

2019年云南省售大米真菌毒素污染水平及风险评估

李文廷¹, 申颖¹, 李洁¹, 冉亚莉¹, 董玉英¹, 李旭^{1*}, 栾杰^{2*}

(1. 昆明市疾病预防控制中心, 昆明 650228; 2. 云南省疾病预防控制中心, 昆明 650022)

摘要: **目的** 检测云南省市售大米中16种真菌毒素污染水平, 评估其食用安全风险。**方法** 采用高效液相色谱-串联质谱法(high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry, HPLC-MS/MS)对大米中的真菌毒素进行检测分析, 并对检测结果进行食用安全性评估。**结果** 云南省市售大米中16种真菌毒素检出率为73.3%, 含量范围为未检出(not detected, ND)~2891 $\mu\text{g}/\text{kg}$, 其中黄曲霉毒素B₁超过国家限量标准, 超标率为10.0%; 本次调查HT-2毒素暴露量为0.0836 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$, 超过食品添加剂联合专家委员会(Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives, JECFA)规定的暂定每日最大耐受摄入量(provisional maximum tolerable daily intake, PMTDI) 0.06 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$ 。雪腐镰刀烯醇是JECFA规定PMDTI的10种真菌毒素中贡献率最高的真菌毒素, 达48.03%。**结论** 云南省市售大米中真菌毒素的污染水平较低, 由其引起的健康风险较低, 但仍存在一定健康风险。

关键词: 云南; 大米; 真菌毒素; 高效液相色谱-串联质谱法; 风险评估

Contamination level and risk assessment of mycotoxin in rice sold in Yunnan province in 2019

LI Wen-Ting¹, SHEN Ying¹, LI Jie¹, RAN Ya-Li¹, DONG Yu-Ying¹, LI Xu^{1*}, LUAN Jie^{2*}

(1. Kunming Center for Disease Control and Prevention, Kunming 650228, China;
2. Yunnan Center for Disease Control and Prevention, Kunming 650022, China)

ABSTRACT: Objective To detect the contamination level of 16 mycotoxins in the rice sold in Yunnan province and assess their food safety risks. **Methods** The mycotoxins in rice were detected by high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (HPLC-MS/MS), and the edible safety of the detection results was evaluated. **Results** The detection rate of 16 mycotoxins in Yunnan sold rice was 73.3%, and the content range was not detected (ND)-2891 $\mu\text{g}/\text{kg}$. Aflatoxin B₁ exceeded the national limit standard, and the exceeding rate was 10.0%.

基金项目: 昆明市卫生科技人才培养项目暨“十百千”工程培养计划项目(2018-sw(后备)-20)、昆明市卫生计生科研项目(2017-12-06-003)、昆明市卫生科研课题项目(2020-12-06-001)

Fund: Supported by the Kunming Health Science and Technology Talents Training Project (2018-sw(reserve)-20), Kunming Health and Family Planning Research Project (2017-12-06-003), and Kunming Health Research Project (2020-12-06-001)

***通信作者:** 李旭, 硕士, 副主任医师, 主要研究方向为食品安全监测。E-mail: 87150479@qq.com

栾杰, 检验技师, 主要研究方向为食品理化检验。E-mail: 250453179@qq.com

***Corresponding author:** LI Xu, Master, Associate Professor, Kunming Center for Disease Control and Prevention, Kunming 650228, China. E-mail: 87150479@qq.com

LUAN Jie, Inspection Technician, Yunnan Center for Disease Control and Prevention, Shulin Street, Kunming 650022, China. E-mail: 250453179@qq.com

The exposure of HT-2 toxin was 0.0836 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$, exceeding the provisional maximum tolerable daily intake (PMTDI) 0.06 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$ specified by the Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives (JECFA). Nivalenol was the mycotoxin with the highest contribution rate among the 10 mycotoxins of PMDTI specified by JECFA, reaching 48.03%. **Conclusion** The pollution level of mycotoxins in the rice sold in Yunnan province is low, and the health risks caused by them are low, but there are still certain health risks.

