非触媒および Fe^{2+} 触媒酸化における大豆油トリグリセリド 分子種の酸化の相違

尹 亨殖*・大島敏明*・小泉千秋*

Susceptibilities of Different Molecular Species of Soybean Oil Triglycerides to Non-Catalyzed and Fe^{2+} -Catalyzed Oxidations

Hyung Sik YOON*, Toshiaki OHSHIMA* and Chiaki KOIZUMI*

* Tokyo University of Fisheries, Konan, Minato-ku, Tokyo 108

Susceptibilities to oxidation of different molecular species of purified soybean oil triglycerides (TG) were compared in both non-catalyzed and Fe^{2+} -catalyzed oxidation systems. Non-catalyzed oxidation of the sample was carried out in a beaker with continuous stirring at 37°C in the dark. Fe^{2+} -catalyzed oxidation was conducted on the surface of Avicel (microcrystalline cellulose), previously coated with FeCl_2 , under the conditions of 37°C and Aw 0.75. During oxidation, molecular species compositions of the samples were determined by gas-liquid chromatography. In both systems, with some exceptions, oxidation rates of the TG increased with increase in the number of double bonds in their fatty acyl chains, for molecular species having the same total carbon number in fatty acyl chains. In case of the TG having the same number of double bonds, molecular species underwent oxidation at higher rates with less total carbon numbers than with more total carbon numbers in their fatty acyl chains. However, the Fe^{2+} -catalyzed system was different to some extent from the non-catalyzed system in order of molecular species of the TG susceptible of oxidation. These results suggest that, in the Fe^{2+} -catalyzed oxidation, the accessibility of Fe^{2+} to the vicinities of double bonds in the fatty acyl chains of TG is influenced by differences in molecular structures of the TG. (Received Aug. 20, 1992)

食品中で起こる脂質の酸化は、食品に異味・異臭を付与するばかりでなく、栄養価の低下や時として人体に悪影響をもたらすことさえあるといわれている^{1)~4)}。脂質の自動酸化についてはこれまで、不飽和脂肪酸やそのメチルあるいはエチルエステルを用いたモデル系で多くの研究が行われ、すでに自動酸化機構はほぼ解明されている^{5),6)}。

しかしながら、食品や食用油脂に含まれる不飽和脂肪酸の大部分はトリグリセリド (TG) として存在するので、TG の自動酸化についての研究も重要である。近年における機器分析の目覚ましい発展に伴って、天然油脂の

TG の分子種分析がある程度まで可能となり、その成果が散見されるようになった^{7)~9)}。これに伴って、脂質の自動酸化についての関心は、不飽和脂肪酸のレベルから TG のレベルへと移りつつあり、比較的分子種組成の簡単な植物油 TG や構造が明らかな合成 TG の自動酸化についての研究が分子種レベルで試みられ、いくつかの新しい知見が得られている^{10)~13)}。

本研究では、TG の構造と酸化速度との関係、特に実際の食品中で起こる触媒酸化の速度と構造との関係を大豆油 TG をモデルとして分子種レベルで検討した。

* 東京水産大学 (〒108 東京都港区港南 4-5-7)

実 験 方 法

1. 過酸化価の測定

過酸化価 (POV) の測定は ASAKAWA および MATSUSHITA¹⁰⁾ の微量比色定量法によった。すなわち、試料に KI を作用させ、遊離したヨウ素を可溶性でん粉で発色させ 560 nm の吸光値を測定した。あらかじめ、大豆油 TG を用いて AOCS の公定法¹⁵⁾ により測定した POV と吸光値との関係から POV を算出した。

2. 大豆油 TG の精製

市販の精製大豆油 (林市次商店) を Florisil (100~200 メッシュ, 和光純薬製) を用いたカラムクロマトグラフィーによりさらに精製した。展開溶媒には、ヘキサン、6% ジエチルエーテルを含むヘキサンおよび 10% ジエチルエーテルを含むヘキサンをこの順序で用いた。なお得られた精製 TG の高速液体クロマトグラフィーで測定した α -トコフェロール含量は 36.8 ppm であった。

3. TG の酸化試験法

対照試験としての非触媒酸化は、供試大豆油 TG の約 1.8 g を小型ビーカー (3.5 cm id $\times$ 7.4 cm) に入れ、マグネチックスターラーで連続的に攪拌しながら 60°C の恒温器中で行った。

