

电子舌技术在橄榄油检测中应用研究进展

段迪¹, 黄永¹, 熊景贤¹, 黄健平¹, 邹颖¹, 王国平², 张德毅²,
刘慧平¹, 周春晖¹, 邓毛程¹

(1. 广东轻工职业技术学院, 广州 510300; 2. 广东璠龙茶油科技有限公司, 广东 揭阳 522000)

摘要: 电子舌技术在橄榄油定性、定量检测应用中有了很大进展。综述了电子舌传感器类型以及电子舌在橄榄油检测中的主要应用, 包括橄榄油理化性质与感官评价、橄榄品种、源产地鉴别与掺假识别、生物活性成分预测等, 并对上述技术、方法、应用进行了归纳, 最后对电子舌技术在橄榄油检测中存在的问题进行分析, 并对电子舌技术在橄榄油检测中的研究方向进行了展望。

关键词: 橄榄油; 电子舌传感器; 理化性质; 感官评价; 掺假识别

中图分类号: TS225.1; 0657 文献标识码: A 文章编号: 1003-7969(2021)01-0146-07

Advance in application of electronic tongue technology in olive oil detection

DUAN Di¹, HUANG Yong¹, XIONG Jingxian¹, HUANG Jianping¹,
ZOU Ying¹, WANG Guoping², ZHANG Deyi², LIU Huiping¹,
ZHOU Chunhui¹, DENG Maocheng¹

(1. Guangdong Industry Technical College, Guangzhou 510300, China; 2. Guangdong Fanlong Agricultural Technology Development Co., Ltd., Jieyang 522000, Guangdong, China)

Abstract: Recent years, great advances has been made in qualitative and quantitative detection of olive oil by electronic tongue technology. Electronic tongue sensor types and its main applications in olive oil were reviewed, including physical and chemical properties and sensory evaluation, olive varieties, origin authentication and adulteration identification, and biological active ingredient prediction, the above-mentioned technologies, methods and application were also summarized. The problems existed in the detection of olive oil by electronic tongue technology was analyzed, and the research directions of electronic tongue technology in olive oil was prospected.

Key words: olive oil; electronic tongue sensor; physical and chemical property; sensory evaluation; adulteration identification

橄榄油是“地中海膳食”的关键组成, 在降低与膳食相关的慢性病、心血管疾病和癌症的发病率中起到重要作用^[1]。根据橄榄油的品质, 可将其分为

特级初榨橄榄油(EVOO)、中级初榨橄榄油(VOO)、初榨橄榄油灯油(LVOO)、精炼橄榄油(ROO)、混合橄榄油(BOO)和油橄榄果渣油(OPO)等, 其中EVOO品质最佳, LVOO和未精炼的OPO不能直接食用^[2]。EVOO营养丰富, 商业价值高, 但产量低, 常有造假、掺假的情况发生^[3-4], 其品质鉴定、真伪辨别成为了迫切要解决的问题^[5-7]。国际橄榄理事会(IOC)规定了酸值、过氧化值、紫外吸收值(K_{232} 、 K_{270})、蜡含量、脂肪酸组成等理化指标结合感官评价的方法鉴定橄榄油的等级, 这些传统的检测方法复杂、费时, 一种方法只能获得一种理化性质结果^[1-2,8], 同时感官评价具有主观性强、效率低等缺点^[9], 因而迫切需求简单、快速、准确、高效率的检

收稿日期: 2020-03-27; 修回日期: 2020-07-22

基金项目: 广东省普通高校特色创新类项目(2018GKTSCX034, 2019GKTSCX011, 2019GKTSCX012); 广东省教育厅青年创新人才项目(2019GKQNCX057); 揭阳市科技创新发展专项资金(2017xm017); 广东轻工职业技术学院人才类项目(KYRC2019-008, KYRC2018-017); 广东轻工职业技术学院创新创业精育人项目(2020JZYR010); 广东轻工职业技术学院领军拔尖计划项目(KYRC2019-002)

作者简介: 段迪(1985), 男, 讲师, 博士, 主要从事天然活性物质分离纯化工艺研究(E-mail) xiaod@zju.edu.cn。

测方法,满足橄榄油分级、辨真伪的商业需求。

电子舌技术作为一种新型的分析检测手段,在食品、医药、环境等工业领域已有广泛的应用^[4,10-11]。电子舌通过传感器阵列与样品接触,收集样品的特征电信号,利用数据分析处理技术,获得样品的感官特性^[12-15],具有操作简单、分析快速、高效等特点^[8]。近年来,电子舌技术在检测橄榄油的掺假,辨别橄榄油的等级、原产地和橄榄树品种,评价感官特性,探究货架期等方面得到了广泛的应用与探索,本文将对这些成果进行综述,介绍电子舌技术在橄榄油检测中的应用研究进展,并讨论电子舌技术在油品检测中面临的问题和未来发展方向。