KEY WORDS: Yunnan; rice; mycotoxin; high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry; risk assessment

0 引言

真菌毒素是由真菌形成次生代谢产物的有毒物质,广泛存在于农作物及其制品中。目前已知的真菌毒素主要有黄曲霉毒素(aflatoxin, AFT)、镰刀菌毒素、赭曲霉毒素 A (ochratoxin, OTA)、玉米赤霉烯酮(zearalenone, ZEN)、伏马菌素(fumonisin, FB)等^[1-3]。农作物在生长阶段、采摘时节、产品加工及储存过程中均可能会受到真菌毒素污染,目前产生的影响已经导致全世界粮食每年减产 10%~30%^[4-6]。据不完全统计,全世界大约有 25%的粮食产品被真菌毒素污染^[7-9],真菌毒素对人体及动物的健康具有极大的威胁,可造成急性、亚急性或慢性中毒,甚至能抑制免疫系统,导致致癌、致畸、致突变等中毒症状,给食品安全、人类健康带来严重危害^[10-15]。随着气候变暖和环境恶化,真菌毒素污染已成为我国粮食安全的严峻问题。

近年来,云南省主要谷类食品中多种真菌毒素污染情况鲜有报道,真菌毒素暴露水平和健康风险未知。目前真菌毒素的监测方法主要为单一类型毒素检测,所使用仪器也各有不同,有高效液相色谱仪、高效液相色谱串联衍生仪、高效液相色谱-串联质谱仪等^[16-20]。为了解粮食及其制品中真菌毒素污染情况,本研究对云南省大米进行抽检,通过高效液相色谱-串联质谱法对样品中 16 种真菌毒素进行同时测定,分析真菌毒素在云南省大米中的污染水平,评估云南省市售大米中真菌毒素的暴露风险,以期为促进精准监管和科学防治提供参考,为风险管理提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 实验材料

依据云南省 2019 年开展的监测工作计划,样品采自云南省 12 个州市具有代表性的农贸市场或粮油店,并且分别在市区、郊区及乡镇等不同社会区域进行样品采集,共计 90 份,采样情况见表 1。

1.2 仪器与试剂

1290II型超高效液相-串联 QTRAP 4500 型质谱仪(配备电喷雾离子源,美国 Agilent 公司,美国 AB SCIEX 公司);

XS205DU 型分析天平(瑞士 Mettler Toledo 公司); KQ-500DE 型数控超声波清洗器(昆山市超声仪器有限公司); Arium pro D1 纯水处理终端机(德国 Sartorius 公司); 3H16RI 型智能台式高速冷冻离心机(湖南赫仪器装备有限公司)。

表 1 大米样品采样情况
Table 1 Sampling situation of rice samples

采样地点	样品种类及件数			共计件数
	早籼稻	中晚籼稻	粳稻	
玉溪	2	-	-	2
保山	-	4	-	4
普洱	-	4	-	4
昭通	-	6	2	8
怒江	-	9	-	9
大理	-	6	13	19
西双版纳	-	1	1	2
楚雄	-	-	5	5
红河	-	7	-	7
曲靖	-	-	8	8
临沧	-	18	-	18
文山	-	4	-	4
合计	2	59	29	90

注:“-”表示未采样。

16 种标准品: 脱氧雪腐镰刀菌烯醇(deoxynivalenol, DON)、雪腐镰刀菌烯醇(nivalenol, NIV)、3-乙酰基脱氧雪腐镰刀菌烯醇(3-acetyldeoxynivalenol, 3-AcDON)、15-乙酰基脱氧雪腐镰刀菌烯醇(15-AcDON)、伏马毒素 B₁ (FB₁)、伏马毒素 B₂ (FB₂)、伏马毒素 B₃ (FB₃)、黄曲霉毒素 B₁ (AFTB₁)、黄曲霉毒素 B₂ (AFTB₂)、黄曲霉毒素 G₁ (AFTG₁)、黄曲霉毒素 G₂ (AFTG₂)、玉米赤霉烯酮(ZEN)、赭曲霉毒素 A (OTA)、T-2 毒素(T-2)、HT-2 毒素(HT-2)、杂色曲霉毒素(sterigmatocystin, ST)及对应的 16 种同位素内标($\geq 99.5\%$, 中国 Pribolab 公司); 小麦粉和玉米粉中真菌毒素质控样(美国 Romer Labs Diagnostic Gmbh 公司); 甲醇、乙腈(色谱纯,

美国 Sigma-Aldrich 公司); 实验中所用水为去离子水。

1.3 云南地区大米消费量数据

根据 2002 年中国营养与健康状况调查^[21]中云南省的调查结果, 通过各阶段分层与人口成比例的整群进行随机抽样, 选取云南省 6 个州市 1974 人, 并通过 3 d 24 h 膳食回顾法进行入户调查, 最终得到云南省居民对大米平均消费量数据及各类食物消费情况。

1.4 累积暴露风险评估方法

根据真菌毒素的含量和市售大米消费量, 通过点评估方法获取单个真菌毒素的膳食暴露量, 计算公式如下:

$$\text{Exp} = \sum_{k=1}^n \frac{F_k \times C_k}{W \times 1000}$$

其中: Exp 为真菌毒素的膳食暴露量(每天每公斤体重真菌毒素的摄入量), $\mu\text{g}/\text{kg} \cdot \text{d}$; F_k 为第 k 种大米的消费量, kg/d ; C_k 为第 k 中市售大米中真菌毒素的平均含量, mg/kg ; W 为体重, kg 。

