

文章编号: 1673-1689(2006)05-0008-07

亚麻籽胶的胶凝性质

陈海华, 许时婴, 王璋

(江南大学 食品学院, 江苏 无锡 214036)

摘要: 采用流变学法测定了亚麻籽胶溶液的胶凝点、熔化点, 并采用质构仪、扫描电镜和原子力显微镜等手段研究了影响亚麻籽胶凝胶强度的因素, 结果表明亚麻籽胶具有胶凝性, 它能形成一种热可逆的冷致凝胶, 亚麻籽胶溶液的胶凝点低于其凝胶的熔化点, 且亚麻籽胶溶液的胶凝点及其凝胶的熔化点均随冷却的起始温度的升高而升高。亚麻籽胶浓度、溶解温度、pH、NaCl、CaCl₂及复合磷酸盐能影响亚麻籽胶的凝胶强度, 亚麻籽胶的凝胶强度随着浓度的增加及溶解温度的升高而增强, 在 pH 6~9 的范围内, 亚麻籽胶的凝胶强度达到最大; NaCl 和复合磷酸盐可以降低亚麻籽胶的凝胶强度, 低浓度 (<0.3%) 的 CaCl₂ 可以增强亚麻籽胶的凝胶强度, 而高质量分数 (>0.3%) 的 CaCl₂ 能降低亚麻籽胶的凝胶强度。

关键词: 亚麻籽胶; 胶凝点; 熔化点; 凝胶强度; 扫描电镜; 原子力显微镜

中图分类号: S 563.2

文献标识码: A

Gel Properties of Flaxseed Gum

CHEN Hai-hua, XU Shi-ying, WANG Zhang

(School of Food Science and Technology, Southern Yangtze University, Wuxi 214036, China)

Abstract: The gelling point and melting point of flaxseed gum were investigated, and the gel strength of flaxseed gum were detected with AR1000 rheometer, TA texture testing instrument, scanning electronic microscope (SEM) and atomic force microscope (AFM). The results indicated that flaxseed gum solution was characterized as a gel properties, and which could form a kind of heat reversible gel. Both the gelling point of flaxseed gum solution and the melting point of flaxseed gum gel were influenced by the start cooling temperature, and the gelling point was lower than its melting point. The gel strength of flaxseed gum could be affected by the dissolution temperature, pH value, NaCl, CaCl₂ and complex phosphate salt.

Key words: flaxseed gum; gelling point; melting point; gel strength; scanning electronic microscope (SEM); atomic force microscope (AFM)

胶凝性是亲水胶体的一个重要功能性质, 只有部分亲水胶体具有胶凝的特性, 如明胶、卡拉胶、淀粉、果胶等, 通过分子长链的相互交联形成一种能

将水或其它液体固定在其中, 能抵御外界压力而阻止体系流动的坚固致密的三维网络结构。有些亲水胶体自身不能形成凝胶, 但与其它亲水胶体复合

收稿日期: 2005-06-07; 修回日期: 2005-09-06.

基金项目: 国家“十五”重大科技攻关专项项目(2001BA501A3).

作者简介: 陈海华(1973-), 女, 山东招远人, 副教授, 工学博士。

在一起时能形成凝胶,如黄原胶和刺槐豆胶。不同种类的亲水胶体的胶凝机理、形成的凝胶的质构和稳定性等各不相同,因此,在食品中具有不同的应用^[1-2]。

亚麻籽胶具有弱凝胶的特性。质量分数1%亚麻籽胶溶液加热至75℃后冷却,能得到粘度为0.5~20 Pa·s的半凝胶的产品;Cui等人^[3]指出中性多糖(阿拉伯木聚糖)含量高的亚麻籽胶表现出剪切变稀和弱凝胶的特性;Wannerberger等人^[4]发现不同品种的亚麻籽胶的凝胶特性不同;O'Mullane等人^[5]的研究表明,亚麻籽胶需要加入其它胶凝剂才能形成凝胶;作者前期的研究结果也表明,当亚麻籽胶溶液加热到90℃以上然后冷却,能形成肉眼可见的弱凝胶^[6]。目前,有关明胶、结冷胶、卡拉胶的胶凝机理和性质已进行了大量的、详细的研究,但迄今为止,对亚麻籽胶的胶凝机理、影响亚麻籽胶溶胶及凝胶转变的因素、影响亚麻籽胶凝胶强度的因素等的研究尚未见报道。

