

空气高压放电离子产物在线监测质谱平台的研制及应用

王晨^{1,2}, 杨明², 蒋吉春², 曾敏³, 杨翠霞³, 唐天宇³, 陈新厂³,
陈明丽¹, 花磊², 李海洋²

(1. 东北大学理学院, 辽宁 沈阳 110004; 2. 中国科学院大连化学物理研究所, 辽宁省质谱技术与仪器重点实验室,
辽宁 大连 116000; 3. 广东美的制冷设备有限公司, 广东 佛山 528000)

摘要: 本文研制了一台空气高压放电离子产物在线监测质谱平台, 包括气体发生装置、三维可调放电室及高分辨率负离子飞行时间质谱仪, 实现了放电产物的在线检测与机理研究。通过优化缓冲气体种类, 显著提升了 O^- 、 O_2^- 等低质荷比离子的传输效率。实验表明, 采用轻质氮气作为缓冲气体时, 实现了 O^- 的检测, 并且 O_2^- 的检测灵敏度提高了 7 倍; 通过优化射频四极杆峰峰值电压至 270 V, 有效缓解了质量歧视效应。应用该平台考察环境相对湿度对放电产物的影响, 发现随着湿度升高(相对湿度 10%~90%), O_2^- 信号强度下降, 而水团簇离子 $O_2^-(H_2O)_n$ ($n=1\sim 9$) 的信号强度呈先增后降的趋势, 其中大质量团簇离子信号峰值对应更高的湿度环境。电极材料实验表明, 不同电极材料(304/316 不锈钢、钼)的放电产物种类及分布存在显著差异。本研究可为空气负离子发生器的性能优化及环境影响评估提供技术支持。

关键词: 飞行时间质谱(TOF MS); 空气负离子(NAIs); 电晕放电

中图分类号: O657.63 文献标志码: A 文章编号: 1004-2997(2026)01-0001-08

DOI: 10.7538/zpxb.2025.0035

CSTR: 32365.14.zpxb.2025.0035

Development and Application of a Mass Spectrometry Platform for On-line Monitoring of Ion Products Generated by High-Voltage Air Discharge

WANG Chen^{1,2}, YANG Ming², JIANG Ji-chun², ZENG Min³, YANG Cui-xia³, TANG Tian-yu³,
CHEN Xin-chang³, CHEN Ming-li¹, HUA Lei², LI Hai-yang²

(1. College of Science, Northeastern University, Shenyang 110004, China; 2. Liaoning Key Laboratory of Mass Spectrometry Technology and Instruments, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116000, China; 3. Guangdong Midea Refrigeration Equipment Co., Ltd., Foshan 528000, China)

Abstract: Indoor air pollution poses significant health risks due to particulate matter (PM) and gaseous pollutants. Air negative ions (NAIs) generated by high-voltage discharge can effectively remove PM, but require precise monitoring to optimize performance and assess environmental impacts. However, the existing monitor methods like ion counters and ion mobility spectrometry lack comprehensive compositional analysis. This study developed an online mass spectrometry platform to monitor ion products from air discharge, addressing challenges in detecting low mass-to-charge ratio

(m/z) ions such as O^- and O_2^- . The platform integrated a gas generator, adjustable discharge chamber, high-resolution negative ion time-of-flight mass spectrometry (TOF MS). The key optimizations included buffer gas selection and radiofrequency (RF) quadrupole voltage adjustment. Using helium as the buffer gas enhanced ion transmission efficiency, enabling O^- detection and increasing O_2^- sensitivity by 7-fold. Optimizing RF peak-to-peak voltage to 270 V mitigated mass discrimination effect. Further experiments revealed humidity-dependent ion dynamics. O_2^- intensity decreases with rising relative humidity (10%-90%), while the intensity of $O_2^-(H_2O)_n$ clusters ($n=1-9$) initially increases and then declines, with larger clusters peaking at higher humidity. Electrode material (304/316 stainless steel vs. molybdenum) comparison experiment showed that stainless steel generates more abundant ions, including harmful species like O_3^- and NO_2^- , while molybdenum minimizes these byproducts. This platform provides critical insights into NAIs generation mechanisms and environmental interactions. The findings guide electrode material selection and operational parameter optimization for efficient air purification with reduced secondary pollutant emissions, and also can advance NAIs technology for practical applications in indoor air quality management.

Key words: time-of-flight mass spectrometry (TOF MS); air negative ions (NAIs); corona discharge