通过上述公式可获得云南大米中真菌毒素食用暴露量, 进而计算不同性别平均暴露量, 获得的暴露量与食品添加剂联合专家委员会(Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additive, JECFAs)规定的暂定每日最大耐受摄入量(provisional maximum tolerable daily intake, PMTDI)进行比较, 当暴露量超过 PMTDI 时认为可能存在慢性健康风险。

1.5 实验方法

1.5.1 标准溶液配制

分别将 16 种真菌毒素的单一标准储备液用乙腈稀释为 $1 \mu\text{g}/\text{mL}$ 的混合标准中间液, 同位素内标稀释为 $250 \mu\text{g}/\text{L}$ 的标准储备液, 根据 16 种真菌毒素在质谱多反应监测(multiple reaction monitoring, MRM)模式下响应强度, 将其配制成不同浓度的混标溶液, 使用时用流动相的初始

比例溶液配制系列标准工作液, 每个标准浓度点均含有定量同位素内标物质。

1.5.2 样品制备

精确称取 5.0 g 试样(精确到 0.01 g)置于 50 mL 具塞塑料离心管中, 加 20 mL 乙腈-水-甲酸(70:29:1, V:V:V), 加入与标准系列溶液中具有同等量的真菌毒素混合同位素内标工作液, 置于多功能涡旋振荡器上提取 30 min, 10000 r/min 下离心 5 min, 将上清液全部通过多功能净化柱净化, 收集洗脱液, $50 \text{ }^\circ\text{C}$ 下用氮气吹至近干, 加入 0.5 mL 20% 的乙腈-水溶液溶解, 0.22 μm 滤膜过滤, 滤液待进样。

1.5.3 色谱条件

色谱柱为 Waters BEH C_{18} 柱 (2.1 mm \times 50 mm, 1.8 μm), 柱温为 $40 \text{ }^\circ\text{C}$, 流动相: B 相: 0.2% 氨水(ESI⁻)/0.2% 甲酸水溶液(ESI⁺); A 相: 乙腈, 流速为 0.3 mL/min, 进样体积为 15 μL , 检测运行时间为 10.0 min。

1.5.4 质谱条件

离子源为电喷雾离子源(electrospray ion, ESI), 温度为 $550 \text{ }^\circ\text{C}$; 分别采用正、负离子扫描模式; 离子喷雾电压为 5500.0 V; 气帘气为 25 psi; 雾化气(gas 1)为 55 psi; 辅助气(gas 2)为 55 psi; 通过多重反应监测模式进行检测。质谱条件见表 2。

2 结果与分析

2.1 线性关系考察

将 16 种真菌毒素及同位素内标按照上述条件进行测试, 以定量离子峰的峰面积为纵坐标, 质量浓度($\mu\text{g}/\text{L}$)为横坐标绘制标准曲线, 通过在空白基质中加入 16 种目标化合物组分的方法, 以 3 倍信噪比(S/N)时对应的浓度计算出检出限(limit of detection, LOD), 以 10 倍信噪比时对应的浓度计算出定量限(limit of quantitation, LOQ), 详细线性关系的实验数据见表 3, 可知方法线性关系较好, 灵敏度较高。

表 2 16 种真菌毒素及同位素内标的质谱参数
Table 2 Mass spectrum parameters for 16 kinds of mycotoxins and isotope internal standards

真菌毒素	母离子(m/z)	子离子(m/z)	保留时间/min	锥孔电压/V	碰撞能/V
NIV	310.9	182.9*	3.14	-137	-43
		197.0		-137	-47
DON	295.0	137.8*	3.45	-72	-23
		173.0		-72	-40
3-AcDON	337.0	183.0*	5.89	-73	-40
		208.9		-73	-48
15-AcDON	337.0	150.1*	5.09	-71	-26
		135.2		-71	-30
ZEN	317.9	130.9*	6.77	-132	-38
		174.9		-132	-31

表2(续)