1 电子舌传感器

电子舌通过交叉敏感传感器阵列识别样品的特征成分指纹图谱,得到的电信号数据经化学计量工具处理,最终实现样品的定性、定量分析^[3,10-11]。电子舌传感器包括伏安型传感器^[5-7]、电位型传感器^[8-9,16]、电流型传感器^[17-18]、电导型传感器^[19]等,在油品检测领域,伏安型、电位型传感器应用最广。

1.1 伏安型传感器

循环伏安法(CV)是最常用的检测方法,除此以外还有方波伏安法(SWV)^[20]和微分脉冲伏安法(DPV)^[10]。传统的伏安型传感器由三电极系统构成,参比电极为Ag/AgCl电极或饱和甘汞电极^[21-22],辅助电极为铂电极,工作电极包括玻碳电极^[6]、圆盘金电极^[22]、碳糊电极^[20,23-25]、ITO微电极^[26]和圆盘铂微电极^[27-28]等。

传统的伏安型传感器最大的缺点是选择性低^[29],通过活性物质修饰可以改善传感器的性能。Guadarrama等^[26]系统研究了聚-3-甲基噻吩、聚苯胺修饰ITO微电极的条件,在最优条件下,修饰电极的稳定性、重现性及选择性得到了很大改善。Apetrei^[28]用吡咯聚合物修饰圆盘铂电极,直接检测橄榄油微乳液,电极显示了很高的交叉选择性。近年来,丝网印刷碳电极作为工作电极应用越来越广^[10]。Zappi等^[5]以多壁碳纳米管混合TiO₂纳米颗粒修饰丝网印刷电极,以生物基离子液体作为滴除介质辅助纳米材料在工作电极表面上固定,用于区分EVOO的品种与原产地。

对于实际复杂体系,电极阵列比单电极适用性更强^[12],电极阵列可以包括传统的Pt、Au、玻碳、ITO电极组合^[21]。Tahri等^[7]采用Cu、玻碳、Au、Ni、Pd、Pt、Ag等贵金属或非贵金属电极,以及PAH/DPPG、PEI/DPPG、PEI/(DPPG + melanin)等导电聚合物膜电极组成电极阵列,鉴定辨别葡萄牙

EVOO、VOO及未知样品,鉴别正确率可达100%,同时建立的模型成功预测了类胡萝卜素含量($R = 0.9234$)和游离脂肪酸含量($R = 0.9624$)。Rodríguez - Méndez等^[30]也采用了两类电极混合组成电极阵列,包括5个镧系金属酞菁修饰的碳糊电极、6个吡咯聚合物修饰的圆盘铂电极和1个未修饰的碳糊电极,对抗氧化剂响应值高,并预测了EVOO中总酚的含量及苦味参数。

1.2 电位型传感器

电位型传感器优势在于经过选择性制备后,可以获得分子辨识能力,缺点在于传感器膜易污染、易受温度影响^[29]。传感器膜是电位型传感器的核心部件,通常由离子载体、聚合物载体、亲脂型添加剂、塑化剂等构成^[31-32],可以与待分析物质发生共价或非共价作用,从而产生电位的变化^[10]。

商业化的电子舌系统SA-402B,离子选择性脂膜分散在PVC聚合物中,能够分辨酸、苦、涩、咸、鲜、甜等味道^[29,33],但在橄榄油检测中应用不多。Tortora等^[31]研发了多种基于卟啉-PVC材料的感光-电势型电极,通过融合光-电的特征数据,可以识别橄榄油种类,正确率高达98%。Tahri等^[7]利用LbL技术在玻璃板上先涂覆PAH或PEI涂层,再涂覆DPPG获得双层膜电极。Dias^[32]、Peres^[34]等开发了2个丝网印刷传感器阵列,每个均有20个聚合物电位型传感器,聚合物由4种亲脂型添加剂、5种塑化剂以及PVC构成。

除了脂膜传感器,无机多晶膜在橄榄油检测中也有应用。Semenov等^[8]用12种固体金属多晶膜或氧族金属化物膜电极的传感器阵列,区分未精炼的橄榄油、葵花籽油以及花生油等样品,并建立了线性回归模型,成功预测了过氧化值、*p*-茴香胺值和总生育酚含量。