Fe²⁺ 触媒酸化は次のように行った。17.8 mg の FeCl₂ $\cdot$ 4 H₂O を 600 ml の脱イオン蒸留水に溶解し、これを 250 g の Avicel (結晶セルロース, 平均粒子サイズ 100 ミクロン, 旭化成社製) に加えた (Avicel 中の Fe²⁺ の濃度は 20 ppm)。得られたスラリーは、真空凍結乾燥したのち、水分活性 (Aw) を調整するため飽和食塩水 (Aw, 0.75) 入りデシケータ中に 3 日間保持した。ついで、この Avicel の 182.4 g に 9.6 g の供試 TG をジエチルエーテルに溶解して加え、よく混和してからロータリーエバポレーターで溶剤を完全に留却した。これをシャーレ中に薄層にして広げ、飽和食塩水入り大型デシケータに入れて 25°C の暗所に放置した。

4. TG の分析

非触媒酸化の場合には、経日的に一定量の供試 TG を取り出し、内部標準物質としてトリパルミチン (純度 99% 以上, Sigma 社製) の一定量を加えて後述するガスクロマトグラフィー (GLC) で定量した。

Fe²⁺ 触媒酸化の場合には、経日的に 0.3 g の試料を取り出し、内部標準物質として 2 mg のトリパルミチンを添加してからクロロホルム/メタノール (2:1, v/v) で TG を抽出した。抽出した TG は、Silica Gel G

(Merck 社製) および石油エーテル/ジエチルエーテル/酢酸 (80:20:1, v/v/v) を用いる薄層クロマトグラフィー (TLC) により精製後、GLC で定量した。

TG の GLC による定量は、島津 GC 12 A ガスクロマトグラフを用いて次の条件で行った。カラム, MP 65 HT (65% methyl-phenylsilicone) 熔融石英 WCOT カラム (0.25 mm id $\times$ 30 m, Quadrex 社製); カラム温度, 345°C; キャリヤー, ヘリウム, 1.8 kg/cm²。TG の同定は、前報⁹⁾ と同様に選択イオン-ガスクロマトグラフ/マススペクトロメトリー (GC/MS-SIM) によった。GLC におけるピーク面積と TG 量との関係は、いろいろな不飽和脂肪酸の組合せをもつ標準 TG が入手できなかったため、補正しなかった。なお、TG 分析は各試料共 3 回ずつ行った。

5. 脂肪酸の分析

供試 TG を 1/2 N アルコール性 KOH でけん化して得られた脂肪酸を 14% BF₃-メタノール (和光純薬製) でメチルエステル化後 GLC で分析した。ガスクロマ

Table 1 Fatty acid composition of soybean triglycerides used in this study (%)

Fatty acid	
14:0	0.11
15:0	0.04
16:0	9.91
16:1 n-7	0.08
17:0	0.15
17:1 n-8	0.08
18:0	3.71
18:1 n-9 ^a	21.1
18:1 n-7	1.28
18:2 n-6	54.2
18:2 ^b	0.31
18:3 n-3	6.88
18:3 ^c	1.37
20:0	0.30
20:1 n-9	0.20
22:0	0.23
Other	0.15

^a: Includes a small amount of 18:1 n-11

^b: Sum of two kinds of mono-trans geometric isomers of 18:2

^c: Sum of three kinds of cis-trans geometric isomers of 18:3

トグラフには島津 GC 12 A を用い、分析条件は次のようである。カラム, SUPELCOWAX-10 熔融石英 WCOT カラム (0.25 mm id × 30 m, Supelco Japan 社製); カラム温度, 195°C; キャリヤー, ヘリウム。

実験結果および考察

1. POV および TG 量の変化

供試大豆油 TG の脂肪酸組成を Table 1 に示す。主な構成脂肪酸は 18:2 n-6, 18:1 n-9, 16:0, 18:3 n-3 で、組成比はこの順序で高かった。

POV および TG 量の変化を Fig. 1 に示す。非触媒酸化の場合には、POV (0 日目, 14.6 meq/kg) は 6 日目までは緩やかに、その後 14 日目までは速やかに増加した (POV, 977 meq/kg)。しかし、14 日以降は POV はやや減少した。一方、 Fe^{2+} 触媒酸化の場合には、酸化開始後 3 日目から急激に増加し、6 日目には最高値 (940 meq/kg) に達した。

