

## 基于 FAIMS 谱图峰位置的离子迁移率非线性函数解析

王电令<sup>1,2</sup>, 陈池来<sup>1\*</sup>, 赵 聪<sup>1,2</sup>, 高 钧<sup>1</sup>, 孔德义<sup>1</sup>, 尤 晖<sup>1</sup>, Juergen Brugger<sup>3</sup>

1. 中国科学院合肥智能机械研究所, 传感技术国家重点实验室, 安徽 合肥 230031
2. 中国科学技术大学自动化系, 安徽 合肥 230027
3. 瑞士洛桑联邦理工学院微系统实验室, 瑞士 洛桑

**摘要** 离子迁移率的非线性函数反映了物质本身的微观碰撞特性, 是 FAIMS 技术实现离子分离检测的基础。现有的离子迁移率非线性函数求解方法多是近似求解, 存在较大误差。该工作提出了一种基于半正弦分离电压和 FAIMS 谱图峰位置下的严格求解方法, 推导出严格的二阶、四阶系数求解方程。利用自制的高场不对称波形离子迁移谱仪分别对乙醇、间二甲苯和正丁醇三种典型的醇和苯类物质进行检测, 获取了三种物质的 FAIMS 谱图, 通过谱图峰位置获得了不同分离电压值下的补偿电压, 利用最小二乘法求出三种离子非线性函数二阶、四阶系数。拟合后的均方误差表明 FAIMS 非线性函数严格求解的方法, 明显优于现有的求解方法。有助于提高 FAIMS 检测分辨率, 进而有助于建立更加准确的 FAIMS 图谱, 实现 FAIMS 对检测物质的精准识别。

**关键词** 离子迁移率非线性函数; FAIMS 谱图; 二阶、四阶系数

**中图分类号:** O657.3 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2012)08-2050-06

### 引言

高场不对称波形离子迁移谱 (high-field asymmetric waveform ion mobility spectrometry, FAIMS) 是一种基于离子迁移率非线性变化在高电场下凸显的特性, 在离子前进方向构建一个非对称高电场, 对不同物质离子进行分离识别的大气压下痕量物质检测技术<sup>[1]</sup>。与传统的质谱、色谱仪相比, 具有结构简单, 灵敏度高, 分析速度快的优点, 其简单的离子迁移管结构以及独特的分离检测特性又使得其比传统离子迁移谱 (ion mobility spectrometry, IMS) 在小型化和高分辨检测上更具优势<sup>[2-4]</sup>。从 20 世纪 90 年代初被报道至今, 该技术引起了广泛的关注, 在 FAIMS 芯片制作、高频高电场电路、微电流检测以及气路控制方面取得了长足发展, 并已在质谱前端、色谱后端成功实现高效联用<sup>[5-7]</sup>, 很大程度提高了检测分辨率, 被广泛用于易制毒化学品检测、水污染监测、生物大分子检测、药物分析等化学检测领域<sup>[8-10]</sup>。然而, FAIMS 独立检测方面的研究进展缓慢, 其核心原因之一是, FAIMS 谱图解析的研究工作尚在起步阶段, 目前没有一个

完善统一的解析方法<sup>[11,12]</sup>。谱图库的建立是亟待解决的一个重要问题, 而 FAIMS 谱图解析的核心内容就是如何准确求解离子迁移率非线性函数。

离子迁移率非线性变化是 FAIMS 对不同离子进行分离识别的基础, 每种离子具有其特有的非线性函数。不同的离子在高场下的离子迁移率非线性函数差别较大, 可以用该函数表征不同的离子。一般而言, 离子非线性函数  $\alpha_{(E/N)}$  可表示为<sup>[13]</sup>

$$\alpha_{(E/N)} = \frac{K - K_0}{K_0} = \sum_n \alpha_{2n} (E/N)^{2n} \approx \alpha_2 (E/N)^2 + \alpha_4 (E/N)^4 \quad (1)$$

式中,  $K$  为高场离子迁移率,  $K_0$  为低场离子迁移率。为求解该非线性函数, 需要求解相应的  $2n$  阶非线性系数  $\alpha_{2n}$ , 这些系数随着阶数增加而急剧减小, 通常误差范围内, 影响可忽略不计, 只考虑二阶、四阶系数<sup>[14]</sup>。

