

УДК 543.068.8:543.422.7:543.426:543.061:543.068.52

ИДЕНТИФИКАЦИЯ И АУТЕНТИФИКАЦИЯ МОЛОКА С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ЦИФРОВОЙ ЦВЕТОМЕТРИИ ИНДИКАТОРНЫХ ТЕСТ-СИСТЕМ, СМАРТФОНА И ХЕМОМЕТРИЧЕСКОГО АНАЛИЗА

© 2023 г. В. Г. Амелин^{а, б, *}, З. А. Ч. Шаока^а, Д. С. Большаков^с, А. В. Третьяков^б

^аВладимирский государственный университет имени Александра Григорьевича и Николая Григорьевича Столетовых ул. Горького, 87, Владимир, 600000 Россия

^бВсероссийский государственный центр качества и стандартизации лекарственных средств для животных и кормов Звенигородское шоссе, 5, Москва, 123022 Россия

^сЦентр гигиены и эпидемиологии в Владимирской области ул. Токарева, 5, Владимир, 600005 Россия

*e-mail: amelinvg@mail.ru

Поступила в редакцию 11.04.2022 г.

После доработки 13.05.2022 г.

Принята к публикации 19.05.2022 г.

Предложен простой и доступный способ идентификации и аутентификации молока с использованием тест-устройства, смартфона и хемометрического анализа. Для идентификации по региону происхождения и видовой принадлежности молока (коровье, козье, овечье и др.) и аутентификации (подлинность, фальсификация молока) использованы кислотно-основные индикаторные бумаги и тест-бумаги для определения общей жесткости и общей щелочности воды, содержания хлорид- и сульфат-ионов. Предложены две индикаторные системы. В первой тест-системе реализованы 16 индикаторных зон, из них 12 – кислотно-основные индикаторы с изменением цвета в интервале рН 3–9, и 4 – индикаторные зоны, изменение цвета которых зависит от концентрации ионов кальция, хлорид-, сульфат-, карбонат- и гидрокарбонат-ионов. Во второй тест-системе использованы флуоресцирующие индикаторы, а также собственная флуоресценция молока на целлюлозной бумаге и тонком слое силикагеля. В этом случае осуществляли облучение монохроматическим ультрафиолетовым светом (365 нм) индикаторных зон матрицы после нанесения на них проб молока. Предложено устройство и способ измерения цветометрических параметров тест-систем с помощью смартфона. Массив данных (сумма значений каналов RGB) обрабатывали с использованием программного обеспечения XLSTAT. Применение хемометрического анализа позволило установить подлинность молока, провести идентификацию его по региону происхождения, а также выявить факты фальсификации молока путем разбавления водой, использования растительных жиров и эмульгирования с помощью ПАВ. Проведена идентификация производителей пастеризованного молока и установлена возможность определения его жирности по массиву данных цветометрических параметров RGB.

Ключевые слова: идентификация и аутентификация молока, индикаторные тест-системы, цифровая цветометрия, смартфон, хемометрический анализ.

DOI: 10.31857/S0044450223010024, EDN: KKFPRQ

Молоко – это продукт физиологической секреции молочных желез сельскохозяйственных животных (коровы, овцы, козы, буйволицы, верблюдицы, кобылы и др.), полученный от одной или более особей, при одном или нескольких доениях. Оно содержит в своем составе питательные и биологически активные вещества (белки, жиры, углеводы, минеральные компоненты, витамины) в оптимально сбалансированном соотношении, которые обеспечивают нормальный

рост, развитие и жизнедеятельность организма не только новорожденных животных, но и человека.

Все возрастающее значение молока как полноценного продукта питания и сырьевого материала приводит к увеличению спроса на него и, как следствие, к дефициту, что зачастую инициирует его фальсификацию. Замещение молочной продукции фальсификатом в рационе питания человека приводит не только к дефициту незаменимых аминокислот, жирных кислот, биологически

активных веществ, микроэлементов, но и к негативному воздействию на его здоровье.

Фальсификацию молочных продуктов осуществляют путем частичной замены молока или молочного жира на более дешевые безмолочные продукты (воду, растительное масло, соевые белки, крахмал, мочевины, меламина, поверхностно-активные вещества и т.п.) [1]. Факты фальсификации молока обычно выявляют методами ближней инфракрасной, флуоресцентной спектроскопии, по соотношению стабильных изотопов легких элементов (H, C, N, S), методом ядерного магнитного резонанса и хроматографическими методами с обработкой массива данных хемометрическими алгоритмами [2–6]. Идентификация по региону происхождения и видовой принадлежности молока (коровье, козье, овечье, буйволиное и др.) осуществляется по соотношению стабильных изотопов легких элементов (H, C, N, S) [7] и методами флуоресцентной спектроскопии [4, 8, 9]. Перечисленные методы дорогостоящи, сложны, требуют квалифицированных операторов и реализуются в условиях лаборатории. В связи с этим актуально появление упрощенных способов выявления фактов фальсификации молока. Так, с целью установления фальсификации молока в работе [10] определены массовые доли жира и белка по рассеянию света с длинами волны 465, 526 и 630 нм. Цифровые изображения светорассеяния получали с помощью цифрового фотоаппарата. Содержание жира и белка и соответственно фальсификацию молока определяли по значениям цветовых каналов RGB.