TG 量は非触媒酸化では 6 日目まで緩やかに、その後はやや速やかに減少した。20 日後の TG の残存率は 40.6% であった。 Fe^{2+} 触媒酸化の場合には、酸化開始後 3 日目から TG は急激に減少した。TG の残存率は 8 日目には 26.6% となった。誘導期間は、 Fe^{2+} 触媒酸化では 3 日間であったが、非触媒酸化では 6 日間と判断

され、その時の TG の残存率は前者で 85.5%, 後者で 91.2% でほぼ同様であった。また、POV が最高値に達したのは Fe^{2+} 触媒酸化では 6 日目、非触媒酸化では 14 日目であったが、その時までには前者では TG の 55.1% が、また後者では 37.9% が酸化により消失した。

2. TG 分子種の変化

供試 TG の酸化前後におけるガスクロマトグラムを Fig. 2 に示す。各ピークは GC/MS-SIM により次のように同定した。1, POP (0.89%); 2, PLP (2.96%); 3, POS (0.86%); 4, POO + PLS (4.84%); 5, PLO + (PLnS) (10.1%); 6, PLL + (PLnO) (14.1%); 7, PLnL (4.19%); 8, SOS (痕跡); 9, SOO + SLS (1.70%); 10, OOO + SLO + (SLnS) (6.88%); 11, OLO + SLL + (SLnO) (12.5%); 12, OLL + (OLnO) + (SLnL) (16.9%); 13, LLL + (OLnL) + (SLnLn) (18.6%); 14, LLnL (5.18%); 15, 未同定 (0.40%)。TG 分子種のアシル基は次のように略記した: P, パルミチン酸; S, ステアリン酸; O, オレイン酸; L, リノール酸; Ln, リノレン酸。組成比の低い分子種はカッコで示し、その後に酸化試験前の分子種の組成比を%で示した。なお、本研究では脂肪酸の結合位置の違いによる異性体は区別していないので、分子種の中央に表記した脂肪酸が β -位結合脂肪酸とは限らない。すべての

Fig. 1 Changes in residual percentages and POV of soybean triglycerides during oxidation

●—● and ○—○, residual percentage and POV of triglycerides in non-catalyzed oxidation, respectively; ▲—▲ and △—△, those in Fe^{2+} -catalyzed oxidation

Fig. 2 Typical FID-gas chromatograms of soybean triglycerides

(A), before oxidation; (B), after Fe^{2+} -catalyzed oxidation for 8 days.

分子種を分離定量できなかったが、主要な分子種は LLL, OLL, PLL, OLO, SLL, PLO など、それらの組成比は既往の文献値¹⁰⁾ にほぼ一致した。

TG の非触媒酸化における分子種の変化を残存率で Table 2 に示す。なお、ピーク No. 8 は痕跡程度で定量できなかったため、またピーク No. 1 および 3 は微量成分のため Table 2 から削除した。脂質の自動酸化速度を検討する場合には、酸化の初期段階における速度を問題にすべきであるが、本研究におけるように TG 分子種の残存率から酸化速度を比較する場合には、ある程度酸化が進行した段階でないと比較が困難である。そこで、各分子種の残存率が約 80% まで低下するに要する日数を目安として酸化速度を比較することとした。Table 2 から明らかなように、LLnL は残存率が約 80% まで低下するのは 4 日目、最も酸化減少が速かった。PLnL および LLL は、残存率が 80% 以下に低下するのは共に 8 日目と 10 日目の間であるが、両者の残存率から酸化は PLnL のほうがやや速いものと推定した。PLL, OLO + SLL および OLL の場合には、残存