室内空气污染物主要包括颗粒物(PM, 如PM2.5等)、气态污染物(如一氧化碳、二氧化氮、甲醛、苯等, 通常来源于装饰材料和家具)及细菌等微生物, 长时间暴露在室内空气质量较差的环境会对人体健康造成严重威胁^[1-2]。其中, PM2.5因粒径细小, 易通过肺部进入人体^[3-4]; 气态污染物则会对人体的呼吸系统、神经系统和免疫系统造成损害, 并可能诱发癌症。因此, 通过空气净化技术降低室内污染物浓度, 对于改善室内空气质量、减少健康风险和环境危害具有重要意义^[5-7]。多项研究表明^[8-10], 空气负离子(NAIs)在去除PM方面具有较高的效率。NAIs由负离子发生器通过高压电极释放电子并结合空气分子所产生, 这些负离子能吸附空气中的PM颗粒, 通过增加其质量来加速沉降^[11-14]。此外, NAIs可以在室温下活化多种气态污染物分子, 促进气态污染物分解为无害的二氧化碳和水。然而, NAIs发生器的运行性能易受环境气体成分、温湿度等条件及工作参数的影响^[15], 且其工作过程中可能伴随着臭氧和氮氧化物的生成。但NAIs改善室内空气质量的机制尚不完全明确, 因此, 精准检测放电生成离子对于全面评估其性能和环境影响具有重要意义。

目前, 常用的NAIs检测方法有空气离子计数器^[16-17]、离子迁移谱法(IMS)^[18-20]和质谱法(MS)^[21]。其中, 前2种方法仅能提供离子强度

及较少的组分信息, 无法对NAIs组成进行全面鉴定, 难以用于NAIs的产生机理研究和过程调控; 质谱法是一种通过测量离子质荷比(m/z)进行分析的技术, 具有灵敏度高、分析速度快、分子质量精确测定及多组分定性定量检测等特点, 已逐步成为鉴定和分析NAIs的重要手段。NAIs携带电荷, 可直接进入质谱仪检测, 无需通过质谱离子源进行额外电离^[22]。将大气压下产生的离子引入质谱仪的高真空质量分析器普遍采用多级真空差分设计^[23-24], 通过小孔逐级限流以维持真空梯度, 但这种设计导致离子总体传输效率较低。因此, 通常在质谱仪中引入射频(RF)多极杆等离子聚焦装置。该装置通过射频场约束离子, 使其与缓冲气体分子在反复碰撞的过程中实现离子的能量“冷却”和空间会聚, 从而有效提高离子传输效率, 提升质谱检测灵敏度。然而, 射频聚焦装置往往存在质量歧视效应, 限制了对某些低 m/z 离子的传输效率, 特别是 O^- 、 O_2^- 等在空气放电中常见的低 m/z 离子受到的影响更为显著。射频离子传输和聚焦主要基于缓冲气体分子通过碰撞实现离子动能的“冷却”和射频电场的径向聚焦作用^[25-26]这2个核心机制。因此, 通过调控缓冲气体种类和射频电场参数, 可有效改善低 m/z 离子的传输效率和检测效率。

本文系统介绍了一款自主研发的空气高压

放电离子产物在线监测质谱平台, 详细阐述其结构组成、各功能模块作用及仪器性能参数。针对空气放电过程中产生的 O^- 和 O_2^- 等低 m/z 离子, 研究了缓冲气体种类和射频电压参数对其传输效率的影响。另外, 使用该质谱平台研究不同相对湿度环境下空气放电离子产物的变化规律, 并对比分析不同放电电极材料对放电离子产物种类和分布的影响。

