

## 调查研究

## 广东省稻谷中真菌毒素污染状况研究

刘志婷,池岚,屠鸿薇,梁辉,龙朝阳,吕芬,黄湘东,严维娜

(广东省疾病预防控制中心,广东广州 511430)

**摘要:**目的 了解广东省主要水稻种植区稻谷中真菌毒素的污染模式,分析不同地区真菌毒素的分布,为实施精准防控措施提供参考。方法 2018—2019年在广东省珠三角、粤北、粤东、粤西四个片区的8个地市采集120份稻谷样品,采用超高效液相色谱-串联质谱仪多反应监测模式测定16种真菌毒素的污染状况。结果 本次监测的稻谷中19.17%(23/120)样品检出真菌毒素,主要污染种类为黄曲霉毒素和伏马菌素。伏马菌素 $B_1$ ( $FB_1$ )检出率为9.17%(11/120);黄曲霉毒素 $B_1$ ( $AFB_1$ )的检出率为8.33%(10/120),有2份样品超过国家限量值( $10\ \mu\text{g}/\text{kg}$ ),污染水平分别为73.90和18.80  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。6种单端孢霉烯族化合物中仅检出脱氧雪腐镰刀菌烯醇(DON)及其乙酰化化合物,其中DON的检出率为1.67%(2/120),3-Ac-DON和15-Ac-DON的检出率均为0.83%(1/120)。玉米赤霉烯酮(ZEN)的检出率为3.33%(4/120),杂色曲霉毒素检出率为1.67%(2/120)。监测的120份样品未检出赭曲霉毒素A(OTA)、雪腐镰刀菌烯醇(NIV)、T-2和HT-2毒素。8.33%(10/120)样品受到2种及以上真菌毒素污染,以 $AFB_1$ 和其他真菌毒素的混合检出多见。不同地市的污染模式有所差异,湛江市样品中 $FB_1$ 、 $FB_2$ 、DON和3-Ac-DON的含量较高,河源市样品中 $AFB_1$ 、 $AFB_2$ 、杂色曲霉毒素、 $FB_1$ 、 $FB_2$ 的含量较高,韶关市样品中ZEN、DON和3-Ac-DON的含量较高。结论 广东省稻谷中受到多种真菌毒素污染,且受污染的真菌毒素种类存在地域差异。应针对稻谷中多种真菌毒素的混合污染模式,科学评估暴露风险,采取针对性的控制措施,保护消费者的饮食安全。

**关键词:**稻谷;真菌毒素;污染状况

中图分类号:R155 文献标识码:A 文章编号:1004-8456(2020)06-0654-06

DOI:10.13590/j.cjfh.2020.06.012

### Occurrence of multi-mycotoxin in paddy rice in Guangdong Province

LIU Zhiting, CHI Lan, TU Hongwei, LIANG Hui, LONG Chaoyang,

LYU Fen, HUANG Xiangdong, YAN Weina

(Guangdong Provincial Center for Disease Control and Prevention,

Guangdong Guangzhou 511430, China)

**Abstract: Objective** To understand the contamination pattern of mycotoxin in paddy rice in the main rice-growing regions of Guangdong Province, and analyze the distribution difference of mycotoxin in different areas, so as to provide basis for the implementation of precise prevention and control measures. **Methods** A total of 120 paddy rice samples were collected from eight cities in the Pearl River Delta, northern, eastern and western Guangdong during 2018 and 2019, and were analyzed for 16 mycotoxins by multiple reaction monitoring mode of ultra performance liquid chromatography-tandem mass spectrometer. **Results** Among the 120 paddy rice samples, 19.17% (23/120) were positive for mycotoxins, and the main pollutants were aflatoxins and fumonisins.  $FB_1$  were detected in 9.17% (11/120) of the samples, followed by 8.33% (10/120) for  $AFB_1$ . Two samples had the  $AFB_1$  concentrations above the tolerance limit of  $10\ \mu\text{g}/\text{kg}$ . The detection values were 73.90 and 18.80  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , respectively. Among 6 trichothecene mycotoxins, only deoxynivalenol (1.67%, 2/120) and its acetyl derivatives [0.83% (1/120) for 3-Ac-DON and 0.83% (1/120) for 15-Ac-DON] were found. ZEN was found in 3.33% (4/120) of the samples. Additionally, 1.67% (2/120) of the paddy rice samples were positive for sterigmatocystin. The ochratoxin A, nivalenol, T-2 and HT-2 mycotoxins were not found in the paddy rice samples. The co-occurrence of two or more mycotoxins was confirmed in 8.33% (10/120) of the paddy rice samples, mainly combination was  $AFB_1$  and other mycotoxins. The contamination patterns were different in the eight cities. The paddy rice samples from Zhanjiang was mainly contaminated by  $FB_1$ ,  $FB_2$ , DON and 3-Ac-DON. Samples from Heyuan

