

新疆打瓜籽油中亚油酸的尿素包合纯化工工艺研究

胡力¹, 王芳梅¹, 王伟², 艾合买提江¹, 王亮¹

(1. 新疆大学 生命科学与技术学院, 乌鲁木齐 830046; 2. 江苏省产品质量监督检验研究院, 南京 210007)

摘要:采用尿素包合法纯化新疆打瓜籽油中的亚油酸,以产物的碘值和得率为评价指标,在单因素试验的基础上,对纯化工工艺进行 Box - Behnken 响应面法优化。结果表明,最优的纯化工工艺条件为包合时间 13 h、包合温度 4℃、95% 乙醇与尿素体积质量比 4:1、尿素与混合脂肪酸质量比 3:1,在最优工艺条件下产物的碘值(I)为 146.14 g/100 g,得率为 46.55%。采用气相色谱对产物进行脂肪酸组成分析发现,经过尿素包合后,绝大多数的饱和脂肪酸被除去,亚油酸含量明显升高,由原来的 72.910% 上升到 97.249%。

关键词:打瓜籽油;亚油酸;尿素包合;气相色谱

中图分类号:TS225.1;TQ645.6 文献标识码:A 文章编号:1003-7969(2020)09-0062-05

Purification of linoleic acid in Xinjiang seeding - watermelon seed oil by urea adduction

HU Li¹, WANG Fangmei¹, WANG Wei², Ahmtijiang¹, WANG Liang¹

(1. College of Life Science and Technology, Xinjiang University, Urumqi 830046, China;

2. Jiangsu Product Testing and Inspection Institute, Nanjing 210007, China)

Abstract: The linoleic acid in Xinjiang seeding - watermelon seed oil was purified by urea adduction. With the iodine value and yield of the product as evaluation indexes, the Box - Behnken response surface methodology was used to optimize the process on the basis of single factor experiment, and the optimal purification conditions were obtained as follows: adduction time 13 h, adduction temperature 4℃, ratio of volume of ethanol to mass of urea 4:1, and mass ratio of urea to mixed fatty acids 3:1. Under the optimal conditions, the iodine value of the product was 146.14 g/100 g and the yield was 46.55%. The fatty acid composition of the product was analyzed by gas chromatography, and it was found that most of the saturated fatty acids had been removed after urea adduction and the content of linoleic acid increased significantly from 72.910% to 97.249%.

Key words: seeding - watermelon seed oil; linoleic acid; urea adduction; gas chromatography

打瓜 (*Citrullus lanatus* (Thunb.) Matsum. et Nakai), 又名籽瓜, 为葫芦科一年生草本植物, 是西瓜的一个栽培变种^[1], 主产于新疆、甘肃, 吉林和内蒙古等地也有种植^[2], 因含籽多而得名。打瓜籽含油率可达到 50%, 油中富含不饱和脂肪酸亚油

酸^[3]。亚油酸具有多种生理活性, 并在降血脂、降血压等方面有独特的药理活性。目前, 国内对于打瓜籽油的研究主要集中在提取工艺及功效研究等方面^[3-9], 对于打瓜籽油中不饱和脂肪酸的纯化工工艺研究鲜有报道。

目前, 国内外对多不饱和脂肪酸进行分离的方法有超临界流体萃取法^[10]、分子蒸馏法^[11-12]、低温结晶法^[13]、色谱法^[14-15]、尿素包合法^[16-19]等。其中, 尿素包合法是混合脂肪酸纯化较常用的方法, 因具有操作简单、溶剂可回收、纯化成本低等优点而被广泛应用。

