

基于反应进度一致性的时间温度指示器匹配方法

马常阳¹ 许颖² 康文艺¹ 傅泽田³ 张小栓³

(1. 河南大学河南省药食两用资源功能研究国际联合实验室, 开封 475004; 2. 商丘学院应用科技学院, 开封 475004;
3. 中国农业大学食品质量与安全北京实验室, 北京 100083)

摘要: 目前,时间温度指示器匹配方法多依赖于参数耦合、相关性分析、实际物流过程的调试验证等方法,鲜有从匹配机理出发,在反应进度上剖析时间温度指示器的匹配要求和规律。本文在多级反应动力学模型的基础上,以保持时间温度指示器与待测农产品的反应进度一致性作为目标,建立了时间温度指示器匹配的理论和方法,并通过理论推导和实证模型验证了时间温度指示器与待测农产品之间匹配的条件。当指示器与待测农产品服从任意多级反应动力学模型的匹配条件(二者在任意合理的恒温条件下的有效反应时间相等或二者等量线重合)时,即可使用该指示器预测对应农产品的品质变化和货架期,此时二者的反应速率函数存在一定比例关系。借助该方法推导出可以精准指示科瑞森无核葡萄硬度的不同级反应动力学方程,证明了该方法的可行性。

关键词: 货架期; 时间温度指示器; 反应进度; 匹配方法

中图分类号: TS201.1 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-1298(2018)11-0336-06

Matching Method of Time Temperature Indicator Based on Consistency of Reaction Extents

MA Changyang¹ XU Ying² KANG Wenyi¹ FU Zetian³ ZHANG Xiaoshuan³

(1. Joint International Research Laboratory of Food and Medicine Resource Function of Henan Province, Henan University, Kaifeng 475004, China
2. College of Applied Science and Technology, Shangqiu University, Kaifeng 475004, China
3. Beijing Laboratory of Food Quality and Safety, China Agricultural University, Beijing 100083, China)

Abstract: The matching method for time temperature indicator (TTI) is the critical factor affecting the application of intelligent indicator. Most current methods depend mainly on the corresponding parameters coupling, correlation analysis and practice logistics verifying without concerning about the reaction extent in matching mechanisms between TTI and agri-produce which needs to be monitored. The relationship between remain shelf life and reaction extent was established and a new matching method between TTI and agri-produce was constructed through keeping the consistency of their reaction extents based on the *n*-order kinetic models. After a series of analysis and formula, the condition for matching between them was the valid reaction time or remain shelf life of them under any reasonable isothermal process were equal, or the contour lines of them were coincident, no matter whether the orders of their kinetic models were equal or not. In this case, there was a proportional relationship between the reaction speeds of them which was a key character under matching condition. By using the result above, three kinetic models with different orders were constructed, and the matching method was verified based on the consistency of their reaction extents, the appreciate kinetic functions of TTIs for indicating the firmness quality of *Crimson seedless* grape precisely under alternative and constant temperature logistic was deduced in different order kinetic models. The conclusions validated the feasibility and effectiveness of the proposed method, which could promote the application of TTIs.

Key words: shelf life; time temperature indicator; reaction extent; matching method

收稿日期: 2018-05-07 修回日期: 2018-06-14
基金项目: 国家自然科学基金项目(31371538)、河南省科技攻关项目(182102110332)、开封市科技发展计划项目(1806004)和河南大学科学研究基金项目(2016YBZR043)
作者简介: 马常阳(1988—),男,副教授,主要从事食品物流信息技术与追溯系统研究,E-mail: macaya1024@sina.com
通信作者: 张小栓(1978—),男,教授,博士生导师,主要从事农(渔)业系统工程与信息化技术研究,E-mail: zhxsuan@cau.edu.cn

0 引言

随着人们对食品关注度的不断增长,国家对农产品可追溯信息的要求程度越来越高,新鲜农产品的质量信息成为人们关注的焦点,尤其是易腐农产品的新鲜程度^[1]。而温度则是影响新鲜农产品在供应过程中质量和安全的关键因素,且在很多供应环节中表现出剧烈波动^[2],增大了人们对供应过程中的农产品品质和货架期预测的难度,而时间温度指示器(Time temperature indicator,TTI)有助于更直观地指示温度历程对农产品的影响。TTI 可以在激活后通过扩散、聚合、酶反应、微生物生长等原理发生非可逆反应,并通过 TTI 自身对应的外观特征直观地表现出来^[3-7],而温度在其中是影响反应速率的关键因子。当 TTI 的反应过程与农产品品质的变化过程在任意合理的温度历程中持续保持一定的对应关系时,就可以由 TTI 指示与之匹配的农产品品质和货架期变化^[8-9]。

