

四极杆质谱质量分辨自动调节技术研究

刘磊^{1,2}, 江游², 刘梅英², 戴新华²,
方向², 陈大舟², 邱春玲¹, 黄泽建²

(1. 吉林大学仪器科学与电气工程学院, 吉林 长春 130026;

2. 中国计量科学研究院前沿计量科学中心, 质谱仪器工程技术研究中心, 北京 100029)

摘要: 质谱仪器的质量分辨是指仪器区分两个质量相近离子的能力, 是仪器的一项重要指标。为了保持四极杆质谱仪质量分辨的稳定性和可靠性, 降低仪器维护成本, 实现仪器的自动化及智能化, 本实验室研究了一套适用于四极杆质谱仪质量分辨的自动调节算法。该算法实现了对质谱谱峰半峰宽 (full width at half maximum, FWHM) 的检测, 并通过与设定的 FWHM 目标值进行对比的方式对仪器进行调整, 最终使 FWHM 达到目标值, 达到自动调节质量分辨的目的。本研究在由中国计量科学研究院研发的四极杆质谱仪上开展相关工作, 根据该仪器的电路设计, 建立算法流程, 将算法理论应用于具体仪器。使用四极杆质谱仪常用的标准物质全氟三丁胺 (PFTBA) 测试算法调节四极杆质谱仪的质量分辨, 实验结果均达到预期。该算法对四极杆质谱仪具有普适性, 降低了对操作人员调节仪器能力的要求, 提高了仪器的稳定性。算法经多次测试, 均可达到减小实验数据偏差, 提高谱图质量分辨的目的。

关键词: 四极杆质谱; 扫描线; 质量分辨; 半峰宽; 自动调节; 算法

中图分类号: O657.63

文献标志码: A

文章编号: 1004-2997(2020)02-0118-07

doi: 10.7538/zpxb.2019.0118

Research on Automatic Adjustment of Mass Resolution in Quadrupole Mass Spectrometry

LIU Lei^{1,2}, JIANG You², LIU Mei-ying², DAI Xin-hua², FANG Xiang²,
CHEN Da-zhou², QIU Chun-ling¹, HUANG Ze-jian²

(1. College of Instrument & Electrical Engineering, Jilin University, Changchun 130026, China;

2. Mass Spectrometry Engineering Technology Research Center, Center for Advanced Measurement Science, National Institute of Metrology, Beijing 100029, China)

Abstract: Mass resolution of a mass spectrometer refers to the ability of the instrument to distinguish between two ions of similar mass, and is an important indicator of the instrument. In order to maintain the stability of the mass resolution of the quadrupole mass spectrometer, reduce the maintenance cost of the instrument, and realize the auto-

收稿日期: 2019-08-30; 修回日期: 2019-10-22

基金项目: 国家重点研发计划项目 (2017YFF0206204, 2016YFF0102603) 资助

作者简介: 刘磊 (1995—), 男 (汉族), 辽宁人, 硕士研究生, 精密仪器及机械专业。E-mail: lliu17@mails.jlu.edu.cn

通信作者: 邱春玲 (1963—), 女 (汉族), 山东人, 教授, 从事分布式测控技术研究。E-mail: qiuchunling@jlu.edu.cn

黄泽建 (1978—), 男 (汉族), 重庆人, 副研究员, 从事质谱仪器研发。E-mail: huangzj@nim.ac.cn

mation and intelligence of the instrument, the laboratory developed a set of automatic adjustment algorithms for mass resolution of the quadrupole mass spectrometer. The algorithm detected the full width at half maximum (FWHM) of the mass spectrum, and adjusted the instrument by comparing with the set FWHM target value. Through this process the FWHM finally reached the target value and the instrument achieved the purpose of automatic adjustment of mass resolution. This work was based on quadrupole mass spectrometer which was designed by National Institute of Metrology (NIM). Follow the way of this instrument's circuit designed, the algorithm flow was built, and algorithm theory was putted on this instrument. At last, using the standard material perfluorotributylamine (PFTBA), which was commonly used in quadrupole mass spectrometers, the test algorithm was used to adjust the mass resolution of the quadrupole mass spectrometer. The experimental results were all up to expectations. The algorithm had universal applicability to the quadrupole mass spectrometer, which reduced the requirement for the operator to adjust the instrument and improved the stability of the instrument. After many tests, the algorithm could achieve the purpose of reducing the deviation of experimental data and improving the quality resolution of the spectrum.