收稿日期: 2019-11-04; 修回日期: 2020-04-20

作者简介: 胡力 (1994), 男, 在读硕士, 研究方向为食品科学 (E-mail) 1164450446@qq.com。

通信作者: 王亮, 副教授, 博士 (E-mail) 1390593786@qq.com。

本文采用尿素包合法纯化打瓜籽油中的亚油酸,制备高纯度亚油酸,有利于提高打瓜籽油产品的附加值,延长打瓜籽油产业链,可为新疆打瓜籽的深入开发利用奠定基础。

1 材料与方法

1.1 试验材料

1.1.1 原料与试剂

打瓜籽油,由本实验室经超声波辅助溶剂提取所得。

95%乙醇、氢氧化钠、石油醚、浓盐酸、尿素、氯化钠、环己烷、冰乙酸、韦氏试剂、碘化钾、可溶性淀粉、五水硫代硫酸钠、无水碳酸钠、无水硫酸钠,均为分析纯。

1.1.2 仪器与设备

FA1004 电子天平;RE-52AA 型旋转蒸发仪;MJX-250B-Z 型霉菌培养箱,上海博讯实业有限公司医疗设备厂;安捷伦 7890A 气相色谱仪。

1.2 试验方法

1.2.1 混合脂肪酸的制备

参照李开雄等^[20]的方法,略作调整。精确称取 25 g 打瓜籽油,加入 100 mL 4% 氢氧化钠乙醇溶液,85℃水浴回流皂化 1 h,冷却至室温,加一定量的蒸馏水使皂化物完全溶解,加入石油醚萃取。取下层,再加入适量石油醚进行萃取,除去不皂化物,分液,弃去石油醚层。下层加入 10% 盐酸调 pH 至 2~3,待可明显看见油层和水层,置于分液漏斗中分层,弃水层,油层用蒸馏水洗至中性,加无水硫酸钠干燥脱水,经旋转蒸发仪蒸发除去有机溶剂,得到混合脂肪酸。

1.2.2 尿素包合法富集打瓜籽油中亚油酸

参考赵萍等^[21]的方法,略作调整。将 95% 乙醇与尿素按一定体积质量比(2:1、3:1、4:1、5:1、6:1)混合后,高温回流,使得尿素全部溶解,加入一定量的混合脂肪酸(尿素与混合脂肪酸质量比为 1:1、1.5:1、2:1、2.5:1、3:1),80℃下水浴回流 30 min,冷却至室温。在一定温度(-20、4、20、30、40℃)下包合一定时间(6、12、18、24、30 h)后,抽滤,滤液经旋转蒸发回收有机溶剂后,用质量分数 10% 的氯化钠溶液水洗至下层溶液澄清透明无尿素,加无水硫酸钠干燥脱水,即得亚油酸。按下式计算亚油酸得率。

