doi:10.3788/gzxb20184708.0847015

共识模型用于激光诱导击穿光谱检测 泥蚶重金属铜的含量

郭珍珠,陈孝敬,袁雷明,陈熙,朱德华,杨硕

(温州大学 数理与电子信息工程学院,浙江 温州 325035)

摘 要:为快速检测贝类重金属的污染,采用激光诱导击穿光谱(LIBS)结合多模型共识策略来预测泥 蚶重金属铜的含量.分析铜元素的 LIBS 特征谱线,提取铜元素的特征峰强度、面积、峰强比等变量,分别 构建多元线性回归模型,以及基于铜特征光谱区域信息构建偏最小二乘模型.在这些校正的成员模型预 测残差向量间,通过拉格朗日乘数法优化各成员模型的线性组合,使共识模型的均方误差和最小,从而 获得各成员模型的最优权系数.经外部预测集的验证,共识模型的预测结果优于任一成员模型,预测均 方根误差为 20.641 mg/kg,相关系数为 0.835,且预测偏差仅为-0.473,表明 LIBS 技术结合共识模型能 用于重金属的定量检测.

关键词:激光诱导击穿光谱;共识模型;水产品;重金属;定量检测 **中图分类号:**O433.4 **文献标识码:**A **文章编号:**1004-4213(2018)08-0847015-6

Consensus Modeling for Qualitative Analysis of Heavy Metal Cu in *Tegillarca Granosa* by LIBS Approach

GUO Zhen-zhu, CHEN Xiao-jing, YUAN Lei-ming, CHEN Xi, ZHU De-hua, YANG Shuo (College of Mathematics, Physics and Electronic Information Engineering, Wenzhou University, Wenzhou, Zhejiang 325035, China)

Abstract: In order to rapidly detect the heavy metal pollution in shellfish, the contents of heavy metal copper in *tegillarca granosa* were predicted by Laser-induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) combined with the consensus strategy of mulit-models. By analysis of LIBS copper characteristic spectral lines, the characteristics of copper peak intensity, area, peak ratio of copper's peaks, were extracted, and multivariate linear regression models were developed respectively. Besides, partial least regression model was calibrated based on copper characteristic spectra region. Among the residual vectors of these calibration member models, the Lagrange multiplier method was used to optimize the linear combination between these member models, aiming at reducing the correlation between member models and minimizing the mean squared error of the consensus model. Through external validation from the prediction set, the consensus model was performed better than that of any member models, with the root mean square prediction error of 20.641 mg/kg, as well as the correlation coefficient of 0.835, and the prediction deviation was only -0.473. Results show that the LIBS technology combined with the consensus model can be used for the quantitative detection of heavy metals of aquatic products.

Key words: Laser induced breakdown spectroscopy; Consensus model; Aquatic product; Heavy metals; Quantitative detection

OCIS Codes: 300.6365; 070.4790; 300.2140

基金项目:国家自然科学基金(Nos.61705168, 31571920),温州市公益计划项目(No.S20170003)资助

第一作者:郭珍珠(1992-),女,硕士研究生,主要研究方向为水产品重金属的快速检测. Email:1606002711@qq.com

导 师:陈孝敬(1978-),男,教授,博士,主要研究方向为光电传感及其智能应用.Email:chenxj@wzu.edu.cn

通讯作者:袁雷明(1987-),男,讲师,博士,主要研究方向为波谱解析及多变量数据建模.Email;yuan@wzu.edu.cn 收稿日期·2018-06-30:录用日期·2018-08-14

0 引言

温州地处东南沿海,具有丰富的海洋资源,其中贝类富含各种营养物质,及其鲜美口味,深受人们喜爱. 我国贝类养殖产量居世界之首^[1],贝类产品已经成为我国重要的出口产品,远销日本、韩国、欧美等国家和地 区.贝类的滩涂养殖及非选择性的滤食习性,相比其他水产品有着更强的重金属富集能力,且具有隐蔽性、长 期性、累积性等特性,这凸显了贝类在食品安全上的风险地位.重金属污染是各种环境问题中比较突出的问 题之一,改革开放后城镇化、工业化进程的加快,使得大量有害重金属排入水体.重金属污染不仅毒害水产生 物,还通过食物链浓缩进入人体,引起中毒反应^[2-3].因此,开展对贝类重金属污染信息的检测,不仅可以评估 贝类的品质安全性,还可完善贝类养殖监督管理制度.