2000 年, Viehland 等采用圆筒型离子迁移管和方波分离电压, 改变分离电压获得了不同的 FAIMS 谱图, 根据谱图峰位置得到了  $\text{Cl}^-$  二阶、四阶以及更高阶非线性离子迁移率系数, 并给出了相关系数的计算方法<sup>[15]</sup>。同年, Handy 等利

收稿日期: 2012-02-12, 修订日期: 2012-04-20

基金项目: 中国科学院对外合作重点项目 (GJHZ1218), 国家自然科学基金项目 (61004133) 和中国科学院合肥物质科学研究院知识创新工程领域前沿项目资助

作者简介: 王电令, 1987 年生, 中国科学技术大学硕士研究生 e-mail: dlw30@mail.ustc.edu.cn

\* 通讯联系人 e-mail: chlchen@iim.ac.cn

用该方法得到了  $\text{CH}_3\text{COO}^-$ ,  $\text{CH}_3\text{O}(\text{CO}_2)^-$ ,  $\text{HC}_2\text{O}_4^-$ 、 $\text{HSO}_4^-$  等离子的二阶、四阶系数<sup>[16]</sup>。2001 年, Guevremont 等采用 ESI-FAIMS-MS, 圆筒型 FAIMS 迁移管, 扫描电压范围为  $-2\sim 18\text{ V}$ , 分离电压为不完全理想化的方波(假设场强的突然变化对迁移率的瞬态影响忽略不计), 获得了多种正性和负性氨基酸离子的二阶、四阶系数以及低场离子迁移率<sup>[17]</sup>。2004 年, Buryakov 等采用圆筒型迁移管, 半正弦分离电压, 通过实验获得了笨、吡啶、笨胺、二甲胺、二乙醇胺等物质的二阶、四阶、六阶系数并给出相应的非线性函数<sup>[18]</sup>。

现阶段的离子迁移率非线性函数二阶、四阶系数求解时做了两个假设: 非线性函数在低场下影响忽略假设和非线性函数完全由分离电场决定假设; 另外, 为了求解方便, 采用的高场不对称分离电压波形为方波。存在以下缺点: 一是上述方法用到几个近似, 使得实际非线性函数与计算值存在误差, 尤其是在 FAIMS 谱图中偏离零点较大的离子; 二是高电场的方波波形产生困难, 实际应用中的大部分场合采用的是半正弦和双正弦叠加分离电压。因此, 现阶段的非线性函数求解方法具有一定的近似性和局限性。

从 FAIMS 的工作原理出发, 严格推导出基于半正弦分离电压下的离子迁移率非线性二阶、四阶系数方程, 克服了对电场要求高以及对四阶系数求解时误差难以控制的缺点。利用自制的高场不对称波形离子迁移谱仪分别对三种典型的笨和醇类物质进行检测, 根据 FAIMS 谱图峰位置信息求解出三种物质的非线性函数。最终的拟合均方误差结果表明本计算方法优于现有的求解方法, 为 FAIMS 谱图解析、谱图库的构建以及后续现场检测提供了一种有效可靠的方法。

## 1 FAIMS 理论

### 1.1 FAIMS 工作方式

FAIMS 核心器件称为 FAIMS 迁移管, 其结构和工作方式如图 1 所示。

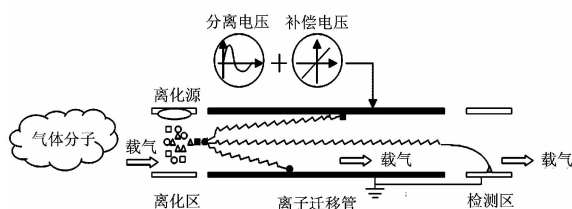


Fig. 1 The structure and working method of FAIMS tube

离子迁移管前端为离子化源, 后端为电荷检测设备。气体分子在离子化源作用下成为待测离子团, 该离子团在载气带动下进入离子迁移管。离子在气态介质中受电场的作用会沿着电场方向运动, 其运动速度与电场大小成正比, 该比例系数称为离子迁移率。式(1)可改写为

$$K = K_0 [1 + \alpha_2 (E/N)^2 + \alpha_4 (E/N)^4] \quad (2)$$

式中,  $\alpha_2$  的数量级为  $10^{-6}\text{ Td}$ ,  $\alpha_4$  的数量级为  $10^{-10}\text{ Td}^{[14]}$ 。