Предложено микрожидкостное устройство на основе целлюлозной бумаги для установления фальсификации буйволиного молока по результатам определения в нем додецилсульфата натрия, мочевины, карбонатов и гидрокарбонатов [11]. Устройство напечатано на 3D принтере с ограничением трех индикаторных зон парафином. Каждая из зон целлюлозной бумаги пропитана розоловой кислотой (аурином), бромкрезоловым пурпурным и диметиламинобензальдегидом. Наличие фальсифицирующих ингредиентов определяли визуально по изменению окраски индикаторных зон.

Наличие крахмала в фальсифицированном молоке устанавливали по появлению синей окраски индикаторной бумаги, содержащей KI [12]. Интенсивность окраски бумаги определяли цветометрическим методом с использованием смартфона. Установлена прямолинейная зависимость параметров RGB от концентрации крахмала в диапазоне 0–100 г/л.

Фальсификацию молока путем разбавления его водой предложено устанавливать по содержанию белка [13]. После осаждения белков сульфатом меди проводили колориметрическое определение

остаточного количества Cu(II), пропорционально содержанию белка, с помощью цифровой цветометрии на смартфоне. Способ позволяет обнаруживать до 1.0 об. % воды в фальсифицированном молоке. Используемые добавки для фальсификации белка (мочевина, меламина) не мешают определению.

Цель данной работы состояла в разработке простого и доступного способа идентификации и аутентификации молока с использованием тест-устройства, смартфона и хемометрического анализа.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Аппаратура. Для изучения оптических и цветометрических характеристик в качестве цветорегистрирующего устройства использовали смартфоны iPhone X и iPhone XII (Apple, США), оснащенные специализированным программным обеспечением RGBer. Для возбуждения флуоресценции использовали источник монохроматического излучения с длиной волны 365 нм – осветитель люминесцентный диагностический Лампа Вуда ОЛДД-01 (Россия). Значения pH измеряли иономером Эксперт-001-3(0.1) (Россия) с комбинированным стеклянным электродом ЭСК-10603 (Россия).

В работе применяли аналитические весы Pioneer PA 214C специального класса точности с пределом взвешивания 0.1 мг (Ohaus Corporation, USA), дозаторы Proline Biohit одноканальные механические переменного объема 2–20 мкл, 100–1000 мкл, 1000–5000 мкл (Biohit, Финляндия).

Реактивы. Применяемые при изготовлении тест-устройств реактивы указаны в табл. 1 (Sigma-Aldrich, США и ООО “ХИМПРЕАКТИВ”, Россия). Для приготовления растворов использовали дистиллированную воду, соответствующую требованиям [14].

Изготовление тест-устройства для анализа. Применяли пластины для высокоэффективной тонкослойной хроматографии HPTLC Silica gel 60 (Merck, Германия) и целлюлозную бумагу для хроматографии Whatman 17 Chr (Cytiva, США). Для изготовления тест-устройства бумагу замачивали однократно или двукратно (с высушиванием перед повторным замачиванием) в растворах реагентов (табл. 1) с последующим высушиванием.

Из полученных индикаторных бумаг изготавливали тест-устройство (рис. 1, 2) и после нанесения пробы молока измеряли цветометрические параметры.

Ход анализа. Образцы питьевого молока коммерческого производства для исследований приобретали в магазинах розничной торговли (супермаркетах) г. Владимира в период с апреля по декабрь 2021 г. (табл. 2). Все образцы были

Таблица 1. Реагенты, используемые для изготовления тест-устройств

№	Индикатор	Интервал pH перехода и окраска индикатора	pK_a	Составы пропиточных растворов
1	Конго красный	3.0–5.2, красная–фиолетовая	4.0	0.1%-ный водный раствор конго красного
2	Бромфеноловый синий	3.0–4.6, желтая–синяя	4.1	0.1%-ный водный раствор бромфенолового синего
3	Ализариновый красный С	3.7–5.2, желтая–фиолетовая	5.5	0.1%-ный водно-этанольный раствор ализаринового красного С
4	Бромкрезоловый зеленый	3.8–5.4, желтая–синяя	4.9	0.1%-ный водно-этанольный раствор бромкрезолового зеленого
5	Метиловый красный	4.2–6.2, красная–желтая	5.0	0.1%-ный водно-этанольный раствор метилового красного
6	Бромфеноловый красный	5.0–6.8, желтая–красная	6.3	0.1%-ный водно-этанольный раствор бромфенолового красного
7	Бромкрезоловый пурпуровый	5.2–6.8, желтая–пурпурная	6.4	0.1%-ный водно-этанольный раствор бромкрезолового пурпурового
8	Ализарин	5.8–7.2, желтая–розовая	6.9	0.1%-ный водно-этанольный раствор ализарина
9	Бромтимоловый синий	6.0–7.6, желтая–синяя	7.3	0.1%-ный водно-этанольный раствор бромтимолового синего
10	Феноловый красный	6.8–8.4, желтая–красная	8.0	0.1%-ный водно-этанольный раствор фенолового красного
11	Нейтральный красный	6.8–8.4, красная–желтая	7.4	0.1%-ный водно-этанольный раствор нейтрального красного
12	Крезоловый красный	7.0–8.8, желтая–пурпурная	8.5	0.1%-ный водно-этанольный раствор крезолового красного
13	Эриохромовый черный Т	Синяя–вишневая	–	0.08%-ный водный раствор эриохромового черного Т и 0.8%-ный водный раствор тетрабората натрия
14	Хромат серебра	Оранжевая–бесцветная	–	1) 0.05%-ный водный раствор сульфата серебра; 2) 0.05%-ный водный раствор дихромата калия
15	Комплекс бария с эриохромовым черным Т	Вишневая–синяя	–	1) 0.05%-ный водный раствор хлорида бария; 2) 0.05%-ный водный раствор эриохромового черного Т
16	Конго красный с лимонной кислотой	Синяя–красная	–	1) 0.05%-ный водный раствор конго красного; 2) 0.05%-ный водный раствор лимонной кислоты
17	Бумага без пропитки	Синяя флуоресценция	–	–
18	Пластина ТСХ (силикагель) без пропитки	Синяя флуоресценция	–	–

