

DOI: 10.13652/j.spjx.1003.5788.2025.60006

基于拉曼光谱和时空注意力网络的 牛奶掺假检测方法

刘延梅¹ 赵宝峰² 马慧莲³(1. 山西警官职业学院, 山西 太原 030006; 2. 太原理工大学, 山西 太原 030024;
3. 太原工业学院, 山西 太原 030008)

摘要: [目的] 提高牛奶掺假检测的准确率。[方法] 提出一种结合拉曼光谱和时空注意力网络的牛奶掺假检测方法, 通过拉曼光谱提取分子特征, 利用拉曼光谱和时空注意力网络模型提取时序和空间特征, 并通过自注意力机制加权重要信息。[结果] 与现有方法相比, 试验方法的牛奶掺假检测准确率平均提升了 4.5%, 精确度平均提升了约 5.8%, 召回率平均提升了 4.9%, F_1 分数平均提升了 5.4%。[结论] 试验方法对牛奶掺假检测具有高精度、高鲁棒性、实时检测潜力和可推广性, 能够应用于牛奶生产及监管过程中的在线质量监控, 并可拓展至其他食品的掺假检测中。

关键词: 牛奶掺假; 拉曼光谱; 时空注意力网络; 在线检测; 食品安全

Milk adulteration detection method based on Raman spectroscopy and spatiotemporal attention networks

LIU Yanmei¹ ZHAO Baofeng² MA Huilian³(1. Shanxi Police Vocational College, Taiyuan, Shanxi 030006, China; 2. Taiyuan University of Technology,
Taiyuan, Shanxi 030024, China; 3. Taiyuan Institute of Technology, Taiyuan, Shanxi 030008, China)

Abstract: [Objective] To enhance the milk adulteration detection accuracy. [Methods] This study proposes a milk adulteration detection method by integrating Raman spectroscopy with a spatiotemporal attention network (STAN). In the method, Raman spectroscopy is employed to extract molecular features, while STAN is applied to capture both temporal and spatial features, with a self-attention mechanism for further emphasizing critical information. [Results] Compared with existing methods, the experimental method increases milk adulteration detection accuracy by an average of 4.5%, precision by about 5.8%, recall by 4.9%, and F_1 score by 5.4%. [Conclusion] The experimental method achieves high accuracy and robustness in milk adulteration detection, with strong potential for real-time detection and broad applicability. It can be utilized for online quality monitoring in milk production and regulatory processes and extended to adulteration detection in other foods.

Keywords: milk adulteration; Raman spectroscopy; spatiotemporal attention network; online detection; food safety

牛奶是全球范围内最重要的营养来源之一, 其安全性和品质直接关系到消费者的健康与食品产业的发展^[1]。然而, 伴随市场需求的不断增长, 一些不法商家为了降低成本、获取额外利润, 常在牛奶中掺入纯净水、尿素甚至三聚氰胺等物质, 使得牛奶的营养成分大幅下降, 甚至产生毒性危害^[2]。此类掺假行为不仅破坏了牛奶的天然品

基金项目: 山西省教育科学规划课题(编号: ZJ-07130); 山西省教育教学改革与实践研究项目(编号: 202403069)

通信作者: 刘延梅(1970—), 女, 山西警官职业学院副教授, 硕士。E-mail: ngsagh@yeah.net

收稿日期: 2025-01-11 改回日期: 2025-04-08

引用格式: 刘延梅, 赵宝峰, 马慧莲. 基于拉曼光谱和时空注意力网络的牛奶掺假检测方法[J]. 食品与机械, 2025, 41(5): 71-76.

Citation: LIU Yanmei, ZHAO Baofeng, MA Huilian. Milk adulteration detection method based on Raman spectroscopy and spatiotemporal attention networks[J]. Food & Machinery, 2025, 41(5): 71-76.

质,也对消费者健康及行业信誉造成严重威胁。因此,研究高效、准确的牛奶掺假检测技术,对于保障食品安全、维护消费者利益与推动乳制品行业良性发展具有重要意义^[3]。

传统的牛奶品质检测方法多基于化学分析与感官评估,如凯氏定氮法、气相色谱-质谱联用法以及人工品尝等方式。虽然这些方法在精确度上具有一定优势,但往往面临检测周期长、试验操作复杂、检测费用高以及检测标准主观性较强等问题,难以满足大规模、高通量与实时在线监控的需求^[4]。

