

## 离子迁移谱仪的电离技术研究进展

刘 林<sup>1</sup>, 花 榕<sup>1,2</sup>, 王 姜<sup>1</sup>, 石 磊<sup>2,3</sup>, 李金英<sup>2,3</sup>,  
周书民<sup>1</sup>, 陈焕文<sup>1</sup>

(1. 东华理工大学, 江西省质谱科学仪器重点实验室, 江西 南昌 330013;

2. 中国原子能科学研究院放射化学研究所, 北京 102413; 3. 华润新能源控股有限公司, 北京 100005)

**摘要:**离子迁移谱技术是 20 世纪 60 年代末发展起来的一种对于痕量气态物质的探测技术。基于该技术支撑的离子迁移谱仪具有结构简单、分析速度快、可在常压环境下工作等优点, 在质谱仪的微型化、便携式应用中具有巨大的发展空间。本文简要介绍了离子迁移谱技术的基本原理, 重点阐述了离子迁移谱的电离技术的研究进展, 并对该技术的发展趋势加以展望。

**关键词:**离子迁移谱; 电离技术; 检测; 进展

中图分类号: O 657. 63 文献标志码: A 文章编号: 1004-2997(2014)02-0097-11

doi: 10. 7538/zpxb. youxian. 2014. 0005

## Research Progress of Ionization Technologies for Ion Mobility Spectrometry

LIU Lin<sup>1</sup>, HUA Rong<sup>1,2</sup>, WANG Jiang<sup>1</sup>, SHI Lei<sup>2,3</sup>,  
LI Jin-ying<sup>2,3</sup>, ZHOU Shu-min<sup>1</sup>, CHEN Huan-wen<sup>1</sup>

(1. *Jiangxi Key Laboratory for Mass Spectrometry and Instrumentation, East China Institute of technology, Nanchang 330013, China;*

2. *China Atomic Energy Science Research Institute of Radioactive Chemistry, Beijing 102413, China;*

3. *China Resources New Energy Group Co, Ltd, Beijing 100005, China*)

**Abstract:** Ion mobility spectrometry (IMS) is a trace gas detection technology developed from the seventies of last century. There are lots of advantage for IMS, such as simple structure, fast detection speed, atmospheric pressure working environment. It has a great potential for development of in the miniature and portable application. This paper introduced the basic principle of ion mobility spectrometry. We put emphasis on the research of ionization technique basic on IMS, and include outlooks on its future development.

**Key words:** ion mobility; ionization technology; detection; research progress

收稿日期: 2013-06-17; 修回日期: 2013-07-15

基金项目: 江西省教育厅科技计划项目(GJJ11022); 江西省科技计划人才项目(2010DD01300)资助

作者简介: 刘 林(1985~), 男, 河南安阳人, 硕士研究生, 从事分析仪器的研制。E-mail: 112014ecit@163.com

通信作者: 陈焕文(1973~), 男(汉族), 江西兴国, 教授, 从事质谱学研究、分析仪器研制。E-mail: chw8868@gmail.com

网络出版时间: 2014-01-23; 网络出版地址: <http://www.cnki.net/kcms/doi/10.7538/zpxb.youxian.2014.0005.html>

离子迁移谱技术(ion mobility spectrometry, IMS)<sup>[1]</sup>是痕量化合物检测的新技术,已被广泛应用于机场、码头、车站等场所的毒品毒剂、爆炸物、化学战剂和大气污染物<sup>[2-6]</sup>的检测。由于它具有灵敏度高、结构简单、体积小、功耗低、测量速度快等优点,IMS已成为目前最为广泛使用的痕量化学物质探测技术之一,近年来其应用范围已经扩展到环境<sup>[7-8]</sup>、食品<sup>[9-10]</sup>、医学<sup>[11-12]</sup>等各个领域。

## 1 离子迁移谱的工作原理

### 1.1 IMS 的仪器装置结构

传统的 IMS 由离子制备与导入系统、离子门控制系统、迁移管、信号放大和数据处理系统、

气路系统、温度加热控制系统和高压电源系统 7 个主要部分<sup>[13]</sup>组成,其结构示于图 1。迁移管是 IMS 仪器的主体,是离子形成和分离的场所,其性能好坏决定着整个 IMS 系统检测性能的高低。迁移管前端的离子制备与导入系统是 IMS 仪器实施检测的基础。

### 1.2 IMS 的工作原理

在离子迁移谱的研究和发展过程中,已形成传统的离子迁移谱(IMS)、非对称射频电场离子迁移谱(RF-IMS)<sup>[14-15]</sup>和高场非对称波形离子迁移谱(FAIMS)<sup>[16-17]</sup>等多种技术。它们的主要差异是漂移管结构、电压施加方式和气路流向;它们主要的共同特征是被测的目标分子都需经过电离、分离和检测 3 个过程。