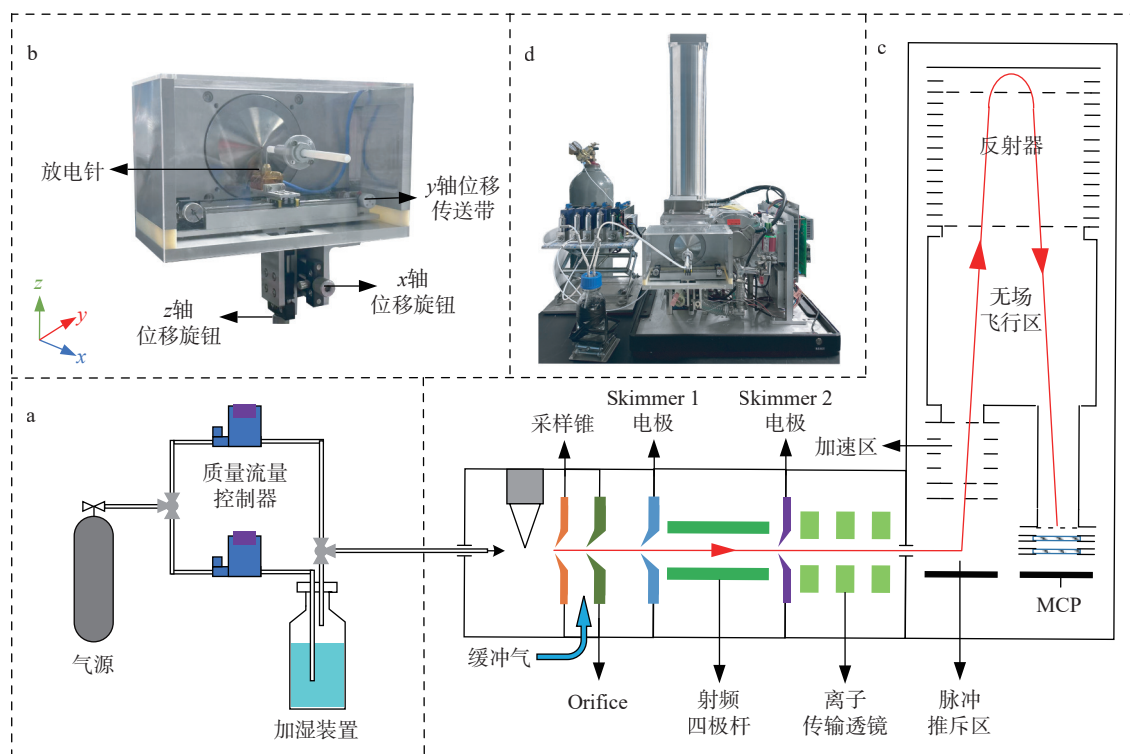
1 实验部分

1.1 空气放电离子产物在线监测质谱平台

本实验室自主研制的空气放电离子产物在线监测质谱平台的结构示意图及实物图示于图1。该平台分为气体发生装置、放电室、负离子飞行时间质谱仪3个部分。平台工作时, 气体发生装置产生具有特定湿度和流速的气体组分, 经气体传输管路进入放电室, 并与安装在三维位移装置上的放电针或放电模块接触, 放电产生的离子由质谱采样锥引入负离子飞行时间质谱仪进行检测。

1.1.1 气体发生装置 气体发生装置示于图1a, 由气源、质量流量控制器和加湿装置组成, 用于提供实验所需的气体组分。不同种类的气体由气体钢瓶提供, 并通过安装在气源出口的质量流量控制器对气体流速进行精确调节, 控制范围为 $0\sim 5\ 000\ \text{mL/min}$ 。通过调控进入加湿装置的气体与干燥气体的混合比例获得气体湿度, 相对湿度控制范围为 $10\%\sim 90\%$ 。

1.1.2 放电室 为便于精准调节放电针位置, 设计了1个集成三维位移装置的半封闭放电室, 示于图1b。放电室的上盖和前面板采用有机玻璃材料制成, 可用于观察放电针的放电情况; 其余四面由铝合金材料制成, 用于支撑三维位移装置。三维位移装置通过2片直角铝合金板与滑块拼接为一体, 使用2个旋钮实现 x 轴和 z 轴位移, 用来调节放电针与进样锥前后和上下之间的距离, 最大位移量为 $10\ \text{mm}$; 进样锥与放电针之间左右的距离则通过 y 轴位移传送带实现, 最大位移量为 $110\ \text{mm}$ 。放电室采用半封闭式设计, 可有效避免环境气流干扰, 确保实验的准确性和



注: a. 气体发生装置; b. 放电室; c. 负离子飞行时间质谱仪; d. 实物图

图1 空气高压放电离子产物在线监测质谱平台的结构示意图和实物图

Fig. 1 Schematic diagrams and physical diagram of a mass spectrometry platform for on-line monitoring of ion products generated by high-voltage air discharge

可重复性。

1.1.3 负离子飞行时间质谱仪 实验室自制的负离子飞行时间质谱仪示于图 1c, 由采样锥、Orifice 电极、离子传输系统及正交加速飞行时间(oaTOF)质量分析器组成。其中, 采样锥内径 2.5 mm, Orifice 电极的小孔内径 0.1 mm, 小孔之间距离 1.4 mm。缓冲气体从采样锥与 Orifice 电极之间引入, 使气体能够很好地覆盖 Orifice 上方区域, 同时部分气体可通过 Orifice 进入下方的离子传输系统, 起到碰撞气的作用。离子传输系统由 Skimmer 1 电极、射频四极杆、Skimmer 2 电极和静电单透镜组成, 用于将离子高效传输到质量分析器中。采样锥与 Orifice 之间的工作压强为大气压(1.01 MPa), Orifice 与 Skimmer 1 之间的工作压强为 50 Pa。射频四极杆由 4 根外径 12 mm、长 131 mm 的不锈钢杆平行排列构成, 由自制的射频电源驱动, 优化后的射频频率为 2 MHz。静电单透镜与射频四极杆之间通过孔径 2 mm 的 Skimmer 2 电极隔开, 进一步将离子准直为平行束, 并引导离子高效穿过尺寸 2 mm×20 mm 的狭缝进入质量分析器。质量分析器采用有网反射式结构, 离子在分析器中依次通过脉冲推斥区、加速区、无场飞行区和反射器, 最终被微通道板检测器(MCP)捕获产生电信号, 经高速数据采集卡(时间-数字转化器, TDC)转化后获得质谱图。TDC 采集卡的采样率为 1.25 GHz, 单张谱图的采集时间设置为 60 s。

离子传输系统和 oaTOF 质量分析器腔室由分流式涡轮分子泵(Leybold Vacuum GmbH TW

220/150/15)进行差分抽气, 射频四极杆腔室、静电透镜腔室和质量分析器腔室的抽气速率分别为 15、150、220 L/s。这种配置能够在质量分析器区域实现高真空(约 5×10^{-5} Pa), 同时将射频四极杆腔室和静电透镜腔室的压强分别保持在约 5 Pa 和 1×10^{-3} Pa。