目前用于 TTI 与农产品匹配的方法有很多,比如反应活化能匹配法、模糊数学法、相关性评价法、等量线匹配法、TTI 校准方法等^[10-14],这些方法的应用使得 Vitsab、OnVu、3M、TRACEO、eO 等商业 TTI 在农产品品质监测领域得以广泛应用^[8,15-17]。尽管如此,目前的评价大多是基于实际验证过程的评价结果,受很多外在因素的影响,很少从基础理论模型出发,构建理论匹配模型预先对匹配条件进行判定。本文从理论模型的角度对比 TTI 的特征值与农产品关键品质的变化过程,确定 TTI 和农产品的匹配条件,简化 TTI 的匹配过程,提高 TTI 匹配方法的兼容性。

1 理论模型构建

1.1 动力学模型基础

据前人关于农产品和 TTI 的研究发现,一般的农产品品质和 TTI 响应值变化均遵循多级反应动力学方程^[3-4,14-19],包括农产品和 TTI 的酶促反应、聚合反应、扩散过程等,甚至包括部分微生物生长过程,其多级反应动力学方程表示为

$$\frac{dQ}{dt} = Q^n \tag{1}$$

式中 Q ——品质状态 t ——时间
 n ——动力学反应级数

由式(1)经过积分可以得到状态方程

$$f(Q_0,Q_t) = K(T)t + \omega \tag{2}$$

式中 Q_0 、 Q_t ——初始和时间 t 时的状态
 T ——温度

ω ——拟合误差,后为书写简便,所涉及公式中均不再列此项

$K(T)$ ——以温度 T 为参数的速率函数

$K(T)$ 为温度与状态变化速率之间的关系函数,根据常用的函数形式,具体见文献[20],包括指数函数型、幂函数型等,涵盖了常用的 Arrhenius 方程,具体公式如下:

线性函数型

$$K(T) = a + bT$$

幂函数型

$$K(T) = aT^b$$

双曲线函数型

$$K(T) = a/(b - T)$$

指数函数型

$$K(T) = ab^T$$

以 e 为底指数函数型

$$K(T) = ae^{\frac{-b}{T}}$$

式中 a 、 b ——速率函数的相应系数

以式(2)动力学方程为理论基础进行 TTI 匹配性的分析。

1.2 冷链物流过程的温度过程假设

为便于分析农产品和 TTI 在冷链物流过程中变化的匹配性,可将实际的冷链物流过程简单地分为恒温 and 变温过程。其中恒温过程的分析相对简单,但冷链物流过程通常表现出环境温度持续波动的变温过程,增加了对农产品和 TTI 品质预测的复杂程度,也给 TTI 匹配方法的建立带来了困难。为了简化变温物流过程,本文采用微积分的原理,将任何一个连续变化的温度历程近似为一个由足够多而短的不同恒温单元串联组成的多阶段恒温过程,假设 m 为恒温单元数, Q_m 和 E_m 为农产品货架期终点品质和 TTI 响应终点状态,具体如图 1 所示。

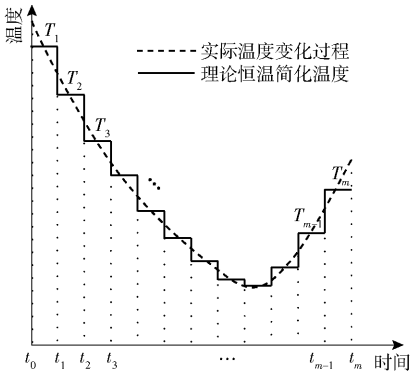


图 1 持续变温过程的微分示意图

Fig. 1 Equivalent conversion diagram of differential isotherm process and altering temperature process

为便于分析,将图 1 转换成对应参数的图 2 示意图,图中 T_i 和 t_i 表示 i 阶段时的环境温度和时

和 S_{i,T_i+1} 表示 Q_i 状态下的农产品分别在 T_i 和 T_{i+1} 恒温下的剩余货架期, S'_{i,T_i} 和 S'_{i,T_i+1} 表示 E_i 状态下的 TTI 分别在 T_i 和 T_{i+1} 恒温下的剩余响应时间。