1 材料和方法

1.1 实验材料

亚麻籽胶301:新疆绿旗企业(集团)生物科技有限公司提供。

1.2 方法

1.2.1 胶凝点和熔化点(即凝胶-溶胶转变温度)的测定

1)样品的制备 室温下制备质量分数1%的亚麻籽胶溶液,用于胶凝点和熔化点的测定。

2)动态流变学法 样品加到AR1000流变仪的样品台上,盖上盖板,并用液体石蜡油密封,以防止水分蒸发。采用直径为60 mm的1°不锈钢锥板测量系统,从室温以8℃/min的速度分别升温至60、70、80、90℃(第一次升温)→停留2 min→以5℃/min的速度降至10℃→停留10 min→最后以5℃/min的速度升温至90℃(第二次升温)。测定降温和第二次升温过程中 G' 和 G'' 的变化。

1.2.2 凝胶粘弹性的测定 采用AR1000型流变仪,选择直径为60 mm、1°不锈钢锥板测量系统,在常温下测定亚麻籽胶溶液 G' 、 G'' 和 $\tan\delta$ 随振荡频率的变化。

1.2.3 凝胶强度的测定

1)样品的制备 在95℃下制备质量分数2%的亚麻籽胶溶液,用HCl或NaOH调节pH 2~12,或添加不同浓度的电解质,并在4~8℃下静置过

夜,形成凝胶。

2)凝胶强度的测定 采用TA.XT2i物性测试仪的P/0.5型探头,测试速度为2.0 mm/s,形变50%,测定凝胶破裂所需要的最大力,即凝胶强度。

1.2.4 亚麻籽胶溶液的Zeta电位的测定 配制质量分数2%亚麻籽胶溶液,分别添加不同浓度的电解质,离心除去不溶性物质后,用Zetasizer 2000型电位分析仪(英国,Malvern公司)测定Zeta电位。

1.2.5 亚麻籽胶凝胶超微结构的扫描电镜观察 制备质量分数0.5%亚麻籽胶凝胶→质量分数1%钨酸固定16 d→0.1 mol/L磷酸盐缓冲液(pH 7.2)漂洗数次→静置过夜→体积分数30%、50%、70%、90%和100%的乙醇梯度脱水→醋酸异戊酯梯度脱乙醇→临界点干燥→离子溅射仪喷金→扫描电镜观察,加速电压为10 kV。

1.2.6 亚麻籽胶凝胶超微结构的原子力显微镜观察 配制1 mg/mL亚麻籽胶溶液,室温下搅拌过夜。加水稀释至一定浓度,边搅拌边加热保温一定时间,移取2 μL稀释后的样品滴加到新剥离的云母片上,室温下晾干,在原子力显微镜下观察。

原子力显微镜的条件:针尖为125 μm长的蚀刻硅,弹性常数20~80 N/m,扫描头为A型,共振频率范围200~400 Hz,图像在tapping模式下获得,实验在空气及室温下完成。

2 结果与讨论

2.1 亚麻籽胶的溶胶和凝胶转变

当亲水胶体通过氢键或疏水相互作用形成凝胶后,在加热或冷却过程中,会发生从凝胶状态向溶胶状态的可逆变化^[7]。作者采用动态流变学法和差示扫描量热法(DSC)研究了亚麻籽胶的溶胶与凝胶的可逆变化。

2.1.1 动态流变学法测定亚麻籽胶的胶凝点和熔化点 凝胶的形成与温度有关。从图1(A)可以看出,当溶解温度为60℃时,损耗模量 G'' 大于贮能模量 G' ,体系以粘性为主,亚麻籽胶呈溶液状态;冷却过程中,随着温度的降低, G' 和 G'' 逐渐增大,但 G' 增加的程度比 G'' 大;当温度降至45℃左右时, G' 开始超过 G'' ,出现交汇点,这意味着体系中的弹性成分增加,体系开始胶凝;随着温度的继续降低, G' 始终大于 G'' ,体系呈现弱凝胶的特性。上述结果表明亚麻籽胶溶液在加热到足够高的温度后,进行冷却时会发生胶凝,属于冷致胶凝。冷却过程中 G' 和 G'' 的交汇点的温度定义为胶凝点(T_{gel})。

