

论著

小麦籽粒及其制品中交链孢毒素在仓储及加工过程中污染变化特征研究

周颖颖^{1,2,3}, 谢继安⁴, 刘柏林⁴, 梁江², 宁钧宇^{1,3}

(1. 首都医科大学公共卫生学院, 北京 100069; 2. 国家食品安全风险评估中心, 北京 100022; 3. 北京市疾病预防控制中心, 北京 100013; 4. 安徽省疾病预防控制中心, 安徽 合肥 231299)

摘要:目的 研究不同仓储环境温湿度和加工方式对小麦籽粒中4种交链孢毒素(AME、AOH、TeA、TEN)污染水平及其变化特征的影响,为小麦及其制品全产业链安全风险防控提供科学依据。方法 对某省随机抽样获得阳性样本进行储存实验,随后加工为馒头、面条和面包。测定仓储过程及加工前后4种交链孢毒素的污染水平,并通过变化系数评估仓储和加工对毒素残留的影响。结果 在12月的仓储期内,小麦中4种交链孢毒素污染水平呈现先降后稳的趋势,但仓储时间对污染水平无显著性影响($P>0.05$)。AME、AOH、TeA、TEN在仓储过程中的平均变化系数分别为0.77、0.61、0.51、0.73;仓储期间粮库规范温湿度对毒素污染水平的影响差异无统计学意义($P>0.05$)。不同加工方式对4种交链孢毒素污染水平的影响也差异无统计学意义($P>0.05$),且4种小麦制品的污染水平平均变化系数均 <1 。结论 规范仓储条件下,温湿度对交链孢毒素污染水平影响有限,且交链孢毒素含量在12个月内呈现先降后稳的趋势。同时,小麦加工为制品能有效降低交链孢毒素污染水平。变化系数为评估不同加工工艺去毒或减毒效果提供了量化依据,可为交链孢毒素风险评估提供参考。

关键词:交链孢毒素;真菌毒素;食品安全;储存实验;小麦加工

中图分类号:R155 文献标识码:A 文章编号:1004-8456(2025)05-0412-10

DOI:10.13590/j.cjfh.2025.05.002

Research on the contamination variation characteristics of alternaria toxins in wheat grains and their products during storage and processing

ZHOU Yingying^{1,2,3}, XIE Ji'an⁴, LIU Bolin⁴, LIANG Jiang², NING Junyu^{1,3}

(1. School of Public Health, Capital Medical University, Beijing 100069, China; 2. China National Center for Food Safety Risk Assessment, Beijing 100022, China; 3. Beijing Center for Disease Control and Prevention, Beijing 100013, China; 4. Anhui Provincial Center for Disease Control and Prevention, Anhui Hefei, 231299, China)

Abstract: Objective To investigate the effects of different storage temperatures humidity, and processing methods on the contamination levels of four types of Alternaria toxins (AME, AOH, TeA, TEN) in wheat grains, as well as their variations, providing a scientific basis for the safety risk control across the entire wheat and wheat product industry chain. **Methods** Positive samples were obtained from random sampling in a province for storage experiments and subsequently processed into steamed buns, noodles and bread. The contamination levels of the four types of Alternaria toxins were determined before and after the storage process and processing, and the effects of storage and processing on toxin residues were assessed by the processing factor. **Results** During the 12-month storage period, the content of the four types of alternaria toxins in wheat showed a trend of first decreasing and then stabilizing. However, the storage duration had no significant effect on contamination levels ($P>0.05$). The average processing factors for AME, AOH, TeA, and TEN was 0.77, 0.61, 0.51, and 0.73, respectively. There was no statistically significant difference in the effect of temperature

收稿日期:2025-02-25

基金项目:北京市高层次公共卫生技术人才建设项目(02-08)

作者简介:周颖颖 女 在读研究生 研究方向为公共卫生 E-mail:zyzyzyzy1021@163.com

通信作者:宁钧宇 男 研究员 研究方向为食品安全风险评估、毒理病理学 E-mail:ningjy@gmail.com

梁江 女 研究员 研究方向为食品安全风险评估 E-mail:liangjiang@cfssa.net.cn

宁钧宇和梁江为共同通信作者

and humidity on toxin contamination levels during storage ($P>0.05$). The impact of different processing methods on the contamination levels of the four mycotoxins also showed no significant difference ($P>0.05$), and the average processing factors for contamination levels in wheat products were less than 1. **Conclusion** Alternaria toxins contamination level was limited by temperature and humidity under standardized storage conditions, and the alternaria toxins levels showed a trend of first decrease and then stabilization within 12 months. Meanwhile, processing wheat into products effectively reduced the contamination level of alternaria toxins. The processing factor provide a quantitative basis for evaluating the detoxification or reduction effects of different processing techniques and can provide a reference for risk assessment of Alternaria toxins.

Key words: Alternaria toxins; mycotoxins; food safety; storage experiments; wheat processing

小麦及其制品的安全性直接关系到人类健康。小麦黑胚病是由交链孢霉(*Alternaria spp.*)引发的主要小麦病害之一,在全球范围内广泛分布,其发病率一般为0.3%~66.7%^[1-2]。在我国小麦黑胚病的发生及危害程度日趋严重,一般年份和多雨年份黑胚病的发病率分别为20%~30%和50%~70%^[3]。交链孢毒素是植物病原真菌交链孢菌的次生代谢产物,交链孢菌有着良好的环境适应性,即使在低温或水分胁迫等极端条件下也能存活并产毒,可严重影响小麦的品质和产量^[4]。目前已被鉴定的七十余种交链孢霉毒素中,以交链孢酚(Alternariol, AOH)、交链孢单甲醚(Alternariol Monomethyl Ether, AME)、细交链孢菌酮酸(Tenuazonic Acid, TeA)、赈毒素(Tentoxin, TEN)等为代表^[5]。交链孢毒素可表现出一定的急性毒性、遗传毒性、细胞毒性、生殖发育毒性、内分泌干扰作用及诱导炎症作用等^[6-8]。此外,交链孢毒素还被认为具有致癌性,流行病学研究显示中国河南省林县为食管癌高发地,可能与当地的食用谷物受到交链孢霉污染严重有关^[9]。

研究表明,仓储时间及环境温湿度可显著影响小麦籽粒中真菌毒素的污染水平^[10]。交链孢霉可在10~35℃温度范围内生长繁殖,其最适产毒温度为18~25℃,生长所需的水分活度(α_w)在0.88~0.99^[11]。仓储过程中,小麦籽粒的水分活度与相对湿度密切相关,一般粮仓环境相对湿度在70%下, α_w 低于0.7,可完全抑制真菌毒素的产生^[12]。小麦的加工措施(包括分类、清洗、磨粉,以及发酵、蒸煮、焙烤等加热方式)可通过破坏毒素或使其在食品中重新分布而对毒素消减产生作用^[13]。意大利NOWICKI等^[14]发现磨粉可使小麦中呕吐毒素(Deoxynivalenol, DON)污染水平下降约50%~70%,制成面条可减少约50%~60%。SAMER等^[15]研究表明,在169、205和243℃油炸处理被DON污染的面粉, DON含量分别降低66%、43%和38%。ELIZABET等^[16]通过挤压加工可使小麦中的TeA、AOH、AME分别降低65.6%、87.9%和94.5%。SIEGEL等^[17]研究证明干烘处理