拉曼光谱技术因其能够无损分析样本并获取分子结构信息而备受关注。在牛奶领域,拉曼光谱能在短时间内检测出其成分变化与分子振动特征,可有效应用于掺假或异常成分监测^[5-6]。然而,牛奶光谱信号往往十分复杂,且易受样品基质效应及环境噪声干扰,仅依赖传统数学模型或简单机器学习方法[如支持向量机(SVM)^[7]、随机森林(RF)^[8]等]难以充分挖掘光谱中的多维信息。与此同时,卷积神经网络(CNN)^[9]、混合混杂深度学习(HBDL)^[10]、自编码器-循环神经网络(AERNN)^[11]、

YOLOv5^[12]等也被应用至食品安全检测领域,但其对拉曼光谱中时空依赖关系与局部关键区域的捕捉能力不足。

研究拟聚焦牛奶掺假检测,提出一种结合拉曼光谱与时空注意力网络(STAN)^[13-14]的新型检测方法,通过CNN提取光谱局部特征,利用长短期记忆网络(LSTM)挖掘光谱局部特征的长短期依赖性,兼顾牛奶光谱的空间与时间信息;在多维度特征融合后,引入自注意力机制;采集3000个牛奶样本数据(包括天然牛奶以及分别掺入水、尿素、三聚氰胺的掺假牛奶),结合小波去噪、归一化与主成分分析等预处理操作,将得到的光谱输入STAN模型,并将牛奶掺假检测效果与CNN、SVM、RF、AERNN等多种方法进行对比;通过准确率、精确度、召回率、F₁分数等多重指标的综合评估,证明试验方法在牛奶掺假检测中的准确性与可靠性,为实现牛奶行业的食品安全风险管控提供依据。

1 牛奶掺假检测方法

牛奶掺假检测流程如图1所示。

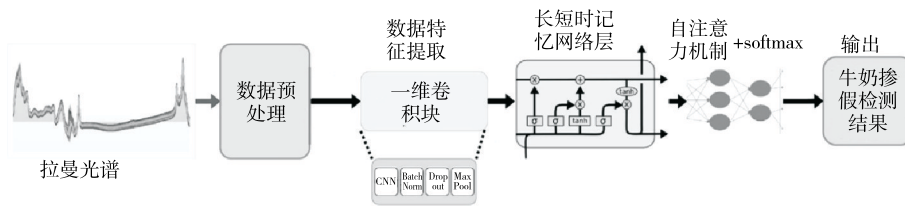


图1 牛奶掺假检测流程

Figure 1 Milk adulteration detection process

1.1 拉曼光谱数据预处理

首先通过拉曼光谱进行数据特征提取。由于拉曼光谱存在噪声和干扰,需要进行一系列数据预处理步骤^[15],主要包括去噪、归一化和标准化^[16-17]。

1.1.1 去噪 使用小波变换(WT)对拉曼光谱数据进行去噪,以减少随机噪声对识别方法性能的影响,并按式(1)进行计算。

$$X_{\text{denoised}} = W(X), \tag{1}$$

式中:

X ——原始光谱数据;

X_{denoised} ——去噪后的光谱数据;

$W(\cdot)$ ——小波变换函数。

1.1.2 归一化 通过最大、最小值归一化将光谱数据压缩至[0,1],消除不同样本的尺度差异,并按式(2)进行计算。

$$X_{\text{norm}} = \frac{X - X_{\text{min}}}{X_{\text{max}} - X_{\text{min}}}, \tag{2}$$

式中:

X_{norm} ——归一化后的光谱数据;

X_{min} ——光谱数据的最小值;

X_{max} ——光谱数据的最大值。

1.2 时空注意力网络(STAN)

STAN模型为试验方法的核心,旨在从光谱数据中提取时空特征,并进行有效分类^[18-19]。

1.2.1 光谱特征提取 首先,将预处理后的光谱数据输入卷积神经网络(CNN),提取深层次的空间特征^[20]。假设拉曼光谱数据为 $X_{\text{input}} \in \mathbb{R}^{T \times F}$,其中 T 为光谱的时间维度(如不同的采样时刻), F 为每个时间点的特征数量(即拉曼光谱的维度)。

1.2.2 时空特征学习 使用长短期记忆网络(LSTM)捕捉光谱数据中的时序特征。结合卷积层提取的空间特

征,LSTM模型可以捕捉数据中潜在的时序依赖关系:

$$h_t = \sigma(W_x x_t + W_h h_{t-1} + b), \quad (3)$$

式中:

h_t ——时序特征;

x_t ——输入光谱数据;

W_x 、 W_h ——权重矩阵;