$$\text{得率} = \frac{\text{产物质量}}{\text{混合脂肪酸质量}} \times 100\%$$

产物碘值采用 GB/T 5532—2008 测定,作为亚油酸纯度的评价指标。

1.2.3 数据处理

每个试验重复 3 次,结果用“平均值 ± 偏差”表示。运用 Graphpad Prism 5 进行绘图。

2 结果与分析

2.1 亚油酸富集单因素试验

2.1.1 乙醇与尿素体积质量比对亚油酸富集的影响

在尿素与混合脂肪酸质量比 1.5:1、包合温度 20℃、包合时间 12 h 条件下,考察乙醇与尿素体积质量比对亚油酸碘值及得率的影响,结果见图 1。

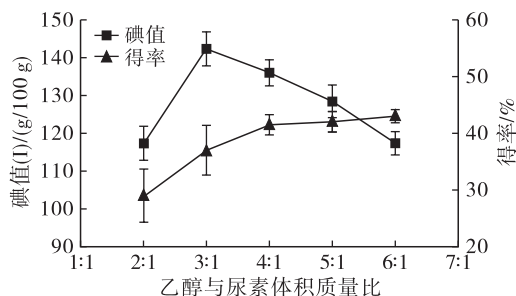


图 1 乙醇与尿素体积质量比对亚油酸碘值及得率的影响

由图 1 可知,随着乙醇与尿素体积质量比的增加,尿素在乙醇中的溶解度增加,尿素与脂肪酸有更多的接触机会,从而提高了尿素包合的程度。因此,更多的饱和脂肪酸和单不饱和脂肪酸被包合,从而得到更高纯度的亚油酸,碘值上升。但是当乙醇增加到一定量后,碘值有所下降,其原因可能是因为溶剂量过大,尿素包合反应向逆反应方向进行,对饱和、单不饱和脂肪酸的包合程度下降,导致碘值下降^[22]。随着乙醇与尿素体积质量比的增加,亚油酸更容易溶解在乙醇中,而被分散系中黏稠络合物非选择性包合的可能性减小,因此亚油酸得率显著升高后趋于稳定^[23]。综合考虑,选取乙醇与尿素体积质量比 3:1 进行后续试验。

2.1.2 尿素与混合脂肪酸质量比对亚油酸富集的影响

在乙醇与尿素体积质量比 3:1、包合温度 20℃、包合时间 12 h 条件下,考察尿素与混合脂肪酸质量比对亚油酸碘值及得率的影响,结果见图 2。

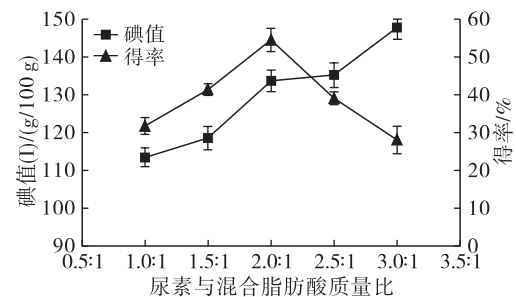


图 2 尿素与混合脂肪酸质量比对亚油酸碘值及得率的影响

由图2可知,随着尿素与混合脂肪酸质量比的增加,尿素比例升高,反应中尿素的包合程度增大,从而使得亚油酸纯度升高,碘值上升。亚油酸得率随尿素与混合脂肪酸质量比增大先增加后降低。随着尿素与混合脂肪酸质量比逐渐升高,整个反应体系中乙醇与脂肪酸的比例也在不断扩大,亚油酸更容易溶解在乙醇中,而被分散系中黏稠络合物非选择性包合的可能性减小,因此亚油酸得率呈逐渐上升趋势,但是随着尿素与混合脂肪酸质量比进一步升高,尿素非特异性包合程度增大,即部分亚油酸也被包合,导致得率降低^[24]。综合考虑,选取尿素与混合脂肪酸质量比2.5:1进行后续试验。

2.1.3 包合温度对亚油酸富集的影响

在尿素与混合脂肪酸质量比2.5:1、乙醇与尿素体积质量比3:1、包合时间12 h条件下,考察包合温度对亚油酸碘值及得率的影响,结果见图3。

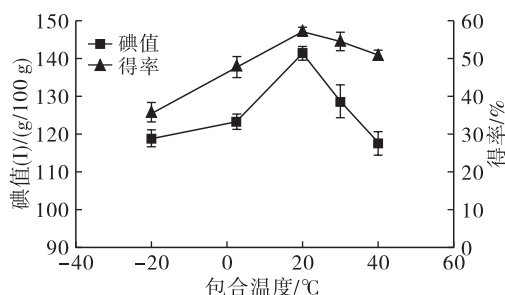


图3 包合温度对亚油酸碘值及得率的影响

由图3可知,随包合温度升高,碘值和得率先升高后降低。包合温度过低,尿素形成包合晶体速度过快,反应不充分,导致亚油酸纯度即碘值较低,同时由于温度过低使得混合反应物变得浓稠,使抽滤困难,增加滤液中混合脂肪酸的损失,得率也不高。随着包合温度的升高,反应逐渐充分,碘值和得率逐渐升高,包合温度为20℃时碘值、得率均达到最大;随着包合温度进一步升高,碘值明显降低,得率略有降低。尿素包合物的形成是一个放热过程,在一定范围内,温度降低时反应向生成尿素包合物的方向进行,有利于生成包合物,而温度过高,非选择性包合增加,导致碘值、得率降低。综合考虑,选取包合温度20℃进行后续试验。