可使面粉中AOH和AME分别减少70%和50%。贺焯宇等^[18]研究发现,磨粉可以有效降低高污染小麦可食部位TeA含量,且烘焙面包的TeA下降程度高于面条和蒸馒头。

因此,优化仓储环境因素及采用适当的加工方法可以控制和减少小麦籽粒及其制品中真菌毒素的含量。当前研究多聚焦于小麦籽粒仓储和加工过程中DON的变化特征研究,而对于交链孢毒素的研究仍较缺乏。因此,本研究通过解析不同仓储阶段环境温湿度因素和不同加工方式对小麦籽粒中4种最常见交链孢毒素(AME、AOH、TeA、TEN)的污染水平及其过程污染变化特征的影响,为小麦及其制品的全产业链安全风险防控提供科学依据。

1 材料与方法

1.1 实验样品

对2020年储存在我国中部省份某标准机械化粮库里的小麦粒每月定点采样,连续12个月,并对储存实验结束后的小麦样品进行加工,最后共得到177份小麦籽粒样品和加工成品样品,每份样品不少于500g,对其进行AME、AOH、TeA和TEN 4种交链孢毒素含量检测。根据原始小麦籽粒样品中的4种交链孢毒素总含量,以初始污染水平的分布百分比(1/3)作为分界点进行划分,将阳性样品划分为低污染组(A组)、中污染组(B组)、高污染组(C组)。

1.2 储存实验

将A组、B组、C组样品分为5个平行样,分别包埋置于某省标准机械化粮库的西北、东北、西南、东南及中央位置,从2020年6月起,储存期为12个月。每月从5个包埋点各取约1kg小麦样品,测定各组中4种交链孢毒素(AME、AOH、TeA、TEN)的平均初始含量。在整个实验过程中,每日记录环境温湿度数据。

1.3 小麦磨粉及其制品加工

A组、B组、C组分别取样小麦粒约1 kg,按照相关标准方法磨粉并加工为馒头、面条和面包。

1.3.1 磨粉

按照农业部《小麦实验制粉方法》NY/T 1094.1—2006至1094.5—2006,以谷物研磨机研磨制备全麦粉(保留麸皮)。取样时弃去表层1/3研磨物,取内部100 g样品于-20℃条件下保存待检测。

1.3.2 馒头制作

按照《小麦储存品质判定规则》GB/T 20571—2006,用小麦粉制作馒头加工蒸制:将200 g小麦粉与溶于40 mL 38℃蒸馏水的酵母混合和面,30℃下发酵45 min,经压片、醒发后100℃蒸煮20 min,成品用搅拌机搅拌均匀。

1.3.3 面条制作

依照《中华人民共和国行业标准 面条用小麦粉》(LS/T 3202—1993)面条用小麦粉方法加工煮制:将200 g小麦粉与100 mL水混合后,通过和面机搅拌,静置20 min后,压片制面,成品用搅拌机搅拌均匀。

1.3.4 面包制作

依照《粮油检验 小麦粉面包烘焙品质评价 快速烘焙法》(GB/T 35869—2018)面包用小麦粉方法加工烘焙:将小麦粉200 g与水100 mL、糖2 g、盐3 g、淀粉酶0.4 g、酵母5.4 g和黄油6 g混合后,在38℃下发酵20 min,成型后醒发40 min后在180℃下烘烤40 min,成品用搅拌机搅拌均匀。

1.3.5 样品处理与存储

加工后的馒头、面条和面包置于-70℃冰箱冷冻过夜后,取出后迅速用钢磨粉碎样品,取100 g试样避光保存于-20℃以下待检测。

1.4 样品检测

1.4.1 前处理和检测方法

样品处理:称取5 g试样于50 mL离心管中,加入20 mL乙腈-水-甲酸(70:29:1, V/V/V)提取液,涡旋混合后于高速振荡器上提取30 min。取1.0 mL提取液,经10 000 rpm离心5 min,吸取0.5 mL上清液,加入1.0 mL水稀释,涡旋混匀后再次离心(10 000 rpm, 5 min)。将所得上清液经0.22 μm有机相滤膜过滤,取180 μL滤液,加入20 μL同位素内标混合溶液,充分混匀后备用。

对稀释后4种交链毒素标准品进行基质匹配校准,基质匹配标准曲线呈良好的线性关系(相关系数 $R^2>0.99$),为采用基质标准曲线与溶剂标准曲线斜率的比值评价基质效应,介于0.9~1.1,表明该方法在一定的浓度范围内线性关系良好;检出限(Limited of detection, LOD)范围是0.01~0.5 μg/kg。

实验过程严格遵循质控标准,标准曲线、相关系数和质控数据均符合国标方法要求。

以GB 5009.22—2016为参考依据,采用同位素内标-超高效液相色谱串联质谱法(UPLC-MS/MS)对仓储过程及加工过程的AME、AOH、TeA、TEN 4种交链毒素水平进行检测。

未检出值根据世界卫生组织(World Health Organization, WHO)和欧洲食品安全局(European Food Safety Authority, EFSA)对未检出数据的处理原则,以1/2 LOD进行替代^[19]。

1.4.2 仪器与试剂

超高效液相色谱串联质谱仪(UPLC-TQ MS, 美国Waters公司),纯水处理器(美国MILLI-Q公司),涡旋振荡器(德国Heidolph公司),ACQUITY UPLC® BEH C18色谱柱(2.1 mm×100 mm, 1.7 μm, 美国Waters公司),研磨机(奥地利Romer Labs公司),温湿度表(中国津制仪表公司),分析天平,高速冷冻离心机(美国Therm Fisher公司,离心半径10.5 cm),离心管。甲醇、乙腈(HPLC级,德国Merck公司),甲酸、乙酸(色谱纯,美国Sigma-Aldrich公司)。AOH、AME、TeA和TEN 4种交链毒素的标准品均购自奥地利Romer Labs公司且纯度>98%,浓度为100 μg/mL。

配制系列标准溶液, AOH和TEN分别为0.2、0.4、1、2、4 ng/mL; TeA为1、2、5、20、50 ng/mL; AME为0.02、0.04、0.1、0.2、0.4 ng/mL。配制4种检测交链毒素所对应的内标混合标准溶液(TeA-D13、AOH-D2、TEN-D3、AME-D3),浓度为100 μg/mL。