2 电子舌在橄榄油检测中的应用

2.1 理化性质与感官评价

理化性质与感官评价是橄榄油品质分级的基础。橄榄油的理化性质指标包括酸值、过氧化值、紫外吸光系数、脂肪酸组成,其正面感官评价包括果味、苦味、辣味、“绿色”味、甜味,负面感官评价包括霉味、泥土味、酒-醋-酸味、酸败味、湿木头味、油腻味。传统理化检验方法耗时、耗力,感官评价对评价者要求较高,电子舌技术不仅可以预测橄榄油理化性质^[8,17],评价橄榄油感官特性^[35-36],甚至可以同时完成理化性质的预测与感官特性评价^[37],效率更高。Rodrigues等^[1]采用电子舌技术研究23种EVOO,通过建立多元线性回归模型,成功预测了橄

榄油的过氧化值、氧化稳定性、总酚含量、生育酚含量、CIELAB 色泽参数,同时预测了 11 种感官评价,效果良好。Apetrei^[28]采用电子舌技术研究 6 种 EVOO,采用 PLS 方法关联了过氧化物参数、游离脂肪酸含量、紫外吸收值(K_{232} 和 K_{270})、苦味参数等,也取得了较好的结果。

电子舌技术可以区分 EVOO、VOO、ROO 的等级。Veloso 等^[9]采用电子舌技术研究 42 种葡萄牙橄榄油,以 LDA-SA 法区分 VOO 和 ROO,正确率高达 92%,同时能够识别霉味、酸败味、湿木头味、酒-醋-酸味等负面感官评价,正确率为 75%。

电子舌技术可以将感官评价量化。Veloso 等^[38]采用电子舌技术研究 11 种西班牙 EVOO,以 LDA-SA 法将橄榄油感官强度分为强、中、轻三档,样品识别正确率为 91%。Marx 等^[39]采用电子舌技术研究 44 种西班牙橄榄油,以 MLR-SA 法定量描述橄榄油的酸、苦、咸的味道强度,重复 K-折交叉验证相关系数(R^2)不小于 0.96 ± 0.04 。

电子舌技术还可以监测橄榄油使用过程中的质量变化。Prata 等^[40]采用电子舌技术研究表明,12 种 EVOO 在烤箱加热和微波加热过程中总酚含量降低,同时果味、甜味、苦味、辣味、“绿色”味都显著减弱,苦味、果味、“绿色”味、辣味的强度与总酚含量呈线性关系。Rodrigues 等^[41]采用电子舌技术研究了橄榄油在 28 d 家用条件下质量及感官的变化,EVOO 品质最终降级成为 ROO。Rodrigues 等^[42]采用电子舌技术研究了葡萄牙 EVOO 的货架期,通过 LDA-SA 法预测,样品识别正确率为 82%~96%。

2.2 橄榄品种、源产地鉴别与掺假识别

EVOO 的品质最佳,经济价值高且市场巨大^[5]。产地来源保护(PDO)和地理标志保护(PGI)是保障 EVOO 品质的重要策略^[43],欧盟法规(EU)2015/1830、(EEC)No 2568/91 虽然规定了市售橄榄油的质量等级标准,但并没有规范橄榄油产地来源分类的方法。除了源产地造假以外,其他品种植物油尤其是低品质的 VOO、LVOO 掺假问题也亟需解决。电子舌-化学计量法联用,通过分析样品的指纹信息并归类,可以实现橄榄油源产地、橄榄树品种的鉴定以及掺假识别^[32,34,44-45]。Oliveri 等^[27]采用电子

舌技术以简单快速的 PCA、KNN 法区分玉米油和橄榄油,并能实现对意大利和西班牙产橄榄油源产地的区分。Peres 团队采用电子舌技术,应用含有 20 个脂质聚合交叉敏感丝网印刷传感器阵列,以 LDA-SA 法成功区分了西班牙^[32,34]、葡萄牙^[32]、突尼斯^[44-45]地区的橄榄品种,对于突尼斯 Chemlali 和 Sahli 品种的识别率分别达 $(92 \pm 7)\%$ 及 $(97 \pm 8)\%$ 。Zappi 等^[5]采用电子舌技术,依据样品的电势差异,将不同区域、不同年份的 42 种 EVOO 判定分为 6 个品种。