1.2 主要材料与试剂

氦气(99.999%)、压缩空气: 由中国科学院大连化学物理研究所提供; 硝酸钾、二苯胺-4-磺酸钠: 均为分析纯, 上海阿拉丁公司产品; 三氟乙酸铵(分析纯): 上海玻尔化学试剂有限公司产品; 甲醇(分析纯): 上海沪试化工有限公司产品; 纯净水: 杭州娃哈哈公司产品。实验使用甲醇-纯净水(1:1, V/V)作为溶剂, 将硝酸钾、三氟乙酸铵和二苯胺-4-磺酸钠稀释制得 40 $\mu\text{mol/L}$ 混合溶液。

304 不锈钢、316 不锈钢、钼材料金属放电针: 英国 GGB 公司产品。

2 结果与讨论

2.1 仪器性能测试

实验中, 采用电喷雾电离(ESI)源进行最初的质谱条件优化和性能测试。配制浓度 40 $\mu\text{mol/L}$ 硝酸钾、三氟乙酸铵和二苯胺-4-磺酸钠的混合溶液, 用于仪器信号的优化调谐。ESI 源工作电压设为 -5 000 V, 加热温度 150 $^{\circ}\text{C}$, 反吹气体为压缩空气, 流速 1 L/min, 单张谱图采集时间 5 s, 结果示于图 2a。可见, 40 $\mu\text{mol/L}$ 硝酸钾检测到的硝酸根(NO_3^-)质谱峰信号强度为 22 819, 信噪比为 3 259; 在分辨率方面, 仪器在 m/z 62 处半峰宽

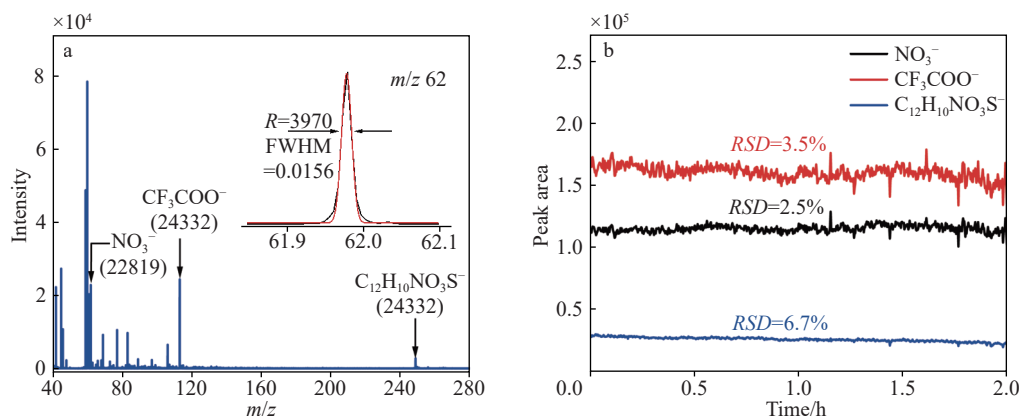


图 2 负离子模式下, 混合溶液的 ESI 质谱图和 m/z 62 处分辨率(a), 以及仪器稳定性监测图(b)

Fig. 2 ESI mass spectrum of the mixed solution and resolution at m/z 62 under negative ion mode (a), monitoring chart of instrument stability (b)

(Δm)为 0.015 6, 对应分辨率达 3 970。在长达 2 h 连续监测模式下对仪器的稳定性进行考察, NO_3^- 、 CF_3COO^- 、 $\text{C}_{12}\text{H}_{12}\text{NO}_3\text{S}^-$ 3 种离子信号强度的相对标准偏差(RSD)均在 7%以内, 表明仪器的稳定性良好, 示于图 2b。

2.2 实验参数优化

2.2.1 缓冲气体种类对离子传输的作用

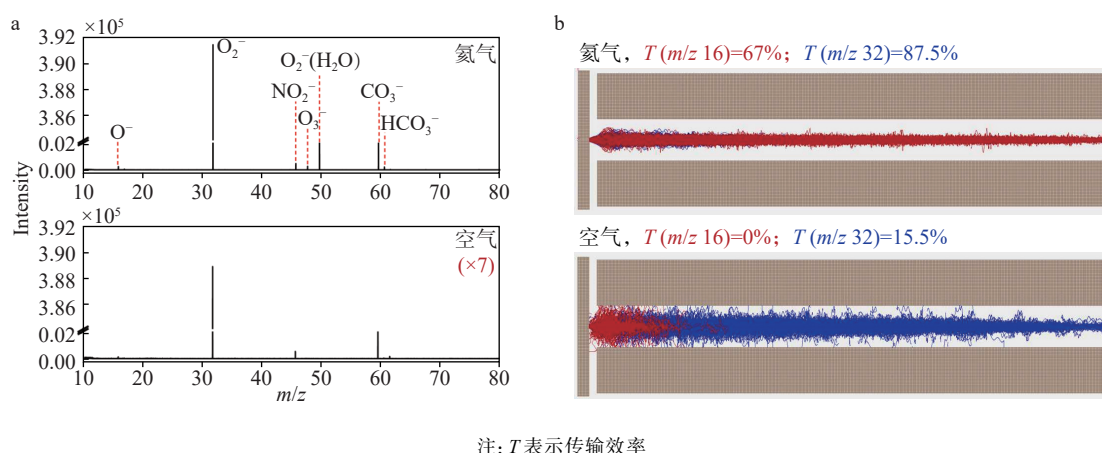
为提升 O^- 、 O_2^- 等低 m/z 离子的传输效率, 对引入射频四极杆区域的缓冲气体种类进行优化, 分别考察氦气(99.999%)和空气对低 m/z 离子传输的影响, 缓冲气体流速为 200 mL/min。实验中, 使用 316 不锈钢放电针, 放电电压 $-5\ 000\ \text{V}$, 在流速 1 000 mL/min、相对湿度 50%、温度 $25\ ^\circ\text{C}$ 空气环境中放电产生负离子, 2 种缓冲气体的质谱图示于图 3a。结果显示, 空气放电主要产生 O^- 、 O_2^- 、 NO_2^- 、 CO_3^- 、 HCO_3^- 离子。当使用压缩空气作为缓冲气体时, O^- 离子信号几乎不可检出, O_2^- 离子信号强度仅为 55 549; 而使用氦气作为缓冲气体时, 低 m/z 的 O^- 和 O_2^- 2 种离子信号强度分别达 248、391 404。总体来看, 使用氦气作为缓冲气在提高低 m/z 离子的传输效率和检测灵敏度方面具有显著优势, 同时也在一定程度上对高 m/z 离子产生提升效果。