1.4.3 储存及加工过程的变化系数

根据联合国粮食及农业组织/世界卫生组织的农药残留联合专家会议推荐的变化系数(Processing factor, PF)来评估储存及加工对毒素残留的影响^[20]。

$$PF = \frac{\text{处理后毒素污染水平}}{\text{处理前毒素污染水平}}$$

其中:若 $PF>1$,表示处理过程中交链毒素残留物浓缩;若 $PF<1$,表示处理过程中交链毒素残留物被稀释或去除;若 $PF=1$,表示交链毒素残留水平未变化。

1.5 统计学分析

采用Microsoft Excel 2016进行实验数据的录入,用Origin 2025对实验数据进行可视化绘图,用SPSS 26.0进行统计学分析。非正态分布数据以中位数及四分位间距 $[M(P_{25}, P_{75})]$ 进行描述,组间差异通过Kruskal-Wallis H 检验;毒素含量与仓储时间、环境参数(温度及湿度)之间的相关性采用Spearman分析。 $P<0.05$ 为差异具有统计学意义。

2 结果

2.1 仓储过程小麦籽粒中4种交链孢毒素污染水平的影响

2.1.1 不同仓储时段交链孢毒素污染水平变化情况

小麦籽粒中4种交链孢毒素在不同仓储时段的污染水平变化情况如表1所示。A、B、C3组初始样本中:AME的平均含量分别为5.20 g、8.00和37.12 $\mu\text{g}/\text{kg}$;AOH的平均含量分别为10.50、20.10和47.10 $\mu\text{g}/\text{kg}$;TeA的平均含量分别为76.40、369.20和449.30 $\mu\text{g}/\text{kg}$,TEN的平均含量分别为22.40、33.40和46.80 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 。

如图1所示,低污染组(A组):4种毒素污染水平在整个仓储稳定保持在较低水平,在仓储期结束AOH、AME、TeA、TEN的平均污染水平分别为1.20、3.00、43.80和10.40 $\mu\text{g}/\text{kg}$;中污染组(B组):AOH、TeA、TEN污染水平整体呈下降趋势,第12个月的污染水平与初始值相比分别下降了6.97%、57.03%和26.05%,AOH的含量在仓储第4、9个月发生小幅度波动,TeA的含量在仓储第3、7、9个月发生小幅度波动;AME污染水平整体呈波动变化,第6个月出现明显升高,与初始值相比升高76.25%,第7~9个月逐渐回落至接近初始水平,第10个月再次大幅上升并达到最高值,此时与初始值相比升高110.63%,随后逐渐下降;尽管如此,第12个月的AME水平仍高于初始值59.38%;高污染组(C组):AME、AOH和TeA整体呈下降趋势,经12个月储存后含量与初始值相比分别下降了54.42%、39.66%和47.98%,AME、AOH和TeA的污染水平在仓储初期第4月,

出现迅速下降(降幅分别为50.43%、38.43%和55.35%),而TEN经12个月储存后含量增至初始值的104.37%;4种毒素的含量在仓储第10~11个月时均发生小幅度上升,AME、AOH、TeA和TEN的含量分别增加31.73%、32.88%、17.85%和6.63%。

经Kruskal-Wallis H 检验分析,各仓储时段的各组样本与其初始样本之间均无统计学差异($P>0.05$)。

如表2所示,经过12个月的仓储时间段,与初始样本中交链孢毒素污染水平相比,3组污染水平组别(高污染、中污染、低污染)的AME、AOH、TeA、TEN的平均变化系数分别为0.77、0.61、0.51、0.73。4种交链孢毒素在仓储过程后的变化系数均 <1 ,表明4种交链孢毒素经过仓储过程总体呈现一定降解趋势。

2.1.2 仓储过程中温度湿度对小麦样本中4种交链孢毒素污染水平的多因素影响

图2显示了在仓储期内温度与相对湿度变化对4种交链孢毒素的污染水平的影响。其中,温度的变化范围为6.95~30.8 $^{\circ}\text{C}$,仓储第7~12个月的温度低于20 $^{\circ}\text{C}$,在仓储第8~9个月的时候温度最低,而相对湿度的变化范围为58.8%~68.8RH。Kruskal-Wallis H 检验分析表明,在本研究所监测的温度与相对湿度变化范围内,4种毒素的污染水平在12个月仓储期的变化差异无统计学意义($P>0.05$)。

如图3所示,Spearman相关性检验分析显示,4种交链孢毒素污染水平与温湿度及仓储时间无显著相关性($P>0.05$)。具体而言:仓储时间与4种交链孢毒素的污染水平整体呈负相关($r=-0.53\sim-0.049$),即4种交链孢毒素污染水平随着仓储时间增加而

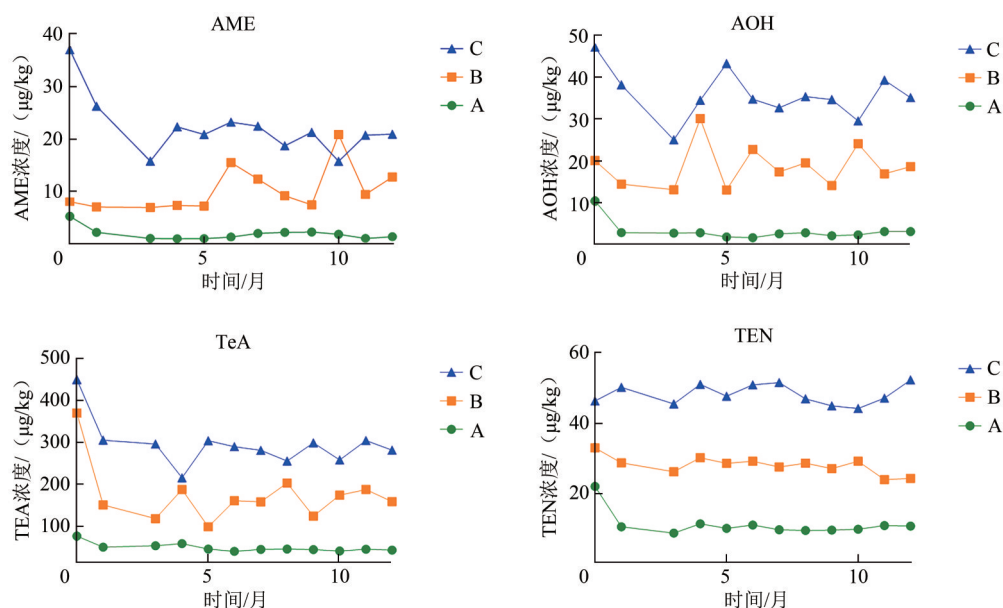


图1 四种交链孢毒素仓储期间的污染水平变化规律

Figure 1 Variation patterns of contamination levels of four types of Alternaria toxins during storage

表1 不同仓储时间的小麦籽粒中四种交链毒素污染水平比较[μg/kg, M(P₂₅, P₇₅)]