目前重金属的常规检测方法,主要包括物理化学检测法(原子光谱法、质谱法、电化学法)和生物检测法 (生物传感器法、酶联免疫吸附法)^[4-6].这些方法检测灵敏度高,检测结果精确,但检测成本高、操作过程复 杂、耗时费力,且仅能抽样检测,无法实现大规模样品信息的快速获取.近年兴起的光谱分析技术,在食品安 全领域得到了飞速发展,如中红外光谱^[7-8]、拉曼光谱^[9]用于水产品重金属污染的检测,近红外光谱用于土 壤^[10]、柑橘叶片^[11]中的重金属检测.但这些分析技术作为一种间接检测方法,即受重金属诱导有机体组分及 分子结构的变化,这些变化反映在光谱的吸光度或指纹峰位置的变化^[8,12],从而实现重金属污染信息的快速 检测.

激光诱导击穿光谱(Laser-induced Breakdown Spectroscopy, LIBS)是一种基于物质表面被激光烧蚀 激发出等离子体、发生能量跃迁从而被光谱仪器探测的一种直接分析技术,可以鉴别气体、液体、固体等多相 物质的元素组成^[13].鉴于 LIBS 的激发谱线对应着特定元素,可以用于样品的未知元素或组分的定性或半定 量检测,如利用元素特征谱线检测木片农残^[14]及土壤中的镉^[15],优化建模方法或优选变量来提高重金属检 测精度^[16].但这类方法仅依据单一数据集或单一模型,有限地改善模型精度,却忽略了其他数据特征或模型 信息,如 LIBS 光谱的特征谱线峰面积、峰强度等,均能为重金属的定量检测提供一定的信息.

为此,本文采用共识模型(Consensus model),在多个成员模型之间构建为最优的线性组合,提高组合模型的精度,从而达成共识^[17-18].相比于单一成员模型,共识模型能够融合其他数据信息、模型信息,能得到更可靠的预测结果.针对受重金属铜人工饲养污染的贝类泥蚶,提取 LIBS 光谱铜元素的谱峰等参数,分别建立 多变量回归模型,并在这些成员模型之间寻找优化组合,构建共识模型.

1 材料与方法

1.1 试验样本收集

贝类泥蚶(Tegillarca granosa),于2016年5月份从浙江省温州水产养殖研究所连续收集1000个活体,

由专技人员饲养于模拟近海贝类生长环境的小型水 族箱.分析纯 CuSO₄ • 5H₂O 作为污染泥蚶的重金 属离子,配置不同浓度的铜离子溶液于各个水族箱. 收集相同时间、同一水族箱的活体泥蚶(一般为 8~10个),去壳、取肉,作为一样本放置密封袋冷冻 保藏.最大饲养时间为 15 天,直到所有活体泥蚶被 收集.将密封袋内的样本进行冷冻干燥、磨粉、压片, 共计得到有效压片样本 103 个,用于后续的 LIBS 的采集及标准铜浓度的检测.

1.2 光谱采集

采用如图 1 所示的 LIBS 系统采集光谱数据, 主要流程为:1)Q-switched Nd:YAG 激光器(Nano SG150-10, Litron Ltd., UK)产生一束激光经 45° 斜置棱镜反射到一分光镜上;2)一部分激光(约



10%光能)被能量计捕获,用于调节脉冲能量;剩余部分(约90%光能)经聚光镜投射到二维移动平台上的片状样本;3)激光烧蚀样本表面测试点,激发出等离子体;在其衰退过程中产生连续的辐射光谱,经光纤传导,由光谱仪器(Aryelle150, LTB, Lasertechnik Berlin Ltd., Germany)将光信号转变为数字信号,显示在电脑上.其中,数字延迟器(DG645, Stanford Research Systems Inc., USA)用于控制激光器与光谱仪之间的工作延迟时间.

经过初期探索,将脉冲能量调节为1064 nm@150 mJ,延迟时间为6 ns,脉冲重复频率为5 Hz.于压片的不同位置采集5次,取平均值作为该样本的 LIBS 数据,表示为32071×2 的矩阵存储形式,第一列为波长(范围200~800 nm),第二列为光谱信号强度.