σ ——激活函数;

b ——偏移量。

1.2.3 时空注意力机制 结合自注意力机制(self-attention),通过计算每个光谱点对整个样本的贡献,选择最具代表性的时空特征进行加权。按式(4)进行注意力加权。

$$a_t = \frac{\exp[S(h_t, Q, K)]}{\sum_{i=1}^T \exp[S(h_i, Q, K)]}, \quad (4)$$

式中:

$S(h_t, Q, K)$ ——时空特征 h_t 与查询向量 Q 、键向量 K 的相似度;

a_t ——加权系数。

1.2.4 分类模块 将经过时空注意力机制加权后的特征传递到全连接层进行分类,使用softmax函数输出各特征的概率分布。

$$P(y_i|X_i) = \frac{\exp(W_i \cdot X_i)}{\sum_{j=1}^C \exp(W_j \cdot X_j)}, \quad (5)$$

式中:

$P(y_i|X_i)$ ——分类概率;

W_i ——类别 i 的权重;

C ——类别数量;

y_i ——样本的真实标签;

X_i ——输入光谱数据。

1.3 训练过程

使用交叉熵损失函数进行模型训练,优化目标为最小化分类误差。训练过程中采用Adam优化器,以提高训练效率。

$$L = - \sum_{i=1}^N \log P(y_i|X_i), \quad (6)$$

式中:

N ——样本数。

1.4 模型评估

通过准确率(Accuracy)、召回率(Recall)、F₁值、召回率等多种评价指标对模型进行评估。

2 测试材料与环境

2.1 样本采集与数据来源

2.1.1 样本类型与采集策略 为了充分涵盖牛奶中常见的掺假情形,并确保结果的可靠性与普适性,采集4种类型的牛奶样本。

(1) 天然牛奶:采自符合国家相关标准的正规乳制品企业,确保样本来源可追溯,且在有效保质期内无任何人工添加物。收集过程中严格控制温度、湿度和运输条件,尽量避免样本在试验前发生变质或二次污染。

(2) 掺水牛奶:按5%~30%的比例在天然牛奶中加入纯净水,以模拟最常见的以次充好行为。

(3) 掺尿素牛奶:将尿素溶液按一定浓度(超过合法范围)加至牛奶中,模拟不法商家借此提高蛋白含量指标的做法。

(4) 掺三聚氰胺牛奶:在牛奶中添加低度、中度浓度的三聚氰胺溶液,用以非法提升检测中“粗蛋白”指标的情形。

2.1.2 样本数量与分组 共采集3000个牛奶样本,其中天然牛奶与各类掺假牛奶数量相当,以保证在训练和测试阶段对不同类别均有充分的样本覆盖。所有样本在实验室内进行编号与标识,并按7:2:1划分为训练集、验证集和测试集。此外,为提高结果的稳健性,对模型进行评估时采用10折交叉验证策略,防止数据分割偶然性导致的过拟合或模型偏差。

2.1.3 光谱仪器与采集参数 使用便携式拉曼光谱仪(785 nm激光)。激光波长785 nm,积分时间0.5 s,光谱分辨率1 cm⁻¹,采用透射模式,保持采样位置、样本温度及环境光照相对一致。每个样本记录1024个光谱数据点,试验温度为(25±2)℃,将适量牛奶(约2 mL)置于拉曼光谱仪样品槽内,待激光与光路稳定后开始采集,所得光谱数据即时存储并记录对应样本编号。

2.2 试验环境

工作站操作系统为Window 10,配置为Intel Core i7-10700K CPU、32 GB RAM、NVIDIA RTX 2080 GPU,深度学习框架使用TensorFlow 2.7,所有试验在Python 3.8环境下进行。

2.3 试验流程

(1) 数据准备:加载数据集,进行归一化处理和预处理。

(2) 模型训练:使用试验提出的时空注意力网络进行训练,训练轮次为100轮,批次大小为32。

(3) 与现有方法进行对比:将试验方法的牛奶掺假检

测效果与传统的卷积神经网络(CNN)、支持向量机(SVM)、随机森林(RF)以及最新方法自编码器一循环神经网络(AERNN)、混合混杂深度学习(HBDL)、YOLOv51进行对比。评估各方法的收敛速度和精度;分析固定学习率和自适应学习率(如学习率衰减策略)对试验方法训练效率和结果的影响。