Key words: quadrupole mass spectrometry; scan line; quality distinguish; full width at half maximum (FWHM); automatic adjustment; algorithm

质谱法作为一种检测物质分子结构的精密分析方法^[1-3],具有灵敏度高、特异性好、分析速度快、专属性强等特点,是近年来发展最为迅速的分析技术之一^[4]。质谱仪器精密复杂、可调节参数众多,参数设置不当会导致实验数据出现较大偏差,影响分析结果的准确性。随着在线检测需求的日益增加,人工调节仪器的成本变得高昂,而且人为因素会导致调节标准不一致,因此仪器的自动化、智能化成为一种迫切需求。为了保证仪器状态稳定,得到更接近理想真值的实验数据^[5],质谱仪器自动化技术不断进步和发展^[6-14]。

在众多类型的质谱仪器中,四极杆质谱技术成熟,可调节参数相对较少,更易实现仪器的自动优化。在四极杆质谱的性能指标中,质量分辨是最重要的参数之一。在马修第一稳定区图^[11,15]上,利用扫描线在稳定区内的长度可反映质谱图的质量分辨,通过调节扫描线斜率和截距,即可实现该长度的调节,从而实现质量分辨的调控。

1971年,Sakai等^[12]提出质谱谱峰峰宽与质量数无关,通过减小扫描线截距可得到恒定峰宽。2012年,Syed等^[16]通过公式推导仪器最大质量分辨 $R_{\max}$ 与四极杆上直流和交流电压

比(U/V)之间的关系为 $R_{\max}=0.706/(0.933-0.00933U/V)$,并用计算机模拟离子运动轨迹加以验证。同年,Kenny等^[14]根据仪器质量分辨在一定范围内随扫描线斜率增大而增大的实验现象,自动调节扫描线斜率,用于解决仪器质量分辨漂移的问题。目前,虽然Thermo、Agilent等商业质谱仪器具备分辨率自动调节功能,但并未公开算法,而已经披露的四极杆质谱的质量分辨优化算法^[12,14,16]多停留在理论研究阶段,且未对扫描线斜率和截距进行同时调节。

1 调节原理

扫描线在第一稳定区内的线段长度反映质谱图的质量分辨大小,因此,调节扫描线的斜率和截距可实现质量分辨的调控。马修第一稳定区图示于图1,其中, U 为施加在四极杆上的直流电压, V 为施加在四极杆上的交流电压。设置扫描线斜率和截距分别为 k 和 b ,则扫描线方程可表示为:

$$U = V \times k + b \quad (1)$$

由马修方程,图1中第一稳定区顶点横坐标 V_1 存在如下关系:

$$0.706 = \frac{4eV_1}{m\omega^2 r_0^2} \quad (2)$$

其中, ω 为射频角频率, r_0 为四极杆场半径, m 为离子质量, e 为电子电荷量。图 1 中点 (V_1, U_1) 在扫描线上:

$$U_1 = V_1 \times k + b \quad (3)$$

分辨率 R 和 U_1 有如下关系^[15]:

$$\frac{8eU_1}{m\omega^2 r_0^2} = 0.236\,99 - \frac{0.178}{R} \quad (4)$$

对于质谱分辨率^[17-19], m_r 为质量数:

$$R = \frac{m_r}{\text{FWHM}} \quad (5)$$

由式(2)、(3)、(4)、(5), 消去 U_1 、 V_1 可得:

$$\begin{aligned} \text{FWHM} &= \frac{0.236\,99m_r}{0.178} - \frac{1.412m_r}{0.178} \times \\ &k - \frac{8em_r}{0.178m\omega^2 r_0^2} \times b \approx 1.33m_r - \\ &7.93m_r k - \frac{4.31 \times 10^9}{\omega^2 r_0^2} \times b \end{aligned} \quad (6)$$