离子迁移管的分离电极多为平板型电极, 该电极上加有

两种电压, 分别是分离电压(dispersion voltage,  $V_D$ )和补偿电压(compensation voltage,  $V_C$ )。离子前进时, 受分离电压和补偿电压的共同作用, 不同种类离子在纵向上的偏移量不同, 只有满足单周期振动总位移为零的离子能够自由通过。此时, 满足下式<sup>[13]</sup>

$$S = \int_0^T K(V_{C0}/d + V_D/d) dt = 0 \quad (3)$$

其中,  $d$  为平板型离子迁移管电极间距, 将式(2)代入式(3), 得到

$$\int_0^T \left[ 1 + \alpha_2 \left( \frac{V_{C0} + V_D}{Nd} \right)^2 + \alpha_4 \left( \frac{V_{C0} + V_D}{Nd} \right)^4 \right] (V_{C0} + V_D) dt = 0 \quad (4)$$

其中,  $V_{C0}$  为离子自由通过 FAIMS 迁移管的补偿电压, 为低频低电压。  $V_D$  为分离电压, 可达 2 000 V, 频率在几百 kHz 到 MHz 量级, 其高压占空比小于 0.5, 为非对称波形且周期内电压积分为零,  $N$  为气体分子密度。

分离电压波形一般包括三种: 双正弦、方波和半正弦叠加<sup>[19]</sup>。本实验采用的分离电压波形为现有 FAIMS 最常用的半正弦叠加波形, 具有产生容易、稳定性高的优点, 可表示为

$$\begin{cases} V_D = V_0 \left( \frac{2r}{\pi} - \sin\left(\frac{\pi t}{rT}\right) \right) & (0 \leq t \leq rT) \\ V_D = \frac{2rV_0}{\pi} & (rT \leq t \leq T) \end{cases} \quad (5)$$

式中,  $T$  为周期,  $t$  为时间,  $r$  为高电压占空比,  $V_0$  为正弦峰峰值。

### 1.2 现有(近似)的离子迁移率系数求解

为了获得简单结构的解, 现有的理论做了以下近似:

- (1) 非线性函数在低场下忽略不计。
- (2) 非线性函数完全由分离电场决定, 与补偿电场无关。

根据上面两个假设, 式(4)可推导出近似下的求解方程

$$V_{C0} + \frac{\alpha_2}{TN^2} \int_0^T V_D^3 dt + \frac{\alpha_4}{TN^4} \int_0^T V_D^5 dt = 0 \quad (6)$$

### 1.3 严格的离子迁移率系数求解(本工作)

谱图峰位置理论在对谱图峰位置进行描述时, 做了两个假设, 这两个假设在低场条件下具有一定的适用性, 但是在高场条件下, 忽略了补偿电场的影响, 会带来一定的误差, 在谱图峰补偿电压  $V_{C0}$  偏离零点较远时尤为突出。下面去掉这两个假设, 对谱图峰  $V_{C0}$  即离子自由通过迁移管时的补偿电压进行严格求解。

将式(5)代入式(4), 整理可得

$$\begin{aligned} & \frac{V_{C0}}{d} - \frac{\alpha_2}{N^2} \left( \frac{V_0}{\pi d} \right)^3 \left[ -8 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^3 r^3 + 24 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^2 r^3 \right. \\ & \quad \left. - 3 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right) \pi^2 r^2 + \frac{4}{3} \pi^2 r \right] \\ & - \frac{\alpha_4}{N^4} \left( \frac{V_0}{\pi d} \right)^5 \left[ -32 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^5 r^5 + 160 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^4 r^5 \right. \\ & \quad \left. - 40 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^3 \pi^2 r^4 + \frac{160}{3} \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^2 \pi^2 r^3 \right. \\ & \quad \left. - \frac{15}{4} \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right) \pi^4 r^2 + \frac{16}{15} \pi^4 r \right] \\ & = 0 \end{aligned} \quad (7)$$