3 结果与分析

3.1 对比试验结果

不同方法对牛奶掺假检测的准确率、精确度、召回率、 F_1 分数对比如图2所示,不同方法对牛奶掺假检测的训练时间、推理时间和参数量对比见表1。

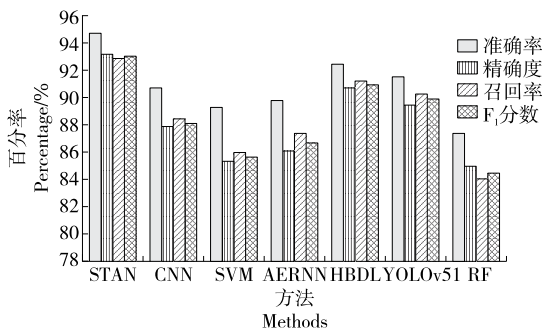


图2 不同方法对牛奶掺假检测的准确率、精确度、召回率、 F_1 分数对比

Figure 2 Accuracy, precision, recall, and F_1 score of different milk adulteration detection methods

表1 不同方法对牛奶掺假检测的训练时间、推理时间和参数量对比

Table 1 Training time, reasoning time, and parameter numbers of different milk adulteration detection methods

方法	训练时间/h	推理时间/s	参数量/M
STAN	8.0	0.003	10.0
CNN	10.0	0.003	11.0
SVM	0.5	0.002	0.1
AERNN	8.0	0.004	6.0
HBDL	15.0	0.006	12.0
YOLOv51	14.0	0.008	20.0
RF	0.2	0.001	0.2

由图2可知,STAN在准确率、精确度、召回率和 F_1 分数方面均优于其他对比方法。CNN的整体指标较高但在召回率上稍显不足,SVM等传统机器学习方法在捕捉时序特征方面存在局限,AERNN和HBDL在时序数据建模上有所提升却仍不及STAN,YOLOv51在图像领域表现

强但对时序信息的处理相对不足,RF虽计算效率高但无法充分利用数据的时空信息。

由表1可知,STAN在保证高精度的前提下仍能保持相对较短的训练时间和较快的推理速度,其模型复杂度适中;CNN和HBDL的参数量更高,推理速度相对较慢;SVM与RF的训练或推理速度较快,但难以捕捉光谱数据中隐含的复杂时空特征,导致检测精度偏低;AERNN与HBDL针对时序数据有所改进,但在长序列或强时序依赖的任务上仍难与STAN相比;YOLOv51在图像识别中表现优异,但对牛奶掺假这类光谱与时序结合的场景支持有限。

综合图2与表1可知,STAN在准确率、精确度、召回率及 F_1 分数等指标上均表现突出,在时空特征建模方面优于CNN、AERNN、HBDL等方法;与SVM、RF等传统方法相比,STAN可更好地捕捉数据中复杂的时序模式;YOLOv51在计算机视觉任务上具有明显优势,但对时序数据的处理能力不足。整体而言,STAN在大规模时序/光谱数据的建模与实时监测场景中更具适用性与拓展性。

3.2 不同优化算法、学习率策略对STAN性能的影响

不同优化算法对试验方法训练效果的影响见表2,不同学习率调整策略对试验方法训练效果的影响如图3所示。

表2 不同优化算法对试验方法训练效果的影响

Table 2 Influences of different optimization algorithms on the training effect of the experimental method

优化算法	准确率/%	F_1 分数/%	训练时间/h
Adam	94.6	93.0	8.0
SGD	93.1	92.1	9.5
Adagrad	93.4	92.3	9.0

由表2可知,使用Adam优化算法的STAN在准确率和 F_1 分数上最高,且收敛速度更快;使用SGD时模型表现稳定,但训练时间较长且精度略低;使用Adagrad时整体精度与Adam的相近,但收敛速度稍慢。

由图3可知,采用学习率衰减策略可进一步提升STAN的检测性能,相较于固定学习率,准确率和 F_1 分数均约提高0.5%,但训练时间略有增加。整体来看,学习率衰减策略带来的精度提升对于实际牛奶掺假检测而言更具价值。

结合表2与图3可知,优化算法和学习率策略对STAN的性能影响较为显著。Adam优化器在效率与精度之间取得最佳平衡;衰减式学习率稍微延长了训练时间,

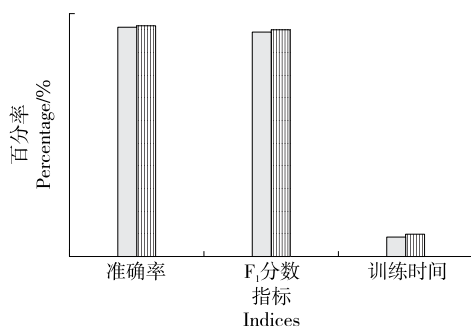


图3 不同学习率调整策略对试验方法训练效果的影响

Figure 3 Influences of different learning rate adjustment strategies on the training effect of the experimental method