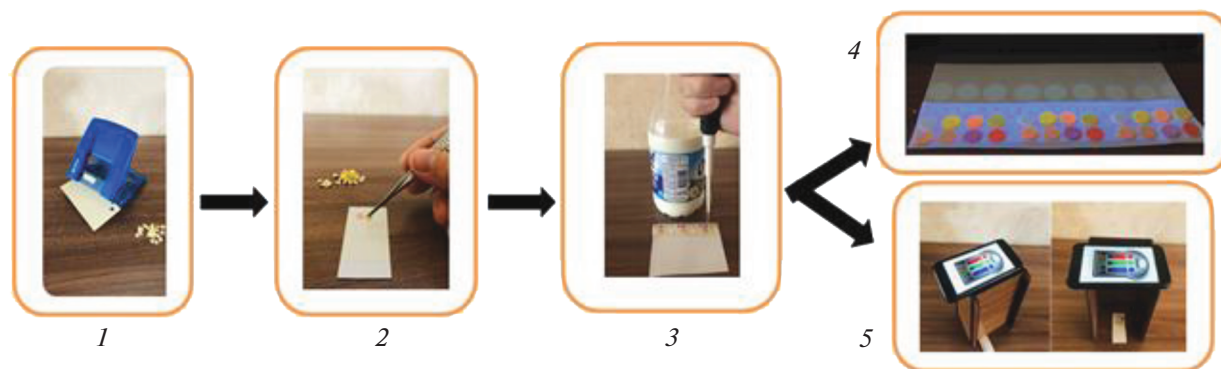


Рис. 1. Схема изготовления тест-устройства и измерения цветометрических характеристик индикаторных зон смартфоном. 1 – изготовление индикаторных зон с помощью дырокола, 2 – приклеивание индикаторов на двухсторонний скотч, 3 – нанесение пробы молока на индикаторные зоны, 4, 5 – измерение цветометрических характеристик с помощью смартфона с УФ-облучением и без него.

упакованы в пластиковую тару, отбирались с соблюдением сроков годности. Анализ проводили непосредственно после вскрытия бутылки. На индикаторные зоны наносили по 10 мкл образца питьевого молока, через 10–15 мин тест-устройство помещали в бокс ($15 \times 10 \times 8$ см) и фотографировали камерой смартфона со вспышкой (рис. 1). При изучении твердофазной флуоресценции индикаторных зон тест-устройство подвергали обработке монохроматическим излучением в УФ-диапазоне и проводили фотографирование в темном помещении. Цветометрические характеристики индикаторных зон оценивали с использованием программного продукта RGBer, установленного на смартфоне. Аналитический сигнал для каждой индикаторной зоны рассчитывали как сумму значений каналов R, G и B.

Хемотрический анализ. Для идентификации и аутентификации молока применяли метод глав-

ных компонент (principal component analysis, PCA), иерархический кластерный анализ (hierarchical clustering analysis, HCA) и метод k-средних (k-means) с использованием программного обеспечения XLSTAT (v. 2021.3.1).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Цветометрия окрашенных индикаторных систем для идентификации и аутентификации молока. Молоко содержит молочный жир, углеводы и минеральные вещества (кальций, фосфор, калий, магний и др.) и в среднем состоит из 87% воды, 4–5% лактозы, 3% белка, 3–4% жира, 0.8% минералов и 0.1% витаминов [15]. Состав молока зависит от вида млекопитающего и его рациона. В частности, распределение жирных кислот сильно зависит от вида животного и в значительной степени коррелирует с типом используемого корма [7]. Одним из важных показателей качества молока является активная кислотность (pH). Этот показатель колеблется в пределах 6.55–6.75 и поддерживается белковой, фосфатной, цитратной и др. буферными системами.

Выбор индикаторов в тест-устройстве для идентификации и аутентификации молока обусловлен его химическим составом, указанным выше. Использовали 12 кислотно-основных индикаторов с pK_a 4.0–8.5, изменение цвета которых зависит от содержания белков, поверхностно-активных веществ и активной кислотности (индикаторы 1–12). Также использовали четыре индикаторные системы, изменяющие цвет в присутствии солей кальция и магния, хлоридов, сульфатов, карбонатов и гидрокарбонатов (индикаторы 13–16) (табл. 1).