该方程反映了补偿电压  $V_{C0}$  与非线性函数二阶系数  $\alpha_2$ ，四阶系数  $\alpha_4$ ，分离电压  $V_0$ ，离子迁移管电极间距  $d$  等因素的制约关系。因离子迁移管的气体分子密度  $N$  与温度  $T_A$ ，压强  $p$  相关： $N=268.7(p/p_0)[273/(273+T_A)]$ ，因此方程变为

$$\begin{aligned} & \frac{V_{C0}}{d} - \frac{\alpha_2}{268.7^2} \left( \frac{273+T_A}{273} \right)^2 \left( \frac{p_0}{p} \right)^2 \left( \frac{V_0}{\pi d} \right)^3 \times \\ & \left[ -8 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^3 r^3 + 24 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^2 r^3 \right. \\ & \left. - 3 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right) \pi^2 r^2 + \frac{4}{3} \pi^2 r \right] \\ & - \frac{\alpha_4}{268.7^4} \left( \frac{273+T_A}{273} \right)^4 \left( \frac{p_0}{p} \right)^4 \left( \frac{V_0}{\pi d} \right)^5 \times \\ & \left[ -32 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^5 r^5 + 160 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^4 r^5 \right. \\ & \left. - 40 \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^3 \pi^2 r^4 + \frac{160}{3} \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right)^2 \pi^2 r^3 \right. \\ & \left. - \frac{15}{4} \left( 1 - \frac{\pi V_{C0}}{2rV_0} \right) \pi^4 r^2 + \frac{16}{15} \pi^4 r \right] = 0 \quad (8) \end{aligned}$$

该方程即 FAIMS 谱图峰位置  $V_{C0}$  的严格求解方程。其中， $V_0$  和  $r$  由分离电压决定， $d$  和  $T_A$  为条件参数。单个方程无法求解二阶、四阶两个系数，至少需要获得两个不同分离电压下的谱图峰位置方程。为了求得更高精度的二阶、四阶系数，通过更多的分离电压变化获得多个方程，利用最小二乘法获得准确的二阶、四阶系数，进而求出该物质离子准确的非线性函数。

## 2 实验部分

### 2.1 实验对象

实验对象为乙醇、间二甲苯和正丁醇三种典型的醇和苯类物质。样品试剂采用国药集团化学试剂有限公司(上海)生产的纯度不低于 99.7% 的分析纯。载气采用南京上元工业气体厂生产的纯度为 99.99% 的高纯氮气。

### 2.2 实验条件

电离源采用对应波长为 10.6eV 紫外灯光源，谱图相对简单，易于分析和样品种类的识别<sup>[20]</sup>。离子流强度信号检测采用自制的精度为 0.1 pA 的弱电流信号检测电路。

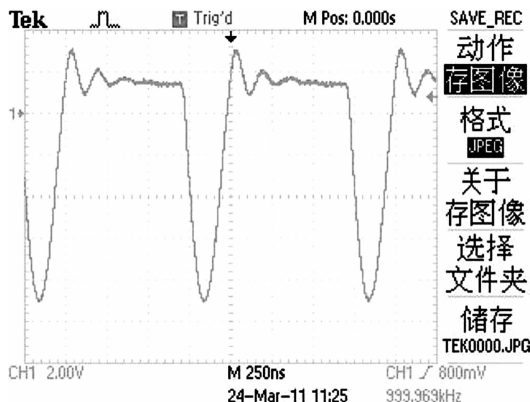


Fig. 2 Half-sinusoidal voltage waveform diagram

分离电压为离子迁移管高效运行的关键参数。本实验所采用的分离电压电路产生的半正弦叠加波形如图 2 所示。

周期  $T=1 \times 10^{-6}$  s，即频率  $f=1$  MHz，高场占空比  $r=0.2$ ，产生的分离电压最大值  $V_f=1800$  V，与峰峰值  $V_0$  关系为

$$V_f = \left( 1 - \frac{2r}{\pi} \right) V_0 \approx 0.873 V_0 \Rightarrow V_0 = 1.15 V_f \quad (9)$$