2.1.4 包合时间对亚油酸富集的影响

在尿素与混合脂肪酸质量比2.5:1、乙醇与尿素体积质量比3:1、包合温度20℃条件下,考察包合时间对亚油酸碘值及得率的影响,结果见图4。

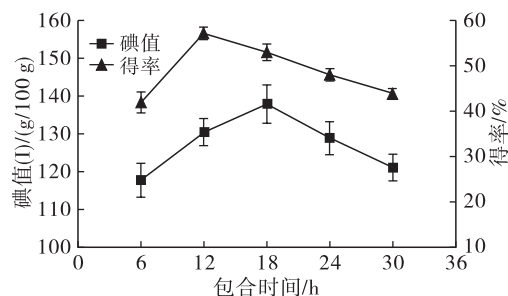


图4 包合时间对亚油酸碘值及得率的影响

由图4可知,亚油酸的碘值随着包合时间的延长呈现先升高后降低的趋势,在包合时间18 h时达到最大,原因是由于在短时间内尿素包合物没有充分形成,不能完全包合饱和脂肪酸及单不饱和脂肪酸,碘值较低,当包合时间延长时,包合效果越来越好,碘值逐渐增大,但随着包合时间的进一步延长,包合反应达到平衡,有一部分不饱和脂肪酸也会被带入到包合相,造成碘值下降。随着反应时间的适当延长,包合产物发生一定程度的沉降,有利于与亚油酸的分离,得率升高;但反应时间的进一步延长,由于尿素包合的选择性变差,部分亚油酸被包合,得率降低。综合考虑,选取包合时间15 h进行后续试验。

2.2 亚油酸富集响应面试验

在单因素试验的基础上,以包合温度、包合时间、乙醇与尿素体积质量比、尿素与混合脂肪酸质量比为考察因素,以样品的综合评分(综合评分=该方案亚油酸得率/所有方案中最高的亚油酸得率×50+该方案样品碘值/所有方案中最高碘值×50)为综合评价指标,进行四因素三水平的Box-Behnken响应面试验分析。响应面试验因素水平编码见表1,响应面试验设计方案及结果见表2,方差分析见表3。

应用Design-Expert 8.0.6软件对表2试验结果进行二次多项式回归拟合,得到样品的碘值和得率综合评分(Y)对各因素的二次多元回归方程:

$$Y = 94.06 + 1.90A + 2.03B + 10.12C + 3.70D + 0.51AB - 2.59AC + 0.72AD - 4.04BC - 0.58BD - 1.15CD - 0.88A^2 - 1.25B^2 - 7.48C^2 - 5.09D^2$$

表1 响应面试验因素水平编码

水平	A 包合温度/℃	B 包合时间/h	C 尿素与混合脂肪酸质量比	D 乙醇与尿素体积质量比
1	4	12	2.0:1	2:1
2	20	15	2.5:1	3:1
3	30	18	3.0:1	4:1

表2 响应面正交试验设计方案及结果

试验号	A	B	C	D	综合评分
1	-1	-1	0	0	89.29
2	1	-1	0	0	92.95
3	-1	1	0	0	90.68
4	1	1	0	0	96.38
5	0	0	0	0	92.85
6	0	0	-1	-1	67.88
7	0	0	1	-1	89.43
8	0	0	-1	1	76.65
9	0	0	1	1	93.59
10	0	0	0	0	95.53
11	-1	0	0	-1	83.44
12	1	0	0	-1	86.41
13	-1	0	0	1	89.99
14	1	0	0	1	94.87
15	0	0	0	0	93.89
16	0	-1	-1	0	67.48
17	0	1	-1	0	81.28
18	0	-1	1	0	96.83
19	0	1	1	0	94.49
20	0	0	0	0	93.66
21	-1	0	-1	0	71.14
22	1	0	-1	0	79.87
23	-1	0	1	0	96.50
24	1	0	1	0	93.13
25	0	0	0	0	93.77
26	0	-1	0	-1	82.86
27	0	1	0	-1	84.58
28	0	-1	0	1	89.54
29	0	1	0	1	94.12