仓储时间/月	AME			AOH			TeA			TEN		
	A组	B组	C组	A组	B组	C组	A组	B组	C组	A组	B组	C组
	[μg/kg, M(P ₂₅ , P ₇₅)]			[μg/kg, M(P ₂₅ , P ₇₅)]			[μg/kg, M(P ₂₅ , P ₇₅)]			[μg/kg, M(P ₂₅ , P ₇₅)]		
初始时间	5.20	8.00	37.12	10.50	20.10	47.10	76.40	369.20	449.30	22.40	33.40	46.80
1	0.90 (0.90,3.00)	7.00 (5.18,8.85)	24.40 (19.80,34.40)	2.70 (1.60,3.50)	15.05 (13.3,16.25)	38.70 (32.80,45.40)	47.60 (46.30,51.20)	144.40 (140.90,154.00)	254.30 (248.80,264.20)	10.80 (10.20,11.10)	29.00 (27.78,30.38)	48.70 (44.60,55.00)
3	0.80 (0.60,1.20)	6.90 (6.28,7.55)	18.40 (15.90,18.60)	2.20 (1.60,3.20)	12.90 (11.23,14.88)	29.00 (27.20,30.00)	41.60 (38.00,65.10)	122.35 (102.58,138.08)	250.30 (245.70,271.20)	8.50 (7.30,9.30)	25.80 (24.18,28.18)	44.20 (42.00,48.00)
4	1.00 (0.70,1.10)	7.30 (6.85,7.78)	20.70 (16.20,23.00)	2.30 (2.30,2.80)	15.45 (14.2,31.35)	34.90 (32.90,37.40)	48.10 (36.90,51.00)	153.3 (132.60,208.10)	200.60 (190.60,249.90)	11.80 (11.80,12.80)	31.05 (29.38,32.25)	53.30 (44.70,56.40)
5	1.00 (0.70,1.10)	8.00 (6.7,8.48)	22.90 (16.10,24.90)	1.80 (1.30,2.50)	12.85 (11.23,14.78)	37.10 (30.50,40.00)	43.40 (28.80,62.10)	101.75 (86.63,113.60)	227.20 (210.80,436.70)	10.20 (9.40,11.80)	29.45 (27.20,31.23)	47.50 (47.30,51.10)
6	1.00 (0.80,1.10)	14.10 (7.88,21.75)	21.90 (20.60,26.20)	1.60 (1.50,2.30)	19.90 (14.48,28.20)	35.80 (33.20,36.20)	37.40 (34.60,47.60)	164.15 (148.83,175.88)	228.90 (158.90,408.90)	10.90 (9.90,11.70)	30.30 (28.80,31.05)	51.80 (46.10,52.10)
7	1.10 (1.10,3.10)	11.60 (6.53,17.43)	21.10 (19.20,22.50)	1.80 (1.70,2.70)	16.40 (15.40,18.43)	35.00 (32.50,35.20)	48.10 (40.30,48.50)	145.95 (132.95,171.20)	244.40 (241.20,287.70)	9.20 (9.10,11.30)	27.95 (25.55,30.33)	50.80 (48.50,51.00)
8	1.10 (0.80,2.90)	7.70 (6.68,10.18)	20.50 (15.80,20.80)	1.80 (1.80,2.40)	19.15 (17.70,21.00)	33.30 (30.70,37.20)	38.60 (34.80,50.50)	190.40 (152.75,240.38)	228.20 (172.60,244.70)	10.00 (9.80,10.40)	28.75 (27.98,29.78)	44.60 (43.60,53.20)
9	1.10 (1.10,1.20)	7.70 (7.08,8.05)	19.20 (18.10,24.90)	2.60 (1.30,2.90)	13.60 (12.58,15.23)	29.90 (27.00,44.60)	37.10 (36.50,46.80)	118.10 (94.75,147.33)	247.10 (245.30,355.70)	9.90 (9.00,10.30)	27.75 (25.00,30.20)	43.70 (43.50,44.30)
10	1.20 (0.70,1.80)	16.85 (6.23,31.50)	15.70 (14.20,17.20)	2.30 (1.80,2.60)	24.25 (14.13,34.28)	28.60 (26.60,28.90)	35.70 (34.60,45.00)	113.40 (79.83,207.45)	228.50 (149.10,262.70)	10.30 (9.90,10.70)	29.50 (27.78,31.30)	44.00 (43.90,45.50)
11	0.90 (0.90,1.10)	7.75 (5.80,11.35)	18.90 (16.80,25.80)	2.80 (2.70,3.30)	14.85 (10.58,21.25)	42.10 (14.60,50.90)	46.20 (35.50,52.10)	116.75 (108.88,195.15)	346.50 (233.20,384.70)	11.70 (10.80,11.90)	27.60 (20.73,31.20)	51.00 (25.80,70.30)
12	1.20 (0.80,0.80)	12.75 (9.48,16.03)	19.60 (18.10,18.10)	3.00 (2.30,4.30)	18.7 (14.65,22.75)	32.50 (26.60,39.70)	43.80 (40.70,50.00)	158.65 (134.73,182.58)	264.90 (220.30,279.70)	10.40 (9.90,11.10)	24.70 (22.90,26.50)	48.80 (46.10,54.80)
H值	7.611	14.953	4.933	12.559	9.621	8.187	6.133	5.628	12.953	13.435	8.984	7.565
P值	0.748	0.185	0.934	0.323	0.565	0.696	0.864	0.897	0.296	0.266	0.623	0.752

表2 小麦样本在仓储过程中4种交链孢毒素的变化系数
Table 2 Processing factors of the four type of Alternaria toxins in wheat samples during storage

仓储时间/月	AME		AOH		TeA		TEN	
	平均值	范围	平均值	范围	平均值	范围	平均值	范围
1	0.67	0.41~0.88	0.6	0.28~0.81	0.58	0.41~0.68	0.81	0.48~1.08
3	0.49	0.19~0.87	0.49	0.27~0.66	0.56	0.32~0.7	0.73	0.4~0.98
4	0.56	0.18~0.92	0.84	0.28~1.5	0.58	0.48~0.77	0.85	0.52~1.1
5	0.55	0.18~0.9	0.59	0.18~0.92	0.51	0.27~0.68	0.79	0.47~1.03
6	0.94	0.24~1.94	0.68	0.17~1.13	0.53	0.43~0.64	0.83	0.51~1.1
7	0.84	0.37~1.54	0.61	0.26~0.87	0.55	0.43~0.62	0.8	0.45~1.11
8	0.69	0.42~1.14	0.67	0.28~0.97	0.57	0.55~0.6	0.77	0.44~1.01
9	0.64	0.43~0.93	0.55	0.21~0.74	0.53	0.34~0.66	0.74	0.44~0.97
10	1.13	0.34~2.61	0.69	0.23~1.2	0.53	0.47~0.57	0.76	0.45~0.95
11	0.64	0.19~1.18	0.66	0.31~0.84	0.59	0.51~0.68	0.75	0.5~1.02
12	0.77	0.25~1.59	0.61	0.31~0.93	0.51	0.43~0.57	0.73	0.5~0.94