但在牛奶掺假检测精度和稳定性上均有提升,适合对实时性要求不极端的场景。

综上,STAN在准确率、精确度、召回率、 F_1 分数、模型复杂度和推理速度等方面表现较好;结合高效优化算法和合理的学习率策略,可进一步提升其检测性能与稳定性。

4 结论

基于拉曼光谱和时空注意力网络提出了一种全新的牛奶掺假检测方法,并验证了其在准确率、精确度、召回率和 F_1 分数上的优越性。与现有的卷积神经网络、支持向量机、自编码器-循环神经网络方法相比,时空注意力网络方法显著提升了牛奶掺假检测的性能,尤其是在时序特征的捕捉和长时间依赖的学习上表现出了明显的优势。与现有方法相比,试验方法的准确率提升了2.2%~7.3%,精确度提升了2.5%~8.2%,召回率提升了1.6%~8.7%, F_1 分数提升了2.5%~8.1%。定量结果表明,试验方法不仅在总体检测准确性上占据优势,还对牛奶掺假的检测精度、敏感性等方面具有更强的能力。后续可进一步研究更加精细的注意力机制,尤其是在长时间跨度的依赖关系上进行优化,以进一步提升模型的性能;同时可将该方法应用于牛奶的实时掺假检测中。

参考文献

[1] 蒋莉莉,王悦欣. 乳制品质量管理体系的优化研究[J]. 中国检验检疫, 2024, 32(5): 141-144.
JIANG L L, WANG Y X. Research on optimization of quality management system for dairy products[J]. China Inspection Body & Laboratory, 2024, 32(5): 141-144.
[2] 张振宇,崔海燕,王勇. 动物源性食品中酰胺醇类药物残留检测研究进展[J]. 食品与机械, 2024, 40(2): 233-239.

ZHANG Z Y, CUI H Y, WANG Y. Research progress in the detection of amide alcohol drugs in animal-origin foods[J]. Food & Machinery, 2024, 40(2): 233-239.
[3] 关佳琪,张方,杜宇萱,等. 基于模糊认知图的乳制品质量安全风险形成机理研究[J]. 中国乳业, 2024(3): 71-76, 82.
GUAN J Q, ZHANG F, DU Y X, et al. Research on the formation mechanism of dairy product quality and safety risks based on fuzzy cognitive map[J]. China Dairy, 2024(3): 71-76, 82.
[4] 王留留,孙方涛. 表面增强拉曼光谱技术在食品安全检测领域中的应用[J]. 食品与机械, 2024, 40(1): 212-218.
WANG L L, SUN F T. Application of surface-enhanced Raman spectroscopy in food safety detection[J]. Food & Machinery, 2024, 40(1): 212-218.
[5] XIA K, WU T X, ZHANG S W, et al. A new method for high-precision estimation of soil organic matter using two-dimensional correlation spectroscopy: to support collaborative use of global open soil spectral libraries[J]. Geoderma, 2024, 445: 116877.
[6] 陈燕雨. 高光谱成像技术在食品掺假检测中的应用研究综述[J]. 食品安全导刊, 2025(3): 144-147.
CHEN Y Y. Review of the application of hyperspectral imaging technology in food adulteration detection[J]. China Food Safety Magazine, 2025(3): 144-147.
[7] 张微微,璩怡,王强,等. 同步荧光光谱技术结合支持向量机对掺杂牛奶智能判别研究[J]. 光谱学与光谱分析, 2024, 44(9): 2 428-2 433.
ZHANG W W, QU Y, WANG Q, et al. Research on the synchronous fluorescence spectroscopy combined with support vector machines for intelligent discrimination of milk adulteration[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2024, 44(9): 2 428-2 433.
[8] 詹沙磊,江向东,叶永. 基于AI-HI融合的突发食品污染事件风险管理[J/OL]. 系统工程理论与实践. (2024-05-16) [2025-05-05]. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2267.n.20240515.1621.033.html>.
ZHAN S L, JIANG X D, YE Y. Risk management of food contamination events based on AI-HI integration[J/OL]. Systems Engineering-Theory & Practice. (2024-05-16) [2025-05-05]. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2267.n.20240515.1621.033.html>.
[9] 刘洋硕,燕芳,李文文,等. 基于卷积神经网络的三聚氰胺太赫兹光谱定量分析[J]. 食品与机械, 2024, 40(11): 41-46.
LIU Y S, YAN F, LI W W, et al. Quantitative analysis of melamine in terahertz spectra based on convolutional neural network[J]. Food & Machinery, 2024, 40(11): 41-46.

