

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2016年3月10日(10.03.2016)

(10) 国際公開番号

WO 2016/035139 A1

(51) 国際特許分類:

G01N 30/24 (2006.01) *G01N 30/06* (2006.01)
G01N 1/10 (2006.01) *G01N 35/04* (2006.01)
G01N 27/62 (2006.01)

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2014/073056

(22) 国際出願日:

2014年9月2日(02.09.2014)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(71) 出願人: 株式会社島津製作所 (SHIMADZU CORPORATION) [JP/JP]; 〒6048511 京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地 Kyoto (JP).

(72) 発明者: 花房 信博 (HANAFUSA, Nobuhiro); 〒6048511 京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地 株式会社島津製作所内 Kyoto (JP). 中村 伸 (NAKAMURA, Shin); 〒6048511 京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地 株式会社島津製作所内 Kyoto (JP). 谷畠 博司 (TANIHATA, Hiroshi); 〒6048511 京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地 株式会社島津製作所内 Kyoto (JP).

(74) 代理人: 吉本 力, 外 (YOSHIMOTO, Tsutomu et al.); 〒5410054 大阪府大阪市中央区南本町4丁目

5-7 東亜ビル いざなぎ国際特許事務所
Osaka (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

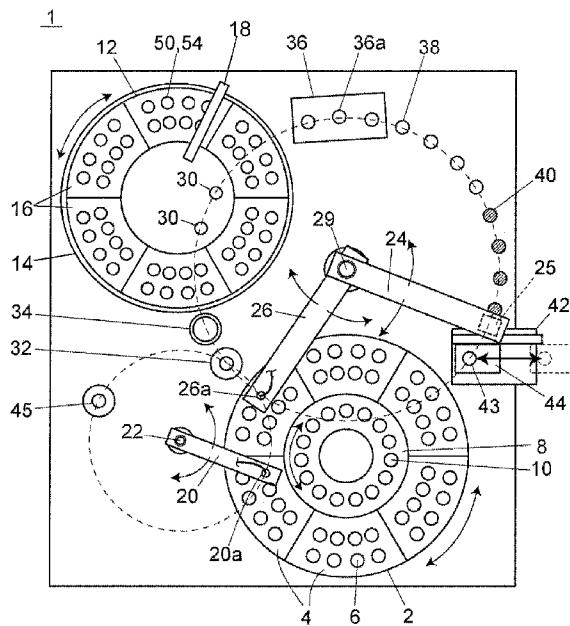
添付公開書類:

— 國際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: PREPROCESSING DEVICE AND ANALYSIS SYSTEM PROVIDED WITH SAME

(54) 発明の名称: 前処理装置及びこれを備えた分析システム

[図2]



送位置から搬送する。容器保持部12は、濾過ポート30の外周に形成された円環状又は円弧状の保持領域に分離容器50及び回収容器54を保持し、これらの分離容器50及び回収容器54を保持領域の周方向に変位させることにより搬送位置に順次移動させる。

(57) **Abstract:** The present invention provides a preprocessing device having a more compact structure and an analysis system provided with the same. A preprocessing device 1 is provided with a container holding part 12, a filtration port 30, and a transport arm 24. The container holding part 12 holds a separation container 50 and a collection container 54. The filtration port 30 separates a sample within the separation container 50 by applying pressure to the sample. The transport arm 24 transports the separation container 50 and collection container 54 held by the container holding part 12 from a prescribed transport position. The container holding part 12 holds the separation container 50 and collection container 54 in an annular or arcuate holding area formed in the outer periphery of the filtration port 30 and sequentially moves the separation container 50 and collection container 54 to the transport position by displacing the same in the circumferential direction of the holding area.

(57) **要約:** よりコンパクトな構成からなる前処理装置及びこれを備えた分析システムを提供する。前処理装置1は、容器保持部12と、濾過ポート30と、搬送アーム24とを備える。容器保持部12は、分離容器50及び回収容器54を保持する。濾過ポート30は、分離容器50内の試料に圧力を付与することにより試料を分離させる。搬送アーム24は、容器保持部12により保持されている分離容器50及び回収容器54を所定の搬

明 細 書

発明の名称：前処理装置及びこれを備えた分析システム

技術分野

[0001] 本発明は、分離容器により抽出された試料を回収容器で回収し、当該試料に対して前処理を行う前処理装置及びこれを備えた分析システムに関するものである。

背景技術

[0002] 例えば全血、血清、濾紙血、尿などの生体由来の試料に含まれる成分の分析を行う際、試料に対して前処理装置により前処理を行った後、分析を行う場合がある。前処理としては、分析に不要な特定成分を試料から除去して必要成分を抽出する処理や、抽出された試料を濃縮又は乾固させる処理などを例示することができる。このような前処理を自動的に実行する前処理装置として、従来から種々の構成が提案されている（例えば、下記特許文献1参照）。

[0003] 例えば特許文献1では、試料を通過させて試料中の特定成分を分離させる分離剤を有するカートリッジ（分離容器）が、共通の搬送機構により複数保持されて搬送される構成が開示されている。複数のカートリッジは、所定位置に設けられた圧力負荷機構に対して搬送機構により順次搬送され、当該圧力負荷機構において圧力が負荷されることにより試料の抽出が行われる。カートリッジからの抽出液を受ける複数の受皿容器（回収容器）は、カートリッジの下方において、カートリッジとは別の搬送機構によって搬送されることにより、試料の抽出が連続的に行われる。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2010-60474号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 上記特許文献1に開示されているような従来の前処理装置では、圧力負荷機構において試料の抽出処理が行われている間、分離容器や回収容器を搬送機構により搬送することができない。そのため、試料の抽出処理中に、既に抽出されている他の試料を取り出す作業を行うことができず、前処理効率を向上させるのには限界があった。

[0006] そこで、試料中の特定成分を分離させるための濾過部を別途設けて、当該濾過部に対して分離容器及び回収容器を搬送し、試料が抽出された回収容器から順次送り出すような構成を採用することが考えられる。しかしながら、このような濾過部を別途設けた場合には、その設置スペースの分だけ装置が大型化するおそれがある。

[0007] 本発明は、上記実情に鑑みてなされたものであり、よりコンパクトな構成からなる前処理装置及びこれを備えた分析システムを提供することを目的とする。また、本発明は、前処理効率を向上させることができる前処理装置及びこれを備えた分析システムを提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明に係る前処理装置は、容器保持部と、濾過部と、搬送部とを備える。前記容器保持部は、試料を通過させて試料中の特定成分を分離させる分離層を有する分離容器、及び、前記分離層により抽出された試料を回収する回収容器を含む複数の容器を保持する。前記濾過部は、前記分離容器内の試料に圧力を付与することにより前記分離層で試料を分離させる。前記搬送部は、前記容器保持部により保持されている容器を所定の搬送位置から搬送する。前記容器保持部は、前記濾過部の外周に形成された円環状又は円弧状の保持領域に複数の容器を保持し、当該複数の容器を前記保持領域の周方向に変位させることにより前記搬送位置に順次移動させる。

[0009] このような構成によれば、保持領域に保持されている複数の容器を周方向に変位させることにより、各容器を搬送位置に順次移動させ、当該搬送位置から搬送することができる。このような保持領域は、円環状又は円弧状に形成されており、その中央部の空きスペースに濾過部の設置スペースを確保す

ることによって、よりコンパクトな構成とすることができます。

- [0010] また、円環状又は円弧状に形成された保持領域の中央部に濾過部を設けることにより、保持領域に保持されている複数の容器と濾過部の距離を比較的短くすることができる。これにより、各容器を濾過部に搬送する時間を短縮することができるため、前処理効率を向上させることができる。
- [0011] 前記容器保持部には、前記分離容器及び前記回収容器が重ねられた状態で設置されてもよい。
- [0012] このような構成によれば、分離容器及び回収容器の保持領域を別々に設ける必要がないため、より多くの容器を小さい保持領域で保持することができる。これにより、容器の保持領域を小さくすることができ、さらにコンパクトな構成とすることができます。
- [0013] 前記容器保持部は、水平面内で回転する回転部と、前記回転部に対して着脱可能であり、それぞれ複数の容器を保持する複数の容器ラックとを有していてもよい。
- [0014] このような構成によれば、回転部に対して着脱可能な複数の容器ラックに、それぞれ複数の容器を保持することができる。このように、複数の容器ラックに分割して容器を保持することにより、各容器ラックを回転部に対して個別に着脱することが可能になる。これにより、いずれかの容器ラックに保持された容器に対する処理が行われている場合であっても、他の容器ラックを着脱して別の作業を行うため、前処理効率を向上させることができます。
- [0015] 前記前処理装置は、前記容器保持部により保持されている容器が、規定位置よりも突出していることを検知する検知部をさらに備えていてもよい。
- [0016] このような構成によれば、容器保持部により保持されている容器が、設置ミスなどで規定位置よりも突出している場合に、その旨を検知することができる。これにより、容器を搬送部で搬送する際に異常が生じるのを効果的に防止することができるため、前処理効率を向上させることができます。
- [0017] 特に、分離容器及び回収容器が重ねられた状態で容器保持部に設置される

ような構成の場合には、互いに重ね合せられた分離容器及び回収容器の位置がずれやすい。したがって、このような場合に、容器のずれを検知部で検知することによって、容器を搬送部で搬送する際に異常が生じるのをより効果的に防止することができる。

- [0018] 前記前処理装置は、前記検知部により容器が規定位置よりも突出していることが検知された場合に、その旨を報知する報知部をさらに備えていてよい。
- [0019] このような構成によれば、報知部による報知に気付いた分析者が、容器保持部により保持されている容器の状態を確認することができる。これにより、容器のずれを確実に直した上で前処理を実行させることができる。
- [0020] 前記前処理装置は、前記容器保持部により保持されている容器が規定位置よりも突出している場合に、当該容器を前記容器保持部に対して押し込む押圧部をさらに備えていてよい。
- [0021] このような構成によれば、容器保持部により保持されている容器が、設置ミスなどで規定位置よりも突出している場合に、当該容器を容器保持部に対して押圧部で押し込むことにより、容器のずれを確実に直した上で前処理を実行させることができる。
- [0022] 前記容器保持部には、複数種類の分離容器が保持されていてよい。この場合、前記前処理装置は、前記分離容器の種類、及び、前記容器保持部に保持されている前記分離容器の位置を対応付けて記憶する記憶部と、前記分離容器の種類の選択を受け付ける選択受付部とをさらに備えていてよい。前記搬送部は、選択された種類の前記分離容器を、前記記憶部に記憶されている対応関係に基づいて前記容器保持部から搬送してもよい。
- [0023] このような構成によれば、分析項目に適した分離容器を選択し、当該分離容器を容器保持部から確実に搬送させることができる。したがって、より幅広い分析項目に適応することができるとともに、選択された分析項目に最適な前処理を実行することができる。
- [0024] 本発明に係る分析システムは、前記前処理装置と、前記前処理装置において

て抽出された試料が導入される液体クロマトグラフと、前記前処理装置及び前記液体クロマトグラフを連動させて自動制御する制御部とを備える。

[0025] また、本発明に係る分析システムは、前記前処理装置と、前記前処理装置において抽出された試料が導入される質量分析装置と、前記前処理装置及び前記質量分析装置を連動させて自動制御する制御部とを備える。

発明の効果

[0026] 本発明によれば、保持領域が円環状又は円弧状に形成されており、その中央部の空きスペースに濾過部の設置スペースを確保することによって、よりコンパクトな構成とすることができる。また、本発明によれば、保持領域に保持されている複数の容器と濾過部の距離を比較的短くするため、各容器を濾過部に搬送する時間を短縮することができ、前処理効率を向上させることができる。