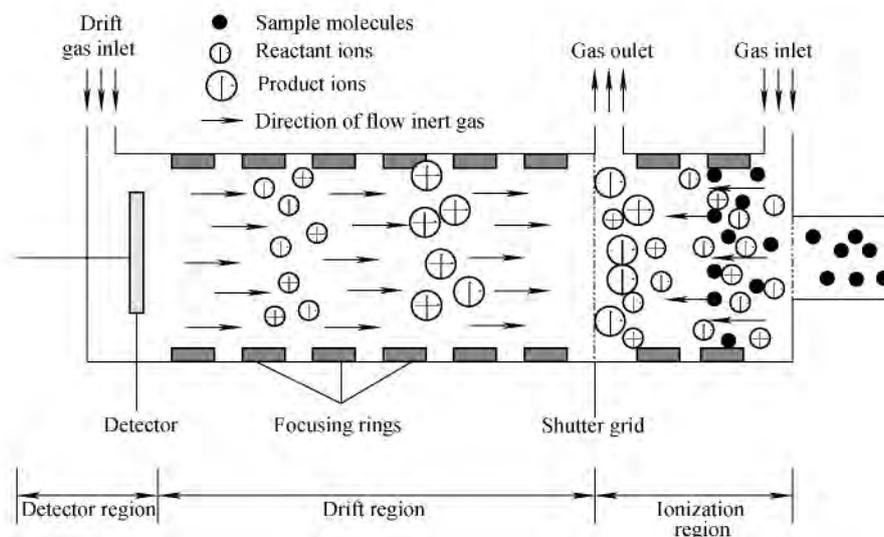


图 1 典型 IMS 结构示意图

Fig. 1 Schematic representation of traditional IMS

样品气态分子由载气带入电离反应区,载气分子和样品气态分子在离子源的作用下发生一系列的电离反应和离子-分子反应,形成各种产物离子。这些离子在电场以及循环气流的作用下向前移动,当周期性开启的离子门开启后进入漂移区。在相同条件下,不同种类的离子各自的迁移率不同,经过固定长度和场强的迁移区后,不同种类的离子得到分离,先后到达收集电极被检测。

在漂移区的弱电场条件下(小于 1 000 V/cm),离子迁移速率  $V_d$  (cm/s) 与所施加的迁移电场强度  $E$  (V/cm) 成正比,式中  $K$  称为离子的迁移率系数(常简称为“迁移率”):

$$V_d = KE \quad (1)$$

离子迁移率依赖于离子的质量、大小、碰撞截面以及偶极矩等因素。由于在一定的条件下,各种物质的迁移率各不相同。因此导致不同的离子通过整个漂移区所用的漂移时间也不同,在已知漂移区长度和漂移区内电场的条件下,测量出离子通过漂移区到达收集电极所用的时间,就可以计算出离子的迁移率,从而达到对样品进行分离和检测的目的。

## 2 离子源

在离子迁移谱仪中,位于电离反应区的电离源是迁移管的核心部件之一<sup>[18-19]</sup>,因为它是被

测物发生电离,进而实现检测的基本保障。目前已经报道的电离源包括放射源、光致电离源、激光电离源、电晕放电电离源、电喷雾电离源、辉光

放电电离源、表面电离电离源和火焰电离源,相关详细信息列于表 1。

表 1 离子迁移谱的电离技术总结

Table 1 Summary of the ionization technology of IMS

电离源	化合物种类	离子源价格	维护费用	备注	参考文献
放射源	通用	中等/低	低	需要许可证	[1,18]
光致电离源	选择性	中等	中等	效率低	[1,28]
电晕放电电离源	通用	中等	高	后期维护费用高	[2,37-44]
电喷雾电离源	液体	中等	中等	耗时长	[1,47-61]
复合离子源	通用	高	高	结构复杂	[19,62-63]
MALDI	固体	高	高	实验室用	[64-65]
火焰	选择性	低	低	分子信息丢失较严重	[68]
表面电离源	含氮碱性物质	中等	中等	结构复杂	[73-74]

空气中主要成分的电离能分别为:  $H_2O$  (12.62 eV)、 $N_2$  (15.58 eV)、 $O_2$  (12.07 eV)、 $Ar$  (15.46 eV)。对于电离技术的选择,首先要求具有较高的离子化效率,能够在微小的空间中产生足够多的离子,只有这样才能使仪器保持一定的灵敏度和信噪比;其次,在保证灵敏度的同时应尽量减少碎片离子的生成,以提高离子迁移谱的分辨率<sup>[20]</sup>;最后,离子源装置要求其易于加工,易于与离子分离区连接和集成<sup>[21]</sup>。

2.1 放射性电离源

放射性电离源由于其电离性能稳定可靠,不需要外接电源和后期维护,而被广泛使用。目前使用最多的放射源为 10 mCi 的  $^{63}Ni$ ,通常  $^{63}Ni$

覆盖在金制的金属环上,释放出的最大电子能量为 67 keV,平均能量为 17 keV。在 10~15 mm 几乎绝大部分的能量都在空气中损耗殆尽,因此,通常将这样的离子源设计为一个直径适中的圆柱形。 $^{63}Ni$  发射出的电子将产生离子与次级反应电子,该反应将不断重复直到次级反应电子的能量不足以继续电离载气中的气体分子。离子对的形成需要 35 eV 能量,所以单个  $\beta$  粒子在理想条件下可产生 500 个离子对。负离子同样可通过电子附着产生,通常,电子获取热能后反应效率将大幅提升,产生的离子数也将增加。 $^{63}Ni$  电离源离子迁移谱示意图示于图 2。