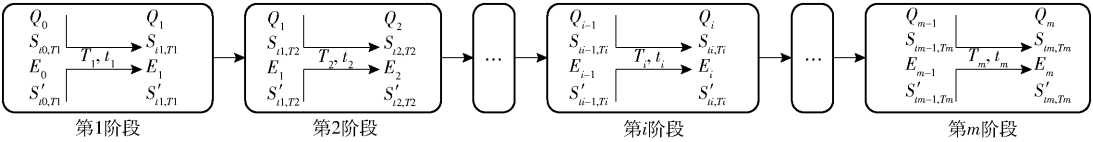


图 2 阶段式的温度变化过程图示及对应参数信息

Fig. 2 Diagram and corresponding parameters of time temperature history by using phased model

结合农产品和 TTI 的状态值 Q_i 和 E_i , 经过式(2)的推导可知 S_{i,T_i} 、 S_{i,T_i+1} 、 S'_{i,T_i} 和 S'_{i,T_i+1} 的对应方程为

$$\begin{cases} S_{i,T_i} = \frac{f(Q_i, Q_m)}{K(T_i)} \\ S_{i,T_i+1} = \frac{f(Q_i, Q_m)}{K(T_{i+1})} \\ S'_{i,T_i} = \frac{f'(E_i, E_m)}{K'(T_i)} \\ S'_{i,T_i+1} = \frac{f'(E_i, E_m)}{K'(T_{i+1})} \end{cases} \quad (3)$$

式中 $f'(\cdot)$ ——TTI 的响应函数
 $K'(\cdot)$ ——TTI 的速率函数

2 模型理论证明

TTI 与农产品的匹配过程中的要求为:二者在任何合理的温度变化历程中均保持同时到达货架期终点,在此首先明确本文所描述反应进度的含义:反应进度为时间概念,即经过了一定过程后的品质状态在特定条件下的剩余货架期(或初始货架期与剩余货架期之差)。具体推导过程是从较为简单的恒温物流过程到较为复杂的变温物流过程逐步开展。

2.1 恒温物流对 TTI 匹配过程的要求

如果物流过程处于恒温过程,即 $T_1 = T_2 = \dots = T_m$ 。为了保证农产品与 TTI 的匹配,农产品的货架期和 TTI 的响应时间必须在任一合理恒温条件下保持相等,即 $S_{0,T} = S'_{0,T}$ 时,结合式(3)可以得到

$$\frac{f(Q_0, Q_m)}{K(T)} = \frac{f'(E_0, E_m)}{K'(T)} \quad (4)$$

若式(4)中的动力学方程已经确定,则可根据方程得到农产品和 TTI 在货架期终点状态时的时间温度关系曲线(或等量线),具体如图 3 所示,二者应相近或重合。

2.2 变温物流对 TTI 的匹配要求

如果物流过程处于变温过程中,即 T_1 、 T_2 、 $\dots$ 、 T_m 中至少有 1 个不等于其他值时,为保证匹配性,同样需要保证农产品与对应 TTI 在任一合理变温条

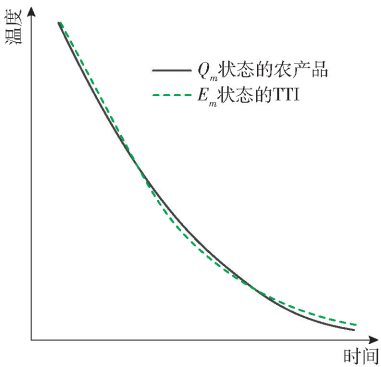


图 3 式(4)在时间温度坐标系中的曲线

Fig. 3 Diagram of equation (4) in time temperature coordinate

件后依然保持同时到达终点。

(1)提出假设:图 1、2 已将变温过程转换成了由不同恒温过程串联的等效过程,由此基础提出假设,具体分析流程如图 4 所示。

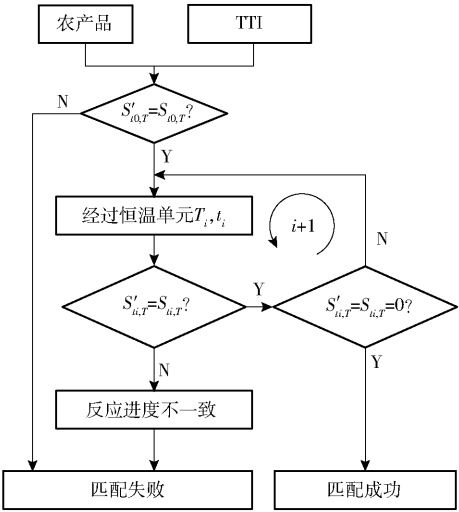


图 4 基于反应进度一致性的 TTI 匹配性验证推理图

Fig. 4 Inference diagram for matching test of TTI based on consistency of reaction extent