図面の簡単な説明

[0027] [図1]本発明の一実施形態に係る分析システムの構成例を示す概略正面図である。

[図2]前処理装置の構成例を示す平面図である。

[図3A]分離容器の構成例を示す側面図である。

[図3B]図3Aの分離容器の平面図である。

[図3C]図3BのA-A断面を示す断面図である。

[図4A]回収容器の構成例を示す側面図である。

[図4B]図4Aの回収容器の平面図である。

[図4C]図4BのB-B断面を示す断面図である。

[図5]分離容器及び回収容器が重ね合せられた状態の前処理キットを示す断面図である。

[図6A]濾過ポートの構成例を示す平面図である。

[図6B]図6AのX-X断面を示す断面図である。

[図6C]図6AのY-Y断面を示す断面図である。

[図6D]濾過ポートに前処理キットを設置した状態を示す断面図である。

[図7]負圧負荷機構の構成例を示す概略図である。

[図8]容器保持部の構成例を示す側面図である。

[図9]分析システムの電気的構成の一例を示すブロック図である。

[図10]検知アームの変形例を示す側面図である。

[図11A]前処理装置の動作の一例を示すフローチャートである。

[図11B]前処理装置の動作の一例を示すフローチャートである。

[図12]容器ラックの変形例を示す平面図である。

発明を実施するための形態

[0028] 図1は、本発明の一実施形態に係る分析システムの構成例を示す概略正面図である。この分析システムは、前処理装置1、LC(液体クロマトグラフ)100及びMS(質量分析装置)200を備えており、前処理装置1により前処理を実行した試料が、LC100及びMS200に順次導入されて分析が行われる。すなわち、本実施形態に係る分析システムは、前処理装置1に液体クロマトグラフ質量分析装置(LC/MS)が接続された構成となっている。ただし、このような構成に限らず、LC100又はMS200のいずれか一方が省略されることにより、前処理装置1により前処理を実行した試料が、LC100又はMS200のいずれか一方にのみに導入されるような構成であってもよい。

[0029] 前処理装置1は、例えば全血、血清、濾紙血、尿などの生体由来の試料に対して、試料分注、試薬分注、攪拌、濾過といった各種の前処理を行う。これらの前処理により抽出された試料は、LC100に備えられたオートサンプラ101を介してLC100に導入される。LC100には、カラム(図示せず)が備えられており、当該カラム内を試料が通過する過程で分離された試料成分が、MS200に順次導入される。MS200は、LC100から導入された試料をイオン化するイオン化部201と、イオン化された試料を分析する質量分析部202とを備えている。

[0030] 前処理装置1には、例えばタッチパネルを含む操作表示部1aが備えられている。分析者は、操作表示部1aの表示画面に対する操作により、前処理

装置1の動作に関する入力を行うことができるとともに、操作表示部1aの表示画面に表示された前処理装置1の動作に関する情報を確認することができる。ただし、タッチパネル式の操作表示部1aが設けられた構成に限らず、例えば液晶表示器により構成される表示部と、操作キーなどにより構成される操作部とが、別々に設けられた構成であってもよい。

- [0031] 図2は、前処理装置1の構成例を示す平面図である。この前処理装置1では、分離容器50と回収容器54の組からなる前処理キットを試料ごとに1組用いて、各前処理キットに対して設定された前処理項目（試料分注、試薬分注、攪拌、濾過など）が実行される。前処理装置1には、各前処理項目を実行するための複数の処理ポートが設けられており、試料が収容された前処理キットをいずれかの処理ポートに設置することで、その前処理キットに収容されている試料に対して、各処理ポートに対応する前処理項目が実行されるようになっている。
- [0032] 処理ポートとしては、各前処理項目に対応付けて、濾過ポート30、分注ポート32、廃棄ポート34、攪拌ポート36a、温調ポート38、40、転送ポート43及び洗浄ポート45などが設けられている。これらの各処理ポートは、複数種類の前処理をそれぞれ実行する複数の前処理部を構成している。ここで、前処理項目とは、分析者が指定した分析項目を実行するために必要な前処理の項目である。
- [0033] 前処理キットを構成する分離容器50及び回収容器54は、搬送部としての搬送アーム24によって各処理ポート間で搬送される。搬送アーム24の先端側には、分離容器50及び回収容器54を保持するための保持部25が形成されている。搬送アーム24の基端部側は、鉛直軸29を中心に回転可能に保持されている。搬送アーム24は水平方向に延びており、鉛直軸29を中心に回転することにより、保持部25が水平面内で円弧状の軌道を描くように移動する。分離容器50及び回収容器54の搬送先である各処理ポートや、その他のポートは、全て保持部25が描く円弧状の軌道上に設けられている。

- [0034] 前処理キットには、試料容器6から試料が分注される。試料が収容された試料容器6は、試料設置部2に複数設置することができ、サンプリング部としてのサンプリングアーム20により各試料容器6から試料が順次採取される。試料設置部2には、複数の試料容器6を保持するサンプルラック4が、円環状に並べて複数設置される。試料設置部2は、水平面内で回転することにより、各サンプルラック4を周方向に移動させる。これにより、所定のサンプリング位置に各試料容器6を順次移動させることができる。ここで、サンプリング位置は、サンプリングアーム20の先端部に設けられたサンプリングノズル20aの軌道上に位置しており、当該サンプリング位置においてサンプリングノズル20aにより試料容器6から試料が採取される。
- [0035] サンプリングアーム20は、基端部側に設けられた鉛直軸22を中心に水平面内で回転可能であるとともに、鉛直軸22に沿って鉛直方向に上下動可能である。サンプリングノズル20aは、サンプリングアーム20の先端部において鉛直下方に向かって保持されており、サンプリングアーム20の動作に応じて、水平面内で円弧状の軌道を描く移動又は鉛直方向への上下動が行われる。
- [0036] サンプリングノズル20aの軌道上で、かつ搬送アーム24の保持部25の軌道上となる位置には、分注ポート32が設けられている。分注ポート32は、未使用の分離容器50に対してサンプリングノズル20aから試料を分注するためのポートである。未使用の分離容器50は、搬送アーム24によって分注ポート32に搬送される。
- [0037] サンプルラック4が円環状に並べて配置された試料設置部2の中央部には、試薬容器10を設置するための試薬設置部8が設けられている。試薬設置部8に設置された試薬容器10内の試薬は、試薬アーム26によって採取される。試薬アーム26は、その基端部が搬送アーム24と共通の鉛直軸29によって支持されており、当該鉛直軸29を中心に水平面内で回転可能であるとともに、鉛直軸29に沿って鉛直方向に上下動可能である。試薬アーム26の先端部には、試薬添加ノズル26aが鉛直下方に向かって保持されて

おり、当該試薬添加ノズル26aは、試薬アーム26の動作に応じて、水平面内で搬送アーム24の保持部25と同一の円弧状の軌道を描く移動又は鉛直方向への上下動が行われる。

[0038] 試薬設置部8は、試料設置部2とは独立して水平面内で回転可能となってい。試薬設置部8には、複数の試薬容器10が円環状に並べて配置され、試薬設置部8が回転することによって各試薬容器10が周方向に移動する。これにより、所定の試薬採取位置に所望の試薬容器10を移動させることができる。ここで、試薬採取位置は、試薬アーム26の先端部に設けられた試薬添加ノズル26aの軌道上に位置しており、当該試薬採取位置において試薬添加ノズル26aにより試薬容器10から試薬が採取される。試薬容器10内の試薬は、試薬添加ノズル26aにより吸入された後、分注ポート32に設置された分離容器50に対して分注されることにより、当該分離容器50内の試料に添加される。

[0039] 分離容器50及び回収容器54は、試料設置部2や試薬設置部8とは異なる位置に設けられた容器保持部12により保持されている。容器保持部12には、未使用の分離容器50及び回収容器54が重ねられた状態の複数組の前処理キットが、円環状に並べて配置される。容器保持部12には、水平面内で回転する回転部14と、当該回転部14に対して着脱可能な複数の容器ラック16とが備えられている。

[0040] 各容器ラック16には、複数の前処理キットを保持することができる。複数の容器ラック16は、回転部14上に円環状に並べて設置される。円環状に並べて配置された複数の容器ラック16により、複数の前処理キットを保持する円環状の保持領域が形成される。回転部14は、水平面内で回転することにより、各容器ラック16を保持領域の周方向に変位させる。これにより、複数の前処理キットを所定の搬送位置に順次移動させることができる。ここで、搬送位置は、搬送アーム24の先端部に設けられた保持部25の軌道上に位置しており、当該搬送位置において保持部25により分離容器50又は回収容器54が保持され、搬送先のポートへと搬送される。

- [0041] このように、複数の容器ラック 16 に分割して前処理キットを保持することにより、各容器ラック 16 を回転部 14 に対して個別に着脱することができる。これにより、いずれかの容器ラック 16 に保持された分離容器 50 又は回収容器 54 に対する処理が行われている場合であっても、他の容器ラック 16 を着脱して別の作業を行うことができるため、前処理効率を向上させることができる。
- [0042] ただし、分離容器 50 及び回収容器 54 は、容器ラック 16 を介して容器保持部 12 により保持されるような構成に限らず、例えば容器保持部 12 に直接保持されるような構成であってもよい。また、分離容器 50 及び回収容器 54 は、互いに重ね合せられた状態で容器保持部 12 により保持されるような構成に限らず、分離容器 50 及び回収容器 54 が個別に保持されるような構成であってもよい。さらに、複数の容器ラック 16 は、円環状に並べて配置されるような構成に限らず、例えば円弧状に並べて配置されるような構成であってもよい。この場合は、円環状ではなく、円弧状の保持領域に複数の分離容器 50 及び回収容器 54 が保持される。
- [0043] 容器保持部 12 には、異なる分離性能を有する分離層が設けられた複数種類（例えば 2 種類）の分離容器 50 を分析者が設置しておくことができる。これらの分離容器 50 は、試料の分析項目に応じて使い分けられ、分析者によって指定された分析項目に応じた分離容器 50 が容器保持部 12 から選択されて搬送される。ここで、分析項目とは、前処理装置 1 で前処理が施された試料を用いて引き続き行われる分析の種類であり、例えば LC100 又は MS200 により実行される分析の種類である。
- [0044] 図 3 A は、分離容器 50 の構成例を示す側面図である。図 3 B は、図 3 A の分離容器 50 の平面図である。図 3 C は、図 3 B の A-A 断面を示す断面図である。図 4 A は、回収容器 54 の構成例を示す側面図である。図 4 B は、図 4 A の回収容器 54 の平面図である。図 4 C は、図 4 B の B-B 断面を示す断面図である。図 5 は、分離容器 50 及び回収容器 54 が重ね合せられた状態の前処理キットを示す断面図である。

- [0045] 分離容器 50 は、図 3 A～図 3 C に示すように、試料や試薬を収容する内部空間 50 a を有する円筒状の容器である。内部空間 50 a の底部には、分離層 52 が設けられている。分離層 52 とは、例えば試料を通過させて特定成分と物理的又は化学的に反応することで、試料中の特定成分を選択的に分離させる機能を有する分離剤又は分離膜である。
- [0046] 分離層 52 を構成する分離剤としては、例えばイオン交換樹脂、シリカゲル、セルロース、活性炭などを用いることができる。また、分離膜としては、例えば PTFE (ポリテトラフルオロエチレン) 膜、ナイロン膜、ポリプロピレン膜、PVDF (ポリフッ化ビニリデン) 膜、アクリル共重合体膜、混合セルロース膜、ニトロセルロース膜、ポリエーテルスルホン膜、イオン交換膜、グラスファイバー膜などを用いることができる。
- [0047] 試料中の蛋白質を濾過によって取り除くための除蛋白フィルタ (分離膜) としては、PTFE、アクリル共重合体膜などを用いることができる。この場合、除蛋白フィルタの目詰まりを防止するために、分離層 52 の上側にプレフィルタ (図示せず) を設けてもよい。このようなプレフィルタとしては、例えばナイロン膜、ポリプロピレン膜、グラスファイバー膜などを用いることができる。プレフィルタは、試料中から粒径の比較的大きい不溶物質や異物を取り除くためのものである。このプレフィルタにより、除蛋白フィルタが粒径の比較的大きい不溶物質や異物によって目詰まりするのを防止することができる。
- [0048] 分離容器 50 の上面には、試料や試薬を注入するための開口 50 b が形成されている。また、分離容器 50 の下面には、分離層 52 を通過した試料を抽出するための抽出口 50 d が形成されている。分離容器 50 の外周面の上部には、搬送アーム 24 の保持部 25 を係合させるための鍔部 50 c が周方向に突出するように形成されている。
- [0049] 分離容器 50 の外周面の中央部には、当該分離容器 50 が回収容器 54 とともに濾過ポート 30 に収容されたときに濾過ポート 30 の縁に接触するスカート部 51 が設けられている。スカート部 51 は、分離容器 50 の外周面