表3 回归方程模型方差分析

变异来源	平方和	自由度	均方	F	P
模型	2 051.63	14	146.54	134.91	<0.000 1 **
A	43.17	1	43.17	39.74	<0.000 1 **
B	49.33	1	49.33	45.41	<0.000 1 **
C	1 228.37	1	1 228.37	130.80	<0.000 1 **
D	163.98	1	163.98	150.96	<0.000 1 **
AB	1.04	1	1.04	0.96	0.344 4
AC	26.83	1	26.83	24.70	0.000 1 **
AD	2.04	1	2.04	1.88	0.191 6
BC	65.12	1	65.12	59.95	<0.000 1 **
BD	1.36	1	1.36	1.25	0.282 5
CD	5.31	1	5.31	4.89	0.044 1 *
A ²	5.08	1	5.08	4.68	0.048 4 *
B ²	10.15	1	10.15	9.35	0.008 5 **
C ²	363.03	1	363.03	334.19	<0.000 1 **
D ²	168.21	1	168.21	154.85	<0.000 1 **
残差	15.21	14	1.09		
失拟项	12.39	10	1.24	1.76	0.308 6
纯误差	2.82	4	0.70		
总和	2 066.84	28			

注: * $P < 0.05$ 表示差异显著; ** $P < 0.01$ 表示差异极显著。

由表3可知,模型 $P < 0.000 1$,表明回归模型达到极显著,因变量与所有自变量之间的关系显著 ($R^2 = 0.992 6$)。失拟项 $P = 0.308 6 > 0.05$,不显著,该回归模型的调整决定系数 (R^2_{Adj}) 为 0.985 3,变异系数 (CV) 为 1.18%,说明该模型拟合程度良好,试验误差小,故该回归方程模型成立,可用此模型对尿素包合法富集纯化打瓜籽油亚油酸的纯化工工艺结果进行分析及预测。由表3也可看出,A、B、C、D、AC、BC、B²、C²、D²对打瓜籽油亚油酸的富集有极显著影响 ($P < 0.01$),CD、A²有显著影响 ($P < 0.05$),AB、AD、BD无显著影响 ($P > 0.05$)。各因素对打瓜籽油中亚油酸纯化效果的影响依次是C(尿素与混合脂肪酸质量比) > D(乙醇与尿素体积质量比) > B(包合时间) > A(包合温度)。

应用 Design - Expert 8.0.6 软件对模型进行计算,得到最优的纯化工工艺条件为:包合时间 13.3 h,包合温度 4.24 °C,乙醇与尿素体积质量比 4:1,尿素与混合脂肪酸质量比 2.63:1。在最优工艺条件下,尿素包合法纯化打瓜籽油亚油酸产品的综合评分为 98.21。

为试验操作的简便性,将最优工艺修正为:包合时间 13 h,包合温度 4 °C,乙醇与尿素体积质量比 4:1,尿素与混合脂肪酸质量比 3:1。在修正条件下进行 3 次重复试验,得到尿素包合法纯化打瓜籽油亚油酸产品的综合评分为 96.33,与预测值相对误差为 1.91%,此时产物的碘值(I)为 146.14 g/100 g,得率为 46.55%。

2.3 尿素包合前后主要脂肪酸组成(见表4)

表4 尿素包合前后主要脂肪酸组成 %

脂肪酸	包合前	包合后
棕榈酸	11.169	0.316
油酸	8.056	1.362
硬脂酸	6.120	0.025
亚油酸	72.910	97.249

由表4可看出,经过尿素包合后,绝大多数的饱和脂肪酸被除去,亚油酸含量由 72.910% 升高至 97.249%,亚油酸含量显著提高。

3 结论

本文采用单因素试验和响应面正交试验对尿素包合法纯化打瓜籽油亚油酸的工艺条件进行优化,得到的尿素包合法富集打瓜籽油亚油酸最优工艺条件为:包合时间 13 h,包合温度 4 °C,95% 乙醇与尿素体积质量比 4:1,尿素与混合脂肪酸质量比 3:1。在最优工艺条件下,亚油酸产物的碘值(I)为 146.14 g/100 g,得率为 46.55%。气相色谱分析表明,经尿素包合后,产物中主要脂肪酸为油酸和亚油酸,含量分别为