1.3 重金属铜浓度的标准方法测定及样本分组

采用电感耦合等离子体质谱(Nexion 300X ICP-MS, PerkinElmer Inc., USA)检测压片样本的 重金属铜浓度,分布范围为 5.46~162.69 mg/kg.通 常情况下水体铜浓度越大、饲养天数越多,对应着的 泥蚶体内富集的铜含量越高.为使训练集、预测集的 铜浓度分布一致,将样本铜浓度排序后按 2:1 的比 例划分,其中铜浓度的最大值、最小值样本归为训练 集,而非采用文献^[16]的 Duplex 或 Kenston 算法划 分(易造成样本的不均衡),如频数图 2 所示,两个子 集的铜浓度平均值趋于一致.

1.4 共识回归模型的构建方法

所谓共识模型 f(x),并不是一种基于特征空间映射的建模方法,而是融合多个成员模型、按特定





共识规则分配权系数 c_i,从而达成共识,其流程如图 3 所示.首先,成员模型 f_i(x_i)是基于训练集样本的各特征集{x₁,…,x_i}分别构建而成;其次是融合各成员模型(如式 1),根据权系数 c_i来计算各成员模型预测值与真实值之间残差的平方和(Mean Root Errors, MSE)(如式(2));最后,设定约束条件,通过拉格朗日乘数法求解式(3),寻找最优解 c_i使 MSE 最小,此时共识模型的预测效果最佳^[17].



图 3 共识模型的构建流程图

Fig.3 Flowing construction of consensus model

$$f(x) = \sum_{i=1}^{n} c_i \cdot f_i(x_i)$$
⁽¹⁾

$$MSE = \sum_{i=1}^{n} \left[y - \sum_{i} c_{i} \cdot f_{i}(x_{i}) \right]^{2} / n$$
(2)

$$\begin{cases} \operatorname{ARG} \min \langle \sum_{i=1}^{n} \left[y - \sum_{i} c_{i} \cdot f_{i}(x_{i}) \right]^{2} / n \rangle \\ \begin{cases} 0 \leqslant c_{i} \leqslant 1 \\ \\ \sum c_{i} = 1 \\ f_{i}(x) = \{ f_{1}(x_{1}), \cdots f_{i}(x_{i}), \cdots f_{n}(x_{n}) \} \\ 0847015 - 3 \end{cases}$$
(3)

2 结果与分析

2.1 LIBS 光谱曲线分析

水产品泥蚶属于一个复杂的有机体,包含 C、 H、O、S 等有机组分元素,以及微量元素 Al、Cu、Fe、 K、Mg、Na、Ca、Si、Zn 等.每种元素包含多个 LIBS 激发谱线,如 Cu I 在波长 324.75、327.39、465.11、 510.55、515.32、521.82、578.21 nm 等处均有脉冲峰. 查阅原子光谱数据库,在 200~800 nm 光谱区间存 在泥蚶的上千个元素谱线.由于谱线各种展宽因素 及有机体的基体效应,导致特定元素的谱线强度及 位置变化,影响 LIBS 定性定量分析^[16].本文主要检 测铜元素的含量,根据文献[19]分析,Cu I 相比于 Cu II、Cu II 具有更高的光谱跃迁能量,因此截取 311~ 332 nm 之间的 LIBS 光谱(图 4),主要包含 Cu I 324.75、327.39 nm 特征谱线,用于分析泥蚶重 金属铜元素的污染量.





2.2 基于铜脉冲峰强度及面积的回归模型

采用 FindPeak 程序包,识别截取区域的 LIBS 光谱各个脉冲峰.提取 Cu I 324.75 nm、327.39 nm 处的特 征谱线强度 (x_1,x_2) 和面积 (x_3,x_4) ;若未识别出 Cu I 峰,则令 $x_i = 0$.铜特征峰强度比 $x_5 = x_2/x_1$.探索各 参数 x_i 与铜含量之间的多元线性回归(Multiple Linear Regression, MLR)关系,如表 1 所示.从表中可见, 基于 Cu I 324.75 nm 峰强度的拟合效果好于 Cu I 327.39 nm,而联合二者时的 MLR 模型最佳,此时校正均 方根误差(Root Mean Squared Errors of Calibration, RMSEC)为 19.948.而基于铜脉冲峰面积拟合的 MLR 模型,虽然在 x_3,x_4 共同拟合时模型具有最高的校正相关系数(Correlation coefficient of calibration, R_c), 但严重偏离了样本的真实值,均方根误差高达 44.228;而采用峰强度比,拟合效果最差,相关系数不足 0.4.