から周方向に突出し、そこから下方に延びるように断面L字状に形成されることにより、分離容器50の外周面との間に一定の空間を形成している。

- [0050] 回収容器54は、図4A～図4C及び図5に示すように、分離容器50の下部を収容し、分離容器50の抽出口50dから抽出された試料を回収する円筒状の容器である。回収容器54の上面には、分離容器50の下部を挿入させる開口54bが形成されている。回収容器54の内部には、分離容器50におけるスカート部51よりも下側の部分を収容する内部空間54aが形成されている。回収容器54の外周面の上部には、分離容器50と同様に、搬送アーム24の保持部25を係合させるための鍔部54cが周方向に突出するように形成されている。
- [0051] 図5のように分離容器50及び回収容器54が重ね合せられた状態では、回収容器54の上部がスカート部51の内側に入り込む。分離容器50の外径は、回収容器54の内径よりも小さく形成されている。これにより、回収容器54の内部空間54aに収容された分離容器50の外周面と、回収容器54の内周面との間に、僅かな隙間が形成される。容器保持部12には、分離容器50の下部が回収容器54内に収容された状態（図5の状態）で、分離容器50及び回収容器54が設置される。
- [0052] 回収容器54の上面の縁には、3つの切欠き54dが形成されている。したがって、図5のように分離容器50及び回収容器54が重ね合せられることにより、回収容器54の上面がスカート部51の内面に当接した状態であっても、切欠き54dを介して、回収容器54の内側と外側とを連通させることができる。ただし、切欠き54dの数は、3つに限らず、2つ以下であってもよいし、4つ以上であってもよい。また、切欠き54dに限らず、例えば小穴が形成された構成などであってもよい。
- [0053] 再び図2を参照すると、濾過ポート30は、容器保持部12の内側に設けられている。すなわち、濾過ポート30の外周に並べて配置された複数の容器ラック16により、円環状又は円弧状の保持領域が形成されており、当該保持領域に複数の分離容器50及び回収容器54が保持されている。このよ

うに、分離容器 50 及び回収容器 54 の保持領域が円環状又は円弧状に形成され、その中央部の空きスペースに濾過ポート 30 の設置スペースを確保することによって、よりコンパクトな構成とすることができます。

[0054] 特に、本実施形態では、分離容器 50 及び回収容器 54 が重ねられた状態で保持領域に保持されるため、分離容器 50 及び回収容器 54 の保持領域を別々に設ける必要がない。したがって、より多くの分離容器 50 及び回収容器 54 を小さい保持領域で保持することができる。これにより、分離容器 50 及び回収容器 54 の保持領域を小さくすることができ、さらにコンパクトな構成とすることができます。

[0055] また、円環状又は円弧状に形成された保持領域の中央部に濾過ポート 30 を設けることにより、保持領域に保持されている複数の分離容器 50 及び回収容器 54 と濾過ポート 30 の距離を比較的短くすることができる。これにより、分離容器 50 及び回収容器 54 を濾過ポート 30 に搬送する時間を短縮することができるため、前処理効率を向上させることができます。

[0056] 濾過ポート 30 は、分離容器 50 内の試料に圧力を付与することにより分離層 52 で試料を分離させる濾過部を構成している。本実施形態では、例えば 2 つの濾過ポート 30 が搬送アーム 24 の保持部 25 の軌道上に並べて設けられている。分離容器 50 及び回収容器 54 は、図 5 のように重ね合せられた状態で各濾過ポート 30 に設置され、負圧によって分離容器 50 内の分離層 52 で分離された試料が、回収容器 54 内に回収されるようになっている。ただし、分離容器 50 及び回収容器 54 は、互いに重ね合せられた状態で各濾過ポート 30 に設置されるような構成に限らず、分離容器 50 及び回収容器 54 が個別に設置されるような構成であってもよい。また、濾過ポート 30 の数は、2 つに限らず、1 つであってもよいし、3 つ以上であってもよい。

[0057] 攪拌ポート 36a は、容器保持部 12 の近傍に設けられた攪拌部 36 に、例えば搬送アーム 24 の保持部 25 の軌道上に並べて 3 つ設けられている。攪拌部 36 は、各攪拌ポート 36a を個別に水平面内で周期的に動作させる

機構を有している。このような機構により、各攪拌ポート36aに配置された分離容器50内の試料を攪拌することができる。ただし、攪拌ポート36aの数は、3つに限らず、2つ以下であってもよいし、4つ以上であってもよい。

[0058] 温調ポート38, 40は、例えばヒータとペルチェ素子により温度制御された熱伝導性のブロックに設けられており、温調ポート38, 40に収容された分離容器50又は回収容器54の温度が一定温度に調節される。温調ポート38は、分離容器50用であり、例えば搬送アーム24の保持部25の軌道上に並べて4つ配置されている。温調ポート40は、回収容器54用であり、分離容器50用の温調ポート38と同様、例えば搬送アーム24の保持部25の軌道上に並べて4つ配置されている。ただし、温調ポート38, 40の数は、それぞれ4つに限らず、3つ以下であってもよいし、5つ以上であってもよい。

[0059] 図6Aは、濾過ポート30の構成例を示す平面図である。図6Bは、図6AのX-X断面を示す断面図である。図6Cは、図6AのY-Y断面を示す断面図である。図6Dは、濾過ポート30に前処理キットを設置した状態を示す断面図である。

[0060] 濾過ポート30は、例えば凹部からなり、当該凹部が前処理キットを設置するための設置空間30aを構成している。すなわち、搬送アーム24により容器保持部12から搬送された分離容器50及び回収容器54が、図6Dに示すように、互いに重ねられた状態で設置空間30a内に設置される。このとき、設置空間30aには、まず回収容器54が収容され、その後に回収容器54の内部空間54aに分離容器50の下部が収容される。

[0061] 濾過ポート30内には、回収容器54を挟み込むように保持する保持部材31が設けられている。保持部材31は、例えば上方が開放されたU字状の金属部材であり、上方に延びた2本の腕部が濾過ポート30の内径方向へ弾性的に変位可能な2本の板ばねを構成している。保持部材31の2本の板ばね部分は、例えば上端部と下端部の間の部分において、互いの間隔が最も狭

くなるように内側に窪んだ湾曲形状又は屈曲形状となっている。2本の板ばね部分の間隔は、上端部及び下端部では回収容器54の外径よりも大きく、最も間隔が狭い部分では回収容器54の外径よりも小さくなっている。

- [0062] 上記のような保持部材31の形状により、濾過ポート30の設置空間30a内に回収容器54が差し込まれた場合には、回収容器54が下降するのに応じて保持部材31の2本の板ばね部分が開き、その弾性力によって回収容器54が設置空間30aに保持される。回収容器54は、保持部材31の2本の板ばね部分により、互いに対向する2方向から均等に押圧され、設置空間30aの中央部に保持される。保持部材31は、設置空間30a内に固定されており、回収容器54が取り出される際に回収容器54とともに浮き上がらないようになっている。
- [0063] 濾過ポート30の上面開口部の縁には、弾性力を有するリング状の封止部材60が設けられている。封止部材60は、例えば濾過ポート30の上面開口部の縁に設けられた窪みに嵌め込まれている。封止部材60の材質は、例えばシリコーンゴムやE P D M（エチレン-プロピレンジエンゴム）などの弾性材料である。濾過ポート30の設置空間30a内に回収容器54及び分離容器50が設置された場合には、分離容器50のスカート部51の下端が封止部材60に当接し、スカート部51によって設置空間30aが密閉された状態となる。ただし、分離容器50における封止部材60との接触部分は、スカート部51のような形状の部材により構成されるものに限らず、例えばフランジ部などの他の各種形状の接触部により構成することができる。
- [0064] 設置空間30aには、濾過ポート30の底面から減圧用の流路56が連通している。流路56には、負圧負荷機構55の流路57が接続されている。負圧負荷機構55は、例えば真空ポンプを含み、設置空間30a内に負圧を負荷する負圧負荷部を構成している。濾過ポート30に分離容器50及び回収容器54が収容された状態で、負圧負荷機構55により設置空間30a内を減圧すれば、設置空間30a内が負圧になる。
- [0065] 負圧になった設置空間30aには、回収容器54の切欠き54d、及び、

回収容器 5 4 の内周面と分離容器 5 0 の外周面との隙間を介して、回収容器 5 4 の内部空間 5 4 a が連通している。分離容器 5 0 の上面は大気開放されているため、分離容器 5 0 の内部空間 5 0 a と回収容器 5 4 の内部空間 5 4 a との間に分離層 5 2 を介して圧力差が生じる。したがって、分離容器 5 0 の内部空間 5 0 a に収容されている試料のうち分離層 5 2 を通過することができる成分のみが、その圧力差によって分離層 5 2 で分離され、回収容器 5 4 の内部空間 5 4 a 側に抽出される。

- [0066] 図 7 は、負圧負荷機構 5 5 の構成例を示す概略図である。2 つの濾過ポート 3 0 は、共通の真空タンク 6 6 に接続されている。各濾過ポート 3 0 と真空タンク 6 6 との間は、それぞれ流路 5 7 により接続されており、各流路 5 7 には圧力センサ 6 2 及び 3 方バルブ 6 4 が設けられている。各濾過ポート 3 0 の設置空間 3 0 a 内の圧力は、各圧力センサ 6 2 により検知される。各 3 方バルブ 6 4 は、濾過ポート 3 0 と真空タンク 6 6 との間を接続した状態、流路 5 7 のうち濾過ポート 3 0 側を大気開放した状態（図 7 の状態）、又は、流路 5 7 のうち濾過ポート 3 0 側の端部を密閉した状態のいずれかに切り替えることができる。
- [0067] 真空タンク 6 6 には、圧力センサ 6 8 が接続されるとともに、3 方バルブ 7 0 を介して真空ポンプ 5 8 が接続されている。したがって、3 方バルブ 7 0 を切り替えることにより、必要に応じて真空タンク 6 6 に真空ポンプ 5 8 を接続し、真空タンク 6 6 内の圧力を調節することができる。
- [0068] いずれかの濾過ポート 3 0 において試料の抽出処理を実行する際には、その濾過ポート 3 0 と真空タンク 6 6 との間を接続し、当該濾過ポート 3 0 の設置空間 3 0 a 内の圧力を検知する圧力センサ 6 2 の値が所定値となるように調節する。その後、流路 5 7 のうち当該濾過ポート 3 0 側の端部を密閉した状態にする。これにより、濾過ポート 3 0 の設置空間 3 0 a が密閉系となり、設置空間 3 0 a 内の減圧状態が維持されることによって、試料の抽出が行われる。
- [0069] 再び図 2 を参照すると、この前処理装置 1 には、回収容器 5 4 に抽出され

た試料をオートサンプラ 101 側に転送するための試料転送部 42 が備えられている。試料転送部 42 は、水平面内で一方向（図 2 の矢印方向）に移動する移動部 44 を備えており、当該移動部 44 の上面に、回収容器 54 を設置するための転送ポート 43 が設けられている。移動部 44 は、例えばラックピニオン機構を有する駆動機構の動作により移動する。

- [0070] オートサンプラ 101 側への試料の転送を行っていないときには、搬送アーム 24 の保持部 25 の軌道上（図 2 に実線で示されている位置）に転送ポート 43 が配置される。この状態で、搬送アーム 24 による転送ポート 43 への回収容器 54 の設置や、転送ポート 43 からの回収容器 54 の回収が行われる。
- [0071] オートサンプラ 101 側への試料の転送を行う際には、抽出された試料を収容している回収容器 54 が転送ポート 43 に設置された後、移動部 44 が前処理装置 1 の外側方向へ移動し、転送ポート 43 がオートサンプラ 101 に隣接する位置（図 2 に破線で示されている位置）に配置される。この状態で、オートサンプラ 101 に設けられたサンプリング用のノズルにより、回収容器 54 内の試料が吸入される。
- [0072] オートサンプラ 101 による試料吸入が終了すると、移動部 44 は元の位置（図 2 に実線で示されている位置）に戻され、搬送アーム 24 によって回収容器 54 が回収される。使用済みの回収容器 54 は、搬送アーム 24 によって廃棄ポート 34 に搬送され、廃棄される。廃棄ポート 34 は、搬送アーム 24 の保持部 25 の軌道上における分注ポート 32 の近傍に配置されており、使用済みの分離容器 50 及び回収容器 54 が廃棄される。
- [0073] サンプリングノズル 20a の軌道上には、当該サンプリングノズル 20a の洗浄を行うための洗浄ポート 45 が設けられている。なお、図示は省略されているが、試薬添加ノズル 26a の軌道上には、当該試薬添加ノズル 26a の洗浄を行うための洗浄ポートが設けられている。
- [0074] 図 8 は、容器保持部 12 の構成例を示す側面図である。本実施形態では、図 1 及び図 8 に示すように、容器保持部 12 に検知アーム 18 が設けられて