许多亲水胶体形成的凝胶具有热可逆性,如明胶、卡拉胶等形成的凝胶,它们在加热到足够高的温度后,重新恢复到溶胶状态。从图1(B)可以看出,在加热过程中,随着温度的升高,亚麻籽胶凝胶的 G' 和 G'' 逐渐降低,但 G' 降低的程度比 G'' 大,当温度升高至47℃左右时, G'' 超过 G' 出现交汇点,这意味着体系中的粘性成分增加,体系开始熔化;随着温度的继续升高, G'' 始终大于 G' ,表现出典型的粘弹流体的特性。上述结果表明亚麻籽胶凝胶在加热到足够高的温度时,会发生熔化,属于热可逆凝胶。加热过程中 G'' 和 G' 的交汇点的温度定义为熔化点(T_{melt})。

亚麻籽胶溶解温度的影响,当溶解温度越高,即起始冷却温度越高,则形成凝胶后,凝胶的熔化温度也越高。

表1 从不同起始温度冷却的质量分数1%亚麻籽胶的 T_{gel} 和 T_{melt} *

Tab.1 T_{gel} and T_{melt} for 1% flaxseed gum cooling from different temperature

冷却的起始温度/℃	T_{gel}	T_{melt}
60	45.1	47.0
70	52.2	58.5
80	61.3	67.1
90	66.6	79.3

* 冷却和加热速率 5℃/min。

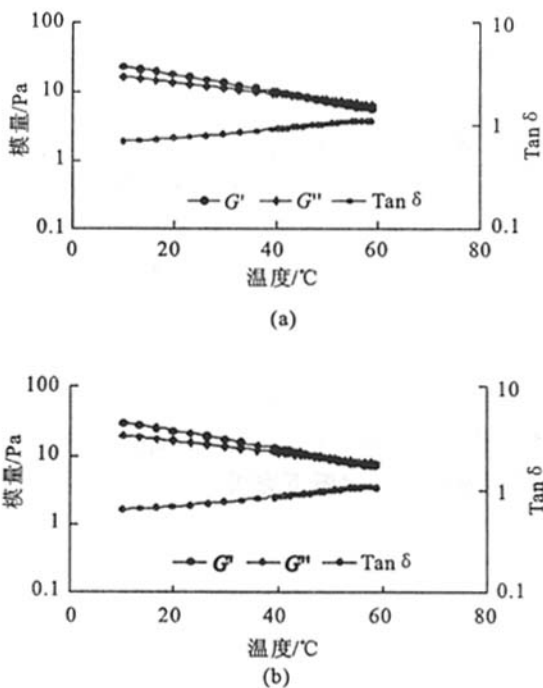
2) 质量分数对亚麻籽胶 T_{gel} 和 T_{melt} 的影响 从表2可以看出,浓度影响亚麻籽胶溶液的胶凝点,质量分数越高,亚麻籽胶溶液的胶凝点越高。从表2还可看出亚麻籽胶凝胶的熔化点也随亚麻籽胶浓度的增加而升高。这是因为亚麻籽胶溶液的质量分数越高,溶液中亚麻籽胶的分子数就越多,形成网络结点数增多,因而在较高的温度下即可发生胶凝;并且浓度越高,形成凝胶的三维网状结构的致密程度大大增加,因而凝胶强度越大,打破这些网络结点需要的能量也就越多,因此凝胶的熔化点就越高,见图2(a)和(b)。

表2 质量分数对亚麻籽胶的 T_{gel} 和 T_{melt} 的影响*

Tab.2 Effect of concentration on T_{gel} and T_{melt} of flaxseed gum

质量分数/%	T_{gel}	T_{melt}
0.5	49.9	58.8
0.8	55.7	67.6
1.0	66.6	79.3
1.2	73.9	86.9

* 冷却的起始温度 90℃;冷却和加热速率 5℃/min。



(a)降温 (b)第二次升温;冷却和第二次加热的速率 5℃/min;冷却的起始温度 60℃

图1 质量分数1%亚麻籽胶溶液在降温 and 第二次升温过程中 G' 和 G'' 的变化

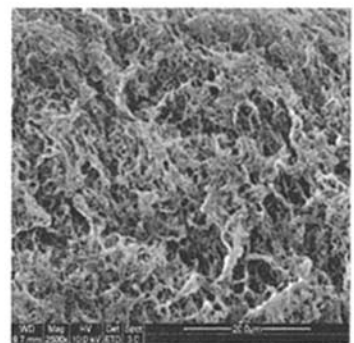
Fig.1 Temperature dependence of G' and G'' for 1% flaxseed gum solution during cooling and re-heating