Установлены оптимальные условия регистрации аналитического сигнала: время реги-

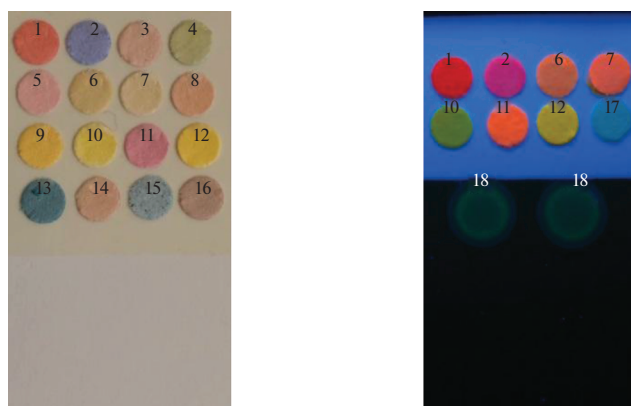


Рис. 2. Тест-устройство и схема расположения индикаторных зон (номер зоны соответствует номеру индикатора из табл. 1).

Таблица 2. Образцы питьевого молока, исследуемые в работе

№	Бренд	Производитель	Массовая доля жира, %	pH после вскрытия бутылки
1	Простоквашино	г. Липецк	1.5	6.71
			2.5	6.68
			3.5	6.67
2	Домик в деревне	г. Нижний Новгород	2.5	6.68
			3.8	6.71
3	Глобус	г. Медынь, Калужская обл.	4.0	6.23
4	Искренне ваш	Солнечногорский р-н, Московская обл.	1.5	6.62
			2.5	6.60
			3.2	6.58
			4.0	6.56
5	Ополье	г. Юрьев-Польский, Владимирская обл.	2.5	6.62
			3.2	6.62
			3.9	6.59
6	Муромское подворье	г. Муром, Владимирская обл.	3.2	6.65
7	Белорусское	г. Минск	2.5	6.66
8	Магнит	Кировская обл.	2.5	6.67
9	Торговый дом "Сметанин"	г. Иваново	2.5	6.63
10	Васильково	Калужская обл.	2.5	6.44
11	ВкусВилл	г. Лебедянь, Липецкая обл.	1.0	6.69
			2.5	6.60
			3.2	6.58
			4.0	6.53
12	Экомилк	с. Озерецкое, Дмитровский р-н, Московская обл.	3.2	6.65
13	Царка	г. Судогда, Владимирская обл.	3.2	6.70
14	ВкусВилл	Молоко козье	5.2	6.78
15	ВкусВилл	Овечье молоко	7.0	6.59
16	ВкусВилл	Буйволиное молоко	6.9	6.60
17	ВкусВилл	Кобылье молоко	1.5	6.70
18	Светаево	с. Озерецкое, Дмитровский р-н, Московская обл.	1.5	6.71
19	Молоко цельное	г. Судогда, Владимирская обл.	4.1	6.58

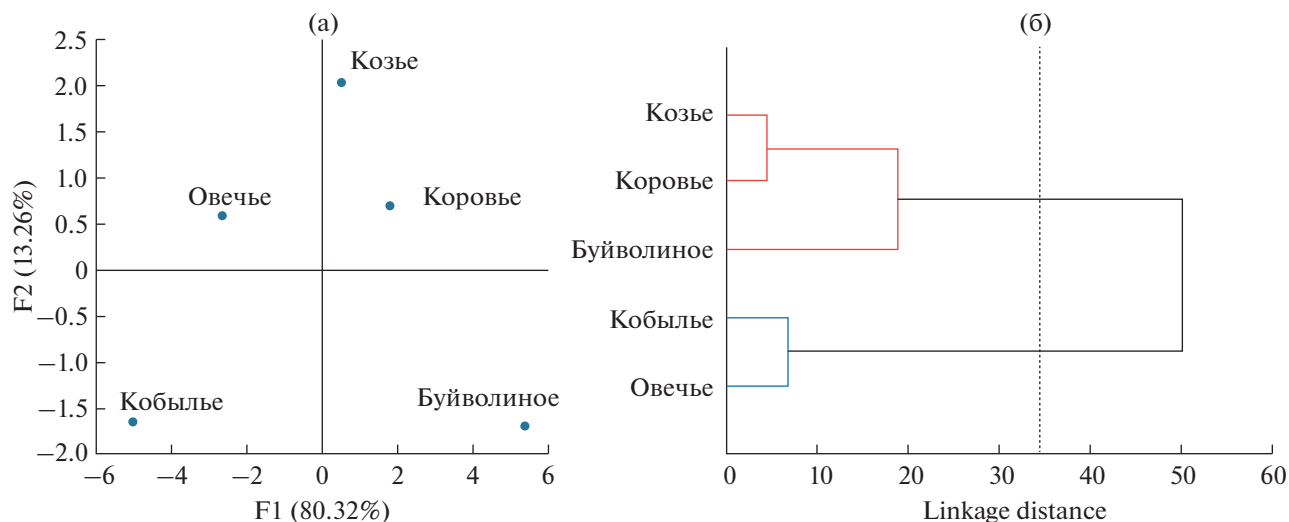


Рис. 3. График PCA для идентификации молока от различных видов животных (а) и соответствующая дендрограмма (б). “linkage distance” – расстояние идентифицируемого молока от аналогичного молока, использованного для обучающей выборки.