收稿日期:2020-09-10

基金项目:广东省医学科学技术研究基金项目(A2020056)

作者简介:刘志婷 女 医师 研究方向为营养与食品安全 E-mail:liuzhiting6@163.com

通信作者:严维娜 女 主管技师 研究方向为营养与食品安全 E-mail:54377454@qq.com

were mainly contaminated by AFB<sub>1</sub>, AFB<sub>2</sub>, sterigmatocystin, FB<sub>1</sub> and FB<sub>2</sub>. The concentration levels of ZEN, DON and 3-Ac-DON were relatively higher in samples from Shaoguan. **Conclusion** The paddy rice samples from Guangdong Province were contaminated by multiple mycotoxins, and the pollution patterns were different in different areas. In terms of the co-occurrence of mycotoxins, some measures should be conducted to assess the exposure risk, reduce the damage, and protect the consumers food safety.

**Key words:** Paddy rice; mycotoxin; contamination status

稻谷是我国主要的粮食作物,产量约占我国粮食产量的三分之一<sup>[1]</sup>。广东省是我国 13 个粮食主产省之一,水稻作为广东省最主要的粮食作物,产量占粮食作物产量的 76% 以上<sup>[2]</sup>。真菌毒素污染是造成农作物大幅减产的重要原因,同时其生长过程中产生的有毒代谢物还会危害人群健康,已被世界卫生组织列为食源性疾病的重要根源之一。真菌毒素的污染种类以及污染程度和地理环境、气候条件密切相关。广东地处华南,气候湿热,粮食作物易受真菌毒素污染。同时,由于一种真菌可以产生多种真菌毒素,同一农作物也可被多种真菌感染,因此稻谷中普遍存在多种真菌毒素同时污染的情况<sup>[3-4]</sup>。因此,开展广东地区稻谷中多种真菌毒素污染模式的调查,探讨多种毒素的混合污染情况,对综合评价稻谷中真菌毒素的污染状况,采取精准监管和防治策略具有重要意义。

## 1 材料与方法

### 1.1 材料

#### 1.1.1 样品采集

根据广东省种植区域分布以及地理位置、气候条件等因素,选择珠三角、粤北、粤东、粤西四个片区的 8 个地市作为采样点。其中珠三角地区选择广州、惠州,粤北片区选择韶关、清远、河源,粤西片区选择湛江、云浮,粤东片区选择揭阳。每个地市选择下辖的 2~6 个区县作为分采样点,在每个分采样点的种植农户采集新收获稻谷。

根据简单随机抽样中总体均数估计的样本含量计算公式  $n_0 = (Z_{\alpha/2})^2 \sigma^2 / L^2$  估计最小样本量,取  $\alpha$  为双侧 0.05,误差  $L$  为总体均值的 5%,以危害最大的真菌毒素黄曲霉毒素 B<sub>1</sub> (AFB<sub>1</sub>) 的平均含量估算样本量。参照既往研究,稻谷中 AFB<sub>1</sub> 的含量水平为  $(0.6 \pm 0.15) \mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[5-6]</sup>,计算得到至少需要样品 95 份。考虑样本代表性问题,进一步扩容,最终实际采样 120 份。2018 年 7 月采集 60 份,其中韶关 12 份、湛江 10 份、河源 10 份、清远 8 份、云浮 8 份、惠州 6 份、广州 4 份、揭阳 2 份。2019 年 7 月采集 60 份,其中湛江 12 份、清远 12 份、韶关 11 份、河源 10 份、惠州 6 份、广州 4 份、云浮 3 份、揭阳 2 份。

#### 1.1.2 主要仪器与试剂

UPLC I-class-Xevo TQ-S 超高液相色谱-串联四级杆液质联用仪(美国 Waters)、粉碎机、电子天平、离心机、超声波清洗器、纯水仪、自动涡旋混合器、氮吹仪。

16 种真菌毒素标准溶液:黄曲霉毒素混合标准溶液 (AFB<sub>1</sub>、AFB<sub>2</sub>、AFG<sub>1</sub>、AFG<sub>2</sub>),伏马菌素 B<sub>1</sub> (FB<sub>1</sub>)、FB<sub>2</sub>、FB<sub>3</sub> 标准溶液,T-2 毒素标准溶液,HT-2 毒素标准溶液,脱氧雪腐镰刀菌烯醇及其乙酰化化合物混合标准溶液 (DON、3-Ac-DON、15-Ac-DON),雪腐镰刀菌烯醇 (NIV) 标准溶液,玉米赤霉烯酮 (ZEN) 标准溶液,赭曲霉毒素 A (OTA) 标准溶液,杂色曲霉毒素标准溶液,均购自美国 Romer。甲醇、乙腈、98% 甲酸均为色谱纯,超纯水 (25 °C 电阻率为 18.2 MΩ·cm)。