为探究低 m/z 离子传输效率的差异, 使用 SIMION 8.1 仿真软件分别对 O^- 和 O_2^- 2 种离子在氦气和压缩空气作为缓冲气体条件下的射频四极杆区域运动轨迹进行模拟分析。在模拟实验中, 将射频四极杆区域气压设为 5 Pa, 射频频率 2 MHz, 峰峰值电压 212 V, 与实际工作气压和

电压参数保持一致。 O^- 和 O_2^- 的初始离子数量均设为 200 个, 初始位置设在 Orifice 处, 模拟 O^- 和 O_2^- 离子的飞行路径, 同时记录离子从四极杆出射的离子数量, 并计算传输效率, 示于图 3b。结果表明, 当选择氦气作为缓冲气体时, O^- 和 O_2^- 离子在射频四极杆区域内具有较好的聚焦效果, 传输效率分别达 67%、87.5%; 而使用压缩空气作为缓冲气体时, 离子的发散程度较大, O^- 离子无法通过, O_2^- 传输效率降低至 15.5%。与使用压缩空气相比, 使用氦气时, 2 种离子的传输效率显著提高, 这与实验结果相符。导致该现象的原因是: 对于 O^- 和 O_2^- 等低 m/z 离子而言, 在与质量比自身更大或相当的气体分子(如空气中的 N_2 和 O_2) 碰撞时, 会导致显著的动量转移, 造成离子运动轨迹发散, 难以有效会聚和传输; 而使用轻质量的氦气分子, 离子的能量变化在每次碰撞中相对较小, 有助于保持离子的平稳传输。

2.2.2 射频电压的影响

射频四极杆中离子的运动轨迹由其 m/z 和电场参数决定。低 m/z 离子的运动对电场微小变化更加敏感, 在传输过程中更易偏离理想轨迹, 导致传输效率降低, 从而引发低质量歧视效应。射频电压幅值是影响低 m/z 离子稳定传输的关键因素之一^[27-28]。本研究采用 316 不锈钢放电针, 在压缩空气环境中以 $-5\ 000\ \text{V}$ 放电电压进行实验, 并对射频四极杆施加不同峰峰值电压(V_{pp})进行优化, 实验重点分析低 m/z 的 O^- ($m/z\ 16$)、 O_2^- ($m/z\ 32$), 以及较高 m/z 的 CO_3^- ($m/z\ 60$) 3 种离子的变化规律, 以反映质量歧视效应的影响。3 种离子的相对信号强度



注: T 表示传输效率

图 3 使用不同缓冲气体的质谱图(a)和离子在四极杆运动轨迹 Simion 模拟图(b)

Fig. 3 Comparative mass spectra (a) and SIMION simulation of ion motion trajectories in the quadrupole (b) with different buffer gases

随 V_{p-p} 的变化趋势示于图4。当 V_{p-p} 在 60~420 V 范围内, O_2^- 和 CO_3^- 的信号强度随 V_{p-p} 增大逐渐升高; 而对于 O^- , 其相对信号强度在 V_{p-p} 为 210 V 时达到最大值, 然后随电压增加逐渐降低, 当 V_{p-p} 为 420 V 时, O^- 的信号强度几乎降至 0, 表明此时质量歧视效应显著。综合考虑, 最终将 V_{p-p} 设置为 270 V。