电子舌技术同样可以识别橄榄油掺假。Tsopelas 等^[6]利用伏安型电子舌识别 EVOO 中掺假 OPO、葵花籽油、大豆油、玉米油,采用 SIMCA 能够区分 EVOO 与所有掺假样品,并以 PLS 法关联了 2%~33%的掺假程度。Harzalli 等^[46]利用电位型电子舌识别添加了腐败或酒-醋-酸味橄榄油的 EVOO,识别正确率可以达到 84%以上。Bobiano 等^[16]采用电子舌技术,从添加了罗勒(basil)或牛至(oregano)香料的橄榄油中识别出酒-醋-酸味道,识别正确率为 93%~100%。Santonico 等^[47]采用电子舌技术研究 12 个产地的 EVOO,以 PLS-DA 法识别 EVOO 中浓度小于 5%的 OPO、葵花籽油、大豆油、玉米油,但加入 ROO 后识别误差会变大。

2.3 生物活性成分预测

橄榄油含有丰富的多酚、生育酚等生物活性成分。总酚包括酚醇、酚酸、黄酮、固醇、烯醚萜糖苷衍生物、原儿茶酸衍生物等,是橄榄油抗氧化活性的主要来源^[10],可利用电子舌技术预测总酚含量,相关研究开展较多^[1,31,48-49],预测效果好,模型关联系数可以达到 0.9976 ^[30]。随着电子舌检测效率的提高,多种活性成分含量可被同时预测,比如同时预测总酚和总生育酚含量^[1]。Borges 等^[49]采用电子舌技术研究 11 种西班牙(阿尔贝吉纳)EVOO,以 MLR-SA 法预测 EVOO 中黄酮、酚酸和酚醇含量,模型精度与 UPLC-MS 相当,重复 K-折交叉验证 $(0.93 \pm 0.03) \leq R^2 \leq (0.98 \pm 0.08)$ 。

近年电子舌技术在橄榄油检测方面的具体应用情况见表 1。

表 1 近年电子舌技术在橄榄油检测方面的具体应用情况

年份	样品	应用	传感器类型	数据分析方法	结果	参考文献
2020	不同品种、不同区域、不同年份的 42 种 EVOO	区分橄榄树品种	伏安型(多壁碳纳米管、TiO ₂ 纳米颗粒修饰的丝网印刷电极)	电势值	区分出 6 个橄榄树品种	[5]

续表 1

年份	样品	应用	传感器类型	数据分析方法	结果	参考文献
2019	未精炼的橄榄油、葵花籽油、花生油	区分植物油品种,预测过氧化值、 <i>p</i> -茴香胺值和总生育酚含量	电位型(12种固体金属多晶膜或氧族金属化物膜电极)	PCA, PLS	过氧化值预测范围 0.0 ~ 2.0 mmol/kg, <i>RMSE</i> 0.25 mmol/kg; <i>p</i> -茴香胺值预测范围 0.4 ~ 3.8, <i>RMSE</i> 0.8; 总生育酚含量预测范围 37.0 ~ 100.7 mg/100 g, <i>RMSE</i> 10 mg/100 g	[8]
2019	EVOO(23个橄榄树品种)	预测过氧化值、氧化稳定性、总酚含量、生育酚含量、CIELAB色泽参数以及11种味觉属性	电位型(2个丝网印刷传感器阵列,各含有20个脂质聚合交叉敏感传感器)	MLRM-SA	预测结果良好,重复 <i>K</i> -折交叉验证($0.90 \pm 0.07 \leq R^2 \leq (0.98 \pm 0.02)$)	[1]
2019	EVOO、加香橄榄灯油	识别加香的感官缺陷橄榄油	电位型(同参考文献[1])	LDA-SA	识别率70%~78%;半定量的方式识别率93%~100%	[16]
2018	42种葡萄牙EVOO	识别感官缺陷	电位型(同参考文献[1])	LDA-SA	霉味、酸败味、湿木头味、酒-醋-酸味等识别正确率75%,能够区分VOO和ROO(正确率92%)	[9]
2018	EVOO中掺杂OPO、葵花籽油、大豆油、玉米油	识别掺假	伏安型(氧化铝粉抛光的玻碳电极)	PCA, PLS-DA, SIMCA, PLS	成功区分各种油品,PLS能够较好定量掺假程度(线性范围2%~33%)	[6]
2018	10种葡萄牙EVOO、VOO	鉴定辨别未知样品,预测类胡萝卜素、游离脂肪酸等含量	伏安型(Cu、玻碳、Au、Ni、Pd、Pt、Ag电极,以及PAH/DPPG、PEL/DPPG、PEL/(DPPG+melanin)电极)	PCA, HCA, SVMs, LDA, PLS	建立模型预测类胡萝卜素含量($R=0.9234$),游离脂肪酸含量($R=0.9624$)	[7]
2018	EVOO,模拟家用储存条件	家用条件下质量、感官监测	电位型(同参考文献[1])	LDA-SA	28 d内EVOO品质降为ROO	[41]
2018	12种EVOO,总酚含量400~1000 mg/kg	烤箱及微波加热方式对总酚含量以及感官的影响	电位型(同参考文献[1])	PCA, LDA-SA	总酚含量降低($P < 0.0001$),果味、甜味、苦味、辣味、“绿色”味都显著减弱($P < 0.0001$)	[40]
2018	15种EVOO、2种低品质橄榄油	识别EVOO中掺假腐败或酒-醋-酸味橄榄油	电位型(同参考文献[1])	LDA-SA	识别正确率分别为(84 ± 4)%和(92 ± 4)%	[46]
2018	10种EVOO、10种VOO及4种OPO	品质辨识,综合评价货架期	电子鼻、电子眼、电位型电子舌(SA402B)	PCA, KNN	识别正确率为94%	[33]
2018	11种西班牙(阿尔贝吉纳)EVOO	预测酚类、黄酮、酚酸和酚醇含量	电位型(同参考文献[1])	MLR-SA	与UPLC-MS精度相当(重复 <i>K</i> -折交叉验证($0.93 \pm 0.03 \leq R^2 \leq (0.98 \pm 0.08)$))	[49]
2017	60种突尼斯EVOO、VOO、LOO	区分源产地、品质、橄榄树品种	电位型(同参考文献[1])	LDA-SA	识别正确率(92 ± 7)%(品种Chemlali), (97 ± 8)%(品种Sahli)	[45]
2017	葡萄牙EVOO	评价货架期	电位型(同参考文献[1])	LDA-SA	识别正确率82%~96%	[42]
2017	44种西班牙橄榄油	量化酸味、苦味、咸味	电位型(同参考文献[1])	LDA-SA, MLR-SA	重复 <i>K</i> -折交叉验证 $R^2 = 0.96 \pm 0.04$	[39]