いる。検知アーム 18 は、容器保持部 12 の中央部側から径方向外側に向かって水平方向に延びている。検知アーム 18 は、容器保持部 12 に前処理キットが正常に設置された場合の分離容器 50 の上面よりも若干量（例えば 0.3 ~ 0.5 mm 程度）だけ高い位置に配置されている。

[0075] したがって、容器保持部 12 に保持されている全ての前処理キットが、図 8 に示すような規定位置に正常に設置されていれば、容器保持部 12 の回転部 14 が回転したときに、前処理キットが検知アーム 18 に接触することはない。一方、容器保持部 12 に保持されている前処理キットのいずれかが正常に設置されておらず、少なくとも 1 つの分離容器 50 が規定位置よりも上方に突出している場合には、容器保持部 12 の回転部 14 が回転したときに、その分離容器 50 が検知アーム 18 に接触する。

[0076] 図 9 は、分析システムの電気的構成の一例を示すブロック図である。以下の説明において「ポート」とは、分離容器 50 又は回収容器 54 が設置される濾過ポート 30、分注ポート 32、攪拌ポート 36a、温調ポート 38、40 及び転送ポート 43 などの複数種類のポートのうちのいずれかを意味している。

[0077] 前処理装置 1 に備えられている操作表示部 1a、試料設置部 2、試薬設置部 8、容器保持部 12、サンプリングアーム 20、搬送アーム 24、試薬アーム 26、攪拌部 36、試料転送部 42 及び負圧負荷機構 55 の動作は、制御部 84 により制御される。制御部 84 は、例えば C P U (Central Processing Unit) を含み、当該 C P U がプログラムを実行することにより、前処理手段 84a、処理状況管理手段 84b、ランダムアクセス手段 84c、選択受付手段 84d 及び報知処理手段 84e などとして機能する。

[0078] 制御部 84 には、例えばパーソナルコンピュータ (P C) や専用のコンピュータにより構成される演算処理装置 90 が接続されており、分析者は演算処理装置 90 を介して前処理装置 1 を管理することができる。演算処理装置 90 には、前処理装置 1 だけでなく、前処理装置 1 で前処理が施された試料の分析を行う L C 100 及び M S 200 や、L C 100 への試料の注入を行

うオートサンプラー101などが接続されており、演算処理装置90により、これらの装置を連動させて自動制御することができるようになっている。

- [0079] 既述の通り、試料設置部2には複数の試料容器が設置されており、それらの試料容器に収容されている試料が分離容器50に順次分注され、その試料に対して実行されるべき前処理項目に対応するポートに分離容器50が搬送される。前処理手段84aは、各ポートに分離容器50又は回収容器54が設置されたときに、そのポートにおける所定の処理を実行する。
- [0080] ランダムアクセス手段84cは、各ポートにおける前処理の状況を確認し、そのポートでの前処理が終了した分離容器50を次の前処理を行うためのポートに搬送するように、搬送アーム24の動作を制御する。すなわち、ランダムアクセス手段84cは、各試料に対して次に行うべき前処理項目を確認し、その前処理項目に対応するポートの空き状況を確認し、空きがあればその試料を収容した分離容器50又は回収容器54を当該ポートに搬送させる。また、各試料に対して次に行うべき前処理項目に対応するポートの空きがない場合には、ランダムアクセス手段84cは、そのポートが空き次第、対象の分離容器50又は回収容器54を当該ポートに搬送させる。
- [0081] 処理状況管理手段84bは、各ポートの空き状況や各ポートでの処理状況を管理する。各ポートの空き状況は、どのポートに分離容器50又は回収容器54を設置したかを記憶することにより管理することができる。また、各ポートに分離容器50又は回収容器54が設置されているか否かを検知するセンサを設け、そのセンサからの信号に基づいて各ポートの空き状況を管理してもよい。
- [0082] 各ポートにおける処理状況は、そのポートに分離容器50又は回収容器54が設置されてから、当該ポートで実行される前処理に要する時間が経過したか否かにより管理することができる。転送ポート43における処理（オートサンプラー101による試料吸入）の状況については、オートサンプラー101側から試料吸入が終了した旨の信号を受信したか否かにより管理してもよい。

- [0083] ここで、濾過ポート30は2つ、攪拌ポート36aは3つ、温調ポート38、40はそれぞれ4つずつ設けられているが、これらの同じ前処理を実行するポート間には優先順位が設定されており、ランダムアクセス手段84cは優先順位の高いポートから順に使用するように構成されている。例えば、試料の濾過を実行する際に、2つの濾過ポート30がいずれも空いている場合には、優先順位の高い濾過ポート30に回収容器54が設置され、その回収容器54上に分離容器50が設置される。
- [0084] 本実施形態では、例えばRAM(Random Access Memory)又はハードディスクなどにより構成される記憶部86に、分離容器50の種類と、容器保持部12に保持されている分離容器50の位置とを対応付けて記憶することができるようになっている。このような対応関係は、例えば分析者が予め操作表示部1aを操作することにより設定することができる。
- [0085] 試料の分析を行う際には、分析者が操作表示部1aを操作することにより、試料の分析項目に応じた分離容器50の種類を選択する。選択受付手段84dは、分離容器50の種類の選択を受け付ける選択受付部であり、ランダムアクセス手段84cは、選択受付手段84dにより受け付けられた種類の分離容器50が容器保持部12から搬送されるように、搬送アーム24の動作を制御する。このとき、ランダムアクセス手段84cは、記憶部86に記憶されている対応関係に基づいて、選択された種類の分離容器50を容器保持部12から搬送させる。
- [0086] これにより、分析者は分析項目に適した分離容器50を選択し、当該分離容器50を容器保持部12から確実に搬送させることができる。したがって、より幅広い分析項目に適応することができるとともに、選択された分析項目に最適な前処理を実行することができる。
- [0087] 容器保持部12の回転部14が正常に動作しているか否かは、回転センサ24aにより検知することができる。この回転センサ24aは、例えば回転部14の回転位置を機械的又は光学的に検知することにより、回転部14の動作異常を検知するような構成であってもよい。例えば、図8において説明

したように、容器保持部12により保持されている前処理キットが規定位置よりも突出している場合には、その分離容器50が検知アーム18に接触するため、容器保持部12の回転部14が回転できなくなる。このような場合に、回転センサ24aからの信号に基づいて、回転部14の動作異常を検知することができる。

- [0088] このように、検知アーム18及び回転センサ24aは、容器保持部12により保持されている分離容器50が、規定位置よりも突出していることを検知する検知部を構成している。ただし、分離容器50及び回収容器54が別々に容器保持部12で保持された構成の場合には、検知部は、分離容器50ではなく、回収容器54が規定位置よりも突出していることを検知するものであってもよい。
- [0089] 報知処理手段84eは、回転センサ24aからの信号に基づいて、操作表示部1aに対する表示を制御することにより、容器保持部12の回転部14の動作異常を分析者に報知する。すなわち、報知処理手段84e及び操作表示部1aは、分離容器50が規定位置よりも突出していることが検知された場合に、その旨を報知する報知部を構成している。ただし、報知部は、表示により報知を行うような構成に限らず、例えば音声などの他の態様で報知を行うような構成であってもよい。また、分離容器50及び回収容器54が別々に容器保持部12で保持された構成の場合には、回収容器54が規定位置よりも突出していることを報知部により報知してもよい。
- [0090] このように、本実施形態では、容器保持部12により保持されている前処理キットが、設置ミスなどで規定位置よりも突出している場合に、その旨を検知することができる。これにより、分離容器50及び回収容器54を搬送アーム24で搬送する際に異常が生じるのを効果的に防止することができるため、前処理効率を向上させることができる。
- [0091] 特に、本実施形態のように、分離容器50及び回収容器54が重ねられた状態で前処理キットとして容器保持部12に設置されるような構成の場合には、互いに重ね合せられた分離容器50及び回収容器54の位置がずれやす

い。したがって、このような場合に、前処理キットのずれを検知部で検知することによって、分離容器 50 及び回収容器 54 を搬送アーム 24 で搬送する際に異常が生じるのをより効果的に防止することができる。

[0092] また、本実施形態では、上記のような異常が分析者に報知されるため、その報知に気付いた分析者が、容器保持部 12 により保持されている分離容器 50 及び回収容器 54 の状態を確認することができる。これにより、分離容器 50 及び回収容器 54 のずれを確実に直した上で前処理を実行させることができる。

[0093] 図 10 は、検知アーム 18 の変形例を示す側面図である。この例では、上記実施形態と同様に、検知アーム 18 が容器保持部 12 の中央部側から径方向外側に向かって水平方向に延びているが、検知アーム 18 の下部にテープ面 18a が形成されている点が上記実施形態とは異なる。テープ面 18a の下端は、容器保持部 12 に前処理キットが正常に設置された場合の分離容器 50 の上面よりも若干量（例えば 0.3 ~ 0.5 mm 程度）だけ高い位置に配置されている。

[0094] したがって、容器保持部 12 に保持されている全ての前処理キットが規定位置に正常に設置されていれば、容器保持部 12 の回転部 14 が回転したときに、前処理キットが検知アーム 18 に接触することはない。一方、容器保持部 12 に保持されている前処理キットのいずれかが正常に設置されておらず、少なくとも 1 つの分離容器 50 が規定位置よりも上方に突出している場合には、図 10 に矢印で示す方向に容器保持部 12 の回転部 14 が回転したときに、その分離容器 50 が検知アーム 18 に接触する。

[0095] このような場合であっても、当該変形例では、押圧部としてのテープ面 18a の作用により、規定位置よりも突出している分離容器 50 を容器保持部 12 に対して押し込むことができる。このように、容器保持部 12 により保持されている分離容器 50 が、設置ミスなどで規定位置よりも突出している場合に、当該分離容器 50 を容器保持部 12 に対してテープ面 18a で押し込むことにより、分離容器 50 のずれを確実に直した上で前処理を実行させ

ることができる。

[0096] ただし、分離容器 50 及び回収容器 54 が別々に容器保持部 12 で保持された構成の場合には、テーパ面 18a は、分離容器 50 ではなく、規定位置よりも突出している回収容器 54 に接触するような構成であってもよい。また、押圧部は、規定位置よりも突出している分離容器 50 又は回収容器 54 を容器保持部 12 に対して押し込むことができるような形状であれば、テーパ面 18a のような平面形状に限らず、凸湾曲面又は凹湾曲面のような曲面形状などであってもよい。

[0097] 図 11A 及び図 11B は、前処理装置 1 の動作の一例を示すフローチャートである。図 11A 及び図 11B では、1 つの試料についての前処理の流れのみを示しており、この前処理の動作は他の試料の前処理動作と同時並行的にかつ独立して実行される。「前処理が同時並行的にかつ独立して実行される」とは、ある試料について各ポートで前処理が行われている間も、別の試料を収容した分離容器 50 又は回収容器 54 が搬送アーム 24 により他のポートに搬送され、その試料の前処理が独立して実行されることを意味している。

[0098] まず、試料に対して分析者が予め指定した分析項目の確認が行われ（ステップ S1）、その分析項目を実行するために必要な前処理項目が割り出される。そして、分注ポート 32 が空いているか否かが確認され、分注ポート 32 が空いていれば（ステップ S2 で Yes）、その試料を収容するための未使用の分離容器 50 が搬送アーム 24 により容器保持部 12 から取り出され、当該分注ポート 32 に設置される（ステップ S3）。このとき、容器保持部 12 には分離容器 50 と回収容器 54 が重ねられた状態（図 5 の状態）で設置されているが、搬送アーム 24 は、上側の分離容器 50 のみを保持部 25 で保持して分注ポート 32 へ搬送する。

[0099] その後、分注ポート 32 内の分離容器 50 に対して、サンプリングノズル 20a により試料が分注される（ステップ S4）。分離容器 50 に試料を分注したサンプリングノズル 20a は、洗浄ポート 45 において洗浄が行われ

た後、次の試料の分注に備えることとなる。試料が分注された分離容器 50 には、その試料に対して実行すべき前処理に応じた試薬が試薬添加ノズル 26 a により試薬容器 10 から分注される（ステップ S 5）。なお、分離容器 50 への試薬の分注は、試料の分注の前に実行されてもよい。また、試薬を分注するための試薬分注用ポートを分注ポート 32 とは別の位置に設けて、その試薬分注用ポートに搬送アーム 24 で分離容器 50 を搬送し、当該試薬分注用ポートにおいて試薬の分注が行われるような構成であってもよい。