### 1.2 方法

样品经粉碎、过筛后密封保存至样品瓶,供检测使用。试样中的 16 种真菌毒素用乙腈-水-甲酸 (70 : 29 : 1, V/V) 溶液提取,经稀释、离心过滤后,取上清液加入一定浓度<sup>13</sup>C 标记的真菌毒素同位素内标溶液,超高效液相色谱-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。具体检验参数设置根据《2019 年国家食品污染物和有害因素风险监测工作手册》<sup>[7]</sup> 中的方法设定。各真菌毒素的检出限和定量限见表 1。

表 1 各真菌毒素的检出限和定量限 (μg/kg)

Table 1 Limits of detection and quantification of mycotoxins

真菌毒素	检出限	定量限	真菌毒素	检出限	定量限
AFB <sub>1</sub>	0.1	0.3	DON	5.0	15.0
AFB <sub>2</sub>	0.1	0.3	3-Ac-DON	6.5	19.5
AFG <sub>1</sub>	0.2	0.6	15-Ac-DON	7.5	22.5
AFG <sub>2</sub>	1.0	3.0	FB <sub>1</sub>	10.0	30.0
OTA	0.5	1.5	FB <sub>2</sub>	10.0	30.0
T-2	2.0	6.0	FB <sub>3</sub>	50.0	150.0
HT-2	25.0	75.0	NIV	35.0	105.0
杂色曲霉毒素	5.0	15.0	ZEN	5.0	15.0

### 1.3 数据处理

根据世界卫生组织 (WHO) 推荐的替代法<sup>[8]</sup> 对未检出值进行处理,当 >80% 的检测值为未检出时,分别用 0 和检出限 (LOD) 替代计算平均值;通过主成分分析,对具有相关性的指标 (真菌毒素的污染

水平)进行综合,构造出少数几个主成分来反映众多指标提供的信息。将原始数据进行标准化处理后,根据标准化数据矩阵求出相关矩阵,根据相关矩阵的特征值和特征向量确定主成分,最终保留特征值>1的主成分。采用 SPSS 25.0 软件进行数据的统计分析。

## 2 结果与分析

### 2.1 稻谷中真菌毒素污染状况

本次监测的稻谷中 19.17% (23/120) 样品检出真菌毒素。真菌毒素的主要污染种类为黄曲霉毒素和伏马菌素。伏马菌素的污染以  $FB_1$  为主,检出率为 9.17% (11/120);  $FB_2$  的检出率为 2.50% (3/120); 120 份稻谷样品中均未检出  $FB_3$ 。  $AFB_1$  的检出率为 8.33% (10/120), 有 2 份样品超过国家限量值 (10  $\mu\text{g}/\text{kg}$ )。本次监测 6 种单端孢霉烯族化合物仅检出 DON 及其乙酰化化合物 (3-Ac-DON、15-Ac-DON)。1 份样品同时检出 DON 和 3-Ac-DON, 含量分别为 78.80 和 21.10  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 3-Ac-DON 含量占 DON 及其乙酰化化合物含量总和的 21%; 1 份样品单独检出 DON, 含量为 61.50  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ; 1 份样品单独检出 15-Ac-DON, 含量为 35.30  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。ZEN 的检出率为 3.33% (4/120); 杂色曲霉毒素检出率为 1.67% (2/120), 见表 2。

表 2 120 份稻谷中真菌毒素监测情况

Table 2 Occurrence and levels of mycotoxins in paddy rice samples

真菌毒素	阳性样品份数 (%)	超标份数 (%)	检出范围 / ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	平均值 <sup>a</sup> / ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	
				$\leq \text{LOD} = 0$	$\leq \text{LOD} = \text{LOD}$
$AFB_1$	10 (8.33)	2 (1.67)	0.25 ~ 73.90	0.96	1.05
$AFB_2$	3 (2.50)	NA	0.89 ~ 4.89	0.06	0.16
$AFG_1$	0 (0.00)	NA	NA	0.00	0.20
$AFG_2$	0 (0.00)	NA	NA	0.00	0.80
OTA	0 (0.00)	0 (0.00)	NA	0.00	0.50
T-2	0 (0.00)	NA	NA	0.00	2.00
HT-2	0 (0.00)	NA	NA	0.00	18.50
DON	2 (1.67)	NA	61.50 ~ 78.80	1.17	6.09
3-Ac-DON	1 (0.83)	NA	21.10	0.18	6.62
15-Ac-DON	1 (0.83)	NA	35.30	0.29	7.73
NIV	0 (0.00)	NA	NA	0.00	35.00
ZEN	4 (3.33)	NA	11.40 ~ 86.60	1.34	6.18
$FB_1$	11 (9.17)	NA	17.50 ~ 249.00	5.67	14.80
$FB_2$	3 (2.50)	NA	14.40 ~ 75.00	1.27	11.00
$FB_3$	0 (0.00)	NA	NA	0.00	31.00
杂色曲霉毒素	2 (1.67)	NA	5.15 ~ 6.10	0.09	5.01