续表 1

年份	样品	应用	传感器类型	数据分析方法	结果	参考文献
2016	11 种西班牙 EVOO	评价感官强度	电位型(同参考文献[1])	LDA-SA	味道分为强、中、轻三档,正确率 91%	[38]
2016	EVOO	监测品质、抗氧化性随贮存时间的变化	电位型(同参考文献[1])	MLR-SA	关联模型线性良好(重复 K -折交叉验证 $R^2 \geq 0.96$)	[37]
2016	8 个 EVOO 品种	识别品种	电位型(同参考文献[1])	感官评价与电子舌融合, LDA-SA	识别正确率 100%	[50]
2015	12 个产地 EVOO	区分产地,识别掺假(OPO、大豆油、葵花籽油、玉米油)	伏安型(BIONOTE 平台)	PCA, PLS-DA	可以识别 5% 以下的掺假浓度	[47]
2014	11 种西班牙橄榄油	识别品种、年份	电位型(同参考文献[1])	LDA-SA	识别正确率 100%	[34]
2014	EVOO	识别掺假(葵花籽油、大豆油、玉米油)	伏安型(碳糊电极)	PLS-DA, PLS	5%~10% 的掺假量可被识别,关联模型线性良好($R_c^2 = 0.9996$, $R_p^2 = 0.9987$)	[25]
2013	5 个产地摩洛哥 VOO	产地分类	电子鼻、伏安型电子舌(Pt, Au, 玻碳, ITO 电极)	PCA, CA, SMVs	数据低度融合预测效果好	[21]
2013	18 种希腊、西班牙、意大利 EVOO	品种区分,定量测定总酚含量	伏安型(聚吡咯修饰丝网印刷碳电极)	PCA, PLS-DA, SIMCA	训练模型 $R = 0.9976$, 验证模型 $R = 0.9884$	[48]
2012	6 种 EVOO	预测过氧化物参数、游离脂肪酸含量、 K_{232} 和 K_{270} 、苦味参数	伏安型(聚吡咯修饰圆盘金电极)	PCA, PLS-DA	分类明显,拟合效果良好	[28]
2010	25 种 VOO	评价苦味程度	伏安型(碳糊电极)	PCA, PLS-DA	分类明显, $RMSEP < 0.099$; 苦味参数预测模型 $R > 0.9$	[20]