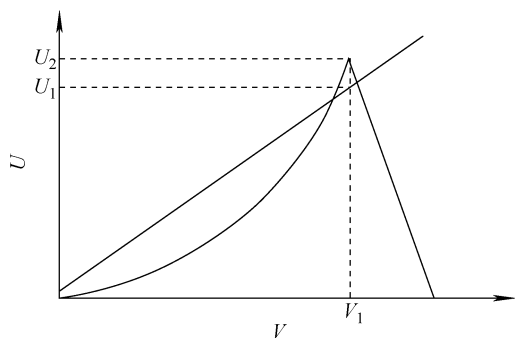


图 1 第一稳定区图

Fig. 1 Diagram of stability zone 1

对某一离子, m_r 为定值。实验过程中, ω 、 r_0 为定值。由式(6)可知, 在 b 固定的情况下, FWHM 与 k 呈线性关系; 在 k 固定的情况下, FWHM 与 b 呈线性关系。对于质谱图, 在 k 、 b 固定时, FWHM 与 m_r 相关, 谱峰质量数的不同会导致 FWHM 的差异。

由线性关系可调节 k 、 b , 使单个质谱峰 FWHM 达到设定值。由式(6)可知, 在保证半峰宽达到设定值的情况下, 调节 k 以减小 m_r 对 FWHM 的影响, 当 $1.33 - 7.93k = 0$ 时, 可以抵消 m_r 的作用, 从而只需调节 b 即可实现 FWHM 的调节。但是, 由于四极杆的加工和装配误差, 会导致第一稳定区顶端出现“圆化”^[20]。因此, 当扫描线接近稳定区的顶点时,

FWHM 的计算公式(6)不再适用, 无法完全抵消 m_r 产生的影响。只有当质谱图中 2 个不同 m_r 谱峰 FWHM 同时达到设定值时, m_r 影响足够小, 才认为 k 、 b 值合理。

设 A_1 为临时变量, 由 k 和 FWHM 的线性关系可得:

$$A_1 = \frac{\Delta \text{FWHM}}{\Delta k} = -7.93m_r \quad (7)$$

其中, ΔFWHM 为 FWHM 变化量, Δk 为 k 变化量。

设 A_2 为临时变量, 由 b 和 FWHM 的线性关系可得:

$$A_2 = \frac{\Delta \text{FWHM}}{\Delta b} = -\frac{4.31 \times 10^9}{\omega^2 r_0^2} \quad (8)$$

其中, Δb 为 b 变化量。

自动调节过程选用样品中的两个典型谱峰作为调节峰 1、2, 分别调节 k 、 b 。由调节峰 1 质量数计算出 A_1 , 根据此时调节峰 1 的 FWHM 和目标 FWHM 的差值, 计算当前 k 与目标 k 之间的差值, 调整 k 值使调节峰 1 的 FWHM 达到设定值。此时受 m_r 的影响, 调节峰 2 的 FWHM 与设定值可能存在偏差, 故计算 A_2 , 调整 b 使得调节峰 2 的 FWHM 达到设定值。此时, 检测调节峰 1 的 FWHM 是否受 m_r 影响, 若有影响, 再次按上述方法调整 k 、 b , 直至判断 m_r 影响足够小, 完成调节。

2 自动调节的实现

2.1 原理应用

本研究在由中国计量科学研究院研发的四极杆质谱仪上开展相关工作, 该四极杆上施加的直流和交流电压 (U 和 V) 由扫描 DAC 模块进行控制, 随着扫描质量数的增加, DAC 模块的控制电压 U_{DAC} 线性增大, 且 U_{DAC} 和 U 、 V 具有如下关系:

$$V = 170U_{\text{DAC}} \quad (9)$$

$$U = \left(U_{\text{DAC}} \left(1 + \frac{\text{Reso}}{10} \right) + \frac{DM}{15} \right) \times 50 \quad (10)$$