注:<sup>a</sup>表示平均值是将未检出值分别以 0 和 LOD 替代进行计算,下同;NA 表示无相关国家限量值或无法计算检出范围

#### 2.1.1 超标情况

根据我国食品安全国家标准,稻谷中真菌毒素

$AFB_1$  的限量值为 10  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 本次监测的样品超标率为 1.67% (2/120), 超标的两份样品检测值分别为 73.90  $\mu\text{g}/\text{kg}$  (限量值的 7.39 倍) 和 18.80  $\mu\text{g}/\text{kg}$  (限量值的 1.88 倍)。欧盟标准较我国严格,为 5  $\mu\text{g}/\text{kg}$ <sup>[9]</sup>, 本次监测的样品有 3 份超过欧盟标准, 检测值分别为 9.34、73.90 和 18.80  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。同时, 欧盟规定  $AFB_1$ 、 $AFB_2$ 、 $AFG_1$ 、 $AFG_2$  的总量不得超过 10  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 3 份样品超过此标准, 检出的黄曲霉毒素均为  $AFB_1$  和  $AFB_2$ , 检出值分别为 78.79、20.15 和 10.23  $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。

我国标准规定稻谷中 OTA 的限量值为 5  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 欧盟标准与我国一致, 本次监测的样品未检出 OTA。我国暂未制定稻谷中监测的其他 14 种真菌毒素的限量标准。欧盟对稻谷中 ZEN (100  $\mu\text{g}/\text{kg}$ )、DON (1 250  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ) 的限量做出了相关规定, 本次监测的样品中这两个项目均未超过欧盟标准。

#### 2.1.2 各地市稻谷中伏马菌素监测情况

从地区看,湛江市污染最为严重,  $FB_1$  的平均含量达 25.50  $\mu\text{g}/\text{kg}$ , 其次为河源市 (均值 16.80  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ), 云浮市、揭阳市、韶关市、清远市监测的样品均检出 1 份阳性样品。广州市和惠州市监测的样品均未检出  $FB_1$ 。3 份检出  $FB_2$  的样品分别来自湛江市 (75.00  $\mu\text{g}/\text{kg}$ )、河源市 (62.50  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ) 和云浮市 (14.40  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ), 与  $FB_1$  污染较严重的区域一致, 见表 3。

表 3 各地市稻谷中  $FB_1$  监测情况

Table 3 Occurrence and levels of  $FB_1$  in paddy rice samples by location

地市	样品份数	阳性样品份数	检出率 / %	检出范围 / ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	平均值 / ( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	
					$\leq \text{LOD} = 0$	$\leq \text{LOD} = \text{LOD}$
湛江市	22	5	22.73	18.80 ~ 249.00	17.80	25.50
河源市	20	2	10.00	34.30 ~ 122.00	7.82	16.80
揭阳市	4	1	25.00	27.50	6.88	14.40
云浮市	11	1	9.09	58.80	5.35	14.40
韶关市	23	1	4.35	17.50	0.76	10.30
清远市	20	1	5.00	29.80	1.49	11.00
广州市	8	0	0.00	NA	0.00	10.00
惠州市	12	0	0.00	NA	0.00	10.00

注:NA 表示无检出,无法计算检出范围

#### 2.1.3 各地市稻谷中黄曲霉毒素监测情况

本次采集样品的 8 个地市中,除揭阳市未检出外,其余地市样品均检出  $AFB_1$ , 见表 4。  $AFB_2$  的检出率为 2.50% (3/120), 阳性样品分别来自河源市 (4.89  $\mu\text{g}/\text{kg}$ )、韶关市 (1.35  $\mu\text{g}/\text{kg}$ ) 和惠州市 (0.89  $\mu\text{g}/\text{kg}$ )。

#### 2.2 多重污染分析

本次监测的稻谷,共有 19.17% (23/120) 样品检出真菌毒素, 8.33% (10/120) 样品受到 2 种及以

表4 各地市稻谷中 AFB<sub>1</sub> 监测情况Table 4 Occurrence and levels of AFB<sub>1</sub> in paddy rice samples by location

地市	样品份数	阳性样品份数	检出率/%	检出范围/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	平均值/( $\mu\text{g}/\text{kg}$ )	
					$\leq \text{LOD}$ =0	$\leq \text{LOD}$ =LOD
河源市	20	2	10.00	2.91~73.90	3.84	3.93
韶关市	23	2	8.70	0.36~18.80	0.83	0.92
惠州市	12	1	8.33	9.34	0.78	0.87
广州市	8	1	12.50	3.83	0.48	0.57
云浮市	11	1	9.09	2.95	0.27	0.36
湛江市	22	2	9.09	0.25~2.45	0.12	0.21
清远市	20	1	5.00	0.27	0.01	0.11
揭阳市	4	0	0.00	NA	0.00	0.10