上述结果表明亚麻籽胶凝胶是一种加热时熔化、冷却时又发生胶凝的热可逆性凝胶。

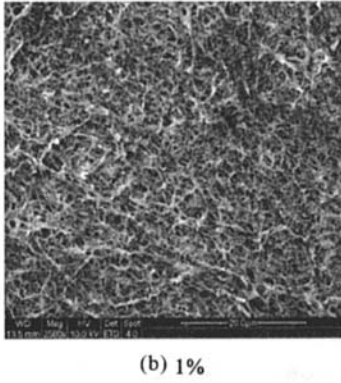
2.1.2 影响亚麻籽胶 T_{gel} 和 T_{melt} 的因素

1) 冷却的起始温度对亚麻籽胶 T_{gel} 和 T_{melt} 的影响 冷却的起始温度也就是样品的溶解温度。表1的结果表明,亚麻籽胶溶液的胶凝点与其溶解温度有关,溶解温度越高,亚麻籽胶溶液的胶凝点就越高。

表1的结果还表明亚麻籽胶凝胶的熔化点受



(a) 0.5%



(b) 1%

(a) 质量分数 0.5% (b) 质量分数 1% ; 溶解温度 95 °C

图 2 不同质量分数的亚麻籽胶凝胶的 SEM 图

Fig. 2 Gel microstructure of flaxseed gum gel with different concentrations observed by SEM

3) 冷却速率对亚麻籽胶溶液 T_{gel} 的影响 表 3 的结果说明亚麻籽胶溶液的胶凝点受冷却速率的影响。冷却速率越快,亚麻籽胶溶液的胶凝点越低。胶凝过程实际上是分子从无序到有序的重新定向排列的过程,当冷却速率过快时,分子来不及进行定向排列,分子间形成的网络结点少,需要在更低的温度才能胶凝,因而胶凝点降低。

表 3 不同冷却速率的质量分数 1% 亚麻籽胶溶液的 T_{gel}^*
Tab. 3 T_{gel} for 1% flaxseed gum solution with different cooling rate

冷却速率/(°C/min)	T_{gel}
3	72. 2
5	66. 6
8	49. 4

* 冷却的起始温度 90 °C。

2.1.3 亚麻籽胶的溶胶-凝胶转变的滞后现象 比较表 1 的结果可以发现,相同的冷却起始温度下,亚麻籽胶凝胶的融化点高于其溶液的胶凝点,也就是说亚麻籽胶的溶胶-凝胶的转变具有温度上的滞后现象。这是由于亲水胶体的胶凝和融化类似于晶体的转变,这个过程遵循热力学第二定律: $\Delta G = \Delta H - T \cdot \Delta S$, 胶凝是一个自发放热的过程,降低温度有利于胶凝,相反融化是一个吸热的非自发过程,温度回升至胶凝温度时热动能不足以克服分子间形成凝胶网络的相互作用力,因而需要增加更多能量克服分子链间的相互作用,最终使融化点比胶凝点高^[8]。

2.2 亚麻籽胶胶凝过程的主要作用力

2.2.1 温度对亚麻籽胶凝胶粘弹性的影响 热可逆凝胶的胶凝过程主要涉及分子间氢键作用和疏水相互作用。随着温度降低,疏水相互作用减弱,

由疏水相互作用形成的凝胶的粘弹性会降低;相反,氢键作用随温度降低而增强,因此由氢键作用形成的凝胶的粘弹性就增加。图 1(a)的结果表明亚麻籽胶溶液的 G' 和 G'' 随温度的降低而增加,其粘弹性增加,由此可以推测亚麻籽胶产生胶凝的主要机理是通过分子间氢键相互作用。

2.2.2 脲对亚麻籽胶凝胶粘弹性的影响 脲具有破坏氢键的作用。从图 3 和表 4 可知,随着脲浓度的增加,亚麻籽胶凝胶的 G' 和 G'' 逐渐下降, $\tan \delta$ 逐渐增加,体系从典型的弱凝胶转变为典型的粘性流体。这说明加入脲后,发生胶凝的分子间氢键被破坏,因而不能形成三维网络结构,进一步说明氢键可能是亚麻籽胶发生胶凝的主要驱动力。