实验室自制的 FAIMS 仪器实验工作参数如表 1 所示。

Table 1 Experimental parameters

补偿电压 $V_{C0}/V$	-30~30
分离电压峰峰值 $V_0/V$	500~2000
迁移管电极间距 $d/cm$	0.045
迁移管工作温度 $t/^\circ C$	27
分离电压占空比 $r$	0.2
载气流速 $Q/(L \cdot h^{-1})$	290

由于 FAIMS 迁移管为平板型，平板型层流在流体力学中为典型的库埃特流，其压强在水平方向上的梯度恒定且满足如下关系<sup>[21]</sup>

$$\frac{dp}{dx} = -\frac{12\mu Q}{d^3 h} \quad (10)$$

式中，压强梯度为定值， $\mu$  为粘滞系数。氮气的粘滞系数  $\mu=2 \times 10^{-5}$  Pa·S，代入式(10)求出

$$p \approx p_0 + 8 \times 10^6 Q \Delta x \quad (11)$$

离子迁移管入口到出口处的间距  $\Delta x=4$  cm， $Q=290$  L·h<sup>-1</sup>， $p_0=1.01 \times 10^5$  Pa。因此，离子迁移管压强比为

$$p_0/p = 0.97 \quad (12)$$

将表 1 中的条件参数和式(12)分别代入式(6)和式(8)，可得现有求解方法下的近似方程(13)和严格意义下的方程(14)。

$$V_{C0} - 3.161 \times 10^{-4} V_0^3 \alpha_2 - 1.416 \times 10^{-6} V_0^5 \alpha_4 = 0 \quad (13)$$

$$V_{C0} - 2.4 \times 10^{-4} V_0^3 \alpha_2$$

$$\left[ -0.064 \left( 1 - 7.85 \frac{V_{C0}}{V_0} \right)^3 + 0.192 \left( 1 - 7.85 \frac{V_{C0}}{V_0} \right)^2 - 1.183 \left( 1 - 7.85 \frac{V_{C0}}{V_0} \right) + 2.629 \right. \\ \left. - 1.8 \times 10^{-7} V_0^3 \alpha_4 \right]$$

$$\left[ -0.010 24 \left( 1 - 7.85 \frac{V_{C0}}{V_0} \right)^5 + 0.051 2 \left( 1 - 7.85 \frac{V_{C0}}{V_0} \right)^4 - 0.631 \left( 1 - 7.85 \frac{V_{C0}}{V_0} \right)^3 + 4.207 \left( 1 - 7.85 \frac{V_{C0}}{V_0} \right)^2 - 14.581 \left( 1 - 7.85 \frac{V_{C0}}{V_0} \right) + 20.738 \right] \\ = 0 \quad (14)$$

### 2.3 实验结果

对乙醇、间二甲苯和正丁醇三种物质进行 FAIMS 检测，得到不同分离电压  $V_f$  下的 3 幅 FAIMS 谱图。横坐标为补偿电压  $V_c$ ，纵坐标为离子流强度  $I$ 。图 3—图 5 依次是乙醇、间二甲苯和正丁醇的 FAIMS 谱图。