①农产品和 TTI 已满足 2.1 节中的要求,即 $S_{0,T} = S'_{0,T}$ 或者等量线重合。

②农产品和 TTI 经过了第 1 个过程(T_1, t_1)后,若此时的农产品剩余货架期和 TTI 剩余响应时间在任一合理恒温条件下依然相等,即 $S_{1,T} = S'_{1,T}$,那么过程②的结果就满足了过程①的条件,循环重复开展过程②,持续保证 $S_{i,T} = S'_{i,T}$,直至到达终点,即

$S_{im,T} = S'_{im,T} = 0$ 。

(2) 验证假设:为了验证假设推断是否可行,本部分将继续以式(2)为基础开展推导过程。

由式(3)和 2.1 节结果可得在任意温度 T_1 下的货架期等式

$$\frac{f(Q_0, Q_m)}{K(T_1)} = \frac{f'(E_0, E_m)}{K'(T_1)} \tag{5}$$

进而得到

$$\frac{S_{a0,T_1}}{S_{a0,T}} = \frac{S'_{a0,T_1}}{S'_{a0,T}} = \frac{K(T)}{K(T_1)} = \frac{K'(T)}{K'(T_1)} \tag{6}$$

经过了第 1 阶段后的农产品在任意温度条件下的剩余货架期 $S_{a1,T}$ 计算公式为

$$S_{a1,T} = \frac{f(Q_1, Q_m)}{K(T)} = \frac{f(Q_0, Q_m)}{K(T)} - \frac{f(Q_0, Q_1)}{K(T)} = S_{a0,T} - t_1 \frac{K(T_1)}{K(T)} \tag{7}$$

同理可得到 $S'_{a1,T}$ 的运算公式

$$S'_{a1,T} = S'_{a0,T} - t_1 \frac{K'(T_1)}{K'(T)} \tag{8}$$

由式(6)对比式(7)、(8)的结果可知

$$S'_{a1,T} = S_{a1,T} \tag{9}$$

式(9)说明经过了第 1 阶段后的农产品和 TTI 在任意恒温条件下依然保持剩余货架期的相等,所以由式(5)~(9)的推导过程证实了假设推理中的过程①和过程②的可行性,即在变温条件下,TTI 和农产品持续保持了变化的同步性的要求。

2.3 匹配条件的确定

由 2.1 节和 2.2 节两部分的分析和结果可知:无论在恒温还是变温冷链物流条件下,当农产品和 TTI 符合任意多级反应动力学方程或者式(2)时,若农产品的货架期和 TTI 的响应时间在任一合理恒温条件下相等或二者等量线重合(图 3),即可满足 TTI 与农产品的匹配要求,其中等量线重合判定 TTI 的匹配方法与之前在 0~2 级反应动力学模型上的研究结论一致^[11],TTI 的匹配方程形式为

$$S_{a0,T} = \frac{f(Q_0, Q_m)}{K(T)} = S'_{a0,T} = \frac{f'(E_0, E_m)}{K'(T)} \tag{10}$$

当农产品和 TTI 确定后, $f(Q_0, Q_m)$ 和 $f'(E_0, E_m)$ 均已经确定,因此匹配条件可以简化为 $K(T)$ 和 $K'(T)$ 存在相应的比例关系,具体为

$$K(T) = \frac{f(Q_0, Q_m)}{f'(E_0, E_m)} K'(T) = \chi K'(T) \tag{11}$$

式中 χ ——比例系数

其中 $K(T)$ 和 $K'(T)$ 可为任意速率方程形式,二者的比例关系决定了 TTI 匹配的准确度,由此可以推导出基于反应活化能和等量线方法的匹配原理,具体可参照文献[11]。当 $K(T)$ 和 $K'(T)$ 存在比例

关系不等于对应的状态函数比值时,可通过张虎等^[12]所研究的校准过程调整 E_0 以满足匹配,此过程不再赘述。

3 模型实证

为进一步描述本文所述 TTI 匹配方法的内在规律,以便于在其实际应用过程中有所参考,在本节进行模型的实证,具体分为两部分:使用理论假设模型验证匹配方程之间的规律;借助试验确定科瑞森无核葡萄的匹配条件。