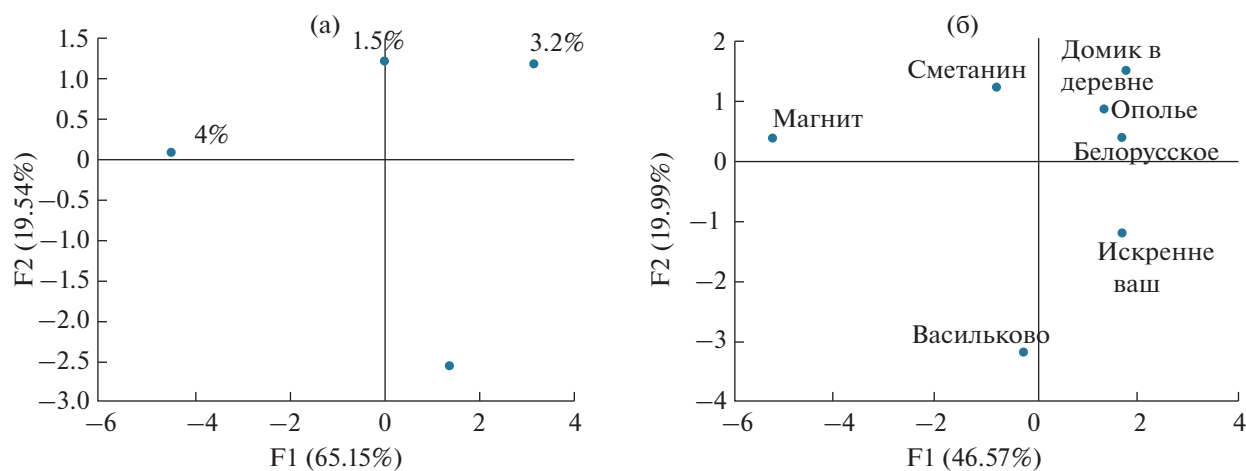


Рис. 4. График PCA для образца молока “Искренне ваш” с массовой долей жира 1.5–4.0% (а) и для образцов молока с массовой долей жира 2.5% разных производителей (б).

страции – 10 мин после нанесения молока на индикаторные зоны, фотографирование со вспышкой при помещении тест-системы в бокс (рис. 1). Аналитический сигнал (A) рассчитывали по формуле: $A = R + G + B$.

Идентифицировали козье, коровье, овечьё и буйволиное молоко. Как видно из рис. 3а, при использовании метода главных компонент можно однозначно установить видовую принадлежность молока: на графике все образцы располагаются в различных квадрантах и образуют соответствующие кластеры. Козье и коровье молоко (“Просто-квашино”, 3.5%) оказались в одном кластере (второй квадрант), что свидетельствует о близости их химического состава (рис. 3б).

Установлено, что дифференциация коровьего молока наблюдается как по массовой доле жира образцов, приобретенных у одного производителя (рис. 4а), так и по производителям (региону происхождения) при одинаковой массовой доле жира (жирности) (2.5%) (рис. 4б).

Использование метода иерархического кластерного анализа позволило идентифицировать молоко по массовой доле жира и производителю (рис. 5). Идентифицируемое молоко (X) выделено в кластеры с нулевым или небольшим расстоянием (linkage distance) от аналогичного молока, использованного для обучающей выборки. Идентификацию проводили также методом k -средних (k -means) по расстоянию от центра до