真菌毒素	母离子(m/z)	子离子(m/z)	保留时间/min	锥孔电压/V	碰撞能/V
AFTG ₂	331.3	245.0*	3.21	122	41
		257.1		122	41
AFTG ₁	329.1	243.1*	4.06	120	36
		215.1		120	42
AFTB ₂	314.9	259.0*	4.10	124	39
		286.9		124	35
AFTB ₁	313.4	241.0*	4.46	121	48
		269.0		121	40
T-2	484.0	305.1*	6.54	80	44
		185.0		80	32
HT-2	425.3	263.0*	6.09	75	35
		245.0		75	33
FB ₁	722.4	352.4*	4.72	130	47
		334.2		130	52
FB ₂	706.4	336.2	6.31	130	47
		318.4		130	50
FB ₃	706.5	336.4*	5.64	120	49
		354.2		120	43
OTA	404.0	238.9*	6.89	120	31
		341.0		120	25
ST	325.0	309.9*	7.15	115	34
		281.0		115	50
¹³ C-NIV	325.9	295.1	3.14	-73	-18
¹³ C-DON	309.9	279.2	3.45	-82	-18
¹³ C-3-AcDON	354.0	184.0	5.89	-78	-40
¹³ C-15-AcDON	354.3	184.1	5.09	-80	-40
¹³ C-ZEN	335.0	185.0	6.77	-95	-32
¹³ C-AFTG ₂	348.0	259.1	3.21	115	42
¹³ C-AFG ₁	346.0	257.2	4.06	111	37
¹³ C-AFTB ₂	332.2	303.0	4.10	118	37
¹³ C-AFTB ₁	330.0	255.0	4.46	125	51
¹³ C-T-2	508.2	322.2	6.54	80	19
¹³ C-HT-2	447.2	278.1	6.09	73	14
¹³ C-FB ₁	756.4	356.4	4.72	133	54
¹³ C-FB ₂	740.4	358.4	6.31	132	51
¹³ C-FB ₃	740.4	358.3	5.64	123	50
¹³ C-OTA	424.0	250.0	6.89	120	33
¹³ C-ST	343.0	327.1	7.15	112	34

备注: *为定量离子, -表示为负离子扫描模式。

2.2 加标回收实验

取不含目标物的基质样品进行加标回收实验, 分别添加低、中、高 3 种浓度水平的混合标准溶液, 每个浓度进行 6 次平行测定, 按照样品前处理条件进行处理并测定,

并计算相对标准偏差考察方法精密度, 平均回收率为 84.2%~102.7%, 相对标准偏差(relative standard deviation, RSD)为 2.18%~4.78%, 方法精密度和回收率均较高, 具体结果见表 4。

表 3 16 种真菌毒素的线性参数、检出限及定量限
Table 3 Linear parameters, limits of detection and limits of quantification of 16 kinds of mycotoxins

真菌毒素	线性方程	相关系数 r	线性范围/($\mu\text{g/L}$)	检出限/($\mu\text{g/kg}$)	定量限/($\mu\text{g/kg}$)
AFTB ₁	$Y=9930.1X-1078.4$	0.9996	0.05~20.0	0.1	0.40
AFTB ₂	$Y=654.1X-355.7$	0.9994	0.05~20.0	0.1	0.40
AFTG ₁	$Y=8871.2X+288.1$	0.9993	0.05~20.0	0.2	0.80
AFTG ₂	$Y=123.9X+205.2$	0.9990	0.05~20.0	0.5	2.0
T-2	$Y=79.8X+256.7$	0.9994	0.5~100.0	1.5	6.0
HT-2	$Y=56.8X+186.6$	0.9992	1.0~100.0	1.5	6.0
FB ₁	$Y=976.3X-264.5$	0.9987	0.5~100.0	10.0	35
FB ₂	$Y=21465.6X-3645.3$	0.9986	0.5~100.0	10.0	35
FB ₃	$Y=45681.2X-5214.7$	0.9979	0.5~100.0	40.0	150
ST	$Y=796.5X+384.6$	0.9990	0.1~50.0	5.0	17.0
OTA	$Y=9930.1X-1078.4$	0.9995	0.5~100.0	5.0	17.0
NIV	$Y=49875.8X+31468.2$	0.9973	5.0~200.0	30.0	100
DON	$Y=189.5X+48.6$	0.9996	5.0~200.0	5.0	17
3-AcDON	$Y=469.2X+268.4$	0.9991	5.0~200.0	6.0	20
15-AcDON	$Y=605.3X+361.9$	0.9993	5.0~200.0	6.0	20
ZEN	$Y=2576.4X+764.5$	0.9998	0.5~100.0	5.0	17

表 4 真菌毒素的加标回收率($n=6$)
Table 4 Recoveries of mycotoxins ($n=6$)