- [0100] このようにして分離容器 50 に試料及び試薬が分注された後、攪拌ポート 36 a の空き状況が確認される（ステップ S 6）。そして、攪拌ポート 36 a に空きがあれば（ステップ S 6 で Yes）、分注ポート 32 内の分離容器 50 が、その空いている攪拌ポート 36 a へと搬送アーム 24 により搬送され、攪拌処理が行われる（ステップ S 7）。この攪拌処理は、予め設定された一定時間だけ行われ、これにより分離容器 50 内の試料と試薬が混合される。
- [0101] 攪拌処理中には、濾過ポート 30 の空き状況が確認される（ステップ S 8）。そして、濾過ポート 30 に空きがあれば（ステップ S 8 で Yes）、搬送アーム 24 により回収容器 54 を濾過ポート 30 へと搬送する（ステップ S 9）。このとき濾過ポート 30 に設置される回収容器 54 は、攪拌ポート 36 a において攪拌中の分離容器 50 と対をなす回収容器 54 であり、容器保持部 12 において当該分離容器 50 と重ねた状態で設置されていた回収容器 54 である。なお、この攪拌処理中に、搬送アーム 24 により別の分離容器 50 や回収容器 54 を搬送することもできる。
- [0102] 攪拌部 36 における攪拌処理が終了すると、搬送アーム 24 により攪拌ポート 36 a から濾過ポート 30 へと分離容器 50 が搬送され、図 6 D のように濾過ポート 30 内の回収容器 54 上に分離容器 50 が設置される（ステップ S 10）。このとき、分離容器 50 のスカート部 51 の下端が濾過ポート 30 の周囲に設けられた封止部材 60 の上面の高さよりも僅かに（例えば 0 . 1 mm 程度）低くなるまで、分離容器 50 が搬送アーム 24 により設置空

間30a側に押圧される。これにより、封止部材60がスカート部51の下端により押し潰されるため、スカート部51の下端と封止部材60との間の気密性が向上する。

- [0103] 分離容器50及び回収容器54が設置された濾過ポート30の設置空間30aには、負圧負荷機構55によって所定の負圧が負荷される。濾過ポート30の設置空間30aに負圧が負荷された状態で一定時間維持されることにより、分離容器50の試料が濾過され、回収容器54に試料が抽出される（ステップS11）。この濾過処理中にも、搬送アーム24により別の分離容器50や回収容器54を搬送することができる。
- [0104] なお、この前処理動作には組み込まれていないが、分離容器50内の試料の攪拌処理後に、分離容器50内の試料を一定時間だけ一定温度下で維持する温調処理が組み込まれている場合もある。その場合には、攪拌処理の終了後、温調ポート38の空き状況が確認され、空きがあれば、その空いている温調ポート38に分離容器50が搬送される。そして、一定時間が経過した後、温調ポート38内の分離容器50が濾過ポート30へと搬送され、当該濾過ポート30内の回収容器54上に設置される。
- [0105] 試料の濾過処理が終了した後、3方バルブ64（図7参照）が切り替えられることにより、濾過ポート30の設置空間30a内が大気圧とされる。そして、使用済みの分離容器50は、搬送アーム24の保持部25により濾過ポート30から取り出され、廃棄ポート34に廃棄される（ステップS12）。
- [0106] その後、転送ポート43の空き状況が確認され、転送ポート43が空いていれば（ステップS13でYess）、濾過ポート30内の回収容器54が搬送アーム24により試料転送部42へと搬送され、転送ポート43上に設置される。そして、移動部44が、隣接配置されたオートサンプラ101側の位置（図2で破線で示された位置）へ移動することにより、回収容器54がオートサンプラ101側へ転送される（ステップS14）。オートサンプラ101側では、試料転送部42から転送された回収容器54内に対して、サ

ンプリング用ノズルによる試料の吸入が行われる。

- [0107] 移動部44は、オートサンプラ101における試料吸入が終了するまでオートサンプラ101側の位置で停止しており、試料吸入が終了した旨の信号をオートサンプラ101から受信すると（ステップS15でYes）、元の位置（図2に実線で示された位置）に戻る。試料の転送が終了した後、使用済みの回収容器54は、搬送アーム24により転送ポート43から回収され、廃棄ポート34に廃棄される（ステップS16）。
- [0108] なお、この前処理動作には組み込まれていないが、試料の濾過処理後に、回収容器54に抽出された試料を一定時間だけ一定温度下で維持する温調処理が組み込まれている場合もある。その場合には、温調ポート40の空き状況が確認され、空きがあれば、その空いている温調ポート40に回収容器54が搬送される。そして、一定時間が経過した後、温調ポート40内の回収容器54が転送ポート43へと搬送され、試料の転送が行われる。
- [0109] 以上の実施形態では、図2に示すように、容器ラック16に対して前処理キットが2列で保持されるような構成について説明した。しかし、容器ラック16は、前処理キットを1列で保持するような構成であってもよいし、3列以上で保持するような構成であってもよい。
- [0110] 図12は、容器ラック16の変形例を示す平面図である。この例では、容器ラック16に対して前処理キットが3列で保持されるようになっている。すなわち、図2に示すように容器ラック16が円環状又は円弧状に並べて配置された場合に、径方向に3列で整列するように複数の保持穴16aが形成されており、各保持穴16aに前処理キットが保持される。
- [0111] これらの保持穴16aが形成された容器ラック16の上面の各列16bは、それぞれ異なる色で着色されている。これにより、分析者が各列16bを間違えて保持穴16aに前処理キットを設置するのを防止することができる。また、容器ラック16の上面には、分離容器50の種類と、容器保持部12に保持されている分離容器50の位置とを対応付けて記憶部86に記憶する際に用いられる識別情報（例えば数字）が、各保持穴16aに対応付けて

表示されている。

- [0112] 容器ラック16の上面の内周側における周方向の両端部には、それぞれ係止溝16cが形成されている。容器ラック16を容器保持部12の回転部14上に設置する際には、回転部14側に設けられているピン（図示せず）が係止溝16cに係止されることにより位置決めされる。このピンには着色が施されており、容器ラック16の上面における係止溝16cの周縁部16dには、例えばピンと同色で着色が施されている。これにより、分析者が容器ラック16を回転部14上に設置する作業を円滑に行うことができる。
- [0113] 以上の実施形態では、濾過ポート30の設置空間30a内を負圧とすることにより、分離容器50内の試料が分離されるような構成について説明した。しかし、このような構成に限らず、分離容器50内を加圧することにより、分離容器50内の試料が分離されるような構成であってもよい。
- [0114] 前処理装置1の制御部84と演算処理装置90は、別々に設けられた構成に限らず、1つの制御部によって分析システム全体の動作が制御されるような構成であってもよい。また、前処理装置1により前処理が施された後の試料は、LC100又はMS200に導入される構成に限らず、他の装置に導入されるような構成であってもよい。

符号の説明

- [0115]
- | | |
|-----|---------|
| 1 | 前処理装置 |
| 1 a | 操作表示部 |
| 2 | 試料設置部 |
| 4 | サンプルラック |
| 6 | 試料容器 |
| 8 | 試薬設置部 |
| 10 | 試薬容器 |
| 12 | 容器設置部 |
| 14 | 回転部 |
| 16 | 容器ラック |

- 16 a 保持穴
16 b 列
16 c 係止溝
16 d 周縁部
18 検知アーム
18 a テーパ面
20 サンプリングアーム
20 a サンプリングノズル
22 鉛直軸
24 搬送アーム
24 a 回転センサ
25 保持部
26 試薬アーム
26 a 試薬添加ノズル
29 鉛直軸
30 濾過ポート
30 a 設置空間
31 保持部材
32 分注ポート
34 廃棄ポート
36攪拌部
36 a 攪拌ポート
38 温調ポート
40 温調ポート
42 試料転送部
43 転送ポート
44 移動部
45 洗浄ポート

- 5 0 分離容器
- 5 0 a 内部空間
- 5 0 b 開口
- 5 0 c 鎖部
- 5 0 d 抽出口
- 5 1 スカート部
- 5 2 分離層
- 5 4 回収容器
- 5 4 a 内部空間
- 5 4 b 開口
- 5 4 c 鎖部
- 5 4 d 切欠き
- 5 5 負圧負荷機構
- 5 6 流路
- 5 7 流路
- 5 8 真空ポンプ
- 6 0 封止部材
- 6 2 圧力センサ
- 6 4 3方バルブ
- 6 6 真空タンク
- 6 8 圧力センサ
- 7 0 3方バルブ
- 8 4 制御部
- 8 4 a 前処理手段
- 8 4 b 処理状況管理手段
- 8 4 c ランダムアクセス手段
- 8 4 d 選択受付手段
- 8 4 e 報知処理手段

- 8 6 記憶部
- 9 0 演算処理装置
- 1 0 0 液体クロマトグラフ（L C）
- 1 0 1 オートサンプラ
- 2 0 0 質量分析装置（M S）
- 2 0 1 イオン化部
- 2 0 2 質量分析部

請求の範囲

- [請求項1] 試料を通過させて試料中の特定成分を分離させる分離層を有する分離容器、及び、前記分離層により抽出された試料を回収する回収容器を含む複数の容器を保持する容器保持部と、
前記分離容器内の試料に圧力を付与することにより前記分離層で試料を分離させる濾過部と、
前記容器保持部により保持されている容器を所定の搬送位置から搬送する搬送部とを備え、
前記容器保持部は、前記濾過部の外周に形成された円環状又は円弧状の保持領域に複数の容器を保持し、当該複数の容器を前記保持領域の周方向に変位させることにより前記搬送位置に順次移動させることを特徴とする前処理装置。
- [請求項2] 前記容器保持部には、前記分離容器及び前記回収容器が重ねられた状態で設置されることを特徴とする請求項1に記載の前処理装置。
- [請求項3] 前記容器保持部は、水平面内で回転する回転部と、前記回転部に対して着脱可能であり、それぞれ複数の容器を保持する複数の容器ラックとを有することを特徴とする請求項1又は2に記載の前処理装置。
- [請求項4] 前記容器保持部により保持されている容器が、規定位置よりも突出していることを検知する検知部をさらに備えたことを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の前処理装置。
- [請求項5] 前記検知部により容器が規定位置よりも突出していることが検知された場合に、その旨を報知する報知部をさらに備えたことを特徴とする請求項4に記載の前処理装置。
- [請求項6] 前記容器保持部により保持されている容器が規定位置よりも突出している場合に、当該容器を前記容器保持部に対して押し込む押圧部をさらに備えたことを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の前処理装置。
- [請求項7] 前記容器保持部には、複数種類の分離容器が保持され、

前記分離容器の種類、及び、前記容器保持部に保持されている前記分離容器の位置を対応付けて記憶する記憶部と、

前記分離容器の種類の選択を受け付ける選択受付部とをさらに備え、

前記搬送部は、選択された種類の前記分離容器を、前記記憶部に記憶されている対応関係に基づいて前記容器保持部から搬送することを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載の前処理装置。

[請求項8] 請求項1～7のいずれかに記載の前処理装置と、

前記前処理装置において抽出された試料が導入される液体クロマトグラフと、

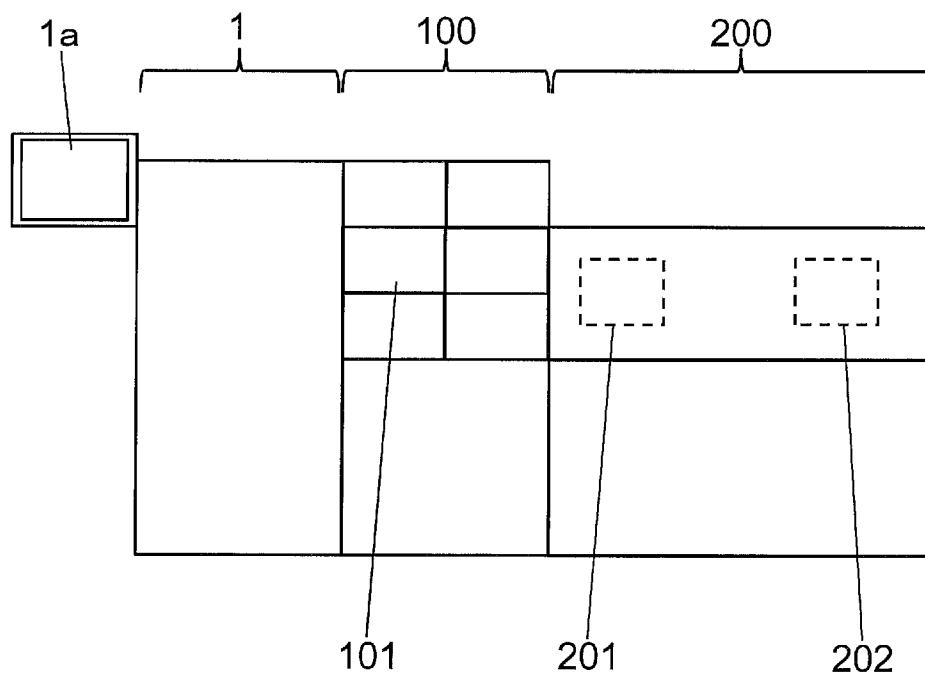
前記前処理装置及び前記液体クロマトグラフを連動させて自動制御する制御部とを備えたことを特徴とする分析システム。