3 存在的问题及未来发展方向

目前电子舌技术的研究仍局限于实验室中,在橄榄油工业应用中报道较少,在线实时检测分析是个巨大的挑战。目前制约电子舌技术工业应用的原因可能来自于以下几个方面:①需要更稳定的样品便于分析。目前油样仍需要导电化的前处理,处理后的样品能否全面反映橄榄油样品本身的指纹特点,仍需要深入理论研究。②需要成熟的传感器阵列增加检测准确性。电子舌虽然已有商用设备,但在橄榄油检测领域应用较少。③需要开发更加全面、精确的多维度的检测方法与数据融合技术。多维度的检测方法与数据融合技术包括将电子舌与电子鼻,电子舌、电子鼻与电子眼,电子舌与感官评价等方法联用并将数据融合处理。目前多维度的检测主要是依靠多种检测方法多次检测样品,数据不是同时得到的,分析结果存在一定偏差。④需要建立匹配的行业标准规范。这也是电子舌工业化应用的

前提条件。

开发适用于橄榄油体系的,更灵敏、更全面、更稳定的检测器是电子舌传感器未来发展的方向。电子舌传感器将向着简单化、多元化的方向发展,新材料修饰的丝网印刷电极应用越来越广。同时,电子舌传感器也将向着多维度分析的方向发展,比如光-电位传感器、气-液传感器等。随着技术的进步,电子舌技术将有可能成为未来公认的、实用的橄榄油的常规分析方法,在商业和工业上得到更广泛的应用。

参考文献:

- [1] RODRIGUES N, MARX Í M G, CASAL S, et al. Application of an electronic tongue as a single-run tool for olive oils' physicochemical and sensory simultaneous assessment[J]. Talanta, 2019, 197:363-373.
- [2] MEENU M, CAI Q, XU B. A critical review on analytical techniques to detect adulteration of extra virgin olive oil