名称	添加 1		添加 2		添加 3	
	回收率/%	RSD/%	回收率/%	RSD/%	回收率/%	RSD/%
AFTB ₁	90.4	3.51	90.8	3.25	91.3	3.08
AFTB ₂	91.2	4.31	91.5	4.42	92.8	3.94
AFTG ₁	89.5	4.58	90.1	4.43	91.2	4.03
AFTG ₂	90.3	3.24	92.4	3.74	92.2	2.45
T-2	84.2	4.12	86.3	4.37	88.6	3.85
HT-2	84.6	3.54	85.1	4.20	88.7	3.62
NIV	86.4	2.52	88.9	3.57	91.5	2.58
FB ₁	94.5	3.63	96.0	3.54	102.7	4.24
FB ₂	91.1	4.25	93.8	4.32	95.2	4.78
FB ₃	91.2	3.68	92.1	3.71	94.5	4.30
DON	90.3	4.25	91.5	4.08	94.1	3.51
3-AcDON	91.3	3.62	92.0	3.16	93.3	3.62
15-AcDON	87.5	4.26	89.1	4.06	90.2	4.42
ZEN	92.6	2.86	94.7	2.58	97.3	3.05
ST	87.3	4.03	87.9	4.23	89.5	4.07
OTA	92.5	3.25	95.6	2.18	95.3	2.84

2.3 实际样品测定分析

2.3.1 云南地区市售大米中真菌毒素污染情况分析

云南地区市售大米中真菌毒素检出情况见表 5。云南省市售大米中 16 种真菌毒素检出率为 73.3%，含量范围为未检出(not detected, ND)~2891 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。90 份样品中市售大米中，各真菌毒素的检出率按照从高到低为：FB₁>ZEN>NIV=AFTB₁>OTA>DON>15-ACDON，其余 9 种真菌毒素均为未检出。根据 GB 2761—2017《食品安全国家标准食品中真菌毒素限量》中标准限值的规定，样品中 DON 和

ZEN 均未有超标结果，有 9 份样品中 AFTB₁ 结果超标，并且超标样品均为同一个地州送样，超标率为 10.0%。

2.3.2 云南省市售大米样品检出情况相关性分析

如图 1 所示，在监测的 90 份云南地区市售大米样品中，样品的检出率为 73.3% (66/90)。在检出的 66 份样品中，同时检出 6 种真菌毒素的样品为 1 份；同时检出 4 种真菌毒素的样品为 5 份；同时检出 3 种真菌毒素的样品为 12 份；同时检出 2 种真菌毒素的样品为 19 份；检出 1 种真菌毒素的样品为 29 份。

表 5 16 种真菌毒素在大米中的污染情况
Table 5 Contamination of 16 kinds of mycotoxins in rice

样品名称	样品份数	阳性份数	检出率/%	样品含量/ $(\mu\text{g}/\text{kg})$						标准限值 $(\mu\text{g}/\text{kg})$	
				P_{25}	P_{50}	P_{75}	P_{90}	P_{95}	最大值	平均值	
NIV	90	12	13.33	17.50	17.50	17.50	344.10	811.25	2891.00	125.16	--
DON	90	6	6.67	2.50	2.50	2.50	2.50	90.12	501.00	15.42	1000
3-ACDON	90	0	0.00	3.25	3.25	3.25	3.25	3.25	3.25	3.25	--
15-ACDON	90	5	5.56	3.75	3.75	3.75	3.75	18.39	96.10	5.84	--
ZEN	90	34	37.78	2.50	2.50	22.43	49.79	56.35	59.30	14.51	60
AFTG ₂	90	0	0.00	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	--
AFTG ₁	90	0	0.00	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	0.10	--
AFTB ₂	90	0	0.00	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	--
AFTB ₁	90	12	13.33	0.05	0.05	0.05	11.08	28.98	56.80	3.25	10
T-2	90	0	0.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	--
HT-2	90	0	0.00	12.50	12.50	12.50	12.50	12.50	12.50	12.50	--
FB ₁	90	52	57.78	5.00	19.75	59.30	115.07	222.50	318.00	44.77	--
FB ₂	90	0	0.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	5.00	--
FB ₃	90	0	0.00	25.00	25.00	25.00	25.00	25.00	25.00	25.00	--
OTA	90	10	11.11	0.25	0.25	0.25	0.72	1.62	3.21	0.40	5
ST	90	0	0.00	2.50	2.50	2.50	2.50	2.50	2.50	2.50	--

注：--表示无 GB 2761—2017 规定的限量标准。 P_{25} ：表示 90 份样品中有 25% 的样品小于列表中对应的浓度值， P_{50} ， P_{75} ， P_{90} ， P_{95} 以此类推。

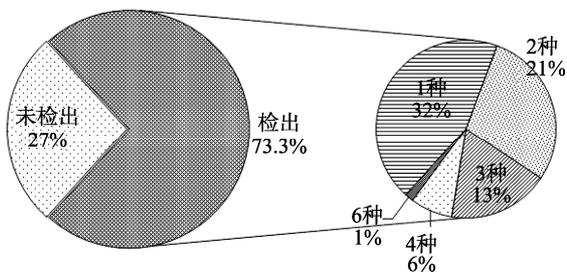


图 1 云南省市售大米样品检出情况相关性分析

Fig.1 Correlation analysis of rice samples in Yunnan province

2.3.3 云南省居民大米消费量调查

根据 2012 年中国营养与健康状况调查中云南省的调查结果，通过 3 d 24 h 膳食回顾法进行入户调查，得到 1974 名云南省居民对大米的消费情况。18 岁以上成年人具