3.1 理论假设模型的验证

(1) 虚拟动力学方程的建立

为了进一步验证本研究方法的可行性,本文设定了级数分别为 0、1、2 的 3 种常用反应动力学方程开展验证分析过程,具体形式为

$$Q_0 - Q_t = \alpha(T)t \quad (n=0) \tag{12}$$

$$\ln Y_0 - \ln Y_t = \beta(T)t \quad (n=1) \tag{13}$$

$$-E_0^{-1} + E_t^{-1} = \gamma(T)t \quad (n=2) \tag{14}$$

式中 $\alpha(T)$ 、 $\beta(T)$ 、 $\gamma(T)$ ——速率函数
 Y_0 、 Y_t ——初始和时间 t 时品质状态($n=1$)
 E_t ——时间 t 时品质状态($n=2$)

若方程(12)~(14)均已满足式(10)所描述的 TTI 匹配条件,则具体应为

$$S_{a0,T} = \frac{Q_0 - Q_t}{\alpha(T)} = \frac{\ln Y_0 - \ln Y_t}{\beta(T)} = \frac{-E_0^{-1} + E_t^{-1}}{\gamma(T)} \tag{15}$$

为对比反应状态、反应速率与反应进度之间的关系,将式(12)和式(13)设定为相同的初始状态(Q_0 和 Y_0) 100 ttQ 和货架期终点状态(Q_m 和 Y_m) 60 ttQ,以此分析反应进度与品质状态的差异;而式(14)设定为与式(12)和式(13)不同的品质变化范围,以 10 ttE 作为初始状态(E_0),2 ttE 为货架期终点状态(E_m),用于描述在不同反应状态时匹配对反应进度的要求。其中 ttQ 和 ttE 为对应动力学方程中品质状态的单位,在实际应用中可根据 TTI 响应值单位进行确定。当三者满足相互匹配的条件时,函数间存在着式(11)中有效的比例关系,即可得到 3 个速率函数构成的方程组

$$\begin{cases} \alpha(T) = \frac{40}{S_{a0,T}} \\ \beta(T) = \frac{0.51}{S_{a0,T}} \\ \gamma(T) = \frac{0.40}{S_{a0,T}} \end{cases} \tag{16}$$

(2) 匹配原理的验证

验证过程中,本文依然采用最基本的 2 阶段变温过程描述匹配条件下动力学方程的反应进度规

律,以此可推导多阶段变温过程的反应进度规律。假设 $S_{0,T_1}=8\text{ min}$, $S_{0,T_2}=4\text{ min}$,则由 T_1 和 T_2 温度下的式(12)~(14)便均可确定,由此可推导出经过了第1阶段(t_1,T_1)后,3个方程在 T_2 温度下的剩余货架期均为

$$S_{t_1,T_2}=4-0.5t_1$$

(17)

假设 $t_1=2\text{ min}$ 时,2阶段中3个方程的状态变化过程如图5所示,图中不同线型分别表示对应动力学方程在3种不同温度历程中的变化过程。

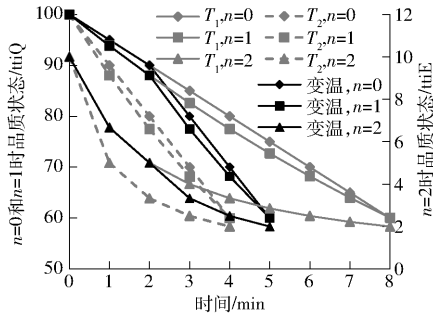


图5 3个动力学模型在2种不同温度历程中的状态变化过程

Fig.5 Changes of three kinetic models through two different time temperature histories

图5中3条灰实线为 T_1 条件下3个动力学方程的变化趋势,尽管三者变化速率明显不同,但却以不同的速率从对应起点按照各自变化规律同时到达对应终点。3条灰虚线则代表了 T_2 条件下3个动力学方程的变化过程,变化速率均明显高于 T_1 条件下3个动力学方程,但与灰实线有类似的反应时间特征。从反应级数分别为0和1的动力学方程变化过程对比可以看出,尽管二者初始和终点状态一致,但在反应过程的状态变化存在差异;而反应级数为2的动力学方程的初始和终点状态均与其他二者不相同,但在恒温条件下保持反应时间相同。由此3个动力学方程的变化描述了反应过程(包括反应状态和反应速率)不同但反应进度保持一致的现象。

图5中3条黑实线为3个动力学方程在2阶段变温过程的变化规律,结果表明,在 t_1 时间段内与灰实线没有区别,当第2阶段 $T=T_2$ 时,反应速率加快。同时,在第1阶段结束时,尽管3个动力学方程的状态并不相同,但在第2阶段条件下到达终点的反应时间依然保持一致,与2.2节理论推导结果一致。

此时,若 t_1 为8 min 以内的任意时间时,或 S_{0,T_1} 与 S_{0,T_2} 为任意合理恒温条件下的反应时间,或方程的反应级数 n 为其他任意级数,通过推导依然可以得到与本部分相同的规律,此推导过程本文不再