注:NA表示无检出,无法计算检出范围

上真菌毒素污染。10份检出多种真菌毒素的样品中,以 AFB<sub>1</sub> 和其他真菌毒素的混合检出多见(70.00%, 7/10),包括 AFB<sub>1</sub> 和 AFB<sub>2</sub>、FB<sub>1</sub>、FB<sub>2</sub>、ZEN、杂色曲霉素、DON 的混合污染;其他包括 FB<sub>1</sub> 和 FB<sub>2</sub> 的混合污染 2 份以及 DON 及其乙酰化产物的混合污染 1 份,见图 1。

### 2.3 主成分分析

将检出的 9 种真菌毒素进行主成分分析,结果显示,前 4 个主成分的特征值均>1,累计方差贡献率为 81.38%。因此,本研究提取前 4 个主成分来判断 9 种真菌毒素在稻谷中的分布。各个主成分的系数矩阵可以说明各主成分在各变量上的载荷。第

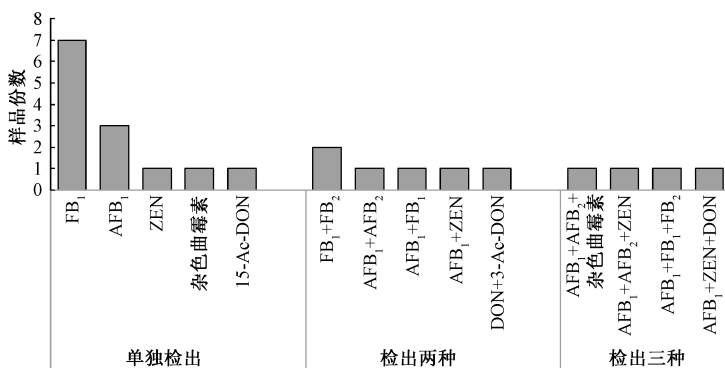


图1 稻谷中真菌毒素的多重检出情况

Figure 1 Co-occurrence of mycotoxins in paddy rice samples

一主成分中,AFB<sub>1</sub>、AFB<sub>2</sub>、杂色曲霉素上的系数数较大,主要反映这三类真菌毒素的含量水平;第二主成分中,FB<sub>1</sub>、FB<sub>2</sub>的系数较大,主要反映这两类真菌毒素的含量水平;第三主成分中,3-Ac-DON、DON的系数较大;第四主成分中,ZEN的系数较大,见表 5。

表5 主成分系数矩阵

Table 5 Principal component matrix

真菌毒素	第一主成分	第二主成分	第三主成分	第四主成分
AFB <sub>1</sub>	0.963	-0.007	-0.011	0.085
AFB <sub>2</sub>	0.961	-0.011	-0.011	0.088
杂色曲霉素	0.760	-0.012	0.004	-0.103
FB <sub>1</sub>	-0.017	0.980	-0.013	0.021
FB <sub>2</sub>	-0.009	0.980	-0.005	0.026
3-Ac-DON	0.003	0.002	0.949	-0.246
DON	-0.022	-0.022	0.937	0.312
ZEN	0.042	-0.049	0.255	0.931
15-Ac-DON	0.000	-0.028	0.059	-0.264

图 2 是各地市样品的平均主成分分值图,由图可见广州市、清远市、惠州市、揭阳市在各主成分上的得分情况较为接近,稻谷中真菌毒素的污染状况相对较轻。云浮市样品的污染状况居中。湛江市样品在第二主成分、第三主成分得分较高,说明其 FB<sub>1</sub>、FB<sub>2</sub>、DON、3-Ac-DON 的含量较高;河源市在第一主成分、第二主成分得分较高,说明其 AFB<sub>1</sub>、

AFB<sub>2</sub>、FB<sub>1</sub>、FB<sub>2</sub>、杂色曲霉素含量较高;韶关市在第四主成分、第三主成分得分较高,说明其 ZEN、DON 和 3-Ac-DON 的含量较高。

### 3 讨论

农作物中真菌毒素污染水平和产品水分含量、水分活度、空气湿度、温度、pH 值、食品基质的组成、其物理破坏程度以及霉菌孢子的存在等均存在关系<sup>[10]</sup>。农作物一旦被污染,利用常规的加工技术很难去除。真菌毒素的污染除对谷物自身产生危害以外,更重要的是以食物和饲料为载体,对人类健康产生的急慢性毒性作用<sup>[11-12]</sup>。既往研究<sup>[13]</sup>指出,相较于小麦和玉米,水稻受真菌毒素的污染较轻。但水稻作为我国南方居民的重要主食,消费量大,是重要的能量和碳水化合物来源<sup>[14]</sup>,而广东省是我国主要的水稻产地之一,稻谷中真菌毒素的污染问题仍需引起关注。本研究采集广东省 8 个地市稻谷样品,对食品中常见的 6 类 16 种真菌毒素的污染状况进行分析。结果显示,广东省稻谷中污染的主要真菌毒素种类为黄曲霉毒素和伏马菌素;还受到一定程度的 DON 及其乙酰化化合物、ZEN 和杂色曲霉素的污染;未见 T-2 毒素、HT-2 毒素、OTA 的污染。