体消费量按照云南省大米平均消费量计算得到。根据 2015 年 6 月 30 日发布《中国居民营养与慢性病状况报告》，2012 年我国 18 岁及以上成年男性平均体重男为 66.2 kg，成年女性体重为 57.3 kg^[22]。男性居民大米的消费量为 434.99 g/(人·d)，女性居民大米的消费量为 375.91 g/(人·d)，云南省居民大米的平均消费量为 401.23 g/(人·d)。

2.3.4 云南居民市售大米暴露量评估

各类真菌毒素的慢性暴露水平如表 6 所示，调查的 1974 名居民中，大米的真菌毒素的膳食暴露量为 1.7102 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$ 。本次调查 HT-2 毒素暴露量为 0.0836 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$ ，超过规定 JECFA 规定的暂定每日最大耐受摄入量(PMTDI)的 0.06 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$ ，男性居民的平均暴露量为 0.0821 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$ ，女性居民平均暴露量为 0.0820 $\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$ 。其他毒素未超过相关标准。

2.3.5 各类真菌毒素贡献率

由图 2 可知, 平均暴露量的贡献率最高的真菌毒素为

NIV (48.03%), 其次为 FB₁ (17.53%)及 FB₃ (9.58%), 其余真菌毒素均相对较低。

表 6 云南省居民大米中真菌毒素风险暴露情况分析
Table 6 Analysis of risk exposure of mycotoxins in rice of residents in Yunnan province

类别	男性/($\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$)	女性/($\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$)	合计/($\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$)	JECFA 暂定的 <i>PMTDI</i> /($\mu\text{g}/\text{kg}\cdot\text{d}$)
NIV	0.8070	0.8057	0.8213	1.00
FB ₁	0.2946	0.2942	0.2999	2.00
FB ₃	0.1611	0.1608	0.1639	2.00
DON	0.0995	0.0993	0.1012	1.00
ZEN	0.0936	0.0935	0.0953	0.50
HT-2	0.0821	0.0820	0.0836	0.06
15-ACDON	0.0380	0.0380	0.0387	1.00
FB ₂	0.0322	0.0321	0.0328	2.00
3-ACDON	0.0214	0.0213	0.0217	--
AFTB ₁	0.0209	0.0209	0.0213	--
ST	0.0164	0.0164	0.0167	--
T-2	0.0066	0.0066	0.0067	0.06
AFTG ₂	0.0033	0.0033	0.0033	--
OTA	0.0027	0.0027	0.0027	0.01
AFTG ₁	0.0007	0.0007	0.0007	--
AFTB ₂	0.0003	0.0003	0.0003	--
合计	1.6804	1.6778	1.7102	--