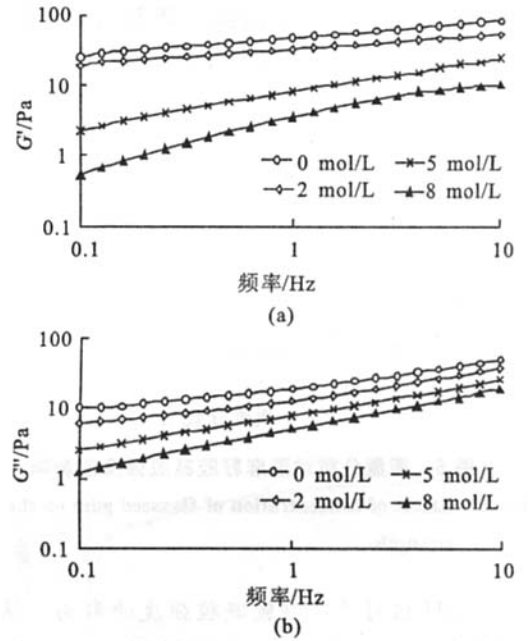


图 3 脲对亚麻籽胶凝胶 G' 和 G'' 的影响

Fig. 3 Effect of urea on G' and G'' of flaxseed gum gel

表 4 脲浓度对亚麻籽胶凝胶 $\tan \delta$ 的影响 (1 Hz)

Tab. 4 Effect of urea on the $\tan \delta$ of flaxseed gum gel

脲浓度/(mol/L)	$\tan \delta$
0	0. 35
2	0. 41
5	0. 97
8	1. 45

2.3 亚麻籽胶凝胶强度的影响因素

2.3.1 溶解温度对亚麻籽胶凝胶强度的影响 由图 4 可知,亚麻籽胶凝胶的强度随着溶解温度的升高而增加。这是由于溶解温度越高,分子运动越剧烈,分子充分水化和伸展,分子流体动力学半径增大,分子间相互作用力增大,因此凝胶强度增强。

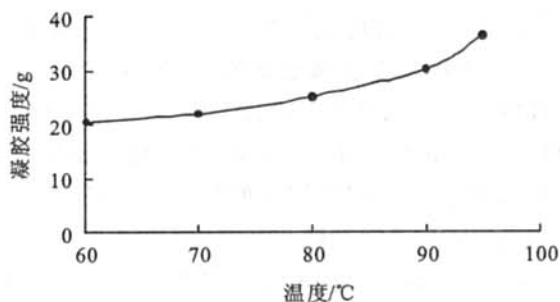


图4 溶解温度对质量分数2%亚麻籽胶凝胶强度的影响

Fig. 4 Effect of dissolution temperature on the gel strength of 2% flaxseed gum get

2.3.2 质量分数对亚麻籽胶凝胶强度的影响 由图5可知,亚麻籽胶凝胶的强度随着质量分数的升高而增加,质量分数增加,分子数增多,分子间相互作用形成的网络结点数增加,凝胶强度增加。

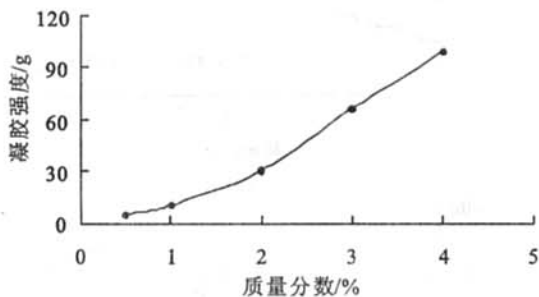


图5 质量分数对亚麻籽胶凝胶强度的影响

Fig. 5 Effect of concentration of flaxseed gum on the gel strength

2.3.3 pH值对亚麻籽胶凝胶强度的影响 从图6可以看出,pH值对亚麻籽胶凝胶强度有一定的影响,在pH 6~9范围内,凝胶强度的变化较小,在酸性条件下,随着pH值的降低,凝胶强度逐渐降低;在碱性条件下,随着pH值的增加,凝胶强度也逐渐降低。