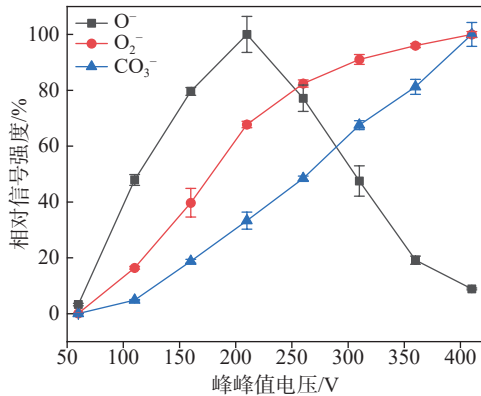


图4 O^- 、 O_2^- 和 CO_3^- 质谱峰信号强度随射频四极杆电压峰峰值的变化趋势

Fig. 4 Variation trends of O^- , O_2^- and CO_3^- signal intensities with peak-to-peak voltage of RF quadrupole

2.3 不同相对湿度空气放电离子产物检测

室内空气湿度处于动态变化, 不同湿度条件会显著影响负离子发生器或放电针的性能。为深入探究湿度变化对负离子产生过程的影响机制, 对不同湿度条件下气体放电产物进行检测。利用所研制的空气高压放电产物分析质谱平台, 在 316 不锈钢放电电压 -5 000 V、气体流速 1 000 mL/min、温度 25 °C 的条件下, 对经过加湿装置处理的不同湿度压缩空气进行分析, 观察 O_2^- 离子及其部分水团簇离子的变化情况, 示于图5。结果表明, O_2^- 离子的信号强度整体上随着相对湿度的增加而降低, 而 4 种水团簇离子 $O_2^-(H_2O)$ 、 $O_2^-(H_2O)_3$ 、 $O_2^-(H_2O)_6$ 和 $O_2^-(H_2O)_9$ 的信号强度则呈现先升高后降低的趋势, 且在相对湿度约 80% 时趋于平稳。值得注意的是, 不同水团簇离子的相对信号强度达到最大值时所对应的相对湿度存在差异, 即水团簇的质量越大, 其信号强度达到峰值时的相对湿度越高。

这是由于在相对湿度较高的环境中, 大量 O_2^- 离子会与空气中的水分子结合形成水团簇离子。随着湿度增加, O_2^- 离子结合的水分子数量不断增多, 从而生成结合更多水分子的团簇离

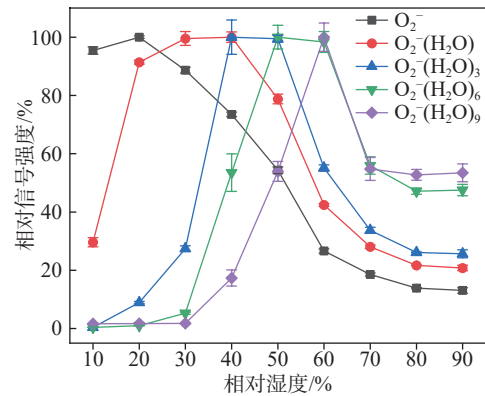


图5 不同离子的信号强度随相对湿度的变化趋势
Fig. 5 Variation trends of signal intensities for different ions with relative humidity

子。但大量存在的水分子导致自由电子数量相对减少, 使电子在电场中获得足够能量引发电离的概率降低^[29]。这一现象导致除结合水分子数量较多的团簇离子外, 其他离子的信号强度均有所下降。为了使气体发生电晕放电, 需要更高的电场强度, 即更高的电压。这表明, 气体湿度不仅显著影响负离子的信号强度, 还可能进一步影响空气净化效率。因此, 湿度条件在负离子产生与空气净化过程中的重要性不可忽视。

2.4 不同电极材料空气放电离子产物检测

本实验分别采用 304 不锈钢、316 不锈钢、钼 3 种电极材料制作放电针, 研究不同电极材料对放电产生的离子产物的影响。在放电电压 -5 000 V、气体流速 1 000 mL/min、相对湿度 50%、温度 25 °C 的压缩空气环境中, 经 3 种电极材料电晕放电产生的离子产物质谱图示于图6。可以看出, 在 m/z 0~140 范围内, 3 种电极材料放电均能检测到 O_2^- 、 O_3^- 、 CO_3^- 离子以及 $O_2^-(H_2O)$ 、 $O_2^-(H_2O)_2$ 等水团簇离子; 除 O_2^- 离子外, 304 和 316 不锈钢材料电极放电产生的离子种类和信号强度更丰富、更显著; 此外, 2 种不锈钢电极放电还产生了多种较大 m/z 的水团簇离子。值得注意的是, 钼电极材料放电过程中检测到的 O_3^- 和 NO_2^- 离子信号强度显著低于 2 种不锈钢电极, 而这 2 种离子被认为对人体健康具有潜在危害。研究表明^[30], 不同电晕放电材料在相同电晕放电条件下会显著影响产生的离子种类和浓度。根据气体放电的相关研究^[30-31], 金属电极材料的化学活性对气体电晕放电特性影响显著, 具有较高化学活性的金属材料表面电子更易参与电晕放电过程; 同时, 由不同材料放电形成的低

温等离子体具有不同的能量分布特性,从而影响负离子活性及其与周围物质的反应能力。这些差异进一步影响后续化学反应过程及最终产物的种类和浓度。由此可见,电极材料在电晕放电负离子生成过程中发挥着关键作用,深入了解材料特性对于优化负离子发生性能和安全性具有重要意义。