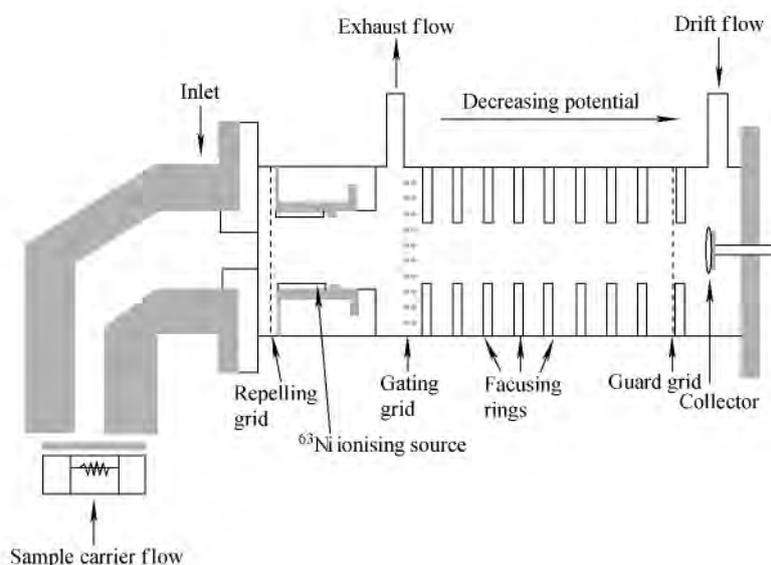


图 2  $^{63}Ni$  电离源离子迁移谱示意图<sup>[22]</sup>

Fig. 2 Schematic representation of the  $^{63}Ni$  ion-IMS <sup>[22]</sup>

目前,放射性电离源的离子迁移谱仪已经在爆炸物、毒品、毒剂中的检测<sup>[5,22-24]</sup>方面有了广泛应用。Yamaguchi<sup>[25]</sup>等利用<sup>63</sup>Ni-IMS进行化学战剂等方面的检测,与含硝基的爆炸物不同,化学战剂在离子化过程中更倾向于产生正离子,因此多采用正离子检测模式。肉类食品的腐败程度可以通过对食物样品释放出的生物胺测定进行判定。Bora等<sup>[26]</sup>报道了直接用离子迁移谱监测肉制品中三甲基胺,并且定量检测了不同储存期的鸡肉中三甲基胺的含量,证实了肉制品的腐烂程度可以通过检测产生的三甲基胺含量而很好的区分。

关于放射性电离源离子迁移谱的优点已经有很多文献报道,但是它的缺点也是显而易见的<sup>[2,18,27]</sup>。例如,由于离子管中的放射性元素在高温中易氧化,形成镍的氧化物或镍盐,这些物质不稳定,如果离子管出口没有滤膜,则这些物质容易被释放到环境中,对使用者造成潜在威胁。一旦设备报废,具有放射性离子源的处理处置代价高昂。因此从健康和环保的角度考虑,发展放射性离子源的替代电离技术势在必行。

## 2.2 光致电离源

光电离的光源主要有紫外、红外、激光等,通常采取直接光电离或者基质辅助激光电离产生初级离子对样品进行电离。目前,市售的光致电离灯能量有 8.4、9.5、10.6、11.8 eV。正离子的产生公式示于式(2),其中  $h\nu$  为光子能量,  $M$  为中性分子。



单光子电离有机化合物所需的能量在光谱的紫外区,而波长更长的激光则多用于多光子电离过程。通过选择合适的波长,选择性的电离目标分子可以提高 IMS 的选择性。通常,有机物

的电离能在 7~10 eV 之间,  $M^+$  离子为芳香烃类物质。空气中离子的准确形成方式极为复杂,比如,酮类化合物在紫外电离时产生的是  $MH^+$  离子,而非  $M^+$  离子。这是由于空气中的某种介质参与了反应,在光电离的反应中并不能直接产生负离子,而是通过与多余电子产生反应而形成负离子。

Gobel等<sup>[28]</sup>报道了一种利用光致电离源的离子迁移谱系统,该系统引入了光致电离源并重新设计了漂移管,大大提高了离子迁移谱系统的灵敏度,其示意图示于图 3。随后,Weickhardt等<sup>[29]</sup>利用光致电离源的离子迁移谱系统检测水果表面的农药。Garrido-Delgado等<sup>[30]</sup>使用光致电离源的离子迁移谱系统鉴别橄榄油的种类。Sielemann等<sup>[31]</sup>利用 UV-IMS 对一系列化学战剂及其类似物进行了测定,得到了相应的二维迁移谱-色谱图。国内关于光电离的离子迁移谱技术也早有研究,刘宪云等<sup>[32]</sup>报道了一种用激光作为离子迁移谱的电离源装置,研究了在大气压力下对痕量物质甲醛进行检测的方法,并且得到了很高的探测灵敏度,检出限达到了  $10^{-9}$  量级。

使用光致电离灯的最大优势在于通过选择不同能量的灯达到选择性电离的效果,可以提高 IMS 的选择性。光致电离源是一级电离源,电离过程中不会产生反应离子,所得到的迁移谱中没有反应离子峰,这对产物离子峰和反应离子峰比较接近的小离子尤其有利,另外光电离源不易饱和,还能拓宽 IMS 方法的线性范围。这些优点显著提高了 IMS 的分析性能,简化了迁移谱和数据采集部分。但是紫外灯电离效率低,在小空间内难以实现对被测物质的高效电离,且价格昂贵、需要定期更换;激光电离源需要庞大复杂的激光系统做支撑,不适用于微型化的 IMS。

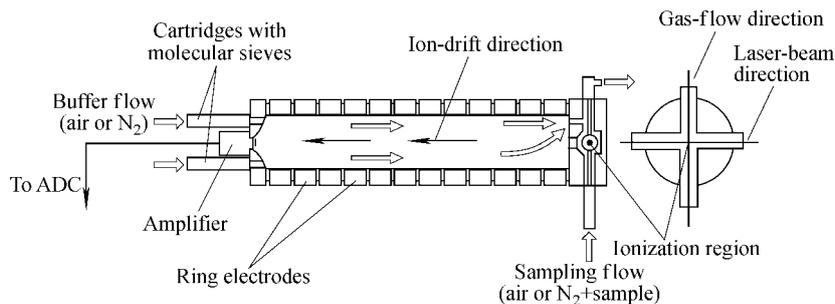


图 3 激光电离源离子迁移谱示意图<sup>[28]</sup>

Fig. 3 Schematic representation of the laser ion-IMS<sup>[28]</sup>

### 2.3 电晕放电电离源

电晕放电<sup>[33]</sup>离子源包括直流电晕放电离子源和脉冲电晕放电离子源,其中直流方式研究较早,也较为成熟。在 20 世纪 90 年代,电晕放电技术已经被用于一些仪器中<sup>[34-36]</sup>。

电晕放电电离源离子迁移谱系统的示意图示于图 4。电晕放电的形成机制因尖端电极的极性不同而有区别,这主要是由于电晕放电时,

空间电荷的积累和分布情况不同所造成的。在直流电压作用下,负极性电晕或正极性电晕均在尖端电极附近聚集起空间电荷。在负极性电晕中,当电子引起碰撞电离后,电子被驱动往远离尖端电极的空间,并形成负电离,而正离子在靠近电极表面之处聚集。与使用<sup>63</sup>Ni 源的情况相似,这里产生的离子可以与样品进行反应。