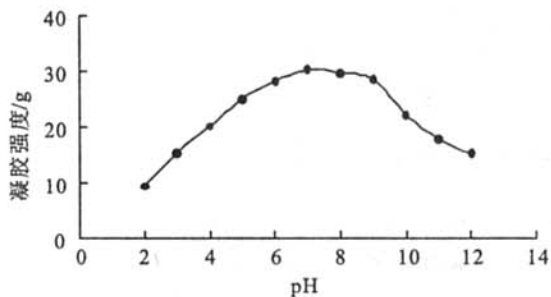
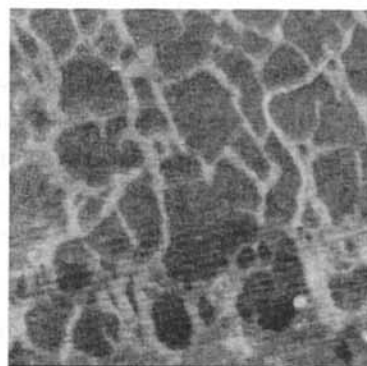


图6 pH值对质量分数2%亚麻籽胶凝胶强度的影响

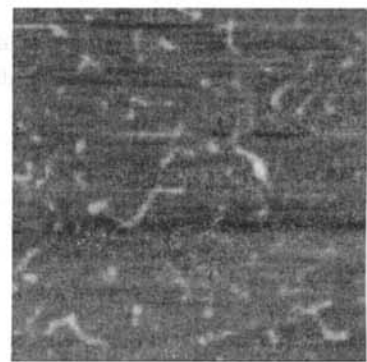
Fig. 6 Effect of pH on the gel strength of 2% flaxseed gum

万方数据

亚麻籽胶是一种阴离子多糖,由于带同种电荷的分子间产生静电斥力,引起分子链充分伸展,分子链相互缠结,形成三维网络结构,产生胶凝。在较低的pH值下,亚麻籽胶分子由伸展的状态变得较为蜷缩,形成的网络结点数减少,结构松散,因而凝胶强度降低,见图7(a)和(b)。而在较高的pH值下,碱的加入导致亚麻籽胶分子发生一定程度的解聚^[4],因而分子间相互缠结的结点数下降,而使凝胶强度降低。



(a)



(b)

图7 不同pH值的亚麻籽胶溶液中分子的原子力显微镜图

Fig. 7 AFM images of flaxseed gum molecular in solution with different pH

2.3.4 电解质对亚麻籽胶凝胶强度的影响 从图8可以看出,电解质对亚麻籽胶凝胶的强度有一定的影响,但NaCl和CaCl₂对质量分数2%亚麻籽胶凝胶强度的影响不同。由图8(a)可见,当NaCl的质量分数小于0.2%时,对凝胶强度的影响较大,加入NaCl使凝胶强度显著降低,但当NaCl的质量分数大于0.2%时,其影响较小,凝胶强度的降低趋于平缓。在图8(b)中,当CaCl₂的质量分数小于0.3%时,凝胶强度随着电解质质量分数的增加而缓慢增加,当CaCl₂质量分数大于0.3%时,凝胶强度开始降低。

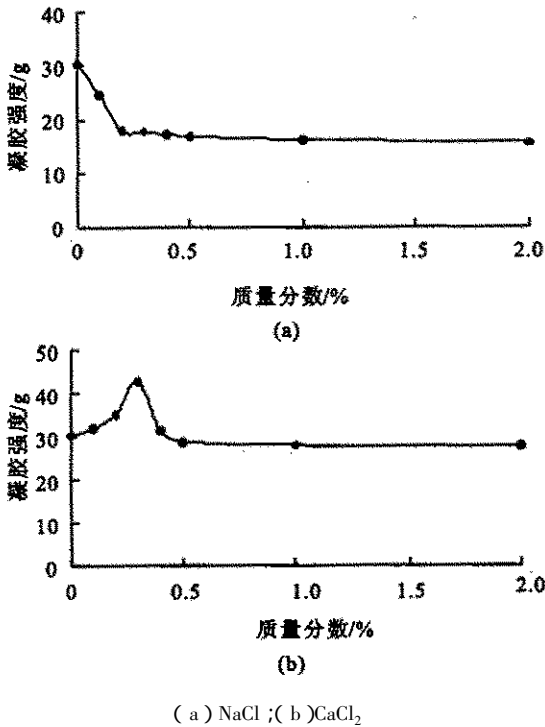


图 8 电解质对质量分数 2% 亚麻籽胶凝胶强度的影响
Fig. 8 Effect of different valent mineral salts on the gel strength of 2% flaxseed gum gel