1.362%、97.249%，亚油酸含量较打瓜籽油(72.910%)明显升高。

参考文献:

- [1] 程瑛琨, 孟庆繁, 陈亚光, 等. 籽瓜多种营养成分的分析[J]. 食品研究与开发, 2006, 27(7): 169 - 171.
- [2] 王芳梅, 张鑫, 谷盼盼, 等. 新疆打瓜籽油氧化稳定性的研究及货架期预测[J]. 食品与发酵工业, 2019, 45(5): 168 - 173.
- [3] 朴金哲, 刘洪章. 打瓜籽挥发油提取与分析[J]. 北方园艺, 2010(8): 23 - 25.
- [4] 李颖慧, 长城, 黄利亚, 等. 打瓜的营养价值及功效作用探究[J]. 农家参谋, 2018, 597(19): 71.
- [5] 王芳梅, 谷盼盼, 张鑫, 等. 超声波辅助提取新疆打瓜籽油脂的工艺研究[J]. 中国粮油学报, 2018(8): 52 - 56.
- [6] 张扬, 林凡胜, 周鸿立. 打瓜中的生理活性物质[J]. 吉林化工学院学报, 2015, 32(4): 26 - 29.
- [7] 刘程惠, 胡文忠, 宋颖凡, 等. 超声波提取打瓜籽油工艺优化[J]. 食品与发酵工业, 2014(12): 227 - 233.
- [8] 安忠梅, 刘程惠, 胡文忠, 等. 超临界 CO₂ 流体萃取打瓜籽油的工艺研究[J]. 中国油脂, 2014, 39(2): 10 - 13.
- [9] 宋颖凡, 刘程惠, 胡文忠, 等. 超声辅助提取打瓜籽油工艺及其脂肪酸成分研究[J]. 食品工业科技, 2012, 33(17): 255 - 258.
- [10] 王明霞, 黄凤洪. 多不饱和脂肪酸萃取中超临界技术的应用进展[J]. 中国油脂, 2005, 30(8): 60 - 64.
- [11] LIANG J H, SUN H. Fractionation of squid visceral oil ethyl esters by short - path distillation [J]. J Am Oil Chem Soc, 2000, 77(7): 773 - 777.
- [12] 陈必春, 郭晓东, 许志杰, 等. 分子蒸馏及其在多不饱和脂肪酸中的应用[J]. 食品工程, 2007(1): 14 - 15.
- [13] 黄惠琴, 鲍时翔. 多价不饱和脂肪酸分离与纯化技术进展[J]. 中国油脂, 1999, 24(2): 32 - 34.
- [14] 李加兴, 李忠海, 刘飞, 等. α -亚麻酸的生理功能及其富集纯化[J]. 食品与机械, 2009, 25(5): 172 - 177.
- [15] 李明. 红花籽油中亚油酸的分离及微胶囊化[D]. 江苏 无锡: 江南大学, 2006.
- [16] SEEMA T. Study of moisture sorption behavior of urea inclusion compounds with aliphatic guests and with linear polymers [J]. J Phys Org Chem, 2014, 27: 76 - 86.
- [17] 李伟, 李保国, 姜元荣, 等. 尿素包合法富集沙棘果油棕榈油酸的工艺优化[J]. 中国油脂, 2019, 44(12): 51 - 54, 64.
- [18] 张文文, 杨敬辉, 吴琴燕, 等. 尿素包合法提纯西瓜子油中不饱和脂肪酸的研究[J]. 江西农业学报, 2011, 23(10): 51 - 54.
- [19] AARTHY M, GOWTHAMAN M K, AYYADURAI N, et al. Two step process for production of ω 3 - polyunsaturated fatty acid concentrates from sardine oil using *Cryptococcus* sp. MTCC 5455 lipase [J]. J Mol Catal B Enzym, 2016, 125: 25 - 33.