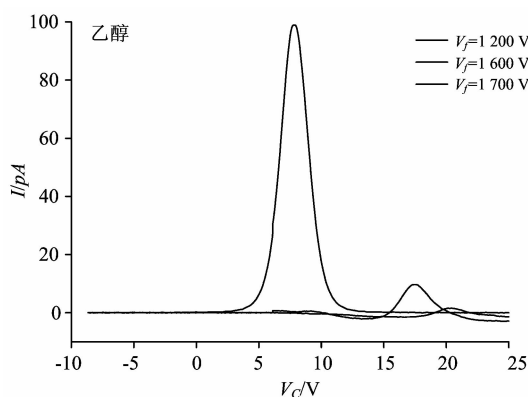


Fig. 3 FAIMS spectra of ethanol

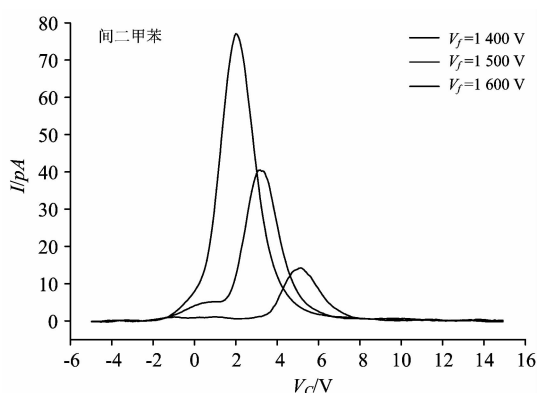


Fig. 4 FAIMS spectra of metaxylene

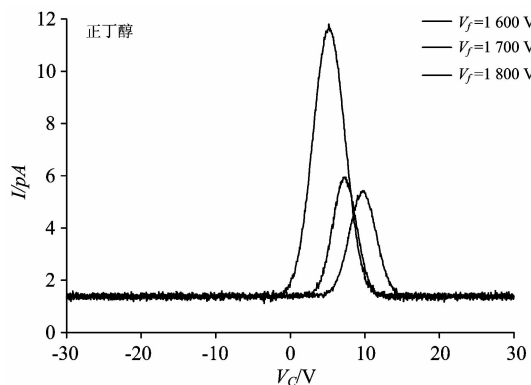


Fig. 5 FAIMS spectra of n-butanol

### 3 结果与讨论

#### 3.1 误差分析

根据图 3—图 5 峰型可知乙醇、间二甲苯和正丁醇三种物质不同分离电压下的最大峰位置横坐标, 即补偿电压值  $V_{C0}$ 。表 2 显示的是乙醇、间二甲苯、正丁醇三种物质的三组  $(V_0, V_{C0}) = (1.15V_f, V_{C0})$  值, 单位为 V。

将上面三种物质的  $(V_0, V_{C0})$  值分别代入式 (13) 和式 (14) 进行最小二乘法拟合。表 3 显示的是乙醇、间二甲苯和正丁醇三种物质拟合后的均方误差。由表中的数据可以看

出, 利用本文的求解方法拟合三种物质的均方误差均小于现有的求解方法, 说明利用本工作的严格求解算法求得的  $\alpha_2$  和  $\alpha_4$  更准确, 因此, 求出的非线性函数也更加准确, 有助于提高离子识别的准确率。

Table 2 The peak position coordinates of spectra

被测物质	峰值坐标 $(V_0, V_{C0})$		
乙醇	(1 380, 7.76)	(1 840, 17.45)	(1 955, 20.3)
间二甲苯	(1 610, 2.03)	(1 725, 3.23)	(1 840, 5.11)
正丁醇	(1 840, 6.75)	(1 955, 7.76)	(2 070, 10.16)

Table 3 The results of mean-square error

求解方法	被测物质		
	乙醇	间二甲苯	正丁醇
以往的求解(近似)	0.084 542 6	0.043 925 3	0.260 248
本文的求解(严格)	0.077 744 7	0.041 179 2	0.259 388

表 4 显示的是乙醇、间二甲苯、正丁醇三种物质在近似和严格意义下求解的二阶、四阶系数:  $(\alpha_2, \alpha_4)$  以及二者相对误差大小。其中,  $\alpha_2$  的单位为  $10^{-6}$  Td,  $\alpha_4$  的单位为  $10^{-10}$  Td。表中可以看出两种方法所求的  $\alpha_2$  和  $\alpha_4$  差异很明显, 近似方法求出的系数误差较大, 表明本求解方法优于现有近似意义下的求解方法。

Table 4 The results of second and fourth series coefficient

求解方法	被测物质		
	乙醇	间二甲苯	正丁醇
现有的求解(近似)	(10.2, -0.918)	(2.35, 0.637)	(-2.00, 3.02)
本文的求解(严格)	(8.44, -0.872)	(2.01, 0.454)	(-1.58, 2.34)
近似值的相对误差	(21%, 5%)	(17%, 40%)	(27%, 29%)

#### 3.2 离子迁移率非线性变化函数

离子迁移率非线性变化函数直接反映出该离子的高场特性, 一般表示为

$$\alpha_{(E/N)} = \alpha_2 (E/N)^2 + \alpha_4 (E/N)^4 \quad (15)$$

将表 4 中第二行数据  $(\alpha_2, \alpha_4)$  值代入式 (15) 得出严格意义求解下的乙醇、间二甲苯和正丁醇三种物质的离子迁移率非线性函数方程, 如表 5 所示。根据求出的非线性函数可绘制出三种被检测物质的相应的特征曲线, 如图 6 所示。