这是由于随着 Na^+ 和 Ca^{2+} 的加入改变了亚麻籽胶的电性质,见图 9。亚麻籽胶是一种带负电的阴离子多糖,一价电解质和二价电解质的加入压缩了亚麻籽胶的双电层,因而使 Zeta 电位降低,分子间斥力下降,分子伸展程度也降低,分子间相互缠绕的结点数减少,因而凝胶强度下降。此外,亚麻籽胶中含有 14% 的半乳糖醛酸^[9-11],半乳糖醛酸位于分子的主链^[4],因此加入少量的 Ca^{2+} 可能会发生桥联作用,有助于三维网络结构的形成,但是加入过多的 Ca^{2+} 会改变亚麻籽胶的电性质,最终阻碍亚麻籽胶三维网络结构的形成,导致凝胶强度的降低。

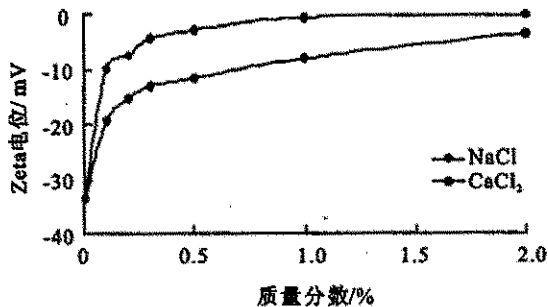


图 9 电解质对亚麻籽胶悬浮液 Zeta 电位的影响
Fig. 9 Effect of different valent mineral salts on Zeta potential of flaxseed gum solution

2.3.5 复合磷酸盐对亚麻籽胶凝胶强度的影响
复合磷酸盐是肉制品加工的主要配料之一,它可以使 pH 值小幅增加而偏离蛋白质的等电点,使肌肉的持水能力得到改善^[12]。亚麻籽胶自身能形成弱凝胶,具有较好的持水能力,因而可用于肉制品的加工。为此研究了复合磷酸盐对亚麻籽胶凝胶强度的影响,以为肉制品的加工提供理论基础。

从图 10(a)可以看出,复合磷酸盐(主要是 Na^+ 盐)具有降低亚麻籽胶凝胶强度的作用,随着复合磷酸盐浓度的增加,亚麻籽胶凝胶强度逐步降低,当复合磷酸盐的质量分数超过 0.5% 后,亚麻籽胶凝胶强度的降低趋于平缓。从图 10(b)可以看出,添加复合磷酸盐后,亚麻籽胶溶液的 Zeta 电位呈现降低的趋势,分子间的相互作用下降,导致凝胶强度降低。

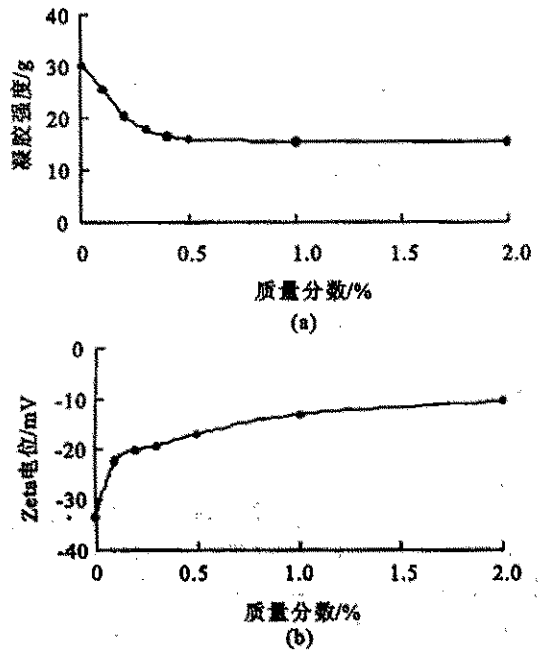


图 10 复合磷酸盐对质量分数 2% 亚麻籽胶凝胶强度和 Zeta 电位的影响
Fig. 10 Effect of complex phosphate salts on gel strength and Zeta potential of 2% flaxseed gum gel