- [J]. *Trends Food Sci Technol*, 2019, 91:391–408.
- [3] VALLI E, BENDINIA, BERARDINELLI A, et al. Rapid and innovative instrumental approaches for quality and authenticity of olive oils [J]. *Eur J Lipid Sci Technol*, 2016, 118(11):1601–1619.
- [4] GÓMEZ-CARAVACA A M, MAGGIO R M, CERRETANI L. Chemometric applications to assess quality and critical parameters of virgin and extra-virgin olive oil. A review [J]. *Anal Chim Acta*, 2016, 913: 1–21.
- [5] ZAPPI D, SADUN C, GONTRANI L, et al. A new electrochemical sensor for extra-virgin olive oils classification [J/OL]. *Food Control*, 2020, 109:106903 [2020-03-27]. <https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2019.106903>.
- [6] TSOPELAS F, KONSTANTOPOULOS D, KAKOULIDOU A T. Voltammetric fingerprinting of oils and its combination with chemometrics for the detection of extra virgin olive oil adulteration [J]. *Anal Chim Acta*, 2018, 1015:8–19.
- [7] TAHRI K, DUARTE A A, CARVALHO G, et al. Distinguishment, identification and aroma compound quantification of Portuguese olive oils based on physicochemical attributes, HS-GC/MS analysis and voltammetric electronic tongue [J]. *J Sci Food Agric*, 2018, 98(2):681–690.
- [8] SEMENOV V, VOLKOV S, KHAYDUKOVA M, et al. Determination of three quality parameters in vegetable oils using potentiometric e-tongue [J]. *J Food Compos Anal*, 2019, 75:75–80.
- [9] VELOSO A C A, SILVA L M, RODRIGUES N, et al. Perception of olive oils sensory defects using a potentiometric taste device [J]. *Talanta*, 2018, 176: 610–618.
- [10] MARX I M G, VELOSO A C A, DIAS L G, et al. Electrochemical sensor-based devices for assessing bioactive compounds in olive oils: a brief review [J]. *Electronics*, 2018, 7(12):387.
- [11] PERIS M, ESCUDER-GILBERT L. Electronic noses and tongues to assess food authenticity and adulteration [J]. *Trends Food Sci Technol*, 2016, 58:40–54.
- [12] VLASOV Y G, ERMOLENKO Y E, LEGIN A V, et al. Chemical sensors and their systems [J]. *J Anal Chem*, 2010, 65(9):880–898.
- [13] GHASEMI-VARNAMKHAHI M, MOHTASEBI S S, SIADAT M. Biomimetic-based odor and taste sensing systems to food quality and safety characterization: an overview on basic principles and recent achievements [J]. *J Food Eng*, 2010, 100(3):377–387.
- [14] ESCUDER-GILBERT L, PERIS M. Review: highlights in recent applications of electronic tongues in food analysis [J]. *Anal Chim Acta*, 2010, 665(1): 15–25.
- [15] DEL VALLE M. Electronic tongues employing electrochemical sensors [J]. *Electroanalysis*, 2010, 22(14):1539–1555.
- [16] BOBIANO M, RODRIGUES N, MADUREIRA M, et al. Unmasking sensory defects of olive oils flavored with basil and oregano using an electronic tongue-chemometric tool [J]. *J Am Oil Chem Soc*, 2019, 96(7):751–760.
- [17] COSIO M S, BALLABIO D, BENEDETTI S, et al. Evaluation of different storage conditions of extra virgin olive oils with an innovative recognition tool built by means of electronic nose and electronic tongue [J]. *Food Chem*, 2007, 101(2):485–491.
- [18] BUSCH J L H C, HRNCIRIK K, BULUKIN E, et al. Biosensor measurements of polar phenolics for the assessment of the bitterness and pungency of virgin olive oil [J]. *J Agric Food Chem*, 2006, 54(12):4371–4377.
- [19] BOUGRINI M, TAHRI K, HADDI Z, et al. Detection of adulteration in argan oil by using an electronic nose and a voltammetric electronic tongue [J]. *J Sens*, 2014, 2014: 727–737.
- [20] APETREI C, APETREI I M, VILLANUEVA S, et al. Combination of an e-nose, an e-tongue and an e-eye for the characterisation of olive oils with different degree of bitterness [J]. *Anal Chim Acta*, 2010, 663(1): 91–97.
- [21] HADDI Z, ALAMI H, EL BARI N, et al. Electronic nose and tongue combination for improved classification of Moroccan virgin olive oil profiles [J]. *Food Res Int*, 2013, 54(2):1488–1498.
- [22] MEN H, CHEN D, ZHANG X, et al. Data fusion of electronic nose and electronic tongue for detection of mixed edible-oil [J]. *J Sens*, 2014, 2014:1–7.
- [23] APETREI C, RODRÍGUEZ-MÉNDEZ M L, DE SAJA J A. Modified carbon paste electrodes for discrimination of vegetable oils [J]. *Sens Actuators B*, 2005, 111–112: 403–409.
- [24] APETREI C, GUTIEREZ F, RODRÍGUEZ-MÉNDEZ M L, et al. Novel method based on carbon paste electrodes for the evaluation of bitterness in extra virgin olive oils [J]. *Sens Actuators B*, 2007, 121(2):567–575.
- [25] APETREI I M, APETREI C. Detection of virgin olive oil adulteration using a voltammetric e-tongue [J]. *Comput Electron Agric*, 2014, 108:148–154.
- [26] GUADARRAMA A, RODRÍGUEZ-MÉNDEZ M L, DE SAJA J A. Influence of electrochemical deposition parameters on the performance of poly-3-methylthiophene and polyaniline sensors for virgin olive oils [J]. *Sens Actuators B*, 2004, 100(1):60–64.
- [27] OLIVERI P, BALDO M A, DANIELE S, et al. Development of a voltammetric electronic tongue for discrimination of edible oils [J]. *Anal Bioanal Chem*, 2009, 395(4):1135–1143.