其中, Reso 和 DM 为仪器可调节参数, 用以调控四极杆上直流电压, 从而调节扫描线的 k 、 b 。 Reso 和 DM 的调节在扫描前完成, 扫描过程中二者恒定。

由公式(1)、(9)、(10)得:

$$k = \frac{10 + \text{Reso}}{34} \quad (11)$$

$$b = \frac{10}{3} \times DM \quad (12)$$

代入公式(6),消去 k, b , 得:

$$\begin{aligned} FWHM &= \frac{0.236\ 99m_r}{0.178} - \frac{1.412m_r}{0.605\ 2} - \\ &\frac{1.412m_r}{6.052} \times Reso - \frac{80em_r}{0.534m\omega^2 r_0^2} \times DM \approx \\ &-m_r - 0.23m_r \times Reso - \frac{1.44 \times 10^{10}}{\omega^2 r_0^2} \times DM \end{aligned} \quad (13)$$

根据式(11)、(12)、(13)可知,通过 $Reso$ 和 DM 参数即可实现对扫描线 k, b 的调节,从而实现对 $FWHM$ 的调控。

2.2 算法实现

整套算法分为调节峰 $FWHM$ 测量模块、参数计算模块和自动调节模块。

2.2.1 调节峰 $FWHM$ 测量模块 主要完成对调节峰 $FWHM$ 的测量。从样品中选取两个典型的谱峰用于 $Reso$ 和 DM 的调节,作为调节峰 1 和调节峰 2。质谱图的谱峰检测功能、基线噪声和本底噪声扣除功能由底层软件实现^[21]。调节初始,因初步设置的参数不合理,检测到的谱峰质量数相比于标准谱图可能有偏移。在调节峰理论质量数附近寻找最高峰作为实际调节峰,并将测量该峰峰高一半的宽度作为 $FWHM$ 。

2.2.2 参数计算模块 根据式(13), DM 恒定时, $Reso$ 和调节峰 1 半峰宽 $FWHM_1$ 存在线性关系,设 B_1 为临时变量,可得:

$$B_1 = \frac{\Delta FWHM_1}{\Delta Reso} = -0.23m_r \quad (14)$$

其中, $\Delta FWHM_1$ 为 $FWHM_1$ 的变化量, $\Delta Reso$ 为 $Reso$ 的变化量。令 m_r 等于调节峰 1 质量数,

计算出 B_1 。 $Reso$ 恒定时, DM 和调节峰 2 半峰宽 $FWHM_2$ 存在线性关系,设 B_2 为临时变量,可得:

$$B_2 = \frac{\Delta FWHM_2}{\Delta DM} = -\frac{1.44 \times 10^{10}}{\omega^2 r_0^2} \quad (15)$$

其中, $\Delta FWHM_2$ 为 $FWHM_2$ 的变化量, ΔDM 为 DM 的变化量。读取仪器的 ω 和 r_0 , 求得 B_2 。

2.2.3 自动调节模块 已知调节峰 1、2 的半峰宽设定值,需要求得使半峰宽达到设定值时, $Reso$ 和 DM 的预期值。先对 $Reso$ 参数进行调节,根据式(14), $\Delta FWHM_1$ 为 $FWHM_1$ 当前值与设定值的差值,可求得 $Reso$ 当前值与预期值的差值 $\Delta Reso$, 得到 $Reso$ 预期值并设置,检测 $FWHM_1$ 是否达到设定值。

由于加工和装配过程难免有误差,导致四极场稳定区顶端出现“圆化”现象,因此,在 $FWHM$ 较小时,其与 $Reso$ 和 DM 的线性关系消失,示于图 2, 导致无法一次调节到设定值,需要多次重复调节 $Reso$ 直至 $FWHM_1$ 达到设定值。