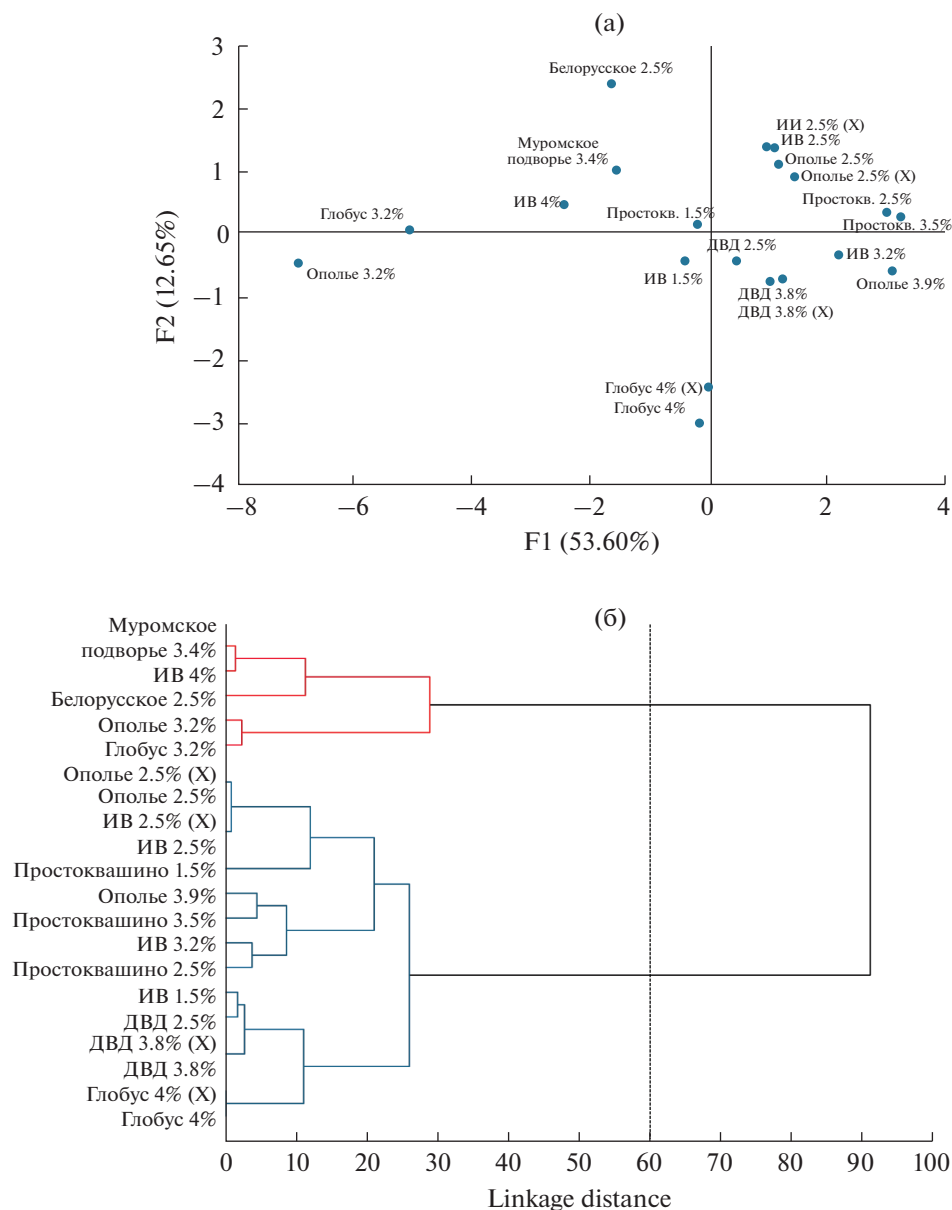


Рис. 5. График PCA для молока разной жирности и разных производителей (а) и соответствующая дендрограмма (б). ИВ – образец молока “Искренне ваш”, ДВД – образец молока “Домик в деревне”.

молока X. В табл. 3 приведены расстояния от центра (“Домик в деревне”, 2.5%) до центральной точки кластера определенного молока. Как видно, расхождения в расстояниях молока X и молока, использованного для обучающей выборки, незначительны, что приводит к 100%-ной идентификации.

Цветометрия флуоресценции индикаторных систем для идентификации и аутентификации молока. Флуоресценция молока в основном формируется за счет жирных кислот и витаминов [16]. Флуоресцентные свойства жирных кислот характеризуются максимумом излучения флуоресценции

при 400 нм (длины волн возбуждения 310, 325, 355 и 370 нм). Определенный вклад в формирование спектра флуоресценции молока вносят и входящие в его состав витамины. Максимумы полос излучения находятся при следующих длинах волн: витамин А – 510 нм (327 нм), витамин Е – 347 нм (295 нм), витамин С – 460 нм (369 нм), витамин В2 – 520 нм (470 нм), витамин В6 – 400 нм, фолиевая кислота – 450 нм (345 нм).

В данном случае тест-устройство состояло из семи индикаторных зон, пропитанных флуоресцирующими реагентами (1, 2, 6, 7, 10–12) и двух

Таблица 3. Идентификация молока методом k-средних

Наименование образца	Расстояние от центра от центра ("Домик в деревне", 2.5%), усл. ед.	Наименование образца	Расстояние от центра от центра ("Домик в деревне", 2.5%), усл. ед.
"Простоквашино" 1.5%	44.939	"Ополье" 3.2%	96.043
"Простоквашино" 2.5%	47.374	"Глобус" 3.2%	71.019
"Простоквашино" 3.5%	57.029	"Искренне ваш" 1.5%	21.779
"Домик в деревне" 2.5%	19.759	"Искренне ваш" 2.5%	33.230
"Домик в деревне" 3.8%	31.493	"Искренне ваш" 2.5% (X)	33.112
"Домик в деревне" 3.8% (X)	32.201	"Искренне ваш" 3.2%	36.931
"Глобус" 4.0%	42.857	"Искренне ваш" 4.0%	47.955
"Глобус" 4.0% (X)	36.030	"Ополье" 2.5%	30.537
"Ополье" 3.9%	73.281	"Ополье" 2.5% (X)	31.633
"Муромское подворье" 3.4%	34.543	"Белорусское" 2.5%	63.688

зон из целлюлозной бумаги и пластины ТСХ (силикагель) (табл. 1, рис. 2).

На рис. 6 представлены данные PCA для образцов молока "ВкусВилл" с различной массовой долей жира (от 1.0 до 4%) и образцов молока различных производителей при одинаковом значении массовой доли жира (3.2%). Как и в случае окрашенных индикаторных систем, применение метода главных компонент для обработки аналитического сигнала собственной флуоресценции молока позволяет дифференцировать представленные образцы по массовой доле жира (рис. 6а) и по производителям (региону происхождения) (рис. 6б).