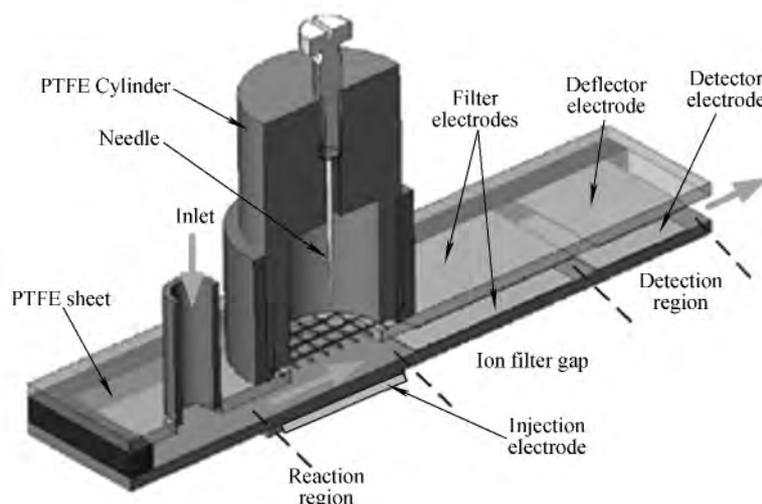


图 4 电晕放电电离源离子迁移谱系统示意图<sup>[37]</sup>

Fig. 4 Schematic representation of CD-IMS<sup>[37]</sup>

近年来,电晕放电电离源在 IMS 中的应用逐渐增多。脉冲式放电、局部放电<sup>[38]</sup>和连续放电<sup>[39]</sup>等多种模式相继应用到 IMS 中。电晕放电所产生的电子密度非常大,在纯净的氮气气氛中,阴极电晕放电所发射的电子密度是<sup>63</sup>Ni 源的 $10^6$  倍,因此灵敏度较高,有利于检测能生成高电负性离子的化合物,如三硝基甲苯(TNT)、三次甲基三硝基胺(RDX)、季戊四醇四硝酸酯(PETN)等,这些爆炸物的信号强度比<sup>63</sup>Ni 源 IMS 高 100 倍,检测限达到 $10^{-10}$  g 以下<sup>[40]</sup>。Roscioli 等<sup>[41]</sup>报道了一种旨在发展商品化的电晕放电电离源的离子迁移谱仪。德国莱比锡哈雷环境研究中心利用基于直流电晕放电离子源的 IMS 检测一些非挥发性链烷烃和芳香族化合物<sup>[42]</sup>,在该研究中发现,随着被测物分子碳链长度的增加,离子迁移率会相应的减少,这说明采用直流电晕放电离子源的 IMS 仪器能够对同族化合物进行区分和探测。中国安徽光机所的研究者利用直流电晕放电 IMS 对多种醇类化合物的离子迁移谱进行了研究,所得的离子迁移谱的

实验结果表明:在纯净空气中,由电晕放电离子源所产生的产物离子迁移率与采用<sup>63</sup>Ni 得到的产物离子迁移率具有很好的一致性,以电晕放电作为离子源,得到的反应物离子浓度远大于采用<sup>63</sup>Ni 或者紫外光电离方式,而且采用电晕放电离子源可以将醇类的同分异构体进行区分<sup>[43-44]</sup>。

目前,对于直流电晕放电离子源的 IMS 研究已经趋于成熟,能够采用其进行多种化合物的探测,而且随着对影响离子迁移因素方面研究的深入,该检测技术的分辨率将不断提高。直流电晕放电离子源在具有上述优势的同时,也存在一定的不足:高功耗限制了 IMS 在微型化和便携式中的应用;电晕放电过程中化学反应极为复杂,会产生 NOX 以及臭氧等副产物,影响样品的测定;随着使用次数的增加,放电针容易受到锈蚀,因此采用电晕放电的设备必须定期进行放电针的替换与维护,这将增加运行成本。

### 2.4 电喷雾电离源

电喷雾电离技术是 20 世纪 80 年代美国科学家约翰·芬恩<sup>[45-46]</sup>教授提出并成功应用于大分

子的检测,该方法为生物大分子化合物分析和液相色谱-质谱联用的发展做出了突出贡献,并因此获得了 2002 年诺贝尔化学奖。

电喷雾离子源属于一种软电离源,ESI 在电离过程中因其设计特点,能够产生多电荷离子,使很多大分子的质荷比降低到多数质量分析器都可以检测的范围,其系统示意图示于图 5。此外,ESI 在常压环境下工作,这为新兴的分析仪器研制提供了坚实的理论依据和技术支撑。

电喷雾电离技术和离子迁移谱技术的结合<sup>[47]</sup>突破了传统 IMS 不能分析非挥发性和高分子质量化合物的限制,使其既可以用于分析挥

发性有机化合物<sup>[48-49]</sup>,还广泛应用在生物有机样品<sup>[50-52]</sup>,如蛋白质、肽类和低聚核苷酸的分离和检测上,大大扩展了 IMS 的应用领域。Dion 等首次用 ESI-IMS 对水溶液中的 9 种无机金属阳离子进行了分析,结果表明,ESI-IMS 将可作为一项环境样品中金属阳离子及其化合物现场探测的高灵敏度检测技术。在 ESI-IMS 基础上,Wu 等<sup>[53]</sup>报道了一种二级电喷雾电离(SES-IMS)的离子迁移谱装置,它是用电喷雾带电液滴去离子化气相中的中性样品分子。SESI-IMS 比 ESI-IMS 有更高的离子化效率,因此利用 SESI-IMS 检测可卡因等毒品灵敏度也更高<sup>[54]</sup>。