注:变化系数:与初始样本相比,不同月份仓储期小麦籽粒变化系数。

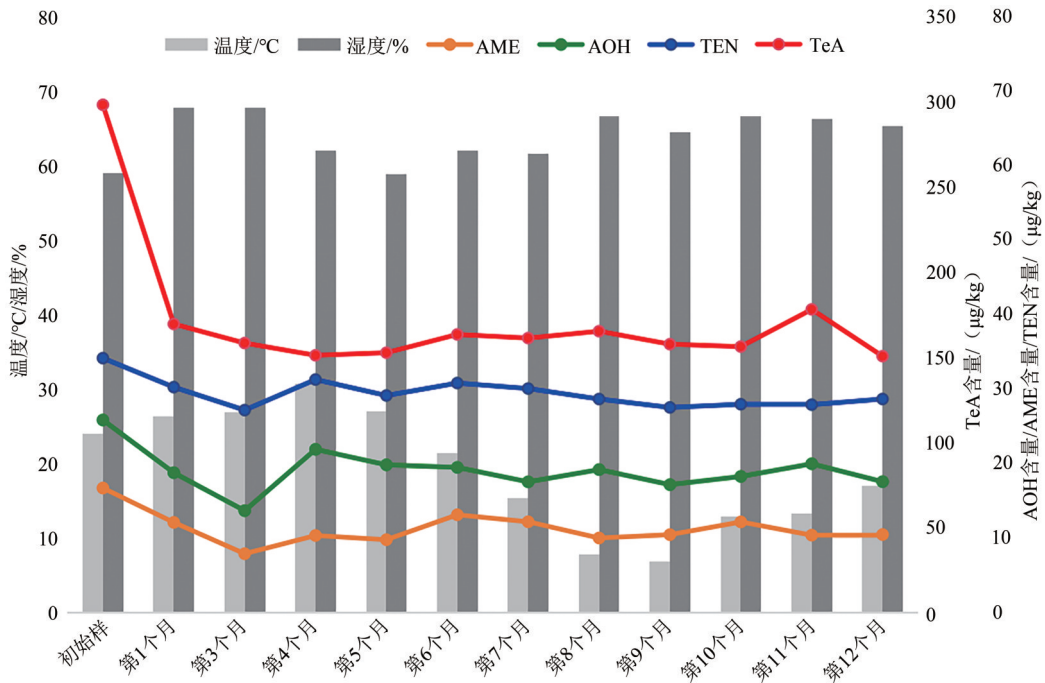


图2 仓储期温湿度条件对小麦籽粒样本中4种交链孢毒素污染水平的影响

Figure 2 Effect of temperature and humidity conditions during storage on the contamination levels of four Alternaria toxins in wheat grain samples

下降。AME、AOH 和 TEN 的污染水平与湿度呈负相关($r=-0.52\sim-0.27$),而 TeA 污染水平与湿度呈正相关($r=0.10$)。AME 和 TeA 的污染水平与温度呈负相关($r=-0.22\sim-0.20$),TEN 和 AOH 的污染水平与温度呈正相关($r=0.35\sim0.50$)。

3.2 不同小麦及其制品加工过程对交链孢毒素污染水平的影响

图4及表3显示由仓储12个月之后的小麦籽粒加工为小麦粉、馒头、面包和面条制品中4种交链孢毒素的污染水平及变化系数。其中,小麦籽粒加工为小麦粉阶段,AME、AOH、TEN 分别下降25.49%、58.56%和49.19%,而 TeA 则增加了0.85% ($P>0.05$);与小麦籽粒相比,馒头中AME、AOH、TeA 和 TEN 含量分别下降13.33%、70.86%、50.90% 和

69.64% ($P>0.05$);面包中 AOH、TeA 和 TEN 含量分别下降68.72%、40.91%和66.80%,而AME含量增加了23.14% ($P>0.05$);面条中AME、AOH、TeA 和 TEN 含量分别下降80.00%、92.25%、56.60%和95.14% ($P>0.05$)。

表3展示了不同小麦制品加工过程变化系数,分别为:小麦籽粒→小麦粉0.41~1.01;小麦籽粒→馒头0.29~0.87;小麦籽粒→面包0.31~1.23;小麦籽粒→面条0.05~0.40;小麦粉→馒头0.49~1.20;小麦粉→面包0.59~1.71;小麦粉→面条0.10~0.43。

4 讨论

在小麦收获、运输、仓储和加工等环节中,交链孢霉的污染风险普遍存在。在仓储阶段若温度与

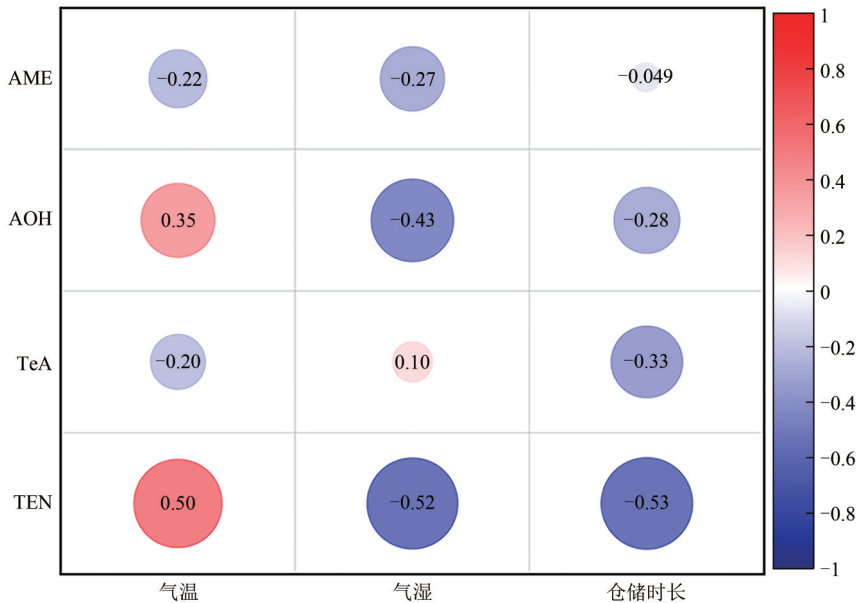


图3 小麦籽粒样本中4种交链孢毒素污染水平与温度湿度及仓储时长相关性热图

Figure 3 Heatmap of the correlation between contamination levels of four types of Alternaria toxins in wheat grain samples and temperature, humidity, and storage duration