率が 80% 以下に達するのはいずれも 10 日以降であるが、8 日、10 日および 12 日目の残存率を参考にすると PLL が最も速く、OLO + SLL と OLL の減少速度はほぼ同様であると判断された。残りの分子種は、残存率が 80% 以下になるのはいずれも 12 日日以降で、10 日、12 日および 14 日目の残存率を参考にして推定した酸化速度は、PLO と SOO + SLS がほぼ同様で最も大きく、ついで OOO + SLO, PLP, POO + PLS の順序で大きかった。以上の結果を総合すると自動酸化速度の大きい分子種の順序は次のように推定された。LLnL > PLnL > LLL > PLL > OLO + SLL $\approx$ OLL > PLO $\approx$ SOO + SLS > PLP $\approx$ OOO + SLO > POO + PLS。これを各分子種のアシル基の総炭素数 (TC) と総二重結合数 (DB) で表記すると次のようになる。54:7 > 52:5 > 54:6 > 52:4 > 54:4 $\approx$ 54:5 > 52:3 $\approx$ 54:2 > 50:2 $\approx$ 54:3 > 52:2。TC 別に酸化速度を比較すると、TC 54 の分子種の場合には SOO + SLS を除いて、DB の多い分子種ほど酸化が速く、また TC 52 の分子種の場合には例外なく DB の多いもののほうが速かった。

DB が同数の分子種について比較すると、酸化速度は 52:5 (PLnL) > 54:5 (OLL), 52:4 (PLL) > 54:4 (OLO + SLL), 52:3 (PLO) > 54:3 (OOO + SLO), 54:2 (SOO + SLS) > 50:2 (PLP) > 52:2 (POO + PLS) となる。すなわち、SOO + SLS (54:2) を除くといずれも DB が同じ分子種の場合には、TC が少ないものの酸化が速い。PARK ら¹¹⁾ によれば、TG の自動酸化速度は TG の DB より構成脂肪酸分子のうち最も二重結合数の多い不飽和脂肪酸に支配され、また構成脂肪酸として飽和脂肪酸を含む TG の場合には、そのアシル基の短い TG ほど酸化安定性が高いという。本研究の場合にも、構成脂肪酸として Ln を含む TG が最も酸化し易く、L を 3 分子、2 分子、1 分子含む TG の順に酸化が速かった。しかし、DB が同じ TG の酸化安定性を分子種別にみると、アシル基の短い P の 1 または 2 分子を含む TG は、これを含まない TG より酸化が速い傾向がみられ、PARK らの結果とやや相違した。このことは、TG の酸化安定性は構成不飽和脂肪酸の不飽和度と飽和脂肪酸の鎖長の両者の影響を受けるが、いずれが強く現われるかは酸化条件などによって異なることを示すものと思われる。TG の酸化安定性と分子構造との関係をより明確にするためには、さらに多くのデータの蓄積が必要であろう。

Table 3 には、 Fe^{2+} 触媒酸化における TG の分子種の変化を残存率で示す。非触媒酸化の場合と同様に、残

Table 2 Changes in residual percentages of molecular species in soybean triglycerides during non-catalyzed oxidation

(%)

Peak no	Molecular species	TC : DB	Oxidation period (day)										
			0	2	4	6	8	10	12	14	16	18	20
2	PLP	50 : 2	100	97.5	96.0	92.5	89.0	90.0	83.0	78.5	73.5	69.0	65.0
4	POO, PLS	52 : 2	100	96.9	94.9	96.9	93.3	92.3	91.1	87.2	84.0	82.6	77.4
5	PLO, (PLnS)	52 : 3	100	97.5	95.3	92.4	89.9	85.7	82.5	76.0	73.1	63.2	57.3
6	PLL, (PLnO)	52 : 4	100	96.3	94.5	92.8	88.2	80.9	74.4	63.2	57.0	42.9	36.2
7	PLnL	52 : 5	100	96.1	94.7	89.0	82.0	71.4	51.2	38.2	35.3	26.5	20.1
9	SOO, SLS	54 : 2	100	95.7	95.7	93.9	93.9	88.7	80.9	76.5	78.3	72.2	73.9
10	OOO, SLO, (SLnS)	54 : 3	100	97.9	95.7	91.5	89.4	89.4	85.1	78.7	76.6	72.3	68.1
11	OLO, SLL, (SLnO)	54 : 4	100	97.6	95.2	91.7	89.3	83.3	76.2	66.7	63.1	52.4	46.4
12	OLL, (OLnO), (SLnL)	54 : 5	100	98.2	97.6	95.9	92.3	80.8	72.9	60.4	53.7	38.8	33.2
13	LLL, (OLnL), (SLnLn)	54 : 6	100	97.4	92.5	88.7	85.3	73.8	60.3	48.1	37.5	25.1	20.2
14	LLnL	54 : 7	100	90.6	80.9	76.6	73.4	66.6	46.3	36.6	29.1	18.0	14.0

P, palmitic ; S, stearic ; O, oleic ; L, linoleic ; Ln, linolenic

TC and DB shows total numbers of carbon atoms and double bonds, respectively, in fatty acyl chains. Molecular species in parentheses are minor components.