注: --表示暂无 JECFA 规定的 *PMTDI*。

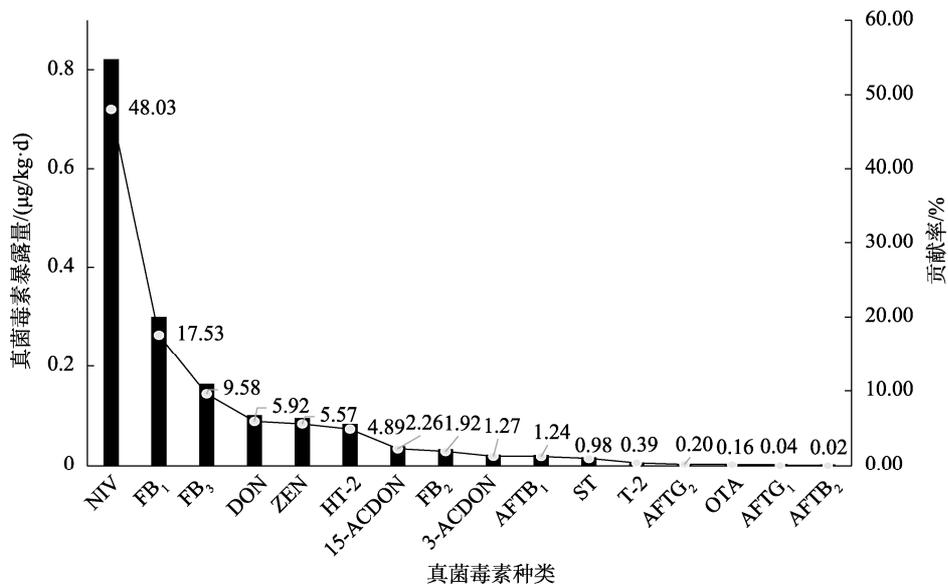


图 2 各种真菌毒素贡献率

Fig.2 Contribution rate of various mycotoxins

3 结 论

云南地区大米存在黄曲霉毒素 AFTB₁ 污染, 与既往资料相比污染水平相近, 存在超标情况。这与 2019 年多雨、高温天气有利于真菌毒素形成的赤霉病流行有关。其他毒素缺乏相关限量标准, 建议制定相关的限量标准, 通过对大米中真菌毒素含量的监控, 确保大米的食用安全。云南省市售大米中存在同一样品中 2 种以上真菌毒素污染的情况, 因此有必要提高对多种真菌毒素同时快速检测的水平。2019 年云南地区市售大米中真菌毒素的污染水平较低, 对食用云南省市售大米对人体产生风险危害较小。但在暴露量的评估中, HT-2 毒素膳食暴露量超过了 JECFA 规定的 PMTDI 值, 仍然存在一定的健康风险。

本研究通过对云南省市售大米中真菌毒素污染情况调查分析与食用安全性评估, 为加强云南地区大米售卖流通环节的安全监督管理, 保障广大消费者对大米食用安全性和消费的合法权益提供科学依据。针对云南地区市售大米现状, 提出以下建议: 应重点加强大米中真菌毒素的监测, 实时监控大米中真菌毒素的含量, 保障广大消费者食用安全健康; 加大真菌次级代谢产物产生机制的研究力度, 从而建立有效的大米及其制品中真菌毒素产生的预防、控制和脱毒技术; 科普真菌毒素产生因素、中毒症状及治疗方法等相关知识, 从最大程度减轻真菌毒素对居民产生的影响。