黄曲霉毒素主要是由黄曲霉和寄生曲霉产生



的带有强

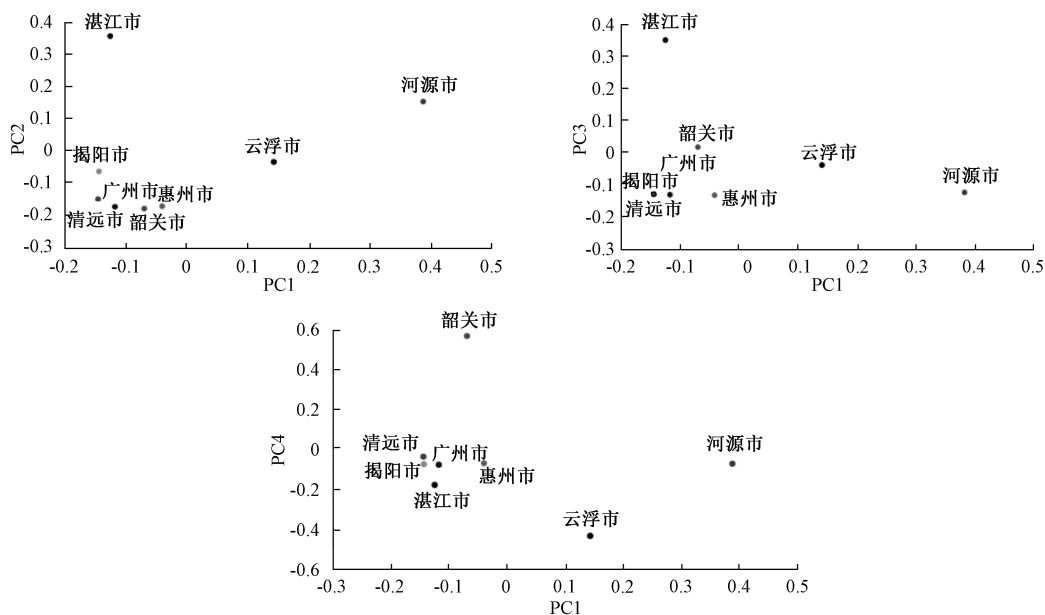


图2 各地市稻谷样品在主成分上的平均分值图

Figure 2 Plot of principal component scores of paddy rice samples from different cities

地区,如热带及亚热带地区,食品中黄曲霉毒素的检出率会更高。目前分离到 B<sub>1</sub>、B<sub>2</sub>、G<sub>1</sub>、G<sub>2</sub>、B<sub>2a</sub>、G<sub>2a</sub>、M<sub>1</sub>、M<sub>2</sub>、P<sub>1</sub> 等 18 种,其中以 AFB<sub>1</sub> 的毒性最强,属于 1 类致癌物。吴芳等<sup>[15]</sup> 对我国农户储藏稻谷中 AFB<sub>1</sub> 进行监测,结果发现稻谷中 AFB<sub>1</sub> 的检出率为 16.9%,其中云南、贵州、四川、广西和江苏的检出率较高(>20%);该研究监测的 10 份广东省样品未检出 AFB<sub>1</sub>,但由于广东省样品数量较少,检出率尚不足以反映真实情况。

伏马菌素是一组由串珠镰刀菌、轮状镰刀菌和多育镰刀菌等镰刀菌产生的有毒次级代谢产物。最常见的受影响食品种类为谷物,此外在牛奶、啤酒、芦笋等食物中也有检出。FB<sub>1</sub> 最常见,在污染食品和饲料的伏马菌素中占 70% 左右<sup>[16]</sup>。FB<sub>1</sub> 对人体和动物具有急性和慢性的毒性作用,流行病学研究发现,食品中的伏马菌素与人类食道癌的发病相关<sup>[17]</sup>。本次监测的稻谷中伏马菌素的污染以 FB<sub>1</sub> 为主,检出率为 9.17%;FB<sub>2</sub> 的检出率为 2.50%,未检出 FB<sub>3</sub>。郭耀东等<sup>[17]</sup> 对大米及其制品、面粉及其制品、其他谷物制品、干豆类、坚果 5 类食品样品中伏马菌素含量进行测定,平均含量为 40 μg/kg(未检出值以 0 替代),高于本研究稻谷中伏马菌素的含量水平;同时,对暴露风险进行评估,发现我国居民暴露风险较低,处于可控水平。