Table 3 Changes in residual percentages of molecular species in soybean triglycerides during Fe²⁺-catalyzed oxidation

(%)

Peak no	Molecular species	TC : DB	Oxidation period (day)									
			0	1	2	3	4	5	6	7	8	
2	PLP	50 : 2	100	97.6	97.6	92.8	84.1	76.0	67.3	57.7	45.7	
4	POO, PLS	52 : 2	100	97.7	95.8	90.1	83.6	79.3	75.1	69.4	66.0	
5	PLO, (PLnS)	52 : 3	100	98.6	94.9	90.4	77.6	71.4	57.4	44.4	32.7	
6	PLL, (PLnO)	52 : 4	100	99.1	95.6	88.5	68.7	56.9	39.4	24.8	17.3	
7	PLnL	52 : 5	100	97.6	88.4	82.3	75.5	59.8	44.2	33.3	15.3	
9	SOO, SLS	54 : 2	100	100	96.4	96.4	94.0	90.4	90.4	90.4	84.3	
10	OOO, SLO, (SLnS)	54 : 3	100	100	99.3	97.7	94.7	86.1	73.9	66.5	58.4	
11	OLO, SLL, (SLnO)	54 : 4	100	99.8	97.9	91.8	80.4	63.2	49.1	35.3	26.4	
12	OLL, (OLnO), (SLnL)	54 : 5	100	98.8	95.2	88.5	69.6	52.4	36.5	21.4	16.8	
13	LLL, (OLnL), (SLnLn)	54 : 6	100	98.8	94.5	86.2	66.5	39.8	24.1	17.1	12.9	
14	LLnL	54 : 7	100	94.8	89.6	74.9	64.0	46.5	39.9	29.5	19.1	

存率が 80% 以下になるまでの日数で分子種の酸化安定性を比較すると次のようになる。PLO, PLL, PLnL, OLL, LLL および LLnL は 4 日目に残存率が 80% 以下に低下した。したがって、各分子種の酸化速度は主として 3 日および 4 日目の残存率から次のように推定した：LLnL > LLL > OLL ≒ PLnL ≒ PLL > PLO。次に、

残存率 80% が 4 日目と 5 日目の間にある分子種の酸化速度を同様に比較すると次のようである：OLO + SLL > PLP > POO + PLS。最も酸化の遅かったのは SOO + SLS で、残存率は 8 日目でも 80% 台であった。これらの結果を総合すると、酸化し易さの順序は LLnL > LLL > PLnL ≒ OLL ≒ PLL > PLO ≒ OLO + SLL >

PLP > POO + PLS > OOO + SLO > SOO + SLS と推定された。非触媒酸化の場合と同様にこれを TC と DB で表記すると、54 : 7 > 54 : 6 > 52 : 5 > 54 : 5 > 52 : 4 > 52 : 3 > 54 : 4 > 50 : 2 > 52 : 2 > 54 : 3 > 54 : 2 となる。TC 別に酸化速度を比較すると、TC 54 の場合には例外なく DB の多いものほど酸化し易く、また TC 52 の場合にも PLnL (52 : 5) を除けば同様であった。この点は、非触媒酸化の場合とほぼ同様である。また、DB が同数の分子種の酸化速度を比較すると、54 : 5 (OLL) > 52 : 5 (PLnL), 52 : 4 (PLL) > 54 : 4 (OLO + SLL), 52 : 3 (PLO) > 54 : 3 (OOO + SLO), 50 : 2 (PLP) > 52 : 2 (POO + PLS) > 54 : 2 (SOO + SLS) となり、DB 5 の分子種以外は非触媒酸化の場合と同様に TC の少ない分子種の酸化が速かった。