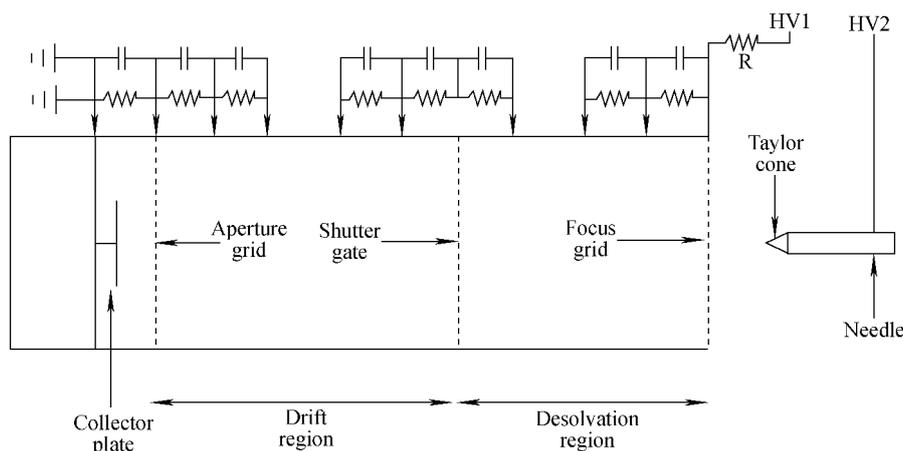


图 5 电喷雾电离源离子迁移谱系统示意图<sup>[47]</sup>

Fig. 5 Schematic representation of IMS with a ESI source platform<sup>[47]</sup>

电喷雾电离的重要优势在于可以在离子迁移谱设备中直接引入液态样品,例如生物大分子和水中的无机物,它能直接将液态样品分子转化成气态离子供后续检测使用。但是在实际应用中的首要问题是被测物在漂移管中有较强的记忆效应,因此每次使用后都需要对仪器内壁进行长时间的彻底清洗才能进行下一次采样。如何减小记忆效应,缩短两次测量之间的时间间隔,是实际应用中亟待解决的问题<sup>[55-57]</sup>。其次,在被测物分子引入迁移谱系统检测的同时,溶剂中大量的雾化离子也会被引入,造成离子迁移谱峰展宽,从而降低了仪器的分辨率<sup>[58-59]</sup>,导致 ESI 的电场会扰乱漂移管本身的电场<sup>[60-61]</sup>。

## 2.5 多通道复合电离源

随着离子迁移谱技术的发展,其应用范围越来越广泛,检测的物质越来越多,单一离子源的离子迁移谱仪存在明显的缺点。为了提高离子

迁移谱仪的检测选择性,增加离子迁移谱技术的使用效率,拓宽 IMS 的应用领域,许多科研机构开始研究多通道复合电离源的离子迁移谱仪系统。

Baumbach 等<sup>[62]</sup>报道了利用耦合<sup>63</sup>Ni-IMS 和 UV-IMS 到集束毛细管柱(multicapillary column, MCC)的检测水中以及氮气中的甲基叔丁基醚装置,这种装置简单易操作,灵敏度高。随后 Adamov 等<sup>[63]</sup>将电喷雾电离源(ESI)、电晕放电电离源(CD-APCI)、常压光致电离源(APPI)以及常压放射性电离源(R-APCI)4 种离子源耦合到离子迁移谱仪上,示于图 6。该装置的离子迁移管前部的多个离子源复合而成的离子源可以简单快速地在 4 个常压离子源之间进行切换,便于同一样品不同离子源之间迁移特性的比较,并且拓宽了样品检测分析的应用领域。在 Adamov 研究工作的基础上,Bahrani 等<sup>[19]</sup>将光致



而引发电子迁移,因此产生正离子。较之 $^{63}\text{Ni}$ 电离源,该电离技术拥有相对更大的动态范围,没有放射性问题,体积小、可控性强。在胺类、烟草、生物碱等物质的检测中均能达到皮克级。但表面电离技术的成功必须基于稳定可靠的发射器,过程较为繁琐。此外使用该电离源的效果与分析物的分子结构密切相关,易用性不高。

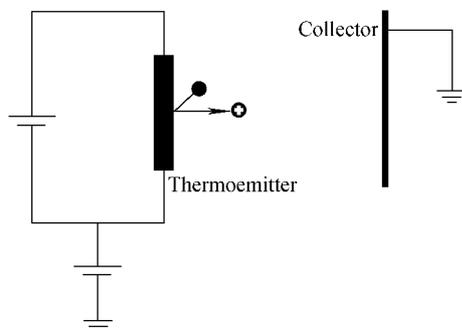


图 7 表面电离离子源示意图<sup>[1]</sup>

Fig. 7 Schematic of surface ionization<sup>[1]</sup>

### 3 总结与展望

IMS 技术由于自身独特的优势,已成为痕量化合物现场探测领域应用最成功、最广泛的技术之一,并逐步由军事、安全领域走向民用化应用。但是它具有线性范围窄和灵敏度受捕集手段影响较大的缺点,限制了 IMS 的进一步发展和应用。如何提高 IMS 的分辨率、拓宽其线性范围和优化捕集手段等预处理手段是 IMS 今后发展需要解决的关键问题。IMS 另一个重要的发展方向是微型化 IMS 的研制工作。如何在保持其性能不明显降低的条件下,设计出更小的 IMS 装置,是 IMS 研究领域走向现场化和商品化必须攻克的难题。随着更多类型离子源应用到 IMS 中,尤其是近年来复合离子源耦合离子迁移谱仪的研制与应用,使得 IMS 的应用范围越来越广泛,其分析对象不再局限于气相挥发性有机物,对液体和固体也可以直接进行分析。相信随着复合离子源与 IMS 联用研究的不断深入,高集成度、高灵敏度、高选择性、低成本的复合离子源离子迁移谱系统将有巨大的应用空间。

#### 参考文献:

- [1] EICEMAN G A, KARPAS Z. Ion mobility spectrometry[M]. CRC Press, 2010.
- [2] ARMENTA S, ALCALA M, BLANCO M. A re-

view of recent, unconventional applications of ion mobility spectrometry (IMS)[J]. *Analytica Chimica Acta*, 2011, 703(2):114-123.