根据式(15),对 DM 参数进行调节。受调节峰 m_r 不同的影响,当调节 DM 使 $FWHM_2$ 达到设定值时, $FWHM_1$ 将发生变化。因此,重复调节 $Reso$ 和 DM 直至 $FWHM_1$ 和 $FWHM_2$ 均达到设定值。

以上过程,除选取调节峰外,其余均由计算机自动执行。算法流程图示于图 3。

2.3 实验测试

四极杆质谱仪的质量分辨通常采用全氟三丁胺(PFTBA)标准样品进行调节,选取相对峰高较强的 69 u 和 219 u 作为调节的特征峰,并将

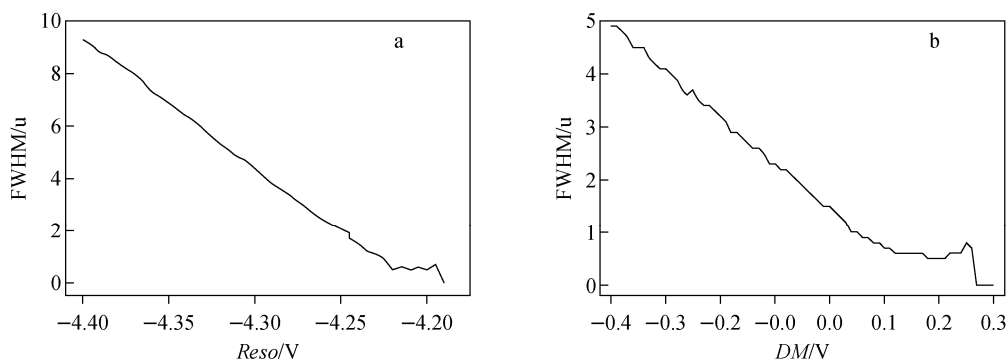


图 2 调节峰半峰宽随 $Reso$ (a)、 DM (b) 的变化曲线

Fig. 2 Curves of peak's $FWHM$ changed with $Reso$ (a) or DM (b)

219 u 记为调节峰 1,69 u 记为调节峰 2。四极杆的场半径为 5.3 mm,射频电源频率为 1.141×10^6 Hz。设置质量数测量范围为 50~520 u,调节峰 FWHM 设定值为 0.7 u。由于测量不确定度的存在,认为调节峰 FWHM 在 0.65~0.75 u 范围内即达到设定值。

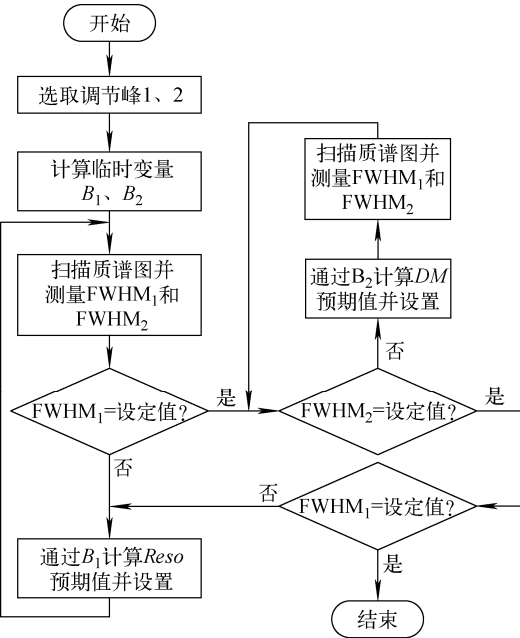


图 3 算法流程图

Fig. 3 Flow chart for algorithm

自动调节前的质谱图示于图 4,质量分辨效果较差。调节过程中,调节峰半峰宽在减小 m_r 影响的同时逐步逼近设定值,直至达到设定值,示于图 5。自动调节后的质谱图示于图 6,经