以上の結果を基に、各 TG 分子種の非触媒酸化および Fe^{2+} 触媒酸化における相対的な酸化速度を比較すると、まず OLL の酸化の速さは非触媒酸化では OLO + SLL と共に 5 番目に位置しているが、 Fe^{2+} 触媒酸化では LLnL, LLL について 3 番目であった。また、比較的酸化の遅い SOO + SLS, PLP, OOO + SLO および POO + PLS の酸化速度は、非触媒酸化ではこの順序で大きかったが、 Fe^{2+} 触媒酸化では順序が変わり、PLP の酸化が最も速く、ついで POO + PLS, OOO + SLO で、非触媒酸化で最も速かった SOO + SLS は Fe^{2+} 触媒酸化では最も遅かった。このように、TG 分子種の相対的な酸化安定性が非触媒酸化と Fe^{2+} 触媒酸化で相違するのは、 Fe^{2+} 触媒の TG に対する親和性が TG 構造によって異なるためと推測される。LLnL, LLL, PLnL などの比較的酸化の速かった分子種では、このような非触媒系と触媒系における相対的な酸化速度の分子種による相違は明瞭でなかった。 Fe^{2+} の触媒作用機構を考慮すると、酸化の初期段階における速度を比較する必要があると思われるが、そのためにはさらに精度の高い TG の分子種分析法を確立する必要がある。

要 約

大豆油 TG の非触媒および Fe^{2+} 触媒酸化における分子種の変化を調べ、次のような結果を得た。

(1) 非触媒酸化では、POV は酸化の 6 日目以降急激に上昇し、これに伴って TG 量が緩やかに減少した。触媒酸化の場合には、POV は 3 日目以降急激に上昇し、これに伴って TG 量は急激に減少した。

(2) TG の残存率が約 80% まで低下するのに要する日数で各分子種の酸化速度を比較したところ、非触媒系

では LLnL > PLnL > LLL > PLL > OLO + SLL > OLL > PLO > SOO + SLS > PLP > OOO + SLO > POO + PLS と推定された。一方、触媒系では LLnL > LLL > PLnL > OLL > PLL > PLO > OLO + SLL > PLP > POO + PLS > OOO + SLO > SOO + SLS と推定された。

(3) いずれの系でも TC が同一であれば DB の多い分子種ほど、また DB が同一であれば TC の少ない分子種ほど酸化が速い傾向があった。

(4) OLL, PLP および POO + PLS の相対的な酸化速度は、非触媒系におけるより Fe^{2+} 触媒系で大きかった。

文 献

- 1) FRANKEL, E.N.: *Prog. Lipid Res.*, **20**, 1 (1982).
- 2) FRANKEL, E.N.: *Prog. Lipid Res.*, **23**, 197 (1985).
- 3) ANDREWS, E.N., GRIFFITH, W.H., MEAD, J.F. and STEIN, R.A.: *J. Nutr.*, **70**, 199 (1960).
- 4) TOVAR, G.L.R. and KANEDA, T.: *Yukagaku*, **26**, 169 (1970).
- 5) INGOLD, K.U.: *Lipids and Their Oxidation*, ed. by SCHULTZ, H.W., DAY, E.A. and SINNHUMER, R.O. (The Avi Publishing, Westport), p. 93 (1962).
- 6) FRANKEL, E.N.: *Prog. Lipid Res.*, **19**, 1 (1981).
- 7) HINSHAW, J.V. and SEFEROVIC, W.: *J. High Res. Chrom. and Chrom. Comm.*, **9**, 731 (1986).
- 8) GEERAERT, E. and SANDRA, P.: *J. Am. Oil Chem. Soc.*, **64**, 100 (1987).
- 9) OHSHIMA, T., YOON H.S. and KOIZUMI, C.: *Lipids*, **24**, 535 (1989).
- 10) PARK, D.K., TERAOKA, J. and MATSUSHITA, S.: *Yukagaku*, **32**, 418 (1983).
- 11) PARK, D.K., TERAOKA, J. and MATSUSHITA, S.: *Agric. Biol. Chem.*, **47**, 2243 (1983).
- 12) PARK, D.K., TERAOKA, J. and MATSUSHITA, S.: *Agric. Biol. Chem.*, **47**, 2251 (1983).
- 13) WADA, S. and KOIZUMI, C.: *J. Am. Oil Chem. Soc.*, **60**, 1105 (1983).
- 14) ASAKAWA, T. and MATSUSHITA, S.: *Lipids*, **15**, 965 (1980).
- 15) Official and Tentative Methods of the American Oil Chemists' Society, Vol. 1, 3rd Edn. ed. by WALKERS, R.O. (AOCS, Champaign), Methods Cd 8-53 (1981).

(平成 4 年 8 月 20 日受理)