Table 1 Stats of regression model based on the intensity and area of LIBS Cu pluses								
Modeling variables/Intensity		Linear models	$R_{\rm c}$	RMSEC				
Peak's intensity	<i>x</i> ¹ Cu I 324.75 nm	$y = -5.99 + 13.486 \cdot x_1$	0.845	20.538				
	<i>x</i> ₂ Cu I 327.39 nm	$y = 22.45 + 19.822 \cdot x_2$	0.767	24.619				
	x_1, x_2	$y = -4.289 + 10.744 \cdot x_1 + 5.321 \cdot x_2$	0.852	20.07				
Peak's area	$x_{\scriptscriptstyle 3}$ Cu I 324.75 nm	$y = 5.425 + 3.816 \cdot x_3$	0.821	21.942				
	$x_{\rm 4}$ Cu I 327.39 nm	$y = 29.221 + 5.748 \cdot x_4$	0.786	23.736				
	x_3 , x_4	$y = 9.271 + 2.578 \cdot x_3 + 2.257 \cdot x_4$	0.834	44.228				
Ratio of peak's intensity	$x_5 = x_2/x_1$	$y = 47.265 + 83.686 \cdot x_5$	0.395	35.271				

表 1 基于 LIBS 铜脉冲峰强度及面积的回归模型参数 ble 1 Stats of regression model based on the intensity and area of LIBS Cu plu

经过上述比较分析,可以发现,无论是基于 Cu I 特征谱线的峰面积或峰强度,在 324.75 nm 构建铜含量的 MLR 模型性能均优于 327.39 nm 处,说明在 324.75 nm 处的铜特征谱线更能反映铜含量信息,这与 Garcimuño 的研究一致^[19].

2.3 基于区域光谱的 PLS 模型

偏最小二乘法(Partial Least Square, PLS)是一种空间映射的数据投影方法,它能同时提取自变量(即 光谱信息)与因变量(即组分浓度)的主分信息,并通过内部交互验证来避免模型的过拟合与欠拟合,通常以 最小的交互验证均方根误差(Root Mean Squared Errors of Cross Validation, RMSECV)最小为原则挑选最 佳主分因子^[20].针对裁剪区域的 311~332 nm 波段光谱,共计 1519 个光谱点,采用 iToolbox 工具箱,以训练 集内部 5 等份的交叉验证法构建 PLS 定量模型,当采用 3 个主分因子时,PLS 模型具有最小的 RMSECV 为 19.068,交互相关系数为 0.896.由此可见,基于全变量构建的 PLS 模型,优于上述 MLR 模型.

2.4 共识模型的构建

根据 1.4 节介绍的共识模型构建方法,选用四个基于不同特征集的成员模型,分别为:基于 Cu I 双峰强 度信号的 MLR 模型 f_1 、基于 Cu I 324.75 nm 峰面积的 MLR 模型 f_2 、基于峰比值的 MLR 模型 f_3 、基于全 光谱区域的 PLS 模型 f_4 .通过式(3)的计算,四个成员模型的权系数分别为 0.3465、0、0、0.6535.此时共识模 型对训练集的 RMSECV 为 18.644,相关系数为 0.889,优于各成员模型.

2.5 模型的预测与分析

表 2 为各成员模型及共识模型对 34 个外来样本进行预测.可以发现,共识模型的预测相关系数 (Correlation Coefficient of Prediction, R_p)最高,同时对应着最小的预测均方根误差(Root Mean Squared Errors of Prediction, RMSEP),预测性能优于任一成员模型.对于各成员模型,平均预测偏差(Bias)绝对值 均大于 1,而共识模型融合了各成员模型,使得预测偏差仅为-0.473,图 5 为共识模型对训练集和预测的预 测散点图,样本均匀分布在 X = Y 斜线两侧,但少部分样本的预测偏差达到了 50 mg/Kg.