- [20] 李开雄, 刘秋云, 李宝昆. 尿素包合法富集红花油中亚油酸的工艺优化[J]. 食品工业, 2010(1): 74 - 77.
- [21] 赵萍, 夏文旭, 袁亚兰, 等. 尿素包合法对葵花籽油中亚油酸的富集研究[J]. 粮油加工(电子版), 2015(12): 31 - 34.
- [22] 杨万政, 关奇, 蓝蓉. 尿素包合法富集葵花油中亚油酸的研究[J]. 中国中医药信息杂志, 2007, 14(5): 50 - 52.
- [23] 张南海, 涂宗财, 何娜, 等. 尿素包合法富集鲢鱼鱼油中多不饱和脂肪酸工艺优化[J]. 食品与发酵工业, 2017, 43(6): 152 - 156.
- [24] 陈丽敏. 山核桃亚油酸分离及共轭亚油酸制备技术研究[D]. 合肥: 安徽农业大学, 2013.
- (上接第 42 页)
- [14] 王佳雅, 尚艳娥, 王利丹, 等. 2014—2016 年北京市市售食用植物油质量调查分析[J]. 中国油脂, 2018, 43(6): 85 - 89.
- [15] 董玲. 不同贮藏温度对花生品质影响研究[J]. 食品安全导刊, 2018(16): 73 - 75.
- [16] 刘芳, 王超, 杨菊, 等. 油脂酸价和过氧化值检测方法的研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2019, 10(14): 4478 - 4482.
- [17] 冯燕玲, 周建新, 高瑛琨. 储藏环境对菜籽油酸值和过氧化值的影响研究[J]. 粮食与油脂, 2016, 29(2): 23 - 26.
- [18] 陈志鸿, 黄海燕, 戴娟秀. 苯并芘致癌相关的表观遗传学机制[J]. 毒理学杂志, 2016, 30(6): 465 - 468.
- [19] 郝蔚霞. 植物油中苯并[a]芘安全风险分析及有效防控措施探讨[J]. 食品安全质量检测学报, 2015, 6(7): 2558 - 2562.
- [20] 师文文, 姜凯, 徐庆强, 等. 黄曲霉毒素 B₁ 致肝脏损伤作用机制的研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2018, 9(22): 5832 - 5836.
- [21] 程恒怡, 钟延旭, 陈杰, 等. 暴露限值法评估广西食用植物油中黄曲霉毒素 B₁ 的暴露风险[J]. 中国食品卫生杂志, 2017, 29(4): 496 - 499.
- [22] 陈可和, 陈甲信. 广西肝癌高发区黄曲霉毒素 B₁ 与乙肝病毒的协同致癌机制的研究进展[J]. 中国临床新医学, 2016, 9(8): 759 - 762.
- [23] 赖浩. 黄曲霉毒素 B₁ 呼吸道暴露与肝癌发病关系的研究[D]. 南宁: 广西医科大学, 2015.
- [24] 申泽良, 刘玉兰, 马宇翔, 等. 花生品质及制油工艺对毛油和饼粕中黄曲霉毒素含量的影响[J]. 中国油脂, 2019, 44(3): 80 - 85.
- [25] 张东, 李秀娟, 李晓宁, 等. 不同制油工艺及去除红衣对花生黄曲霉毒素的影响[J]. 中国油脂, 2018, 43(11): 69 - 72.
- [26] 邱会东, 赵波, 张红, 等. 食用植物油中重金属分析及其健康风险评估[J]. 中国油脂, 2017, 42(3): 91 - 94.
- [27] 刘莹, 刘会昌, 石建新. 膳食反式脂肪酸的风险评估研究进展[J]. 食品安全质量检测学报, 2015, 6(8): 3160 - 3166.