参考文献

- [1] 赵亚荣, 曾睿, 陈佩榕, 等. 我国大陆地区食品中柄曲霉毒素和真菌毒素 B₁ 的污染调查[J]. 食品安全质量检测学报, 2020, 11(24): 9108–9114. ZHAO YR, ZENG R, CHEN PR, *et al.* Investigation on the contamination of sterigmatocystin and aflatoxin B₁ in food from mainland China [J]. J Food Saf Qual, 2020, 11(24): 9108–9114.
- [2] 巩桂花, 徐淑芝, 于森, 等. 粮食储藏过程中黄曲霉毒素检测与去除研究进展[J]. 粮食与油脂, 2019, 32(3): 6–8. GONG GH, XU SZ, YU M, *et al.* Research progress on detection and removal of aflatoxins in grain storage [J]. Cereals Oils, 2019, 32(3): 6–8.
- [3] 任贝贝, 王丽英, 路杨, 等. 河北省小麦、玉米及其制品中 16 种真菌毒素污染水平调查与分析[J]. 食品安全质量检测学报, 2021, 12(5): 1669–1676. REN BB, WANG LY, LU Y, *et al.* Investigation and analysis of 16 kinds of mycotoxins pollution levels in wheat, corn and products in Hebei province [J]. J Food Saf Qual, 2021, 12(5): 1669–1676.
- [4] 李俊玲, 王书舟, 吴俊威, 等. 河南省粮食及其制品中真菌毒素污染情况调查[J]. 中国食品卫生杂志, 2020, 32(4): 418–421. LI JL, WANG SZ, WU JW, *et al.* Investigation of mycotoxins in grain and its products in Henan province [J]. Chin J Food Hyg, 2020, 32(4): 418–421.
- [5] 胡文敏, 董海燕, 宁忻, 等. 云南省部分食品黄曲霉毒素 B₁ 膳食暴露风险评估[J]. 食品安全质量检测学报, 2020, 11(15): 5215–5219. HU WM, DONG HY, NING X, *et al.* Risk assessment of dietary exposure to aflatoxin B₁ in parts foods in Yunnan province [J]. J Food Saf Qual, 2020, 11(15): 5215–5219.
- [6] 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. LI YJ, QIN S, YANG YM, *et al.* Research status of mycotoxin contamination in grains in China [J]. Chin J Cere Oils, 2020, 35(3): 186–194.
- [7] BRYLA M, WASKIEWICZ A, PODOLSKA G, *et al.* Occurrence of 26 mycotoxins in the grain of cereals cultivated in Poland [J]. Toxins (Basel), 2016, 8(6): 160.
- [8] JUAN C, COVARELLI L, BECCARI G, *et al.* Simultaneous analysis of twenty-six mycotoxins in durum wheat grain from Italy [J]. Food Control, 2016, 62: 322–329.
- [9] 陈皆全. 2017—2019 年百色市玉米真菌毒素污染状况调查及分析[J]. 食品安全质量检测学报, 2020, 11(12): 4029–4033. CHEN JQ. Investigation and analysis on mycotoxin pollution of maize in Baise city from 2017 to 2019 [J]. J Food Saf Qual, 2020, 11(12): 4029–4033.
- [10] IBANEZ-VEA M, LIZARRAGA E, GONZALEZ-PENAS E, *et al.* Co-occurrence of type-A and type-B trichothecenes in barley from a northern region of Spain [J]. Food Control, 2012, 25(1): 81–88.
- [11] MIMOUNE NA, ARROYO MN, GAMIZ GL, *et al.* *Aspergillus section Flavi* and aflatoxins in dried figs and nuts in Algeria [J]. Food Addit Contam Part B, 2018, 11(2): 119–125.
- [12] SCHONEBERG T, JENNY E, WETTSTEIN FE, *et al.* Occurrence of *Fusarium* species and mycotoxins in Swiss oats—Impact of cropping factors [J]. Eur J Agron, 2018, 92: 123–132.
- [13] SCHOEMAN A, FLETT BC, RENSBERG B, *et al.* Evaluating three commonly used growth media for assessing fumonisin analogues FB₁, FB₂ and FB₃ production by nine *Fusarium verticillioides* isolates [J]. Food Addit Contam, 2016, 34(2): 291–298.
- [14] TAVARES A, MENDONCA I, LOURO H, *et al.* A contribution to hazard assessment of combined exposure to mycotoxins using *in vitro* toxicity testing [J]. Toxicol Lett, 2015, 238: 352–353.
- [15] World Health Organization. Second workshop on reliable evaluation of low-level contamination of food [Z]. 1995.
- [16] 唐笑, 任文洁, 陈波, 等. 江西省大米中黄曲霉毒素 B₁ 分析及膳食暴露评估[J]. 食品科技, 2015, 40(3): 315–319. TANG X, REN WJ, CHEN B, *et al.* Analysis of Aflatoxins B₁ in rice and assessment of dietary exposure in Jiangxi province [J]. Food Sci Technol, 2015, 40(3): 315–319.
- [17] 李文廷, 张瑞雨, 张秀清, 等. 大米中 16 种真菌毒素同时检测分析[J]. 食品安全质量检测学报, 2019, 10(12): 3886–3894. LI WT, ZHANG RY, ZHANG XQ, *et al.* Simultaneous detection and analysis of 16 mycotoxins in rice [J]. J Food Saf Qual, 2019, 10(12): 3886–3894.
- [18] 胡佳薇, 田丽, 王敏娟, 等. 陕西省 120 份市售玉米及其制品中真菌毒素的污染状况调查[J]. 现代预防医学, 2017, 44(9): 1593–1596, 1606. HU JW, TIAN L, WANG MJ, *et al.* Mycotoxins contamination in 120 corn products on sale, Shaanxi [J]. Mod Prev Med, 2017, 44(9): 1593–1596, 1606.
- [19] 李蓉, 黄莹偲, 王勇, 等. 食品中真菌毒素检测技术的研究进展[J]. 中国卫生检验杂志, 2015, 25(18): 3195–3198. LI R, HUANG YS, WANG Y, *et al.* Research progress on detection

technology of mycotoxins in food [J]. *Chin J Health Inspect*, 2015, 25(18): 3195-3198.

- [20] 邹忠义, 贺稚非, 李洪军, 等. 单端孢霉烯族毒素及其脱毒微生物国外研究进展[J]. *食品工业科技*, 2012, 33(8): 384-389.

ZOU ZY, HE ZF, LI HJ, *et al.* Research progress of trichothecene group toxins and their detoxifying microorganisms in foreign countries [J]. *Sci Technol Food Ind*, 2012, 33(8): 384-389.

- [21] 杨晓光. 2002 年中国居民营养与健康状况调查[C]. 北京: 营养与健康研究新进展国际学术研讨会论文集, 2005.

YANG XG. A description on the Chinese national nutrition and health survey in 2002 [C]. Beijing: Conference Proceeding of International Symposium on Nutrition and Health Research New Progress, 2005.

- [22] 顾景范. 《中国居民营养与慢性病状况报告(2015)》解读[J]. *营养学报*, 2016, 38(6): 525-529.

GU JF. Interpretation of the *Report on nutrition and chronic diseases in Chinese residents (2015)* [J]. *Acta Nutr Sin*, 2016, 38(6): 525-529.

(责任编辑: 韩晓红 于梦娇)

作者简介



李文廷, 硕士, 副主任技师, 主要研究方向为食品和水质的质量与安全。

E-mail: lwt0883@qq.com

李旭, 硕士, 副主任医师, 主要研究方向为食品安全监测。

E-mail: 87150479@qq.com



栾杰, 检验技师, 主要研究方向为食品理化检验。

E-mail: 250453179@qq.com