本研究结果显示,8.33% 稻谷样品中存在多种真菌毒素联合污染的状况,以 AFB<sub>1</sub> 和其他真菌毒素的混合检出多见,包括 AFB<sub>1</sub> 和 AFB<sub>2</sub>、FB<sub>1</sub>、FB<sub>2</sub>、ZEN、杂色曲霉素、DON 的混合污染。厄瓜多尔的研究<sup>[18]</sup> 指出,稻谷中多种真菌毒素的联合污染率

为 7%,以 AFB<sub>1</sub>、AFG<sub>1</sub>、DON 和 FB<sub>1</sub> 的联合污染常见,和本次研究的结果接近。相较于稻谷,玉米及其制品中真菌毒素的联合污染更为常见,我国学者的研究<sup>[3]</sup> 结果表明 60% 的玉米及其制品受到两种及以上真菌毒素的污染,最多可见同时受到 7 种真菌毒素的污染。多种化合物同时暴露机体会产生联合毒性效应,已有研究<sup>[19]</sup> 表明 AFB<sub>1</sub>、OTA 和 FB<sub>1</sub> 在人体单核血细胞中具有协同效应,AFB<sub>1</sub> 和 FB<sub>1</sub>、杂色曲霉素、DON 对 HepG2 细胞具有加和作用<sup>[20]</sup>。既往有研究<sup>[21]</sup> 对儿童经早餐谷物制品摄入真菌毒素的膳食暴露风险进行评估,结果表明,单独暴露于 OTA、伏马菌素、单端孢霉烯族化合物无健康危害,然而和 AFB<sub>1</sub> 共同暴露后,具有潜在健康危害。本次监测中,1 份样品同时检出 DON 和 3-Ac-DON, DON 的两种乙酰化产物,3-Ac-DON 和 15-Ac-DON 是真菌毒素 DON 生物合成的中间体,可以在哺乳动物的代谢过程中转变为 DON,使 DON 总量上升。WHO 食品添加剂联合专家委员会(JECFA)将 DON、3-Ac-DON 和 15-Ac-DON 作为化合物组,反映人类的膳食暴露风险<sup>[22]</sup>。我国学者<sup>[23]</sup> 对上海地区 DON 及其乙酰化化合物的膳食暴露风险进行评估,结果发现单一类别的真菌毒素暴露无健康风险,然而 DON、3-Ac-DON 和 15-Ac-DON 的累计暴露量超过了健康指导值。针对多种真菌毒素同时检出的现象,评估混合污染暴露的安全性,是风险管理中需重视的问题。

通过主成分分析和聚类分析,发现不同地区稻谷中真菌毒素的污染状况有所差别。在本次监测

的8个地市中,广州市、清远市、惠州市、揭阳市的样品聚为一类,受真菌毒素污染的程度相对较轻。湛江市、河源市、韶关市、云浮市各为一类。湛江市稻谷样品主要为伏马菌素和DON的污染,河源市样品主要为黄曲霉毒素和伏马菌素污染,韶关市样品ZEN的污染相比其他地市较严重,除此以外还受到DON和3-Ac-DON的污染。云浮市污染状况居中。真菌毒素的污染水平和农业气候条件相关,不同地理环境下,真菌毒素的污染状况可能不同,可针对各地稻谷中真菌毒素的污染特征采取精准的防控措施。由于真菌毒素的污染通常难以完全避免,目前已建立一些解毒和消除毒素的方法,主要有物理法、化学法、生物降解法等<sup>[24]</sup>。微生物酶解脱毒技术中,已筛选出十多株能够高效降解黄曲霉毒素的细菌,包括铜绿假单胞菌、沙氏芽胞杆菌等。针对ZEN也获得一些毒素降解酶,如*Gliocladium roseum*等<sup>[25]</sup>。近些年提出的紫外线照射降解真菌毒素的技术,发现不同真菌毒素的紫外吸收波长不同。赭曲霉毒素主要在216和330 nm,展青霉素在222、2544和282 nm,AFB<sub>1</sub>的最大吸收波长为265 nm,降解率可达96.4%<sup>[26]</sup>。不同地区可根据本区域稻谷中真菌毒素的污染模式,选择特异性高效的解毒脱毒方法。例如以黄曲霉毒素污染为主的地区在采用紫外线照射解毒时,可以将波长控制在265 nm。同时,污染严重的地区尤其注意保持粮食储藏地的卫生和清洁。

广东省稻谷中受到多种真菌毒素的污染,且污染真菌毒素种类存在地域差异。针对稻谷中多种真菌毒素的混合污染模式,科学评估暴露风险,采取针对性的控制措施,保护消费者的饮食安全。