Table 5 Three nonlinear functions of ion mobility

乙醇	$\alpha_{(E/N)} = 8.44 \times 10^{-6} (E/N)^2 - 0.872 \times 10^{-10} (E/N)^4$
间二甲苯	$\alpha_{(E/N)} = 2.01 \times 10^{-6} (E/N)^2 - 0.454 \times 10^{-10} (E/N)^4$
正丁醇	$\alpha_{(E/N)} = -1.58 \times 10^{-6} (E/N)^2 - 2.34 \times 10^{-10} (E/N)^4$

图 6 中的横轴为电场与载气密度的比值, 该值与分离电压峰峰值成正比。根据本工作条件参数, 当  $E/N = 100$  Td 时, 对应的分离电压峰峰值约为 1 200 V, 实验中的最高分离电压峰峰值可达 2 000 V, 即  $E/N$  最高可达 160 Td。

从图 6 可以看出, 三种物质离子都有其独特的非线性函

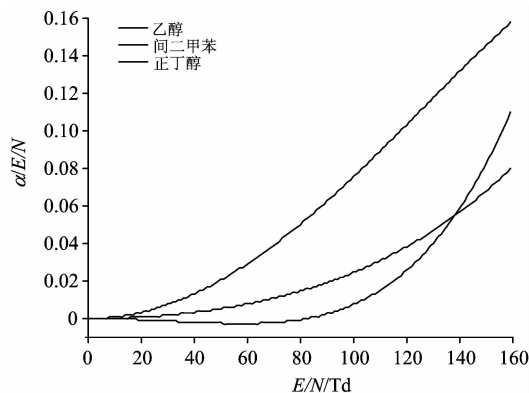


Fig. 6 The characteristic curves of three non-linear functions of ion mobility

数变化规律。理论上,非线性函数之间的差值越大,则分离效果越明显,而非线性函数的差值对应于图 6 中的纵坐标。当  $E/N < 50$  Td 时,三种物质非线性函数变化较小,即三种物质在低电场中的迁移率接近<sup>[22]</sup>;当  $E/N > 70$  Td 时,三物质开始有明显的分离。一般情况下, $E/N$  越大,则分离效果

越明显,但是当  $E/N$  接近 200 Td 时,会导致气体击穿放电,考虑安全阈值,本工作选择最大的  $E/N$  值为 160 Td。

当  $E/N > 80$  Td 时,三种物质非线性变化函数随  $E/N$  增大且单调递增,从图 6 中可以找出物质分离的最佳条件,即  $E/N = 95$  Td,分离效果最明显。由上可知,求解的 3 种物质非线性二阶、四阶系数越准确,相应的离子迁移率非线性变化曲线越准确,则求出的最佳分离电压越准确,有助于提高 FAIMS 的分辨率与识别率。

## 4 结 论

给出了半正弦分离电压下的非线性函数严格求解方法。通过乙醇、间二甲苯和正丁醇三种典型的醇和苯类谱图验证了利用该方法求得的非线性二阶、四阶系数比现有的求解方法准确,该系数对应的离子迁移率非线性函数也更加准确,与实验数据吻合程度更高。因此,给出的非线性函数严格求解方法,有助于 FAIMS 谱图解析和建立更加准确的谱图库,进而提高 FAIMS 的检测分辨率,为 FAIMS 在广谱痕量化学物质检测方面奠定谱图解析基础。