标准谱库检索,第一命中为全氟三丁胺 $C_{12}F_{27}N$,且谱图中所有谱峰 FWHM 均在 0.65~0.75 u 范围内。可见,该算法可自动调节质谱图谱峰 FWHM 到设定值,从而达到自动调节质谱图质量分辨的目的。调节完成后进行稳定性测试,在仪器状态不变的情况下重复扫描谱图,调节峰半峰宽均在 0.65~0.75 u 范围内,示于图 7。

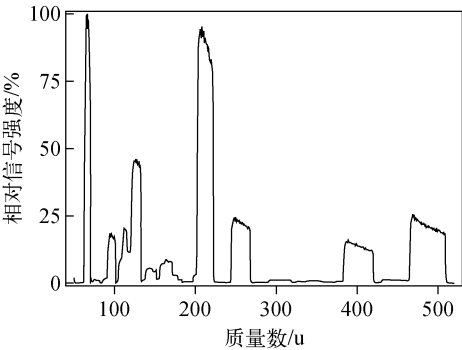


图 4 自动调节前质谱图

Fig. 4 Mass spectrum before automatic adjustment

手动修改仪器 $Reso$ 和 DM 两个参数至仪器质量分辨变差,运行自动调节功能,记录实验结果。多次重复上述过程,每次自动调节后的谱峰半峰宽列于表 1。可见,半峰宽均能满足设定要求。

对比岛津公司的 GC/MS-QP2010 Plus 中的四极杆质谱仪,限定目标半峰宽为 0.60 u,根据仪器所呈现的质量分辨自动调节结果,将对结果列于表 2。可见,岛津仪器的半峰宽偏差最大为 0.04 u,而本研究算法的半峰宽偏差最大为 0.01 u。