- [28] APETREI C. Novel method based on polypyrrole – modified sensors and emulsions for the evaluation of bitterness in extra virgin olive oils [J]. *Food Res Int*, 2012, 48(2):673 – 680.
- [29] SLIWINSKA M, WISNIEWSKA P, DYMERSKI T, et al. Food analysis using artificial senses [J]. *J Agric Food Chem*, 2014, 62(7):1423 – 1448.
- [30] RODRÍGUEZ – MÉNDEZ M L, APETREI C, DE SAJA J A. Evaluation of the polyphenolic content of extra virgin olive oils using an array of voltammetric sensors [J]. *Electrochim Acta*, 2008, 53(20):5867 – 5872.
- [31] TORTORA L, STEFANELLI M, MASTROIANNI M, et al. The hyphenated CSPT – potentiometric analytical system: an application for vegetable oil quality control [J]. *Sens Actuators B*, 2009, 142(2):457 – 463.
- [32] DIAS L G, FERNANDES A, VELOSO A C A, et al. Single – cultivar extra virgin olive oil classification using a potentiometric electronic tongue [J]. *Food Chem*, 2014, 160:321 – 329.
- [33] BURATTI S, MALEGORI C, BENEDETTI S, et al. E – nose, e – tongue and e – eye for edible olive oil characterization and shelf life assessment: a powerful data fusion approach [J]. *Talanta*, 2018, 182:131 – 141.
- [34] PERES A M, VELOSO A C A, PEREIRA J A, et al. Electrochemical multi – sensors device coupled with heuristic or meta – heuristic selection algorithms for single – cultivar olive oil classification [J]. *Procedia Eng*, 2014, 87:192 – 195.
- [35] MARX I M G, RODRIGUES N, DIAS L G, et al. Assessment of table olives’ organoleptic defect intensities based on the potentiometric fingerprint recorded by an electronic tongue [J]. *Food Bioprocess Technol*, 2017, 10(7):1310 – 1323.
- [36] MARX I, RODRIGUES N, DIAS L G, et al. Sensory classification of table olives using an electronic tongue: analysis of aqueous pastes and brines [J]. *Talanta*, 2017, 162:98 – 106.
- [37] RODRIGUES N, DIAS L G, VELOSO A C A, et al. Monitoring olive oils quality and oxidative resistance during storage using an electronic tongue [J]. *LWT – Food Sci Technol*, 2016, 73:683 – 692.
- [38] VELOSO A C A, DIAS L G, RODRIGUES N, et al. Sensory intensity assessment of olive oils using an electronic tongue [J]. *Talanta*, 2016, 146:585 – 593.
- [39] MARX I M G, RODRIGUES N, DIAS L G, et al. Quantification of table olives’ acid, bitter and salty tastes using potentiometric electronic tongue fingerprints [J]. *LWT – Food Sci Technol*, 2017, 79:394 – 401.
- [40] PRATA R, PEREIRA J A, RODRIGUES N, et al. Olive oil total phenolic contents and sensory sensations trends during oven and microwave heating processes and their discrimination using an electronic tongue [J]. *J Food Qual*, 2018(2018):1 – 10.
- [41] RODRIGUES N, OLIVEIRA L, MENDANHA L, et al. Olive oil quality and sensory changes during house – use simulation and temporal assessment using an electronic tongue [J]. *J Am Oil Chem Soc*, 2018, 95(9):1121 – 1137.
- [42] RODRIGUES N, DIAS L G, VELOSO A C A, et al. Evaluation of extra – virgin olive oils shelf life using an electronic tongue – chemometric approach [J]. *Eur Food Res Technol*, 2017, 243(4):597 – 607.
- [43] CHEDID E, RIZOU M, KALAITZIS P. Application of high resolution melting combined with DNA – based markers for quantitative analysis of olive oil authenticity and adulteration [J/OL]. *Food Chem*, 2020, 6:100082 [2020 – 03 – 27]. <https://doi.org/10.1016/j.fochx.2020.100082>.
- [44] SLIM S, RODRIGUES N, DIAS L G, et al. Application of an electronic tongue for Tunisian olive oils’ classification according to olive cultivar or physicochemical parameters [J]. *Eur Food Res Technol*, 2017, 243(8):1459 – 1470.
- [45] SOUAYAH F, RODRIGUES N, VELOSO A C A, et al. Discrimination of olive oil by cultivar, geographical origin and quality using potentiometric electronic tongue fingerprints [J]. *J Am Oil Chem Soc*, 2017, 94(12):1417 – 1429.
- [46] HARZALLI U, RODRIGUES N, VELOSO A C A, et al. A taste sensor device for unmasking admixing of rancid or winey – vinegary olive oil to extra virgin olive oil [J]. *Comput Electron Agric*, 2018, 144:222 – 231.
- [47] SANTONICO M, GRASSO S, GENOVA F, et al. Unmasking of olive oil adulteration via a multi – sensor platform [J]. *Sensors*, 2015, 15(9):21660 – 21672.
- [48] APETREI I M, APETREI C. Voltammetric e – tongue for the quantification of total polyphenol content in olive oils [J]. *Food Res Int*, 2013, 54(2):2075 – 2082.
- [49] BORGES T H, PERES A M, DIAS L G, et al. Application of a potentiometric electronic tongue for assessing phenolic and volatile profiles of Arbequina extra virgin olive oils [J]. *LWT – Food Sci Technol*, 2018, 93:150 – 157.
- [50] DIAS L G, RODRIGUES N, VELOSO A C A, et al. Monovarietal extra – virgin olive oil classification: a fusion of human sensory attributes and an electronic tongue [J]. *Eur Food Res Technol*, 2016, 242(2):259 – 270.