[請求項9] 請求項1～7のいずれかに記載の前処理装置と、

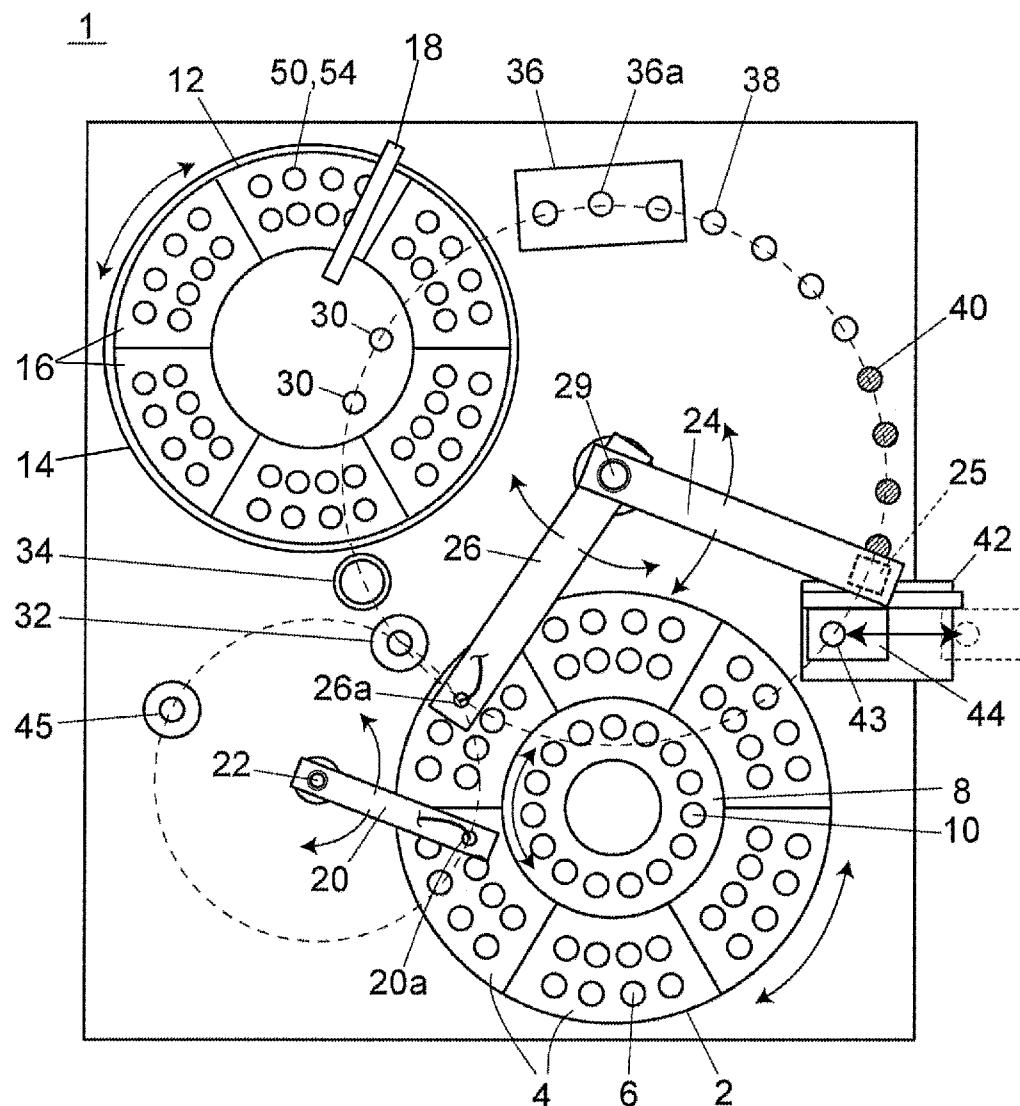
前記前処理装置において抽出された試料が導入される質量分析装置と、

前記前処理装置及び前記質量分析装置を連動させて自動制御する制御部とを備えたことを特徴とする分析システム。

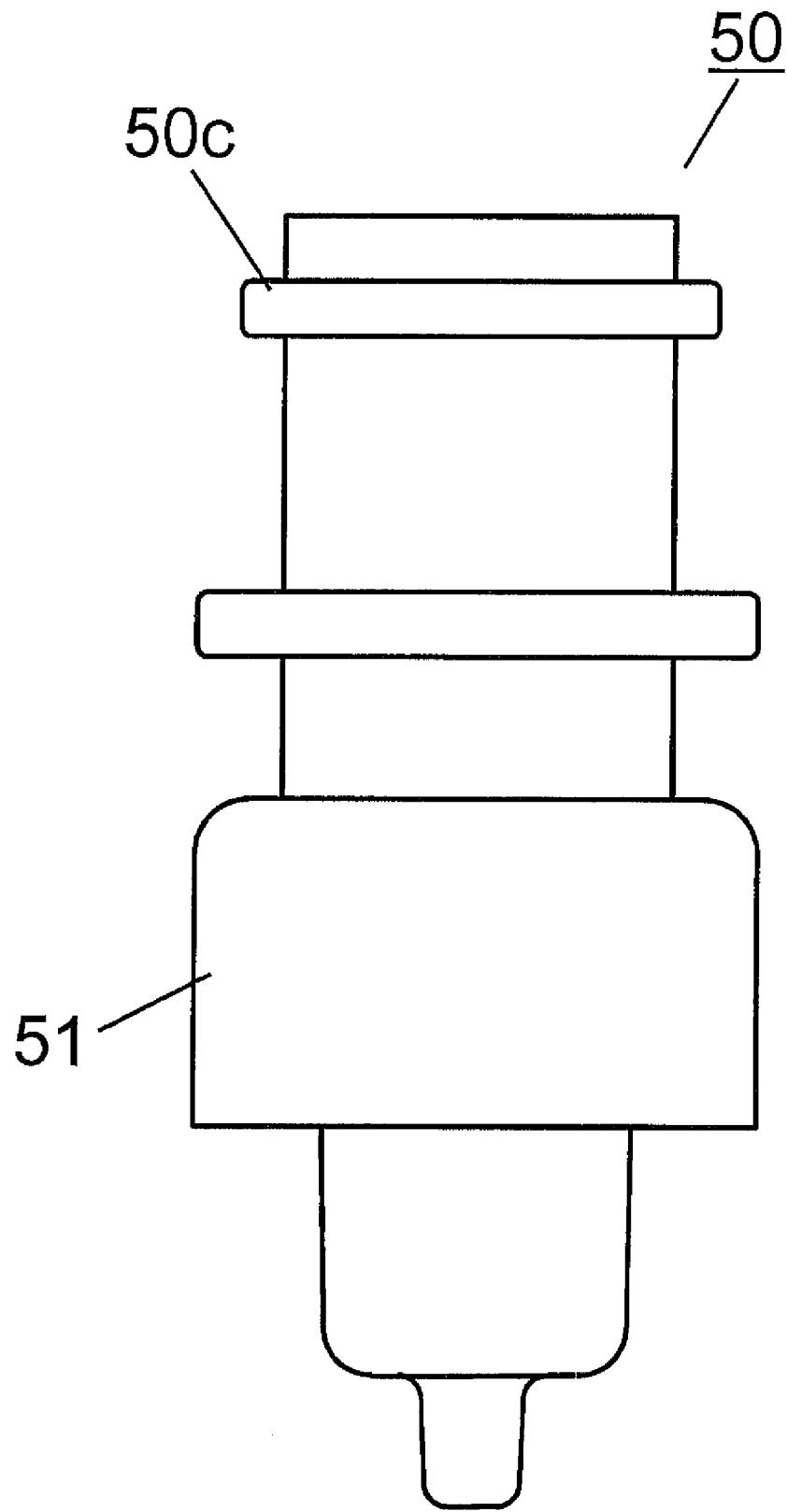
[図1]



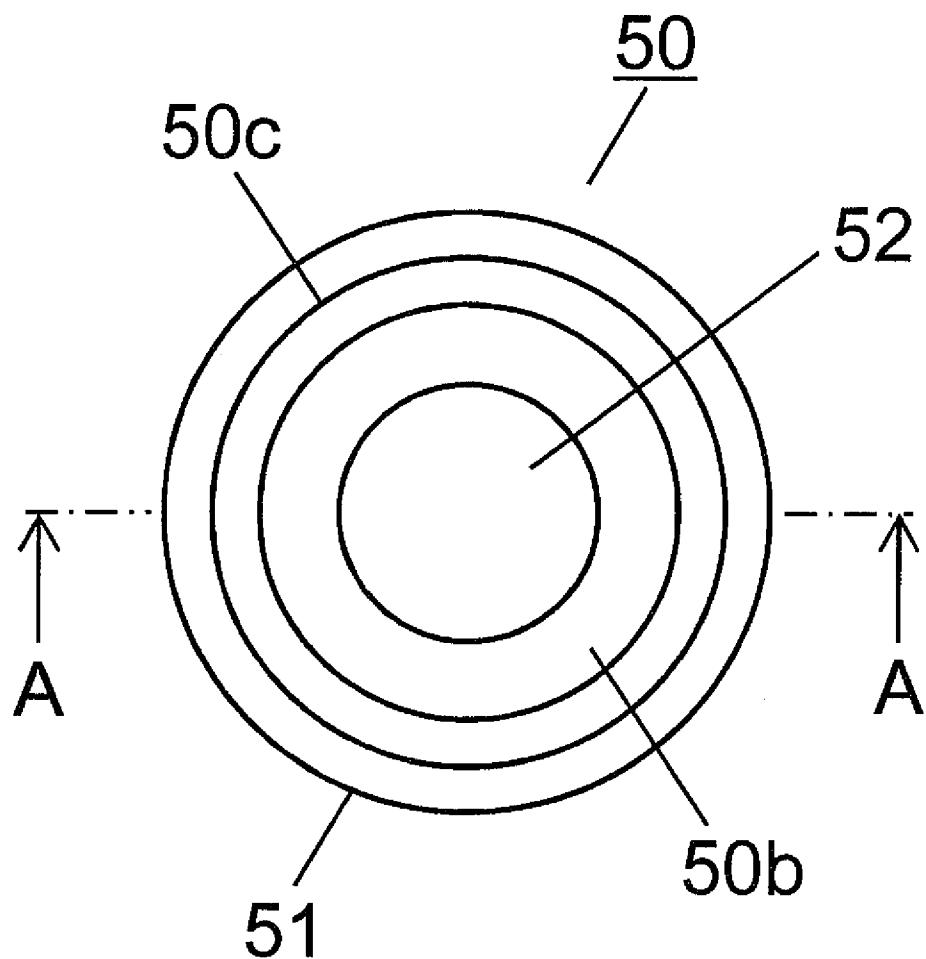
[図2]



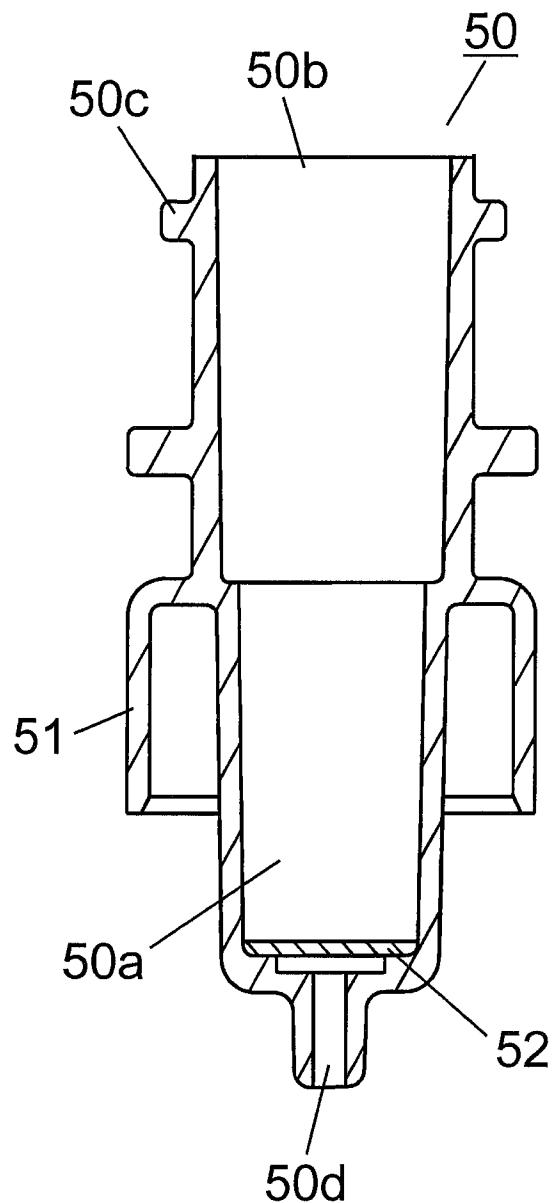
[図3A]