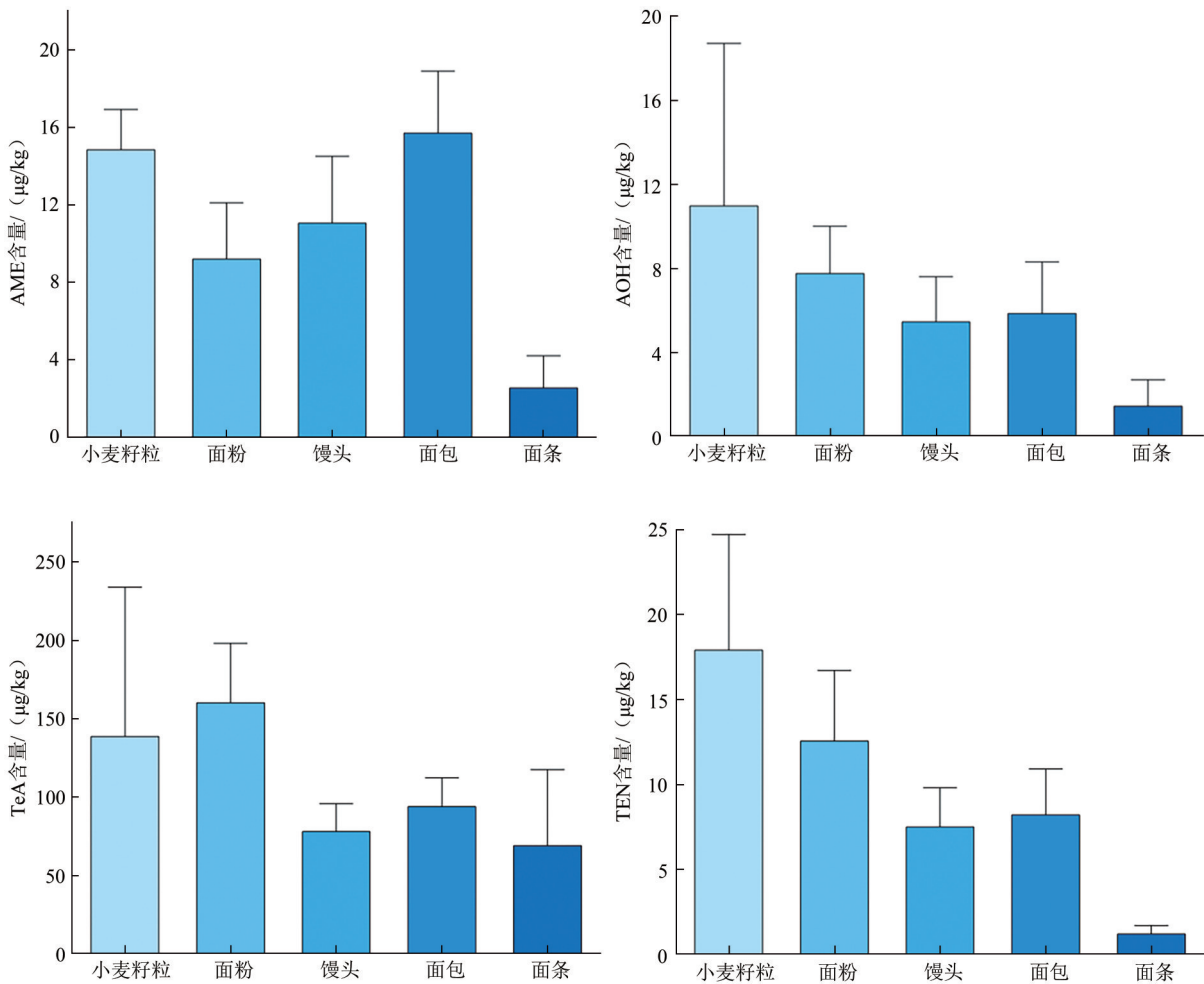


图4 不同加工过程对4种交链孢毒素的污染水平影响

Figure 4 Effect of different processing on the contamination level of four types of Alternaria toxins

湿度调控不佳,或在加工方式不恰当,均可能致使小麦中交链孢毒素不断累积^[21]。本研究通过观测不同污染程度的小麦籽粒样品在储存和不同加工过程中交链孢毒素污染水平动态变化情况,对储存时间、环境温湿度、加工方式等影响因素进行了系统解析。

表3 不同加工过程中小麦制品中4种交链孢毒素污染水平及其变化系数

Table 3 Contamination levels and Processing factors of four types of chaetomium toxins in wheat products during different processing stages

交链孢毒素	加工方式	污染水平/($\mu\text{g}/\text{kg}$) [$M(P_{25}, P_{75})$]	<i>P</i>	变化系数1	变化系数2
AME	小麦籽粒	12.75(7.04,14.84)	0.284	—	—
	小麦粉	9.2(7.75,10.65)		0.72	—
	馒头	11.05(9.33,12.78)		0.87	1.20
	面包	15.7(14.10,17.30)		1.23	1.71
	面条	2.55(1.73,3.38)		0.20	0.28
AOH	小麦籽粒	18.7(10.96,23.56)	0.260	—	—
	小麦粉	7.75(6.63,8.88)		0.41	—
	馒头	5.45(4.38,6.53)		0.29	0.70
	面包	5.85(4.63,7.08)		0.31	0.75
	面条	1.45(0.83,2.08)		0.08	0.19
TeA	小麦籽粒	158.65(100.97,196.19)	0.335	—	—
	小麦粉	160(141.05,178.95)		1.01	—
	馒头	77.9(69.05,86.75)		0.49	0.49
	面包	93.75(84.58,102.93)		0.59	0.59
	面条	68.85(44.53,93.18)		0.43	0.43
TEN	小麦籽粒	24.7(17.90,34.44)	0.098	—	—
	小麦粉	12.55(10.48,14.63)		0.51	—
	馒头	7.5(6.35,8.65)		0.30	0.60
	面包	8.2(6.85,9.55)		0.33	0.65
	面条	1.2(0.95,1.45)		0.05	0.10

注:变化系数1:不同加工过程后与小麦籽粒的变化系数;变化系数2:不同加工过程后与小麦粉的变化系数

交链孢毒素的产生可受环境、气候等多因素影响,产毒的温度和水分活度范围较广。POSE 等^[22]研究表明 AOH、AME 和 TeA 的最适产生温度分别为 21℃、35℃和 21℃,最适产生 α_w 分别是 0.954、0.954 和 0.982。OVIEDO 等^[23]研究表明 TeA 的产毒温度范围为 5℃~30℃, α_w 范围为 0.92~0.995。本研究标准机械化粮库的仓储期温度变化范围为 6.95~30.8℃,表明在仓储期中,存在适宜 AOH 和 TeA 产毒的温度区间。本研究的相关性分析结果表明,尽管仓储温度未达到 AME 的最适产毒温度 35℃,但较低温度可能更有利于 AME 的积累或残留,这可能与低温对微生物酶活性的抑制作用有关,从而减缓了 AME 的降解过程^[24]。因此,仓储期间较高的温度为交链孢毒素的污染提供了有利的环境条件。另一方面,在仓储后期粮仓的平均温度低于 21℃,且整个仓储期的相对湿度变化范围为 58.8%~68.8%。该湿度水平符合粮仓湿度控制要求,即保持湿度在 70% 以下,从而有效抑制真菌毒素的生成,较好地控制交链孢毒素的产生。