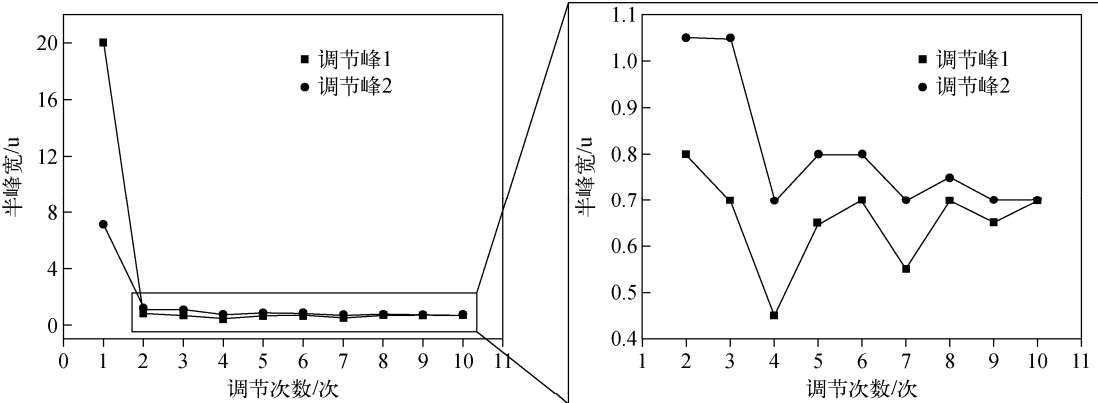


图 5 半峰宽逐步逼近设定值

Fig. 5 FWHM increasingly close to the set value

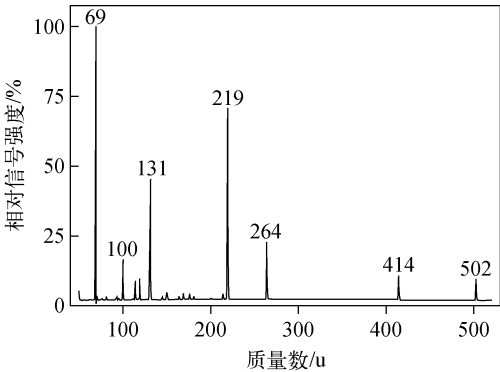


图 6 自动调节后质谱图

Fig. 6 Mass spectrum after automatic adjustment

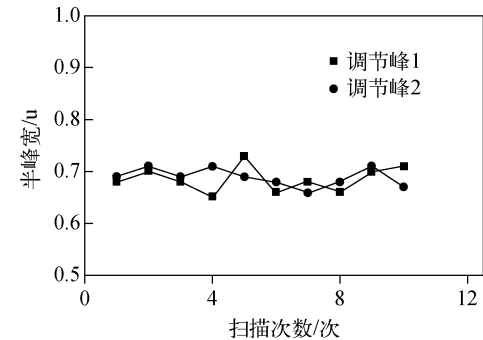


图 7 稳定性测试结果

Fig. 7 Result of stability test

表 1 多次执行分辨率自动调节操作实验结果

Table 1 Resolution automatic adjustment operation experiment results in multiple times

序号 No.	半峰宽 FWHM/u					
	69	131	219	264	414	502
1	0.66	0.75	0.69	0.67	0.65	0.67
2	0.65	0.72	0.74	0.72	0.73	0.68
3	0.75	0.75	0.73	0.69	0.68	0.73
4	0.67	0.69	0.75	0.70	0.68	0.70
5	0.65	0.69	0.75	0.75	0.72	0.70

表 2 岛津仪器和中国计量科学研究院
仪器实验结果比对

Table 2 Comparison of experimental results
of Shimadzu's instrument and NIM's instrument

仪器品牌 Instrument brand	半峰宽 FWHM/u		
	69	131	219
岛津	0.60	0.64	0.61
中国计量科学研究院	0.59	0.60	0.59

3 结论

本工作研究了质谱峰 FWHM 和扫描线 k 、 b 之间的关系,并建立了三者关系式。发现在其他参数不变的情况下,扫描线 k 、 b 分别与 FWHM 在一定范围内呈线性关系。为了保持目标质谱峰 FWHM 一致,尽量减小小质谱峰 m 的影响,交替调节 k 、 b 参数,直至两个质量数不同的调节峰 FWHM 同时达到设定值,即认为自动调节完成。利用该方法结合中国计量科学研究院四极杆质谱仪的电路设计,编写算法,实现四极杆质谱仪质量分辨的自动调节。在调节过程中发现,半峰宽较小时,线性关系消失,可能是四极杆的加工和装配误差导致四极场顶端“圆化”^[20],可采用逐次逼近的方法调整 FWHM。

该质量分辨的自动调节原理对于四极杆质谱仪器具有普适性,同时降低了对操作人员调节仪器能力的要求。质量分辨的变化会影响仪器的信号强度,该算法将质量分辨控制在目标范围内,在一定程度上保证了仪器状态的稳定,以及实验的重复性和一致性。该算法除了完成对原理公式进行推导,还针对在 FWHM 和 $Reso$ 、 DM 关系呈非线性区域内质量分辨的自动调节提出了一种解决方案。在应用过程中,具体算法流程经过多次实验测试优化,算法原理公式明确,便于应用到四极杆质谱仪实现质量分辨自动调节的功能,容易实现商业推广。整套算法在多台仪器上进行测试,均可达到减小实验数据偏差、提高质谱图质量分辨的目的。

参考文献:

[1] OUYANG Z, COOKS R G. Miniature mass spectrometers[J]. Reviews in Analytical Chemistry, 2009, 2(1): 187-214.

[2] SNYDER D T, SZALWINSKI L J, COOKS R G. Mass spectrometry ion traps[M]. 3rd ed. Oxford: Academic Press, 2019: 404-412.

[3] LÓPEZ-RUIZ R, ROMERO-GONZÁLEZ R, GARRIDO FRENICH A. Ultrahigh-pressure liquid chromatography-mass spectrometry: an overview of the last decade[J]. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 2019, 118: 170-181.

[4] CHONG Y K, HO C C, LEUNG S Y, LAU S K P, WOO P C Y. Clinical mass spectrometry in the bioinformatics era: a hitchhiker's guide[J].