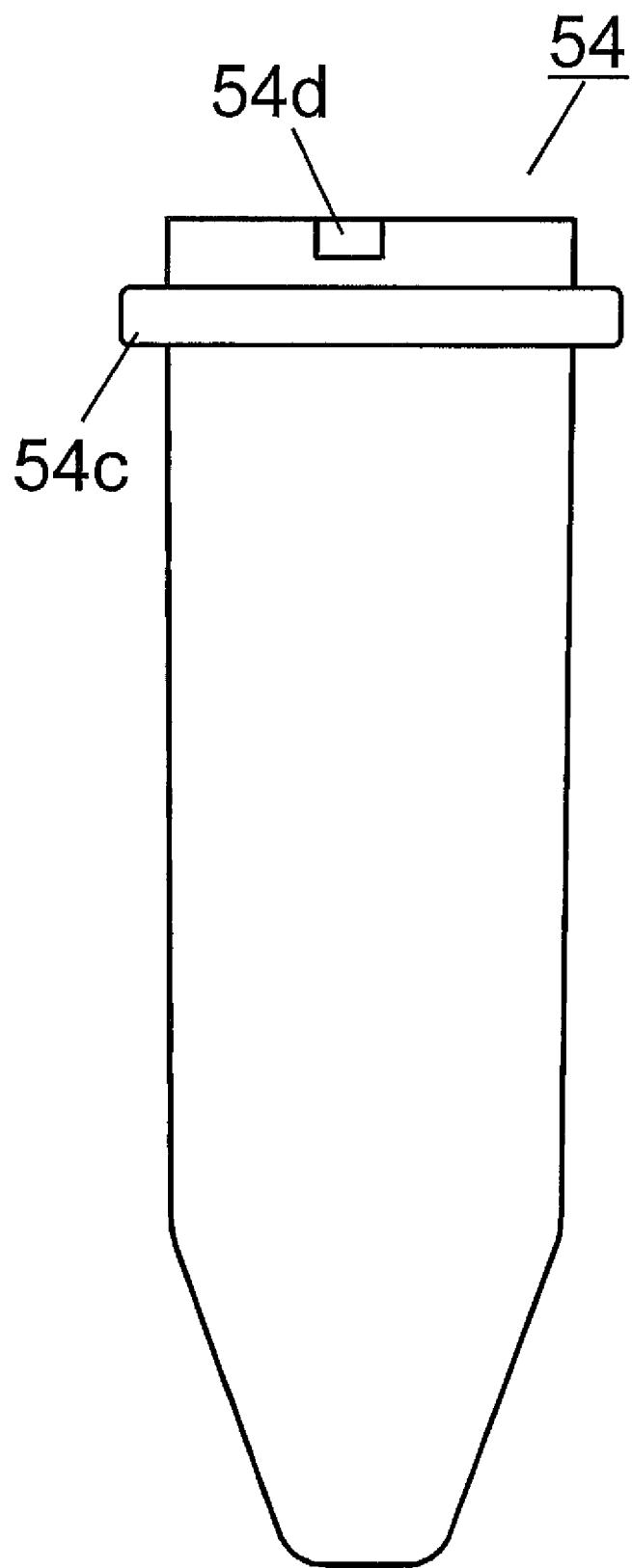
[図3B]



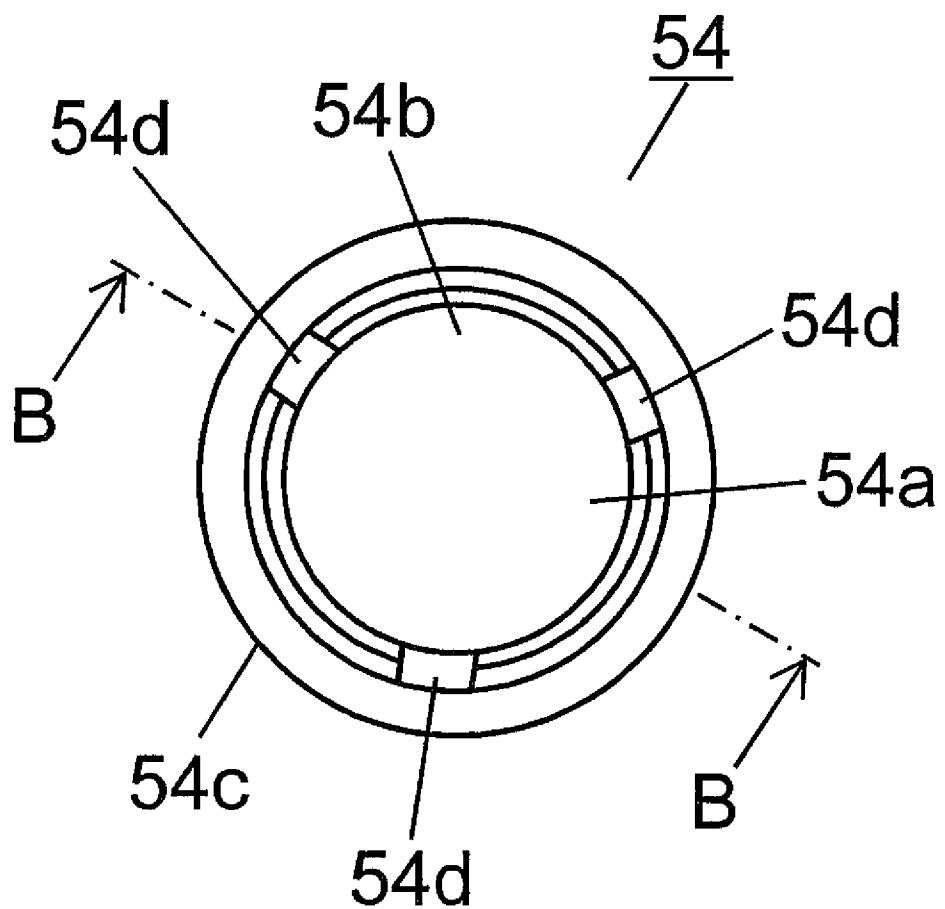
[図3C]



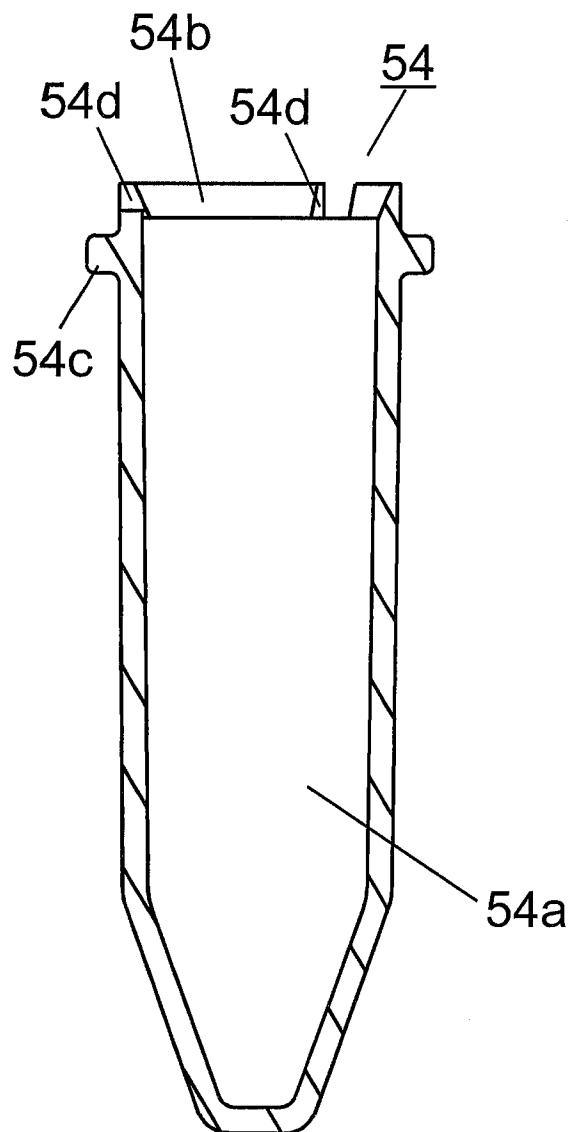
[図4A]



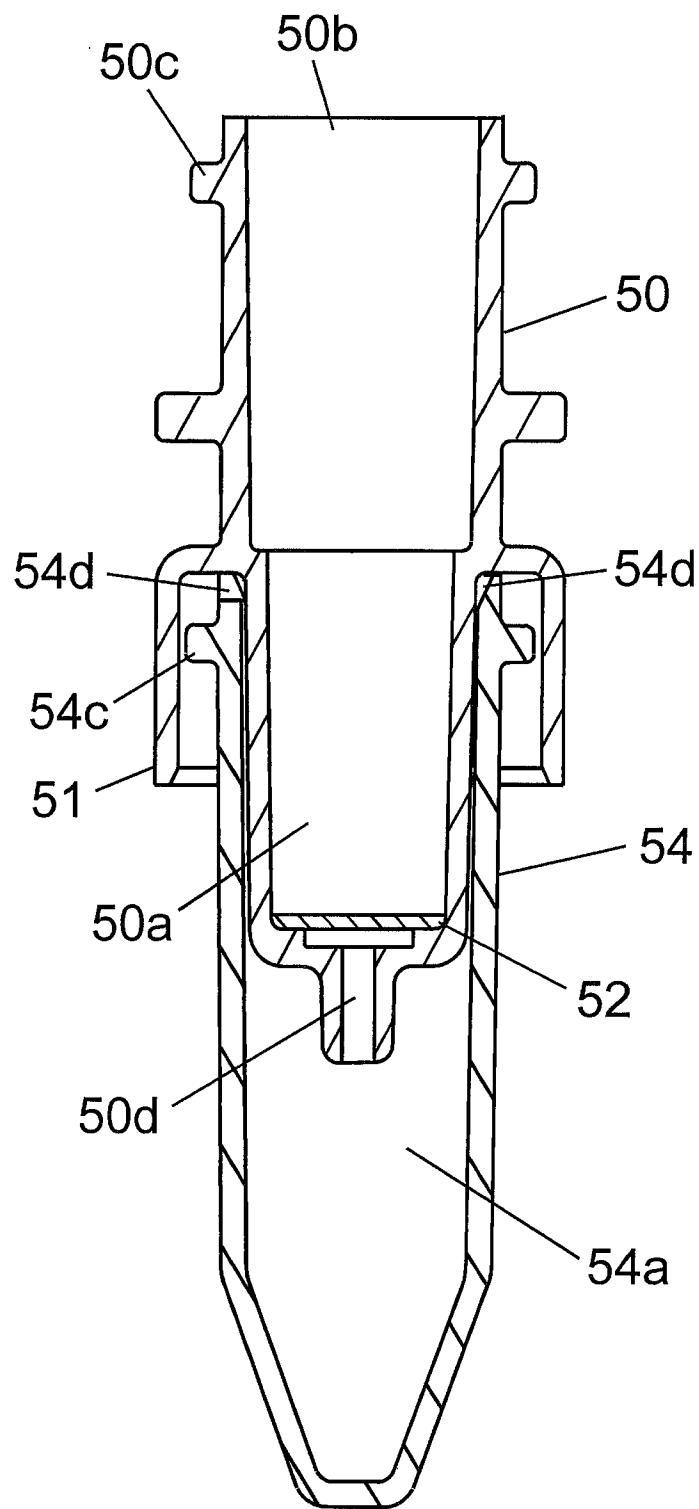
[図4B]