赘述。结合3个动力学方程的变化规律可知,3个方程在经过了一定过程后依然可以保持在特定条件下的剩余反应时间相等,即反应进度持续保持一致性。

3.2 试验模型验证

(1) 葡萄品质动力学方程的构建

为建立农产品品质动力学方程,本文采用葡萄作为研究对象。采摘穗形完整、果粒均匀、无坏损果的科瑞森无核葡萄,使用保鲜袋包装后立即置于温度为0、2、5、10、20、25℃,相对湿度为85%~90%的培养箱中贮存,定期使用GY-B型质构仪和5 mm直径探针测定不同温度条件下的葡萄硬度 F (单位: kg/cm^2)。本研究中科瑞森无核葡萄的初始硬度为 $2.20\text{ kg}/\text{cm}^2$,货架期终点则利用相对保守的标准——60%初始硬度($1.32\text{ kg}/\text{cm}^2$)作为判断依据,结合回归方程构建了科瑞森无核葡萄等量线方程和对应的硬度品质方程^[21]

$$T=88.36-13.38\ln S_{0,T}\quad (R^2=0.98)$$

(18)

$$F=2.20e^{-e^{-6203.69/(T+273.15)}+15.38t}$$

(19)

式中 T 单位为℃, t 和 $S_{0,T}$ 单位为 min。

(2) 匹配条件与对应方程的确定

为实现与科瑞森无核葡萄货架期匹配,按式(12)~(14),结合式(16)推导可得与式(19)匹配的动力学方程形式

$$\begin{cases} Q_t=100-40e^{\frac{T-88.36}{13.38}t} \\ Y_t=100e^{-0.51e^{\frac{T-88.36}{13.38}t}} \\ E_t=(0.1+0.40e^{\frac{T-88.36}{13.38}t})^{-1} \end{cases}$$

(20)

其中在任意合理的恒温温度历程中,式(20)中的3个方程分别到达设定终点,即 $Q_n=60\text{ ttiQ}$ 、 $Y_n=60\text{ ttiQ}$ 和 $E_n=2\text{ ttiE}$ 时所需的时间均等于科瑞森无核葡萄硬度品质在对应温度历程中的货架期,等量线均完全重合,此关系可通过对应数值验证。其中的速率函数也满足式(11)中的比例关系。

为验证动力学方程在变温过程是否与科瑞森无核葡萄保持进度一致,本文按照第2节,对比四者(科瑞森无核葡萄动力学方程与3个虚拟动力学方程)在经过了一个温度历程后的剩余货架期差异。本文假设第1阶段温度历程为10℃和100 min,第2阶段的温度条件为20℃,通过运算结果可知四者在第2阶段中到达对应终点所需的剩余货架期均在118 min 左右,说明该方法确实存在较好的应用效果。四者状态的变化过程如图6所示,若合理调整2阶段物流过程,得到的结果也会相同,此内容不再赘述。

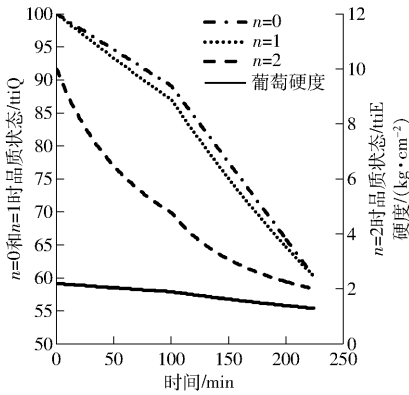


图 6 科瑞森无核葡萄硬度与 3 个动力学模型在 2 阶段温度历程中的状态变化过程

Fig. 6 Changes of *Crimson seedless*'s firmness and three kinetic models through two processes logistics

4 结论

(1)当农产品和 TTI 遵循多级反应动力学模型时,若二者在任意合理的恒温条件下得到的货架期均相等,或者二者等量线重合,那么二者即可满足匹配要求,即满足了二者在任一变温条件下同时到达货架期终点。

(2)当农产品和 TTI 完成匹配之后,二者保持反应进度的一致,但品质状态和反应速率或有很大差异,其中反应速率会存在一定的比例关系。

(3)利用基于反应进度一致性的 TTI 匹配方法推导出几个准确预测科瑞森无核葡萄硬度品质的不同级数的动力学方程,验证了该方法的可行性和可靠性。

参 考 文 献

1 韩杨, 曹斌, 陈建先, 等. 中国消费者对食品质量安全信息需求差异分析: 来自 1573 个消费者的数据检验[J]. 中国软科学, 2014(2): 32-45.
HAN Yang, CAO Bin, CHEN Jianxian, et al. Variance analysis on China's consumers' demand for information of food quality and safety-empirical test of date from 1573 Chinese consumers[J]. China Soft Science, 2014(2): 32-45. (in Chinese)