## 参考文献

- [1] 国家统计局. 2019年全国粮食产量再创新高—国家统计局农村司高级统计师黄秉信解读粮食生产情况[J]. 新农业, 2019(24):67-68.
- [2] 李逸勉,叶延琼,章家恩,等. 广东省水稻产业发展现状与对策分析[J]. 中国农学通报, 2013, 29(20):73-82.
- [3] YANG X, GAO J, LIU Q, et al. Co-occurrence of mycotoxins in maize and maize-derived food in China and estimation of dietary intake[J]. Food Additives & Contaminants Part B Surveillance, 2019, 12(2):124-134.
- [4] LEE H J, RYU D. Worldwide occurrence of mycotoxins in cereals and cereal-derived food products: public health perspectives of their co-occurrence[J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2017, 65(33):7034-7051.
- [5] 徐玲娣. 太仓地区入库稻谷品质状况的调查分析[J]. 粮食加工, 2013, 38(2):35-37.
- [6] 蔡建梅,王斌,黎晓彤. 吉林地区2009年玉米和稻谷卫生状况调查[J]. 中华疾病控制杂志, 2011, 15(12):1068-1070.
- [7] 蒋定国,杨大进. 2019年国家食品污染物和有害因素风险监测工作手册(中卷)[Z]. 2018:224-245.
- [8] 王绪卿,吴永宁,陈君石. 食品污染物监测低水平数据处理问题[J]. 中华预防医学杂志, 2002, 36(4):278-279.
- [9] 尚艳娥,杨卫民. CAC、欧盟、美国与中国粮食中真菌毒素限量标准的差异分析[J]. 食品科学技术学报, 2019, 37(1):10-15.
- [10] PLEADIN J, FRECE J, MARKOV K. Mycotoxins in food and feed[J]. Advances in Food and Nutrition Research, 2019, 89(2):297-345.
- [11] 廖子龙,于英威,唐坤,等. 农作物中真菌毒素研究进展[J]. 粮油仓储科技通讯, 2019, 35(2):47-49, 56.
- [12] ALSHANNAQ A, YU J H. Occurrence, toxicity, and analysis of major mycotoxins in food [J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2017, 14(6):632.
- [13] 李雅静,秦曙,杨艳梅,等. 中国谷物真菌毒素污染研究现状[J]. 中国粮油学报, 2020, 35(3):186-194.
- [14] THIELECKE F, NUGENT A P. Contaminants in grain—A major risk for whole grain safety? [J]. Nutrients, 2018, 10(9):1213.
- [15] 吴芳,严晓平,杨玉雪. 我国农户2016年储藏稻谷黄曲霉毒素B<sub>1</sub>污染情况调查[J]. 粮食储藏, 2017, 46(6):35-39.
- [16] KAMLE M, MAHATO D K, DEVI S, et al. Fumonisin: impact on agriculture, food, and human health and their management strategies [J]. Toxins, 2019, 11(6):328.
- [17] 郭耀东,刘艺茹,袁亚宏,等. 我国主要食品中伏马菌素污染水平分析与风险评估[J]. 西北农林科技大学学报(自然科学版), 2014, 42(1):78-82, 88.
- [18] ORTIZ J, VAN CAMP J, MESTDAGH F, et al. Mycotoxin co-occurrence in rice, oat flakes and wheat noodles used as staple foods in Ecuador [J]. Food Additives & Contaminants: Part A, 2013, 30(12):2165-2176.
- [19] 武琳霞,李培武,丁小霞,等. 农产品真菌毒素混合污染与累积风险评估研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2018, 9(14):3553-3560.
- [20] 袁航. 粮食中主要真菌毒素危害及联合毒性研究进展[J]. 食品与机械, 2019, 35(11):223-227.
- [21] ASSUNÇÃO R, VASCO E, NUNES B, et al. Single-compound and cumulative risk assessment of mycotoxins present in breakfast cereals consumed by children from Lisbon region, Portugal [J]. Food and Chemical Toxicology, 2015, 86(10):274-281.
- [22] EFSA Panel on Contaminants in the Food Chain (CONTAM), KNUTSEN H K, ALEXANDER J, et al. Risks to human and animal health related to the presence of deoxynivalenol and its acetylated and modified forms in food and feed [J]. EFSA Journal European Food Safety Authority, 2017, 15(9):4718.
- [23] HAN Z, NIE D, EDIAGE E N, et al. Cumulative health risk assessment of co-occurring mycotoxins of deoxynivalenol and its acetyl derivatives in wheat and maize: case study, Shanghai, China [J]. Food and Chemical Toxicology, 2014, 74(10):334-342.
- [24] 刘晓庚. 储粮中真菌毒素及其防控[J]. 粮食与油脂, 2008(8):37-41.
- [25] 吕聪,邢福国,刘阳. 国内外真菌毒素防控新技术[J]. 中国猪业, 2017, 12(6):27-32.
- [26] 姜楠,王祖梁,王瑶,等. 紫外线照射对农产品中真菌毒素的防控作用研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2018, 9(22):5799-5805.