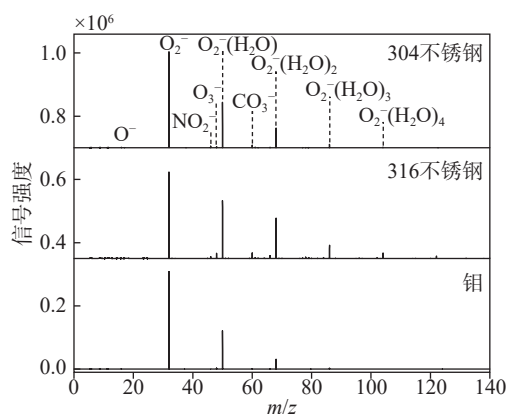


图6 304 不锈钢、316 不锈钢和钼电极空气放电离子产物质谱图

Fig. 6 Mass spectra of ion products from air discharge of 304 stainless steel, 316 stainless steel, and molybdenum electrodes

3 结论

本研究构建了空气高压放电离子产物在线检测质谱平台,考察了关键参数对离子传输效率及放电产物的影响机制。通过优化缓冲气体种类、射频四极杆峰峰值电压等条件,解决了传统方法低 m/z 离子传输效率低的技术难题,实现了 O^- 离子的检测,并且 O_2^- 的检测灵敏度提升了7倍。相对湿度影响实验表明, O_2^- 离子的信号强度随湿度增加呈线性下降,而 $O_2^-(H_2O)_n$ 团簇离子信号强度呈非线性响应,但在相对湿度80%时达到稳定状态。不同电极材料对比显示,316 不锈钢产生的 O_2^- 信号强度较钼电极提高了42%,并且前者产生的离子种类更丰富。该研究可为空气负离子产生技术的机理研究提供分析手段,为放电过程的物理化学变化研究提供实时、准确的数据,助力揭示放电机理规律,如产物生成动力学、反应路径等,完善理论模型和学术研究。

参考文献:

- [1] SHIUE A, HU S C. Contaminant particles removal by negative air ionic cleaner in industrial minienvironment for IC manufacturing processes[J]. Building and Environment, 2011, 46(8): 1 537-1 544.
- [2] GRINSHUPUN S A, MAINELIS G, TRUNOV M, ADHIKARI A, REPONEN T, WILLEKE K. Evaluation of ionic air purifiers for reducing aerosol exposure in confined indoor spaces[J]. Indoor Air, 2005, 15(4): 235-245.
- [3] COX J, ISIUGO K, RYAN P, GRINSHUPUN S A, YERMAKOV M, DESMOND C, JANDAROV R, VESPER S, ROSS J, CHILLRUD S, DANNEMILLER K, REPONEN T. Effectiveness of a portable air cleaner in removing aerosol particles in homes close to highways[J]. Indoor Air, 2018, 28(6): 818-827.
- [4] BUTZ A M, MATSUI E C, BREYSSE P, CURTIN-BROSNAN J, EGGLESTON P, DIETTE G, WILLIAMS D, YUAN J, BERNERT J T, RAND C. A randomized trial of air cleaners and a health coach to improve indoor air quality for inner-city children with asthma and secondhand smoke exposure[J]. Archives of Pediatrics & Adolescent Medicine, 2011, 165(8): 741-748.
- [5] IWAMA H, OHMIZO H, FURUTA S, OHMORI S, WATANABE K, KANEKO T, TSUTSUMI K. Inspired superoxide anions attenuate blood lactate concentrations in postoperative patients[J]. Critical Care Medicine, 2002, 30(6): 1 246-1 249.
- [6] RYUSHI T, KITA I, SAKURAI T, YASUMATSU M, ISOKAWA M, AIHARA Y, HAMA K. The effect of exposure to negative air ions on the recovery of physiological responses after moderate endurance exercise[J]. International Journal of Biometeorology, 1998, 41(3): 132-136.
- [7] WISZNIEWSKI A S A, WIELGOMAS B. Effects of air-ions on human circulatory indicators[J]. Polish Journal of Environmental Studies, 2014, 23(2): 521-531.
- [8] DANIELS S L. "On the ionization of air for removal of noxious effluvia" (Air ionization of indoor environments for control of volatile and particulate contaminants with nonthermal plasmas generated by dielectric-barrier discharge)[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2002, 30(4): 1 471-1 481.
- [9] PUSHPAWELA B, JAYARATNE R, NGUY A, MORAWSKA L. Efficiency of ionizers in removing airborne particles in indoor environments[J]. Journal of Electrostatics, 2017, 90: 79-84.
- [10] ZHAO X, LI Y, HUA T, JIANG P, YIN X, YU J, DING B. Low-resistance dual-purpose air filter releasing negative ions and effectively capturing PM2.5[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2017, 9(13): 12 054-

