政编码:100021 电话:010-52165596 E-mail:spws462@163.com