Фальсификация молока путем разбавления водой или добавления растительных жиров (на-

пример, пальмового масла) четко проявляется на графике PCA и дендрограмме (рис. 7). Разбавление молока "Простоквашино" (массовая доля жира 3.5%) в два раза водопроводной водой приводит к переходу позиции образца в другой квадрант и соответственно в другой кластер (3, 6 на рис. 7). Еще большая дифференциация наблюдается при добавлении в молоко "Светаево" (массовая доля жира 1.5%) пальмового масла до массовой доли жира 2.5% (1, 2 на рис. 7).

Подобные виды фальсификации напрямую влияют на состав исходных образцов натурального происхождения, что приводит к изменению их физико-химических свойств и естественного баланса ингредиентов. Это, в свою очередь, влияет на интенсивность окраски или флуоресценции

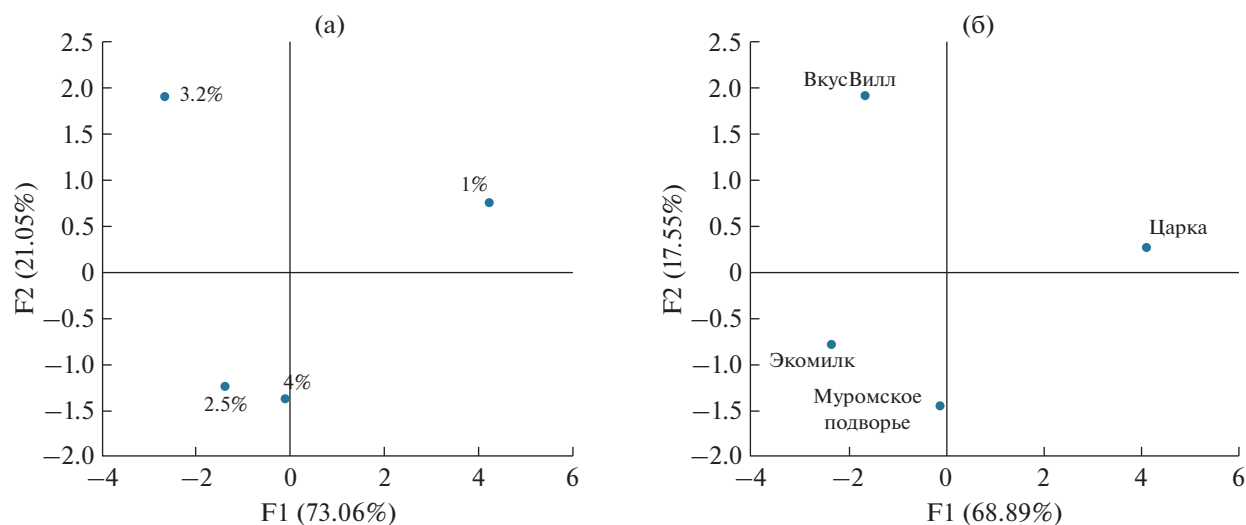


Рис. 6. График PCA для образцов молока "ВкусВилл" с массовой долей жира 1.0–4.0% (а) и для образцов молока с массовой долей жира 3.2% разных производителей (б).

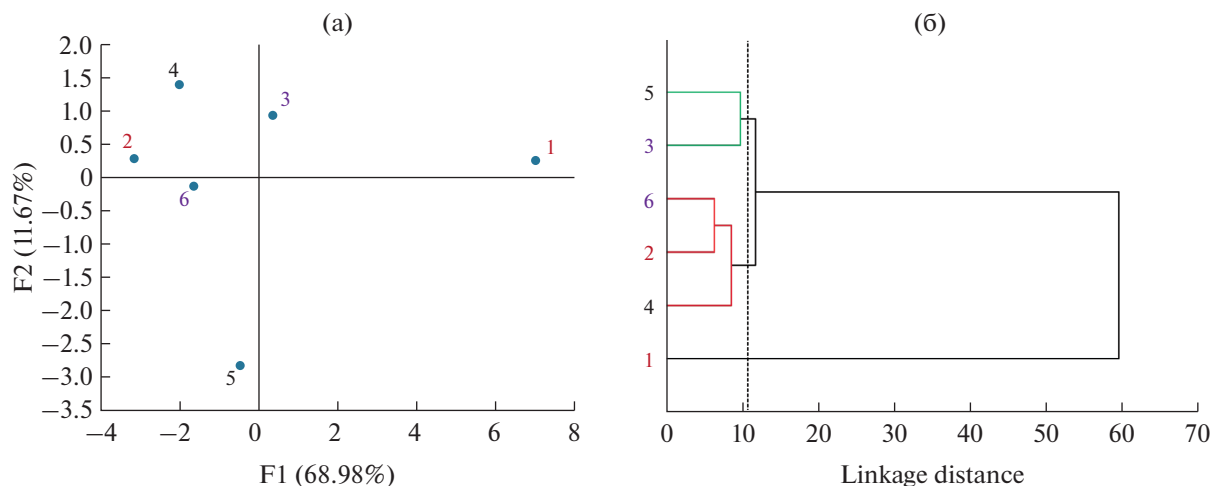


Рис. 7. График PCA и дендрограмма для образцов “Светаево” (м.д.ж. 1.5%) с добавлением пальмового масла до массовой доли жира 2.5% (1); “Светаево” (м.д.ж. 1.5%) (2); “Простоквашино” (м.д.ж. 3.5%) (3); козьего молока (м.д.ж. 5.2%) (4); цельного молока (м.д.ж. 4.1%) (5); “Простоквашино” (м.д.ж. 3.5%), разбавленного водой в два раза (6).