- 12 063.
- [11] LEE B U, YERMAKOV M, GRINSHPUN S A. Removal of fine and ultrafine particles from indoor air environments by the unipolar ion emission[J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(29): 4 815-4 823.
- [12] MAYYA Y S, SAPRA B K, KHAN A, SUNNY F. Aerosol removal by unipolar ionization in indoor environments[J]. *Journal of Aerosol Science*, 2004, 35(8): 923-941.
- [13] BERRY D, MAINELIS G, FENNELL D. Effect of an ionic air cleaner on indoor/outdoor particle ratios in a residential environment[J]. *Aerosol Science and Technology*, 2007, 41(3): 315-328.
- [14] QIU B, LI Q, HONG W, XING G. Characterization of the key material for elimination of PM2.5 particles in the atmosphere[J]. *Journal of Spectroscopy*, 2015(1): 472 019.
- [15] SUTTON H C. Superoxide and ozone production by corona discharge[J]. *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 1: Physical Chemistry in Condensed Phases*, 1984, 80(8): 2 301.
- [16] CARLSON S L. The amateur scientist[J]. *Scientific American*, 1960, 202(6): 189-202.
- [17] MOODY N F. Design and construction of an improved, portable, air-ion counter[J]. *International Journal of Biometeorology*, 1984, 28(3): 169-184.
- [18] BORSODORF H, EICEMAN A G. Ion mobility spectrometry: principles and applications[J]. *Applied Spectroscopy Reviews*, 2006, 41(4): 323-375.
- [19] BORSODORF H, MAYER T, ZAREJOUSHEGHANI M, EICEMAN G A. Recent developments in ion mobility spectrometry[J]. *Applied Spectroscopy Reviews*, 2011, 46(6): 472-521.
- [20] ROSS S K, BELL A J. Reverse flow continuous corona discharge ionisation applied to ion mobility spectrometry[J]. *International Journal of Mass Spectrometry*, 2002, 218(2): L1-L6.
- [21] COOKS R G, OUYANG Z, TAKATS Z, WISEMAN J M. Ambient mass spectrometry[J]. *Science*, 2006, 311(5 767): 1 566-1 570.
- [22] 贾滨, 张兴磊, 丁健桦, 杨水平, 陈焕文. 电喷雾萃取电离质谱技术及其应用进展[J]. *科学通报*, 2012, 57(20): 1 918-1 927.
- JIA Bin, ZHANG Xinglei, DING Jianhua, YANG Shui-ping, CHEN Huanwen. Principle and applications of extractive electrospray ionization mass spectrometry[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2012, 57(20): 1 918-1 927(in Chinese).
- [23] SCHWARTZ J C, SENKO M W, SYKA J E P. A two-dimensional quadrupole ion trap mass spectrometer[J]. *Journal of the American Society for Mass Spectrometry*, 2002, 13(6): 659-669.
- [24] KAISER N K, SKULASON G E, WEISBROD C R, BRUCE J E. A novel Fourier transform ion cyclotron resonance mass spectrometer with improved ion trapping and detection capabilities[J]. *Journal of the American Society for Mass Spectrometry*, 2009, 20(5): 755-762.
- [25] DOUGLAS D J, FRENCH J B. Collisional focusing effects in radio frequency quadrupoles[J]. *Journal of the American Society for Mass Spectrometry*, 1992, 3(4): 398-408.
- [26] LIU Y, LIANG J F, ALTON G D, BEENE J R, ZHOU Z, WOLLNIK H. Collisional cooling of negative-ion beams[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 2002, 187(1): 117-131.
- [27] 张涛, 朱惠君, 姚如娇, 徐恺, 仇俊炜, 陆欣鑫, 张硕, 肖育, 李晓旭. 微型离子漏斗减少低质量歧视效应的理论模拟研究[J]. *质谱学报*, 2023, 44(5): 658-666.
- ZHANG Tao, ZHU Huijun, YAO Rujiao, XU Kai, QIU Junwei, LU Xinxin, ZHANG Shuo, XIAO Yu, LI Xiaoxu. Reduction of low mass discrimination effect in a miniaturized ion funnel by simulation[J]. *Journal of Chinese Mass Spectrometry Society*, 2023, 44(5): 658-666 (in Chinese).
- [28] TOLMACHEV A V, KIM T, UDSETH H R, SMITH R D, BAILEY T H, FUTRELL J H. Simulation-based optimization of the electrodynamic ion funnel for high sensitivity electrospray ionization mass spectrometry[J]. *International Journal of Mass Spectrometry*, 2000, 203(1/2/3): 31-47.
- [29] 苏子寒. 湿度对负极性直流导线起晕电压和离子流场的影响[J]. *电工技术*, 2022(17): 156-159.
- SU Zihan. Effect of humidity on corona onset voltage and ion flow field of negative DC wires[J]. *Electric Engineering*, 2022(17): 156-159(in Chinese).
- [30] MEKIOUS M, MEGHERBI M, BITAM-MEGHERBI F, KACHENOURA R. Active electrode material influence on the characteristics of corona discharge reactor at atmospheric pressure[J]. *Russian Electrical Engineering*, 2022, 93(4): 277-283.
- [31] SEKIMOTO K, TAKAYAMA M. Influence of needle voltage on the formation of negative core ions using atmospheric pressure corona discharge in air[J]. *International Journal of Mass Spectrometry*, 2007, 261(1): 38-44.

(收稿日期: 2025-03-28; 修回日期: 2025-05-13)