2 张东霞. 果蔬保鲜运输温度调控系统的设计与试验[D]. 广州: 华南农业大学, 2012.
ZHANG Dongxia. Design and experiment on temperature control system of fresh-keeping transportation for fruit and vegetable [D]. Guangzhou: South China Agricultural University, 2012. (in Chinese)

3 乔磊. 低温流通食品用酶型 TTI 的设计制备及其可靠性研究[D]. 无锡: 江南大学, 2013.
QIAO Lei. Design and research of the reliability of an enzyme-based TTI used for food during the low temperature distribution chain [D]. Wuxi: Jiangnan University, 2013. (in Chinese)

4 WU D, HOU S, CHEN J, et al. Development and characterization of an enzymatic time-temperature indicator (TTI) based on *Aspergillus niger*, lipase [J]. LWT—Food Science and Technology, 2015, 60(2): 1100-1104.

5 KIM J U, GHAFOR K, AHN J, et al. Kinetic modeling and characterization of a diffusion-based time-temperature indicator (TTI) for monitoring microbial quality of non-pasteurized angelica juice[J]. LWT—Food Science and Technology, 2016, 67: 143-150.

6 ESFAHANI S S, EMTIAZI G, RABBANI M. Preparation of a microbial time-temperature indicator by using the vegetative form of *Bacillus amyloliquefaciens* for monitoring the quality of chilled food products[J]. Applied Food Biotechnology, 2017, 4(2): 79-84.

7 SUPPAKUL P, DONG Y K, YANG J H, et al. Practical design of a diffusion-type time-temperature indicator with intrinsic low temperature dependency[J]. Journal of Food Engineering, 2018, 223: 22-31.

8 ELLOUZE M, AUGUSTIN J C. Applicability of biological time temperature integrators as quality and safety indicators for meat products. [J]. International Journal of Food Microbiology, 2010, 138(1): 119-129.

9 PARK H R, KIM Y A, JUNG S W, et al. Response of microbial time temperature indicator to quality indices of chicken breast meat during storage[J]. Food Science & Biotechnology, 2013, 22(4): 1145-1152.

10 傅泽田, 姚萌萌, 马常阳, 等. 基于化学型时间温度指示器的鲜食葡萄品质监测[J]. 中国农业大学学报, 2013, 18(6): 186-191.
FU Zetian, YAO Mengmeng, MA Changyang, et al. Applicability of a chemical time temperature indicator as a quality for table grape[J]. Journal of China Agricultural University, 2013, 18(6): 186-191. (in Chinese)

11 马常阳, 傅泽田, 姚萌萌, 等. 时间温度指示器等量线匹配适应性评估方法[J/OL]. 农业机械学报, 2014, 45(7): 183-188. http://www.j-csam.org/ch/reader/view_abstract.aspx?file_no=20140729&flag=1&journal_id=jcsam. DOI: 10.6041/j.issn.1000-1298.2014.07.029.
MA Changyang, FU Zetian, YAO Mengmeng, et al. Selection method of the time temperature indicator based on the contour lines [J/OL]. Transactions of the Chinese Society for Agricultural Machinery, 2014, 45(7): 183-188. (in Chinese)

12 张虎, 张小栓, 孙格格, 等. 面向冷链物流农产品品质感知的 TTI 动态校准方法[J/OL]. 农业机械学报, 2017, 48(2): 314-321. http://www.j-csam.org/jcsam/ch/reader/view_abstract.aspx?file_no=20170242&flag=1&journal_id=jcsam. DOI: 10.6041/j.issn.1000-1298.2017.02.042.
ZHANG Hu, ZHANG Xiaoshuan, SUN Gege, et al. Dynamic calibration method for time temperature indicator towards quality of agricultural produce under cold chain[J/OL]. Transactions of the Chinese Society for Agricultural Machinery, 2017, 48(2): 314-321. (in Chinese)