3 结 论

亚麻籽胶溶液形成的凝胶是一种热可逆的冷致凝胶,亚麻籽胶溶液的胶凝点低于其凝胶的熔点,并均随冷却时的起始温度的升高而升高。亚麻籽胶的凝胶强度随着溶解温度的升高而增强,pH 值对凝胶强度有一定的影响,在 pH 6~9 的范围凝胶强度保持最大; NaCl 和复合磷酸盐具有降低亚麻籽胶凝胶强度的作用,而低质量分数的 CaCl_2 能增

强亚麻籽胶的凝胶强度,但高质量分数的 CaCl_2 能降低亚麻籽胶的凝胶强度。

参考文献：

- [1] Glicksman M. Food Hydrocolloids[M]. Boca Raton :CRC Press ,1986.
- [2] Dea I C M ,Morrison A. Chemistry and interactions of seed galactomannans[J]. **Advances Carbohydrate Chemistry and Biochemistry** ,1975 ,31 :214.
- [3] Cui W ,Mazza G. Physicochemical characteristics of flaxseed gum[J]. **Food Research International** ,1996 ,29 :397 - 402.
- [4] Wannerberger K ,Nylander T ,Nyman M. Rheological and chemical properties of mucilage in different varieties from linseed[J]. **Acta Agriculture Scand** ,1991 ,41(3) :311 - 320.
- [5] O'Mullane J E ,Hyater I P. Linseed mucilage as mucoadherent for topical application[P]. WO 93/16707 ,1993.
- [6] 陈海华 ,许时婴 ,王璋. 亚麻籽胶的流变性质[J]. 无锡轻工大学学报 2004 ,23(1) 30 - 35.
- [7] Nishinari K ,Zhang H ,Ikeda S. Hydrocolloid gels of polysaccharides and proteins[J]. **Current Opinion in Colloid and Interface Science** ,2000 ,5 :195 - 201.
- [8] 何曼君 ,陈维孝 ,董西侠. 高分子物理[M]. 上海 :复旦大学出版社 2000.
- [9] 陈海华 ,许时婴 ,王璋. 亚麻籽胶中酸性多糖和中性多糖的分离纯化[J]. 食品与发酵工业 2004(1) 96 - 100.
- [10] 陈海华 ,许时婴 ,王璋. 亚麻籽胶的化学组成与结构[J]. 食品工业科技 2004(1) ,103 - 105.
- [11] BeMiller J N. Chemistry and Function of Pectins[M]. Washington DC :American Chemical Society ,1986.
- [12] Fennema O R. 食品化学[M]. 王璋 ,许时婴 ,江波 ,等译. 北京 :中国轻工业出版社 2003.

(责任编辑 朱明)

(上接第 7 页)

参考文献：

- [1] 夏红霞 ,杨锦宗. 多元醇葡萄糖苷的合成及应用[J]. 化学与粘合 ,1997 (4) 215 - 21649.
- [2] 金征宇 ,刘学民. 乙二醇葡萄糖苷用作化妆品保湿剂的研究[J]. 精细化工 ,1995 (12) 2 - 6.
- [3] 金征宇 ,刘学民. 多元醇葡萄糖苷酯的合成与性能[J]. 无锡轻工大学学报 ,1996 ,15(1) :24 - 27.
- [4] 金征宇 ,刘学民. 淀粉转化产物乙二醇葡萄糖苷的性能与应用[J]. 日用化学工业 ,1996 (1) :33 - 36.
- [5] Otey F H ,Mehlretter C L. Polyoxyethylene ethers of some polyol glycosides and their fatty esters[J]. **Journal of the American Oil Chemists Society** ,1963 ,(40) :76 - 78.
- [6] 金征宇. 利用挤压机作为反应器转化淀粉的研究[D]. 无锡 :无锡轻工业学院 ,1992.
- [7] 丁霄霖 ,金征宇. 乙二醇葡萄糖苷的制备[J]. 无锡轻工业学院学报 ,1991 ,10(4) :1 - 5.
- [8] 吕数祥 ,武文洁. 乙二醇葡萄糖苷的合成及性能研究[J]. 精细化工 2004 ,29(3) 59 - 62.

(责任编辑 朱明)