индикаторных зон тест-устройства. Учитывая аддитивный характер аналитического сигнала (A) в выбранной цветиметрической системе RGB и многофакторность исследования (16 и 9 индикаторных зон), смещение позиции на графике или дендрограмме исходного и фальсифицированного образцов будет значительным. Данный факт является несомненным преимуществом, который уменьшает вероятность выдачи ложного результата.

Таким образом, представлен способ идентификации и аутентификации молока с использованием индикаторных тест-устройств, цветиметрического и хемометрического анализов. Сочетание доступных методологий способствует решению нетривиальных задач выявления фальсификации, установления региона производства и видового происхождения продукции посредством комбинации современных, экспрессных и экологических инструментов. Разработаны тест-системы для комплексной оценки физико-химических показателей и собственной флуоресценции молока, которые обеспечивают дифференциацию представленной в работе выборки по аддитивному аналитическому сигналу ($A = R + G + B$). Массив данных обрабатывали методами главных компонент и иерархического кластерного анализа. Установлена возможность выявления фальсификатов молока, полученных разбавлением водой и добавлением растительных жиров, по смещению позиции образцов на графике PCA и дендрограмме относительно опорных значений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Mohanty T.J., Sahoo J.P., Samal K.C. Common milk adulteration in India and rapid detection techniques // Food Sci. Reports. V. 1. № 10. P. 59.
2. Zachar P., Soltes M., Kasarda R., Novotny J., Novikme-cova M., Marcincakova D. Analytical methods for the species identification of milk and milk products // Ml-jekarstvo. 2011. V. 3. № 63. P. 199.
3. Musa M.A., Yang S. Detection and quantification of cow milk adulteration using portable near-infrared spectroscopy combined with chemometrics // African J. Agric. Res. 2020. V. 112. № 2. P. 198.
4. Ullah R., Khan S., Ali H., Bilal M. Potentiality of using front face fluorescence spectroscopy for quantitative analysis of cow milk adulteration in buffalo milk // Spectrochim. Acta A. 2020. V. 225. Article 117518.
5. Karoui R., Baerdemaeker J.D. A review of the analytical methods coupled with chemometric tools for the determination of the quality and identity of dairy products // Food Chem. 2007. V. 102. P. 621.
6. Hosseini E., Ghasemi J.B., Daraei B., Asadi G., Adib N. Near-Infrared spectroscopy and machine learning-based classification and calibration methods in detection and measurement of anionic surfactant in milk // J. Food Compos. Anal. 2021. V. 104. Article 104170.
7. Schipilliti L., Bonaccorsi I., Consolo G., Mondello L. Isotopic and statistical method for the traceability of milk and dairy products // Food Anal. Methods. 2022. <https://doi.org/10.1007/s12161-022-02258-7>
8. Genis D.O., Bilge G., Sezer B., Durna S. Boyaci I.H. Identification of cow, buffalo, goat and ewe milk species in fermented dairy products using synchronous fluorescence spectroscopy // Food Chem. 2019. V. 284. P. 60.
9. El-Garhi H.M., El-Aidie S., Hamdy S.M., Abbas K. Identification of milk types using front face and synchronous scanning fluorescence spectroscopy // Egyptian J. Food Sci. 2020. V. 48. № 1. P. 73.

10. *Kucheryavskiy S., Melenteva A., Bogomolov A.* Determination of fat and total protein content in milk using conventional digital imaging // *Talanta*. 2014. V. 121. P. 144.
11. *Younas M., Maryam A., Khan M., Nawaz A.A., Jaffery S.H.I., Anwar M.N., Ali L.* Parametric analysis of wax printing technique for fabricating microfluidic paper-based analytic devices (μ PAD) for milk adulteration analysis // *Microfluidics and Nanofluidics*. 2019. V. 23. Article 38.
12. *Govindarajalu A.K., Ponnuchamy M., Sivasamy B., Prabhu M.V., Kapoor A.A.* Cellulosic paper-based sensor for detection of starch contamination in milk // *Bull. Mater. Sci.* 2019. V. 42. Article 255.
13. *Silva A.F.S., Rocha F.R.P.* A novel approach to detect milk adulteration based on the determination of protein content by smartphone-based digital image colorimetry // *Food Control*. 2020. V. 115. Article 107299.
14. ГОСТ Р 58144-2018. Вода дистиллированная. Технические условия. М.: Стандартинформ, 2019. 10 с.
15. *Pereira P.C.* Milk nutritional composition and its role in human health // *Nutrition*. 2013. V. 30. P. 619.
16. *Посудин Ю.И.* Люминесцентные методы контроля состава молока // *Изв. вузов. Пищевая технология*. 1993. № 5–6. P. 79.