目前关于仓储过程小麦籽粒中交链孢毒素影响的研究较为有限。本研究的全年 12 个月仓储实验表明,小麦中交链孢毒素污染水平呈现出先降低再趋于平稳的变化趋势,但仓储时间对污染水平的影响并无显著性差异。该结果与 SAMUEL 等^[25]的研究具有一致性,其结果显示在多种储藏条件下,小麦交链孢毒素的污染水平在 7 个月储藏期仅出现轻微下降,未观察到显著差异。本研究的采样和储存实验均在温度和湿度受到严格控制的粮库中

进行。这些稳定的环境条件有效抑制了交链孢霉的生长,从而限制了毒素的显著波动。仓储期间交链孢毒素含量的初始降低可能与环境、真菌自身的代谢状况及其他微生物的分解作用等共同作用有关。研究发现交链孢霉对水分活度的变化非常敏感,当基质水分活度由 0.954 下降至 0.904 时,菌落生长在 21℃和 35℃显著受限且未检测到交链孢毒素^[23,26]。另有研究发现交链孢毒素 AOH、AME 和 TeA 的产量会随着培养时间延长先升高再降低,推测与菌丝老化、营养成分消耗、毒素本身作为碳源被利用及抑制性的代谢产物等因素有关^[27]。

此外,研究结果表明小麦籽粒加工为馒头和面条的过程中可不同程度地降低 4 种交链孢毒素污染水平;小麦籽粒加工为小麦粉过程中,AME、AOH、TEN 污染水平下降,而 TeA 污染水平上升;小麦籽粒加工为面包过程中,AOH、TeA、TEN 污染水平下降,而 AME 污染水平上升。本研究中 4 种小麦制品对交链孢毒素污染水平的平均变化系数均<1 (小麦粉 0.66>面包 0.62>馒头 0.49>面条 0.19),说明相应的加工方式均有降低交链孢毒素的污染水平的作用。磨粉工艺可通过分离麸皮、胚乳等组分而使毒素在小麦各组成部分中重新分布而降低制品中含量^[28-29]。虽然交链孢霉通常由表及里侵染小麦籽粒,但是交链孢毒素对小麦籽粒的侵袭能力的差异及分布的不一致性,可导致磨粉对交链孢毒素污染水平的影响程度存在差异。COMBINA 等^[30]研究证实交链孢毒素对热处理具有一定的稳定性。在 100℃下加热 90 min 时,AOH 和 AME 保持稳定,

而 TeA 浓度则降至初始水平的 50%。121 °C 加热处理 60 min 可有效降低 AOH 和 AME 水平,这表明,交链孢毒素在一定温度下能够耐受热处理,特别是 AOH 和 AME 的稳定性较强,而 TeA 相对易受高温影响而降解。本研究结果显示,在小麦籽粒加工为小麦粉、馒头、面包和面条的过程中,AME、AOH、TeA 和 TEN 的含量普遍下降,然而某些污染物在特定加工产品中有所增加,可能与以下因素有关:首先,交链孢毒素的热稳定性是重要因素之一。在高温加工过程中,部分毒素(如 AME)具有较高的热稳定性,能够抵抗热降解,导致其在面包等制品中残留量增加。其次,水分的稀释与浓缩效应在加工过程中会影响毒素浓度。水分稀释作用可使毒素浓度下降,而在水分蒸发、物料浓缩的阶段,则可能引起毒素的相对富集。此外,随着小麦制品在加工过程中体积的缩小,毒素在单位质量或体积中的浓缩效应也可能导致其含量上升。因此,热处理温度、加工过程中水分稀释作用及营养物质的引入均可显著影响交链孢毒素含量变化程度^[18,31]。选择适当的加工方式可有效降低小麦制品中交链孢毒素的膳食暴露风险。在对小麦制品交链孢毒素污染的安全性评价研究中引入变化系数,可量化不同加工工艺在去除或减少交链孢毒素污染水平的效果,有助于确定不同加工方式能否有效地将交链孢毒素降低到安全水平,或者是否会导致污染物的持续存在或增加。此外,变化系数为不同加工方式提供了一个标准化的对比基础,提高了不同研究之间的可比性,使得不同加工方式和处理条件下的毒素去除效果可以统一比较,为交链孢毒素风险评估和优化小麦籽粒加工方式提供参考依据。

本研究系统分析了小麦及其制品中 4 种交链孢毒素在仓储及加工过程中污染变化特征及其影响因素。研究表明,在规范仓储条件下,交链孢毒素污染水平在 12 个月的仓储期内呈现出先降后平稳的变化趋势。此外,对小麦籽粒进行加工过程能够在一定程度上降低各类小麦制品的交链孢毒素的污染水平。本研究获得的相关变化系数可为评估小麦及其制品不同加工工艺去毒或减毒效果提供量化指标,为交链孢毒素风险评估提供科学依据。