表 2	基于不同特征集的各定量模型的预测比较
Comparison	s of predictions of qualitative models based on different char

Tuste 2 Comparisons of predictions of quantum remotes susce on affectent char						
Modeling variables	Model's sign	$R_{ m p}$	RMSEP	Bias		
Intensity x_1, x_2	MLR f_1	0.827	21.816	-3.306		
Area x_3	MLR f_2	0.806	23.086	-1.115		
Ratio x 5	MLR f_3	0.373	34.9	1.123		
Full spectra	PLS f_4	0.816	21.758	1.029		
Consensus	$f_0 = 0.346 5 \times f_1 + 0.653 5 \times f_4$	0.835	20.641	-0.473		



Table 2

从构成的成员模型来看,共识模型舍弃了成员 模型2与3,是由于这两个成员模型具有较大的校 正误差才设置其权系数为0吗?推导式(3),等价于

MSE = $\sum_{i=1}^{n} c_i^2 \cdot e_i^2 + 2 \sum_{i=1}^{n} \sum_{j>i}^{n} c_i \cdot c_j \cdot r_{ij} \cdot e_i \cdot e_j$ (其 中 r_{ij} 为残差向量 $e_i \cdot e_j$ 的相关性),需考虑成员模型 残差 向量 间 的 相关性,这是不同于叠加模型 (stacked model)的构建策略^[18,21].经计算,成员模型 2 与成员模型 1、4 之间的偏差相关性分别高达 0.916、0.844,这使得具有高相关性的成员模型 2 被 抑制;成员模型 3 虽与其他成员模型之间的相关性 较低,但其较差的预测性能在共识策略中也被抑制. 这也表明,共识模型求解权系数的优化过程中,成员

模型具有好的预测性能且与其他模型的相关性较低,更容易得到绝对值大的权系数;同样,成员模型的权系数绝对值越大,成员模型的特征集筛选、建模方法越具有可靠性,从而提升了共识模型的预测精度、稳定性.

3 结论

本文以激光诱导击穿光谱来定量分析贝类泥蚶重金属铜的含量.结合 LIBS 的铜特征谱线,分别构建基 于铜谱线不同特征信息的成员模型,通过线性组合优化的成员模型之间的权系数,使共识模型的均方根误差 最小.结果表明,基于不同光谱信息或模型信息构建的共识模型预测性能优于任一成员模型,为 LIBS 光谱数 据定量分析提供了一种新的建模技术.

参考文献

- [1] 中华人民共和国统计局[R]. www.data.stats.gov.cn.
- [2] NAJI A, KHAN F R, HASHEM S H. Potential human health risk assessment of trace metals via the consumption of marine fish in Persian Gulf[J]. Marine Pollution Bulletin, 2016, 109(1): 667-671.
- [3] ADEL M, OLIVERI C G, DADAR M, et al. Heavy metal concentrations in edible muscle of whitecheek shark,

Carcharhinus dussumieri (elasmobranchii, chondrichthyes) from the Persian Gulf: A food safety issue[J]. Food & Chemical Toxicology, 2016, 97: 135-140.