- [3] BELL S E, EWING R G, EICEMAN G A, et al. Atmospheric pressure chemical ionization of alkanes, alkenes, and cycloalkanes[J]. *Journal of the American Society for Mass Spectrometry*, 1994, 5(3): 177-185.
- [4] FETTEROLF D D, DONNELLY B, LASSWELL L D. Portable instrumentation: New weapons in the war against drugs and terrorism, substance Identification technologies[J]. *International Society for Optics and Photonics*, 1994, 2 092:40-52.
- [5] EWING R G, ATKINSON D A, EICEMAN G, et al. A critical review of ion mobility spectrometry for the detection of explosives and explosive related compounds[J]. *Talanta*, 2001, 54(3): 515-529.
- [6] SIVAKUMAR N, JOSEPH M, MANORAVI P, et al. Development of an ion mobility spectrometer for detection of explosive[J]. *Instrumentation Science & Technology*, 2013, 41(1):96-108.
- [7] LI F, XIE Z, SCHMIDT H, et al. Ion mobility spectrometer for online monitoring of trace compounds[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2002, 57(10): 1 563-1 574.
- [8] VAUTZ W, BAUMBACH J. Exemplar application of multi-capillary column ion mobility spectrometry for biological and medical purpose[J]. *International Journal for Ion Mobility Spectrometry*, 2008, 11: 35-41.
- [9] 李丹, 邱静, 钱永忠, 等. 离子迁移谱在农产品质量安全检测中的应用[J]. *农产品质量与安全*, 2012, (5): 41-45.
- LI Dan, QIU Jing, QIAN Yongzhong, et al. The application of ion mobility spectrometry in agricultural products and safety testing[J]. *Agricultural Quality and Standards*, 2012, (5): 35-41(in Chinese).
- [10] VAUTZ W, ZIMMERMANN D, HARTMANN M, et al. Ion mobility spectrometry for food quality and safety[J]. *Food Additives and Contaminants*, 2006, 23(11):1 064-1 073.
- [11] 李虎, 韩海燕, 牛文琪, 等. 光电离-离子迁移谱快速监测一次性医疗器械中的环己酮[J]. *光谱学与光谱分析*, 2012, 32(1):46-49.
- LI Hu, HAN Haiyan, NIU Wenqi, et al. Rapid detection of residual cyclohexanone in disposable medical devices by ultraviolet photoionization ion

- mobility spectrometry (UV-IMS)[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2012, 32(1):46-49 (in Chinese).
- [12] 成舒乔, 陈民辉, 曹 玲, 等. 离子迁移谱及其应用进展[J]. 药物分析杂志, 2012, 32(5): 912-918.  
CHENG Shuqiao, CHEN Minhui, CAO Ling, et al. Ion mobility spectrometry and its progress on application[J]. Chinese Journal of Pharmaceutical Analysis, 2012, 32(5): 912-918 (in Chinese).
- [13] 徐淑武, 郑 健, 毕志毅, 等. 离子迁移谱检测技术及其应用[J]. 物理, 2003, 32(8): 539-542.  
XU Shuwu, ZHENG Jian, BI Zhiyi, et al. Ion mobility spectrometry and its application [J]. Physics, 2003, 32(8): 539-542 (in Chinese).
- [14] BURYAKOV I, KRYLOV E, NAZAROV E, et al. A new method of separation of multi-atomic ions by mobility at atmospheric pressure using a high-frequency amplitude-asymmetric strong electric field[J]. International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes, 1993, 128(3):143-148.
- [15] CARNAHAN B L, TARASSOV A S. Ion mobility spectrometer; USA, US005420424A [P]. 1995-05-30.
- [16] GUEVREMONT R. High-field asymmetric waveform ion mobility spectrometry: A new tool for mass spectrometry[J]. Journal of Chromatography A, 2004, 1058(1/2): 3-19.
- [17] BARNETT D A, ELLS B, GUEVREMONT R, et al. Application of ESI-FAIMS-MS to the analysis of tryptic peptides[J]. Journal of the American Society for Mass Spectrometry, 2002, 13: 1282-1291.
- [18] 许 峰, 王海龙, 关亚风. 离子迁移谱研究进展[J]. 化学进展, 2005, 17(3): 514-522.  
XU Feng, WANG Hailong, GUAN Yafeng. Progress in ion mobility spectrometry[J]. Progress in Chemistry, 2005, 17(3): 514-522 (in Chinese).
- [19] BAHRAMI H, TABRIZCHI M. Combined corona discharge and UV photoionization source for ion mobility spectroscopy [J]. Talanta, 2012, 97: 400-405.
- [20] 张东风, 孔德义, 梅 涛, 等. 离子迁移谱仪微型化的现状与进展[J]. 仪器仪表学报, 2006, 27(2): 199-204.  
ZHANG Dongfeng, KONG Deyi, MEI Tao, et al. Present status and prospect of the miniaturized ion mobility spectrometry[J]. Chinese Journal of Scientific Instrument, 2006, 27(2): 199-204 (in Chinese).
- [21] 檀景辉, 栗大超, 王 喆, 等. 微型化离子迁移谱仪研究进展[J]. 现代科学仪器, 2011, (2): 117-123.  
TAN Jinghui, LI Dachao, WANG Zhe, et al. Research progress of miniaturized ion mobility spectrometer[J]. Modern Scientific Instruments, 2011, (2): 117-123 (in Chinese).
- [22] KOYUNCU H, SEVEN E, CALIMLI A. Examination of some organic explosives by ion mobility spectrometry (IMS) [J]. Turk J Chem, 2005, 29: 255-264.
- [23] 疏天民, 成云飞, 洪利军, 等. 离子迁移谱仪探测硫磺的理论分析与实现[J]. 自动化与仪器仪表, 2011, (6): 78-79.  
SHU Tianmin, CHENG Yunfei, HONG Lijun, et al. Theory analysis and implementation of detection sulfur with ion mobility spectrometer[J]. Automation & Instrumentation, 2011, (6): 78-79 (in Chinese).
- [24] MATZ L M, TORNATORE P S, HILL H H. Evaluation of suspected interferences for TNT detection by ion mobility spectrometry[J]. Talanta, 2001, 54(1):171-179.
- [25] YAMAGUCHI S, ASADA R, KISHI S, et al. Detection performance of a portable ion mobility spectrometer with  $^{63}\text{Ni}$  radioactive ionization for chemical warfare agents[J]. Forensic Toxicology, 2010, 28: 84-95.
- [26] BOTA G M, HARRINGTON P B. Direct detection of trimethylamine in meat food products using ion mobility spectrometry [J]. Talanta, 2006, 68(3): 629-635.
- [27] GUHARAY S K, DWIVEDI P, HILL H H. Ion mobility spectrometry; Ion source development and applications in physical and biological sciences, plasma science [J]. IEEE Transactions, 2008, 36(4): 1458-1470.
- [28] GÖBEL J, KESSLER M, LANGMEIER A. A novel laser ion mobility spectrometer [J]. AIP Conference Proceedings, 2009, 253: 1-137.
- [29] WEICKHARDT C, KAISER N, BORSODORF H. Ion mobility spectrometry of laser desorbed pesticides from fruit surfaces [J]. International Journal for Ion Mobility Spectrometry, 2012, 15: 55-62.
- [30] GARRIDO-DELGADO R, MERCADER-TREJO F, SIELEMANN S, et al. Direct classification of olive oils by using two types of ion mobility spectrometers [J]. Analytica Chimica Acta, 2011, 696(1/2): 108-115.
- [31] SIELEMANN S, BAUMBACH J, SCHMIDT H. IMS with non radioactive ionization sources suitable to detect chemical warfare agent simulation substances [J]. Int J Ion Mobil Spectrom, 2002, 5: 143-148.