参考文献

- [1] WOUTENBERG J H C, SEIDL M F GROENEWALD J Z, et al. *Alternaria* section *alternaria*: Species, formae speciales or pathotypes?[J]. *Studies in Mycology*, 2015, 82: 1-21.
- [2] 姜玉梅, 徐乔乔, 李巧云. 环境因素对小麦黑胚病影响的研究进展[J]. *河南农业科学*, 2018, 47(8): 1-5.
- JIANG Y M, XU Q Q, LI Q Y. Research advance in the effects of environmental factors on black point in wheat[J]. *Journal of Henan Agricultural Sciences*, 2018, 47(8): 1-5.
- [3] 杨力生. 中国小麦地方品种黑胚病抗性评价及全基因组关联分析[D]. 成都: 四川农业大学, 2019.
- YANG L S. Evaluation and genome-wide association analysis of resistance to *Nigella sativa* in Chinese wheat local varieties[D]. Chengdu: Sichuan Agricultural University, 2019.
- [4] BARKAI-GOLAN R, PASTER N. Mouldy fruits and vegetables as a source of mycotoxins: part 1[J]. *World Mycotoxin Journal*, 2008, 1: 147-59.
- [5] CHEN A, MAO X, SUN Q, et al. *Alternaria* mycotoxins: an overview of toxicity, metabolism, and analysis in food[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2021, 69(28): 7817-30.
- [6] LAURA E, OUESLATI S, FONT G, et al. *Alternaria* mycotoxins in food and feed: an overview[J]. *Journal of Food Quality*, 2017, 2017(5): 1-20.
- [7] LOURO H, VETTORAZZI A, LÓPEZ D. C. A., et al. Hazard characterization of *alternaria* toxins to identify data gaps and improve risk assessment for human health[J]. *Archives of Toxicology*, 2024, 98(2): 425-69.
- [8] ZHANG Y, LIU C, VAN DER FELS-KLERX H. J. Occurrence, toxicity, dietary exposure, and management of *alternaria* mycotoxins in food and feed: A systematic literature review[J]. *Comprehensive reviews in food science and food safety*, 2025, 24(1): e70085.
- [9] LIU G T, QIAN Y Z, ZHANG P, et al. Etiological role of *alternaria alternata* in human esophageal cancer[J]. *Chinese medical journal*, 1992, 105(5): 394-400.
- [10] KERRY R, INGRAM B, ABBAS H. K., et al. An investigation of the spatial arrangement of mycotoxin build-up in corn stored under different environmental conditions[J]. *Toxins*, 2024, 16(12), 508.
- [11] EUROPEAN FOOD SAFETY AUTHORITY, ARCELLA D, ESKOLA M, et al. Dietary exposure assessment to *alternaria* toxins in the European population[J]. *EFSA Journal*, 2016, 14(12): e04654.
- [12] 刘晓庚. 储粮中真菌毒素及其防控[J]. *粮食与油脂*, 2008(8): 37-41.
- LIU X G. Advance of studying on mycotoxins and its controlling technology in gram storage[J]. *Cereals & Oils*, 2008(8): 37-41.
- [13] SCHOLTEN O, RUCKENBAUER P, VISCONTI A, et al. Food safety of cereals: a chain wide approach to reduce *Fusarium* mycotoxins[J]. *Agricultural and Food Sciences*, 2002, 108.
- [14] NOWICKI T. W., GABA D. G., DEXTER J. E., et al. Retention of the *fusarium* mycotoxin deoxynivalenol in wheat during processing and cooking of spaghetti and noodles[J]. *Journal of Cereal Science*, 1988, 8(2): 189-202.
- [15] SAMAR M, RESNIK S. L, GONZÁLEZ H. H. L, et al. Deoxynivalenol reduction during the frying process of turnover pie covers[J]. *Food Control*, 2007, 18(10): 1295-1299.
- [16] JANIĆ H. E., ČOLOVIĆ R, PEZO L, et al. Possibility of *Alternaria* toxins reduction by extrusion processing of whole wheat flour[J]. *Food Chemistry*, 2016, 213: 784-90.
- [17] SIEGEL D, FEIST M, PROSKE M, et al. Degradation of the

- alternaria mycotoxins alternariol, alternariol monomethyl ether, and altenuene upon bread baking[J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2010, 58(17): 9622-30.
- [18] 贺烨宇, 吉小凤, 肖英平, 等. 加工过程对小麦及其制品中细交链孢菌酮酸含量的影响[J]. 宁波大学学报(理工版), 2024, 37(2): 28-35.
- HE Y Y, JI X F, XIAO Y P, et al. Effects of processing on the occurrence of the emerging mycotoxin tenuazonic acid in wheat and wheat-based products[J]. Journal of Ningbo University (Natural Science & Engineering Edition), 2024, 37(2): 28-35.
- [19] EUROPEAN FOOD SAFETY AUTHORITY. Management of left-censored data in dietary exposure assessment of chemical substances[J]. Efsa Journal, 2010, 8(3): n/a-n/a.
- [20] Food and Agriculture Organization of the United Nations. Submission and evaluation of pesticide residues data for the estimation of maximum residue levels in food and feed[M]. 2015.
- [21] LESLIE J. F., MORETTI A., MESTERHAZY Á., et al. Key global actions for mycotoxin management in wheat and other small grains[J]. Toxins, 2021, 13(10): 725.
- [22] POSE G., PATRIARCA A., KYANKO V., et al. Water activity and temperature effects on mycotoxin production by alternaria alternata on a synthetic tomato medium[J]. International Journal of Food Microbiology, 2010, 142(3): 348-53.
- [23] OVIEDO M. S., RAMIREZ M. L., BARROS G. G., et al. Effect of environmental factors on tenuazonic acid production by alternaria alternata on soybean-based media[J]. Journal of applied microbiology, 2009, 107(4): 1186-1192.
- [24] MAGAN N., ALDRED D. Post-harvest control strategies: Minimizing mycotoxins in the food chain[J]. International Journal of Food Microbiology, 2007, 119(1-2): 131-139.
- [25] BEATTIE S., SCHWARZ P. B., HORSLEY R., et al. The effect of grain storage conditions on the viability of Fusarium and deoxynivalenol production in infested malting barley[J]. Journal of food protection, 1998, 61(1): 103-106.
- [26] 范盈盈, 马玉珊, 田维娜, 等. 农产品中链格孢毒素形成的影响因素及其研究[J]. 农产品质量与安全, 2020, (6): 22-28.
- FAN Y Y, MA Y S, TIAN W N, et al. Factors influencing the formation of alternaria toxins in agricultural products and its research[J]. Quality and Safety of Agro-Products, 2020, (6): 22-28.
- [27] 曹浩杰, 孟佳佳, 黄晴雯, 等. 响应面法研究链格孢菌 Alternaria ochroleuca 的产毒条件[J]. 上海农业学报, 2024, 40(1): 88-95.
- CAO H J, MENG J J, HUANG Q W, et al. Research of toxic production conditions for Alternaria ochroleuca using response surface methodology[J]. Acta Agriculturae Shanghai, 2024, 40(1): 88-95.
- [28] JANIĆ H. E., MASTILOVIĆ J., BAGI F., et al. Effect of wheat milling process on the distribution of alternaria toxins[J]. Toxins, 2019, 11(3): 139.
- [29] 张慧杰, 孙丽娟, 孙娟, 等. 加工过程对小麦及其制品中玉米赤霉烯酮含量的影响[J]. 作物学报, 2015, 41(10): 1575-1581.
- ZHANG H J, SUN L J, SUN J, et al. Effects of processing on zearalenone concentrations in wheat and products made of wheat[J]. Acta Agronomica Sinica, 2015, 41(10): 1575-1581.
- [30] COMBINA M., DALCERO A., VARSAVSKY E., et al. Effect of heat treatments on stability of alternariol, alternariol monomethyl ether and tenuazonic acid in sunflower flour[J]. Mycotoxin Research, 1999, 15(1): 33-38.
- [31] 张慧杰, 王步军. 真菌毒素在小麦类食品加工过程中的消解与转移[J]. 农产品质量与安全, 2012, (3): 59-64.
- ZHANG H J, WANG B J. Degradation and transfer of mycotoxins during the processing of wheat-based foods[J]. Quality And Safety Of Agro-Products, 2012, (3): 59-64.