- [4] ARDUINI F, PALLESCHI G. Screening and confirmatory methods for the detection of heavy metals in foods persistent organic[C]. Pollutants and Toxic Metals in Foods, Woodhead Publishing Series in Food Science Technology and Nutrition, Cambridge, 2013.
- [5] CUI Lin, WU Jie, JU Huang-xian. Electrochemical sensing of heavy metal ions with inorganic, organic and biomaterials[J]. Biosensors & Bioelectronics, 2015, 63(63): 276-286.
- [6] MOHAMMAD B, TAPEH N, MAHYARI M, et al. Monitoring of trace amounts of heavy metals in different food and water samples by flame atomic absorption spectrophotometer after preconcentration by amine-functionalized graphene nanosheet[J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2014, 186(11): 7245-7257.
- [7] CHEN X, YUAN L, CHEN X, et al. A strategy for rapid identification of healthy Tegillarca granosa from among those contaminated with unspecified heavy metals using infrared spectroscopy [J]. Analytical Methods, 2017, 9(30): 4447-4454.
- [8] CHEN X, LIU K, CAI J, et al. Identification of heavy metal-contaminated *Tegillarca granosa* using infrared spectroscopy [J]. Analytical Methods, 2015, 7(5): 2172-81.
- [9] CHEN X, WU D, GUAN X, et al. Feasibility of infrared and Raman spectroscopies for identification of juvenile black seabream (sparus macrocephalus) intoxicated by heavy metals[J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2013, 61(50): 12429-12435.
- [10] SHI T, CHEN Y, LIU Y, *et al.* Visible and near-infrared reflectance spectroscopy-an alternative for monitoring soil contamination by heavy metals[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2014, **265**(2): 166-176.
- [11] SHI Rong-jie, PAN Xian-zhang, WANG Chang-kun, et al. Prediction of cadmium content in the leaves of navel orange in heavy metal contaminated soil using VIS-NIR reflectance spectroscopy[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2015, 35(11): 3140-3145.
 石荣杰,潘贤章,王昌昆,等. 污染土壤对脐橙叶片镉含量影响的光谱预测[J]. 光谱学与光谱分析,2015,35(11): 3140-
- [12] OLUMEGBON I A, OLOYEDE A, AFARA I O. Near-infrared (NIR) spectroscopic evaluation of articular cartilage: a review of current and future trends[J]. *Applied Spectroscopy Reviews*, 2016, **52**(6): 1-19.

3145.

- [13] GALBACS G. A critical review of recent progress in analytical laser-induced breakdown spectroscopy [J]. Analytical and Bioanalytical Chemistry, 2015, 407(25): 7537-7562.
- [14] SUN Tong, LIU Jin, GAN Lan-ping, et al. Detection of dimethoate content with laser induced breakdown spectroscopy combined with LSSVM and internal standard method[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2018, 38(4): 1251-1255.

孙通,刘津,甘兰萍,等.最小二乘支持向量机和内标法的乐果农药含量 LIBS 检测[J].光谱学与光谱分析,2018,38 (4):1251-1255.

- [15] SHEN Qin-mei, ZHOU Wei-dong, LI Ke-xue. Determination of Cr and Ba in soil using laser induced breakdown spectroscopy with artificial neural networks[J]. Acta Photonica Sinica, 2010, 39(12): 2134-2138.
 沈沁梅,周卫东,李科学.激光诱导击穿光谱结合神经网络测定土壤中的 Cr 和 Ba[J]. 光子学报, 2010, 39(12): 2134-2138.
- [16] YUAN L-M, CHEN X, LAI Y, et al. A novel strategy of clustering informative variables for quantitative analysis of potential toxics element in tegillarca granosa using laser-induced breakdown spectroscopy[J]. Food Analytical Methods, 2018, 11(5): 1405-1416.
- [17] LIU K, CHEN X, LI L, et al. A consensus successive projections algorithm-multiple linear regression method for analyzing near infrared spectra [J]. Analytica Chimica Acta, 2015, 858: 16-23.
- [18] JI G, HUANG G, YANG Z, et al. Using consensus interval partial least square in near infrared spectra analysis [J]. Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 2015, 144: 56-62.
- [19] GARCIMUÑO M, PACE D M D, BERTUCCELLI G. Laser-induced breakdown spectroscopy for quantitative analysis of copper in algae[J]. Optics & Laser Technology, 2013, 47(4): 26-30.
- [20] CHEN X, DING H, YUAN L M, et al. New approach of simultaneous, multi perspective imaging for quantitative assessment of the compactness of grape bunches[J/OL]. Australian Journal of Grape and Wine Research, 2018, doi: 10.1111/ajgw.12349.
- [21] NI W, BROWN S D, MAN R. Stacked partial least squares regression analysis for spectral calibration and prediction
 [J]. Journal of Chemometrics, 2009, 23(10): 505-517.

Foundation item: National Natural Science Foundation of China (Nos.61705168, 31571920), Wenzhou Science and Technology Bureau General Project (No.S20170003)

引用格式: GUO Zhen-zhu, CHEN Xiao-jing, YUAN Lei-ming, *et al.* Consensus Modeling for Qualitative Analysis of Heavy metal Cu in *Tegillarca Granosa* by LIBS Approach[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2018, **47**(8): 0847015

郭珍珠,陈孝敬,袁雷明,等. 共识模型用于激光诱导击穿光谱检测泥蚶重金属铜的含量[J].光子学报,2018,47(8):0847015