- [32] 刘宪云, 孔祥和, 季仁东, 等. 激光电离源离子迁移谱仪检测甲醛[J]. 光电子·激光, 2006, 17(12): 1 507-1 509.  
LIU Xianyun, KONG Xianghe, JI Rendong, et al. Detection of formaldehyde using ion mobility spectrometer with laser ionization source[J]. 2006, 17(12): 1 507-1 509(in Chinese).
- [33] CHANG J S, LAWLESS P A, YAMAMOTO T. Corona discharge processes[J]. Plasma Science, IEEE Transactions, 1991, 19(6): 1 152-1 166.
- [34] LI D, YAKUSHIJI D, KANAZAWA S, et al. Decomposition of toluene by streamer corona discharge with catalyst[J]. Journal of Electrostatics, 2002, 55(3/4): 311-319.
- [35] EBELING D D, WESTPHALL M S, SCALF M, et al. Corona discharge in charge reduction electrospray mass spectrometry [J]. Analytical Chemistry, 2000, 72(21): 5 158-5 161.
- [36] ONO R, ODA T. Measurement of hydroxyl radicals in pulsed corona discharge[J]. Journal of Electrostatics, 2002, 55(3/4): 333-342.
- [37] ZHAO D, JIA J, LI J, et al. Corona discharge ionization source for a planar high-field asymmetric waveform ion mobility spectrometer[J]. Analytical Letters, 2013, 46(3): 452-460.
- [38] SCHMIDT H, BAUMBACH J, PILZECKER P, et al. Detection of chlorinated and fluorinated substances using partial discharge ion mobility spectrometry[J]. Int J Ion Mobility Spectrom, 2000, (3): 8-14.
- [39] TABRIZCHI M, KHAYAMIAN T, TAJ N. Design and optimization of a corona discharge ionization source for ion mobility spectrometry[J]. Review of scientific instruments, 2000, 71(6): 2 321-2 328.
- [40] KHAYAMIAN T, TABRIZCHI M, JAFARI M. Analysis of 2, 4, 6-trinitrotoluene, pentaerythritol tetranitrate and cyclo-1, 3, 5-trimethylene-2, 4, 6-trinitramine using negative corona discharge ion mobility spectrometry[J]. Talanta, 2003, 59(2): 327-333.
- [41] ROSCIOLI K M, DAVIS E, SIEMS W F, et al. Modular ion mobility spectrometer for explosives detection using corona ionization[J]. Analytical Chemistry, 2011, 83(5): 5 965-5 971.
- [42] BORSDORF H, SCHELHORN H, FLACHOWSKY J, et al. Corona discharge ion mobility spectrometry of aliphatic and aromatic hydrocarbons[J]. Analytica Chimica Acta, 2000, 403(1/2): 235-242.
- [43] HAN H Y, HUANG G D, JIN S P, et al. Determination of alcohol compounds using corona discharge ion mobility spectrometry[J]. Journal of Environmental Sciences, 2007, 19(6): 751-755.
- [44] HAN H Y, WANG H M, JIANG H H, et al. Corona discharge ion mobility spectrometry of ten alcohols[J]. Chinese Journal of Chemical Physics, 2009, 22(6): 605.
- [45] FENN J B, MANN M, MENG C K, et al. Electrospray ionization for mass spectrometry of large biomolecules[J]. Science, 1989, 246(4 926): 64-71.
- [46] FENN J B, MANN M, MENG C K, et al. Electrospray ionization-principles and practice [J]. Mass Spectrometry Reviews, 1990, 9(1): 37-70.
- [47] BATHGATE B, CHEONG E C, BACKHOUSE C J, A novel electrospray-based ion mobility spectrometer[J]. American Journal of Physics, 2004, 72: 1 111.
- [48] ASBURY G R, HILL H H. Using different drift gases to change separation factors ( $\alpha$ ) in ion mobility spectrometry[J]. Analytical Chemistry, 2000, 72(3): 580-584.
- [49] ASBURY G R, KLASMEIER J, HILL Jr H H. Analysis of explosives using electrospray ionization/ion mobility spectrometry (ESI/IMS)[J]. Talanta, 2000, 50(6): 1 291-1 298.
- [50] ASBURY G R, WU C, SIEMS W F, et al. Separation and identification of some chemical warfare degradation products using electrospray high resolution ion mobility spectrometry with mass selected detection[J]. Analytica Chimica Acta, 2000, 404(2): 273-283.
- [51] SREBALUS C A, LI J, MARSHALL W S, et al. Gas-phase separations of electrosprayed peptide libraries [J]. Analytical Chemistry, 1999, 71(18): 3 918-3 927.
- [52] HENDERSON S C, VALENTINE S J, COUNTERMAN A E, et al. ESI/ion trap/ion mobility/time-of-flight mass spectrometry for rapid and sensitive analysis of biomolecular mixtures[J]. Analytical Chemistry, 1999, 71(2): 291-301.
- [53] WU C, SIEMS W F, KLASMEIER J, et al. Separation of isomeric peptides using electrospray ionization/high-resolution ion mobility spectrometry[J]. Analytical Chemistry, 2000, 72(2): 391-395.
- [54] BURYAKOV I A, KOLOMIETS Y N, LUPPU B. Detection of explosive vapors in the air using an ion drift nonlinearity spectrometer[J]. Journal of Analytical Chemistry, 2001, 56(4): 336-340.
- [55] JAFARI M T. Improved design for high resolution electrospray ionization ion mobility spectrometry[J]. Talanta, 2009, 77(5): 1 632-