- [10] MHAPSEKAR R U, O'SHEA N, DAVY S, et al. Hybrid blended deep learning approach for milk quality analysis[J]. IEEE Transactions on Emerging Topics in Computational Intelligence, 2024, 8(3): 2 253-2 268.
- [11] ZHONG J, SUN L, ZUO E G, et al. An ensemble of AHP-EW and AE-RNN for food safety risk early warning[J]. PLoS One, 2023, 18(4): e0284144.
- [12] MANIBABU V, GOMATHY M. Data quality management and risk assessment of dairy farming with feed behaviour analysis using big data analytics with YOLOv51 algorithm[J/OL]. Research Square. (2024-06-18) [2025-01-22]. <https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-4519712/v1>.
- [13] 杨国亮, 余华声, 夏金龙, 等. 融合自注意力和时空卷积网络的空气质量预测方法[J]. 安全与环境学报, 2023, 23(12): 4 580-4 589.
- YANG G L, YU H S, XIA J L, et al. Air quality prediction methods based on self-attention and spatiotemporal convolutional network[J]. Journal of Safety and Environment, 2023, 23(12): 4 580-4 589.
- [14] 张建伟, 陈旭, 王叔洋, 等. 时空图神经网络在物联网中的应用综述[J]. 计算机工程与应用, 2025, 61(5): 43-54.
- ZHANG J W, CHEN X, WANG S Y, et al. Review of application of spatiotemporal graph neural networks in internet of things[J]. Computer Engineering and Applications, 2025, 61(5): 43-54.
- [15] 张焕俊, 戴臻, 费洪晓. 基于一维卷积神经网络结合便携式拉曼光谱特级初榨橄榄油掺假定量分析[J]. 光散射学报, 2024, 36(4): 436-444.
- ZHANG H J, DAI Z, FEI H X. Quantitative analysis of adulteration in extra virgin olive oil based on one-dimensional convolutional neural network portable Raman spectroscopy[J]. The Journal of Light Scattering, 2024, 36(4): 436-444.
- [16] 张雅茹, 程碧瑶, 杨博, 等. 基于机器学习的硝酸拉曼光谱定量分析方法[J]. 探测与控制学报, 2024, 46(4): 63-68.
- ZHANG Y R, CHENG B Y, YANG B, et al. Quantitative analysis of nitric acid using Raman spectroscopy based on machine learning[J]. Journal of Detection & Control, 2024, 46(4): 63-68.
- [17] 刘庆珍, 张溢, 鄢仁武. 基于拉曼光谱数据处理和谱峰识别的变压器油绝缘老化研究[J]. 电力系统保护与控制, 2024, 52(8): 158-166.
- LIU Q Z, ZHANG Y, YAN R W. Transformer oil insulation aging based on Raman spectral data processing and peak identification[J]. Power System Protection and Control, 2024, 52(8): 158-166.
- [18] 范航舟, 梅红岩, 赵勤, 等. 融合双注意力机制的GNN多维时间序列预测[J]. 智能系统学报, 2024, 19(5): 1 277-1 286.
- FAN H D, MEI H Y, ZHAO Q, et al. Multivariate time series forecasting with a graph neural network and dual attention mechanism[J]. CAAI Transactions on Intelligent Systems, 2024, 19(5): 1 277-1 286.
- [19] 向晓倩, 陈璟. 基于双重注意力时空图卷积网络的行人轨迹预测[J]. 浙江大学学报(工学版), 2024, 58(12): 2 586-2 595.
- XIANG X Q, CHEN J. Pedestrian trajectory prediction based on dual-attention spatial-temporal graph convolutional network [J]. Journal of Zhejiang University (Engineering Science), 2024, 58(12): 2 586-2 595.
- [20] 肖琳, 陈洪超, 邹复民. 基于多头注意力时空图神经网络的交通流预测[J]. 重庆交通大学学报(自然科学版), 2024, 43(9): 78-85.
- XIAO L, CHEN H C, ZOU F M. Traffic flow prediction based on multi-head attention spatiotemporal graph neural network [J]. Journal of Chongqing Jiaotong University (Natural Science), 2024, 43(9): 78-85.