## References

- [1] Cohen M J, Karasek F W. J. Chromatogr. Sci., 1970, 8(6): 330.
- [2] Silemann S, Horvath T, Teepe M, et al. Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes, 2002, 5: 19.
- [3] Eiceman G A, Schmidt H, Rodriguez J E, et al. Instrum. Sci. Technol., 2007, 35(4): 365.
- [4] Borsdorf H, Nazarov E G, Miller R A. Talanta, 2007, 71(4): 1804.
- [5] Canterbury J D, Yi X H, Hoopmann M R, et al. Anal. Chem., 2008, 80(18): 6888.
- [6] Drexler D M, Garrett T J, Cantone J L, et al. J. Pharmacol. Toxicol. Methods, 2007, 55(3): 279.
- [7] Hogan C J, de la Mora J F. PCCP, 2009, 11(36): 8079.
- [8] Eells B, Barnett D A, Purves R W, et al. J. Environ. Monitng, 2000, 2(5): 393.
- [9] Kolakowski B M, Mester Z. Analyst, 2007, 132(9): 842.
- [10] Hatsis P, Kapron J T. Rapid Commun. Mass Spectrom., 2008, 22(5): 735.
- [11] CHEN Chi-lai, KONG De-yi, WANG Xiao-hua, et al(陈池来, 孔德义, 汪小华, 等). Chin. J. Anal. Chem. (分析化学), 2011, 24(3): 325.
- [12] LI Zhuang, LIN Bing-tao, KONG De-yi, et al(李 庄, 林丙涛, 孔德义, 等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2010, 31(1): 12.
- [13] Buryakov I A, Krylov E V, Nazarov E G, et al. Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes, 1993, 128(3): 143.
- [14] Shvartsburg A A, Smith R D. J. Am. Soc. Mass Spectrom., 2008, 19(9): 1286.
- [15] Viehland L A, Guevremont R, Purves R W, et al. Int. J. Mass Spectrom., 2000, 197: 123.
- [16] Handy R, Barnett D A, Purves R W, et al. J. Anal. At. Spectrom., 2000, 15(8): 907.
- [17] Guevremont R, Barnett D A, Purves R W, et al. J. Chem. Phys., 2001, 114(23): 10270.
- [18] Buryakov I A. Tech. Phys., 2004, 49(8): 967.
- [19] Shvartsburg A A, Tang K, Smith R D. J. Am. Soc. Mass Spectrom., 2005, 16(1): 2.
- [20] SHI Ying-guo, SHAO Shi-yong, LI An-lin, et al(时迎国, 劭士勇, 李安林, 等). Chin. J. Anal. Chem. (分析化学), 2006, 34(9): 1353.
- [21] LIN Bing-tao, CHEN Chi-lai, KONG De-yi, et al(林丙涛, 陈池来, 孔德义, 等). Chin. J. Anal. Chem. (分析化学), 2010, 38(7): 1027.
- [22] Bell S, Nazarov E, Wang Y F, et al. Anal. Chem. Acta, 1999, 394(2-3): 121.

## The Solution of Nonlinear Function of Ion Mobility Based on FAIMS Spectrum Peak Position

WANG Dian-ling<sup>1, 2</sup>, CHEN Chi-lai<sup>1\*</sup>, ZHAO Cong<sup>1, 2</sup>, GAO Jun<sup>1</sup>, KONG De-yi<sup>1</sup>, YOU Hui<sup>1</sup>, Juergen Brugger<sup>3</sup>

1. State Key Laboratory of Transducer Technology, Institute of Intelligent Machines, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China

2. Department of Automation, University of Science and Technology of China, Hefei 230027, China

3. Microsystems Laboratory, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL), Lausanne, Switzerland

**Abstract** FAIMS's ion separation mechanism is based on analyte's characteristic nonlinear relationship between its ion mobility and applied electric field strength. Present characterization methods for this nonlinear relationship are based on precarious assumptions which incur substantial errors under many circumstances. A rigorous method for solving the second and fourth Taylor series coefficient of this relationship based on dispersion voltage value (assuming half-sinusoidal waveform) and associated compensation voltage value of spectrum peak is presented, alongside with rigorous analytical functions. FAIMS spectrums were obtained for ethanol, metaxylene and n-butanol using custom-built FAIMS spectrometer, and corresponding second and fourth Taylor series coefficients were obtained with the proposed method. Evaluation shows that this method substantially reduces the RMS error between interpolated and measured peak compensation voltage values under different dispersion voltages, confirming its superiority over present methods. This rigorous method would help improve spectral resolutions of FAIMS spectrometer, facilitating high precision FAIMS spectrum database construction and accurate analyte discrimination.

**Keywords** Nonlinear function of ion mobility; FAIMS spectrum; Second and fourth coefficients

(Received Feb. 12, 2012; accepted Apr. 20, 2012)

\* Corresponding author