- Computational and Structural Biotechnology Journal, 2018, 16: 316-334.
- [5] VOGESER M, KIRCHHOFF F. Progress in automation of LC-MS in laboratory medicine[J]. Clinical Biochemistry, 2011, 44(1): 4-13.
- [6] 上海化工研究院自动化室. 工业自动质谱仪器的历史与前途(上)[J]. 化工自动化及仪表, 1979(2): 27-30.
- Shanghai Chemical Industry Research Institute Automation Room. The history and future of industrial automatic mass spectrometry (first)[J]. Control and Instrument in Chemical Industry, 1979(2): 27-30(in Chinese).
- [7] 上海化工研究院自动化室. 工业自动质谱仪器的历史与前途(下)[J]. 化工自动化及仪表, 1979(3): 27-31.
- Shanghai Chemical Industry Research Institute Automation Room. The history and future of industrial automatic mass spectrometry (second)[J]. Control and Instrument in Chemical Industry, 1979(3): 27-31(in Chinese).
- [8] 高红军, 李向阳, 陈军勇. 面向对象方法在质谱全自动测量系统中的应用[J]. 自动化技术与应用, 2008, 27(6): 73-75.
- GAO Hongjun, LI Xiangyang, CHEN Junyong. Application of object-oriented method in the automatic mass spectrometry measurement system [J]. Techniques of Automation and Application, 2008, 27(6): 73-75(in Chinese).
- [9] YE Z, ZETTERBERG C, GAO H. Automation of plasma protein binding assay using rapid equilibrium dialysis device and Tecan workstation [J]. Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis, 2017, 140: 210-214.
- [10] SYED S U A H, HOGAN T J, JOSEPH M J A, MAHER S, TAYLOR S. Quadrupole mass filter: design and performance for operation in stability zone 3[J]. Journal of the American Society for Mass Spectrometry, 2013, 24(10): 1493-1500.
- [11] BATEY J H. The physics and technology of quadrupole mass spectrometers[J]. Vacuum, 2014, 101: 410-415.
- [12] SAKAI T, INO Y, SAKIMURA M. Improved method of the resolution for quadrupole mass spectrometers[J]. Journal of Vacuum Science and Technology, 1971, 8(1): 269-269.
- [13] ALSARI S, ASLANINEJAD M, POZIMSKI J. Use of phase information with a stepper motor to control frequency for tuning system of the Front End Test Stand Radio Frequency Quadrupole at Rutherford Appleton Laboratory[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2015, 775: 105-111.
- [14] KENNY D J. Dynamic resolution correction of quadrupole mass analyser: UK, 20140117219[P]. 2014.
- [15] DAWSON P H. Quadrupole mass spectrometry and its applications[M]. The Netherlands: Box, 1976: 22-23.
- [16] SYED S U A H, HOGAN T, GIBSON J, TAYLOR S. Factors influencing the QMF resolution for operation in stability zones 1 and 3[J]. Journal of the American Society for Mass Spectrometry, 2012, 23(5): 988-995.
- [17] GRAUS M, MULLER M, HANSEL A. High resolution PTR-TOF: quantification and formula confirmation of VOC in real time[J]. Journal of the American Society for Mass Spectrometry, 2010, 21(6): 1037-1044.
- [18] PACHUTA S J, VLASAK P R. Postacquisition mass resolution improvement in time-of-flight secondary ion mass spectrometry[J]. Analytical Chemistry, 2012, 84(3): 1744-1753.
- [19] SCHITTMAYER M, BIRNER-GRUENBERGER R. Resolution ladder for high-resolution mass spectrometry[J]. Analytical Chemistry, 2017, 89(18): 9611-9615.
- [20] 江游, 方向, 张小华, 丁传凡. 几何误差对四极杆质量分析器分辨率的影响[C]. 仪表自动化及先进集成技术大会, 2007: 152-155.
- [21] 赵立波. 质谱仪数据处理实验性软件平台的研制与开发[D]. 长春: 吉林大学, 2008.