- 1 639.
- [56] BEEGLE L W, KANIK I, MATZ L, et al. Electrospray ionization high-resolution ion mobility spectrometry for the detection of organic compounds, 1 Amino acids[J]. Analytical Chemistry, 2001, 73(13): 3 028-3 034.
- [57] DION H M, ACKERMAN L K, HILL H H. Detection of inorganic ions from water by electrospray ionization-ion mobility spectrometry[J]. Talanta, 2002, 57(6): 1 161-1 171.
- [58] SHUMATE C B, HILL Jr H H. Coronaspray nebulization and ionization of liquid samples for ion mobility spectrometry[J]. Analytical Chemistry, 1989, 61(6): 601-606.
- [59] SHUMATE C. Electrospray ion mobility spectrometry[J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 1994, 13(3): 104-109.
- [60] TAM M, HILL H H. Secondary electrospray ionization-ion mobility spectrometry for explosive vapor detection[J]. Analytical Chemistry, 2004, 76(10): 2 741-2 747.
- [61] SIEMS W F, WU C, TARVER E E, et al. Measuring the resolving power of ion mobility spectrometers[J]. Analytical Chemistry, 1994, 66(23): 4 195-4 201.
- [62] BAUMBACH J I, SIELEMANN S, XIE Z, et al. Detection of the gasoline components methyl tert-butyl ether, benzene, toluene, and m-xylene using ion mobility spectrometers with a radioactive and UV ionization source[J]. Analytical Chemistry, 2003, 75(6): 1 483-1 490.
- [63] ADAMOV A, MAURIALA T, TEPLOV V, et al. Characterization of a high resolution drift tube ion mobility spectrometer with a multi-ion source platform[J]. International Journal of Mass Spectrometry, 2010, 298(1/2/3): 24-29.
- [64] DUGOURD P, HUDGINS R, CLEMMER D, et al. High-resolution ion mobility measurements[J]. Review of Scientific Instruments, 1997, 68(2): 1 122-1 129.
- [65] VON HELDEN G, WYTTEBACH T, BOWERS M T. Inclusion of a MALDI ion source in the ion chromatography technique: conformational information on polymer and biomolecular ions[J]. International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes, 1995, 146: 349-364.
- [66] DONG C, WANG W, LI H. Atmospheric pressure air direct current glow discharge ionization source for ion mobility spectrometry[J]. Analytical Chemistry, 2008, 80(10): 3 925-3 930.
- [67] 周跃明, 郑 健, 陈焕文. 常压火焰用作质谱电离源的理论探讨[J]. 分析仪器, 2007, (1): 47-52.
- ZHOU Yueming, ZHENG Jian, CHEN Huanwen. Theoretical study on the feasibility of using ambient flame as ionization source of mass spectrometry[J]. 2007, (1): 47-52(in Chinese).
- [68] ATAR E, CHESKIS S, AMIRAV A. Pulsed flame-a novel concept for molecular detection[J]. Analytical Chemistry, 1991, 63(118): 2 061-2 064.
- [69] HAYHURST A N, MCLEAN H A G. Mechanism for producing NO from nitrogen in flames[J]. Nature, 1974, 251(5 473): 303-305.
- [70] HAYHURST A N, VINCE I M. Production of 'prompt' nitric oxide and decomposition of hydrocarbons in flames[J]. Nature, 1977, 266: 524-525.
- [71] HOLM T. Aspects of the mechanism of the flame ionization detector[J]. Journal of Chromatography A, 1999, 842(1/2): 221-227.
- [72] HOLM T, MADSEN J Ø. Methane formation by flame-generated hydrogen atoms in the flame ionization detector[J]. Analytical Chemistry, 1996, 68(20): 3 607-3 611.
- [73] GUO H Y, HE X L, GAO X G, et al. A novel surface ionization source for ion mobility spectrometer[J]. Analytica Chimica Acta, 2007, 587(11): 137-141.
- [74] WU C, HILL H H, RASULEV U K, et al. Surface ionization ion mobility spectrometry[J]. Analytical Chemistry, 1999, 71(1): 273-278.