- Science and Technology, 2008. (in Chinese)
- 14 NILSSON H O, HOLMER I. Comfort climate evaluation with thermal manikin methods and computer simulation models[J]. *Indoor Air*, 2003, 13(1): 28–37.
- 15 陈卫卫. 农业土壤耕作大气颗粒物排放研究进展[J]. *农业环境科学学报*, 2015, 34(7): 1225–1232.
CHEN Weiwei. Research progress in atmospheric particulate matter emissions from agricultural tillage[J]. *Journal of Agro-Environment Science*, 2015, 34(7): 1225–1232. (in Chinese)
- 16 赵鹏, 朱彤, 梁宝生, 等. 北京郊区农田夏季大气颗粒物质量和离子成分谱分布特征[J]. *环境科学*, 2006(2): 193–199.
ZHAO Peng, ZHU Tong, LIANG Baosheng, et al. Characteristics of mass distributions of aerosol particle and its inorganic water-soluble ions in summer over a suburb farmland in Beijing[J]. *Environmental Science*, 2006(2): 193–199. (in Chinese)
- 17 王颖钊. 西北半干旱区城郊农田地表粉尘释放模型的初步研究[D]. 西安: 西安建筑科技大学, 2009.
WANG Yingzhao. Preliminary studies of dust emission model from farmland in northwest semiarid areas[D]. Xi'an: Xi'an University of Architecture and Technology, 2009. (in Chinese)
- 18 MCBRIAN J. Test methods to characterize particulate matter emissions and deposition rates in a research house[J]. *Air and Waste Management Association-Publications-Vip*, 2000, 98: 319–331.
- 19 GUO Z. Development of a windows-based indoor air quality simulation software package[J]. *Environmental Modelling and Software*, 2000, 15(4): 403–410.
- 20 LAI A C K, NAZAROFF W W. Modeling indoor particle deposition from turbulent flow onto smooth surfaces[J]. *Journal of Aerosol Science*, 2011, 31(4): 463–476.
- 21 吴兆波, 郭强, 王金良, 等. 置换通风下不同风速对负离子净化 PM_{2.5} 的研究[J]. *工业安全与环保*, 2016, 42(6): 37–41.
WU Zhaobo, GUO Qiang, WANG Jinliang, et al. Research on the effect of different air supply velocities on the negative ions purification for PM_{2.5} under displacement ventilation[J]. *Industrial Safety and Environmental Protection*, 2016, 42(6): 37–41. (in Chinese)
-

(上接第 341 页)

- 13 张小栓, 孙格格, 杨林, 等. 葡萄冷链品质的时间-温度指示器模糊推理预测[J/OL]. *农业机械学报*, 2017, 48(8): 315–321. http://www.jcsam.org/jcsam/ch/reader/view_abstract.aspx?file_no=20170837&flag=1&journal_id=jcsam. DOI: 10.6041/j.issn.1000-1298.2017.08.037.
ZHANG Xiaoshuan, SUN Gege, YANG Lin, et al. Time-temperature indicator fuzzy reasoning prediction for grape cold chain quality sensing[J/OL]. *Transactions of the Chinese Society for Agricultural Machinery*, 2017, 48(8): 315–321. (in Chinese)
- 14 ANBUKARASU P, SAUVAGEAU D, ELIAS A L. Time-temperature indicator based on enzymatic degradation of dye-loaded polyhydroxybutyrate[J]. *Biotechnology Journal*, 2017, 12(9): 1–9.
- 15 TAOUKIS P S, LABUZA T P. Time-temperature indicators (TTIs)[M]//AHVENAINEN R. *Novel food packaging techniques*. Cambridge, Woodhead Publishing Ltd., 2003: 103–126.
- 16 KIM K, KIM E, LEE S J. New enzymatic time-temperature integrator (TTI) that uses laccase[J]. *Journal of Food Engineering*, 2012, 113(1): 118–123.
- 17 ZHENG Y, ZHANG W T, YI W, et al. Development and application of time-temperature indicators used on food during the cold chain logistics[J]. *Packaging Technology & Science*, 2013, 26(Sup. 1): 80–90.
- 18 LABUZA T P, SHAPERO M. Prediction of nutrient losses[J]. *Journal of Food Processing and Preservation*, 1978, 2(2): 91–99.
- 19 JAISWAL A K, ABU-GHANNAM N. Degradation kinetic modelling of color, texture, polyphenols and antioxidant capacity of York cabbage after microwave processing[J]. *Food Research International*, 2013, 53(1): 125–133.
- 20 KWOLEK W F, BOOKWALTER G N. Predicting storage stability from time-temperature data[J]. *Food Technology*, 1971, 25(10): 51–63.
- 21 MA C, XIAO X, ZHU Z, et al. Contour diagram-based evaluation on logistics stability of table grapes under variable temperature[J]. *Journal of Food Process Engineering*, 2016, 39(4): 391–399.