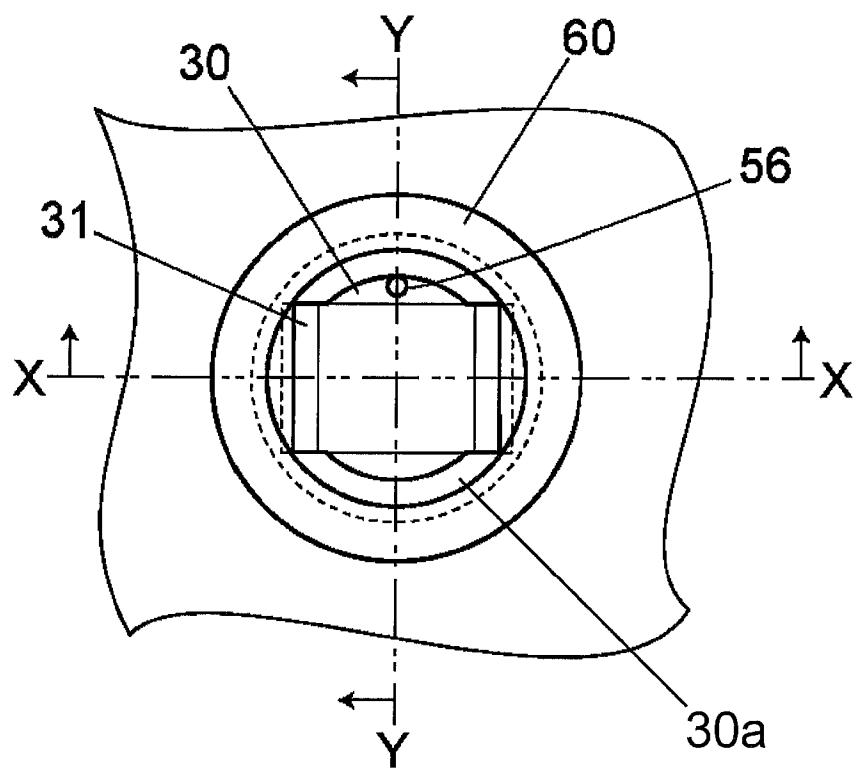
[図4C]



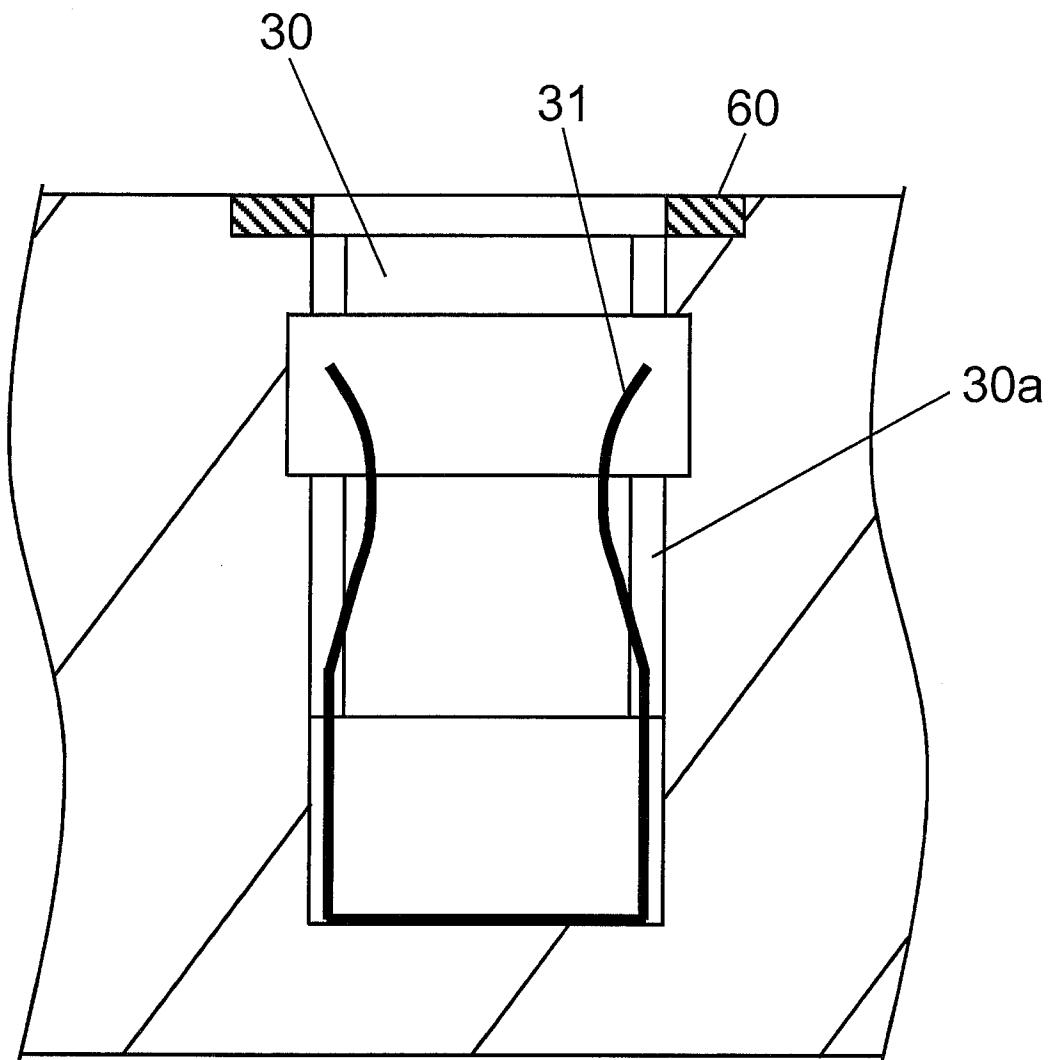
[図5]



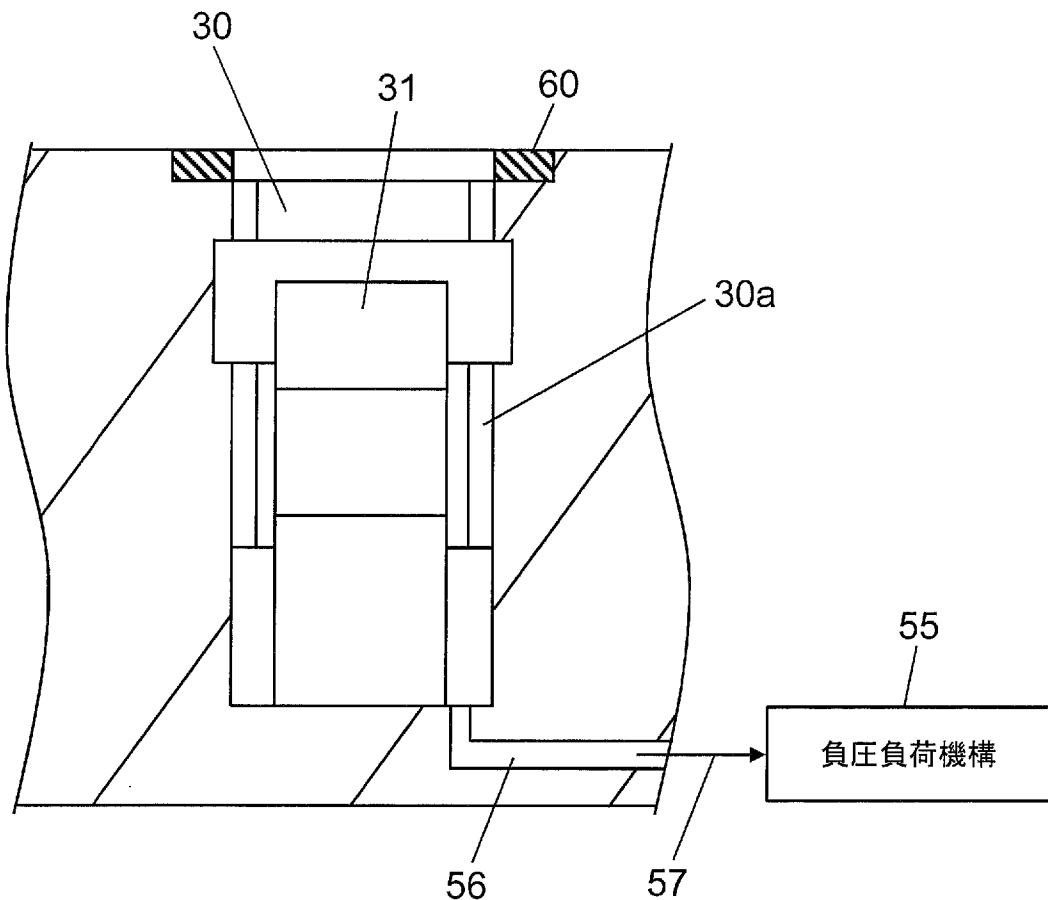
[図6A]



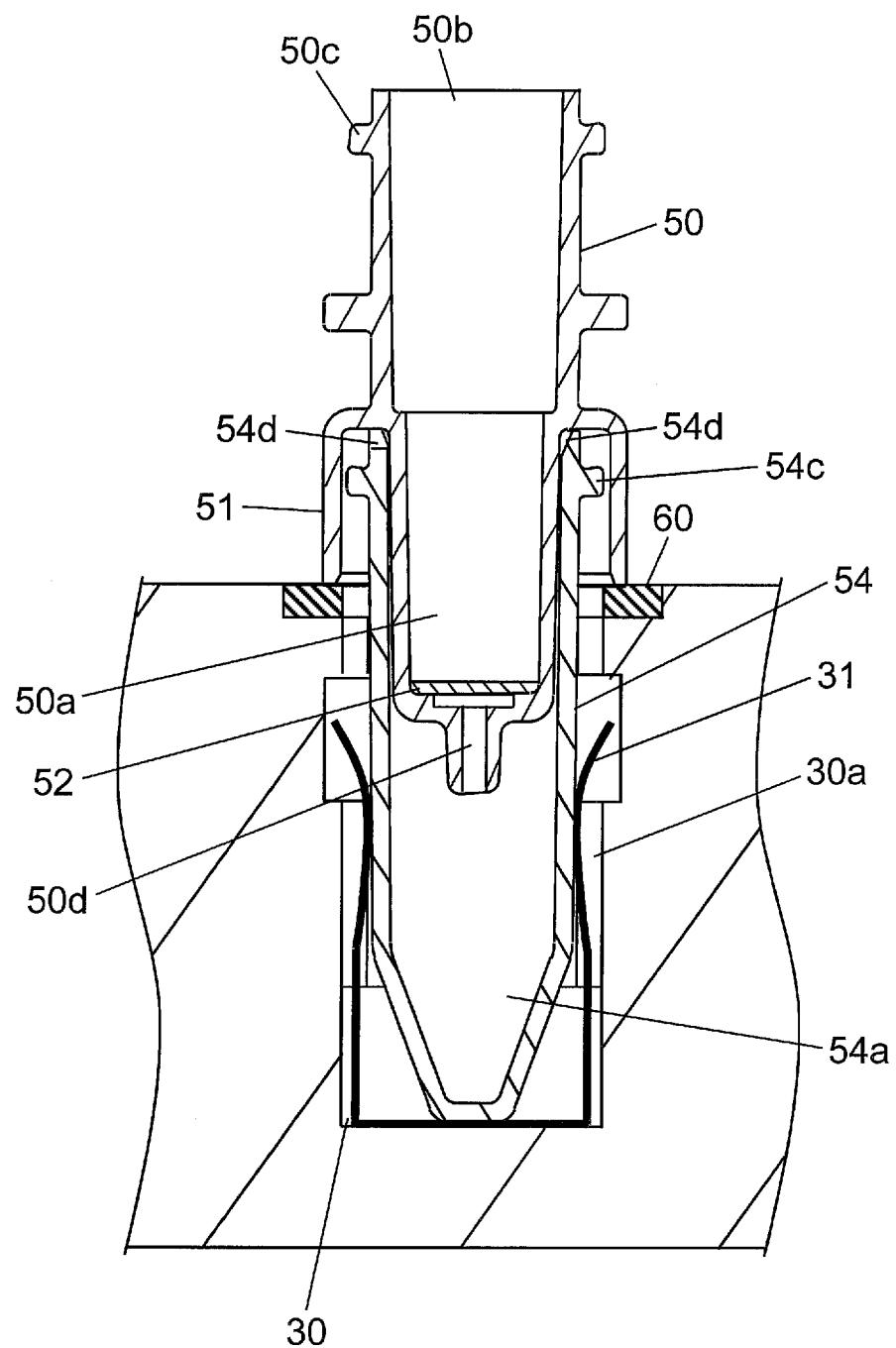
[図6B]



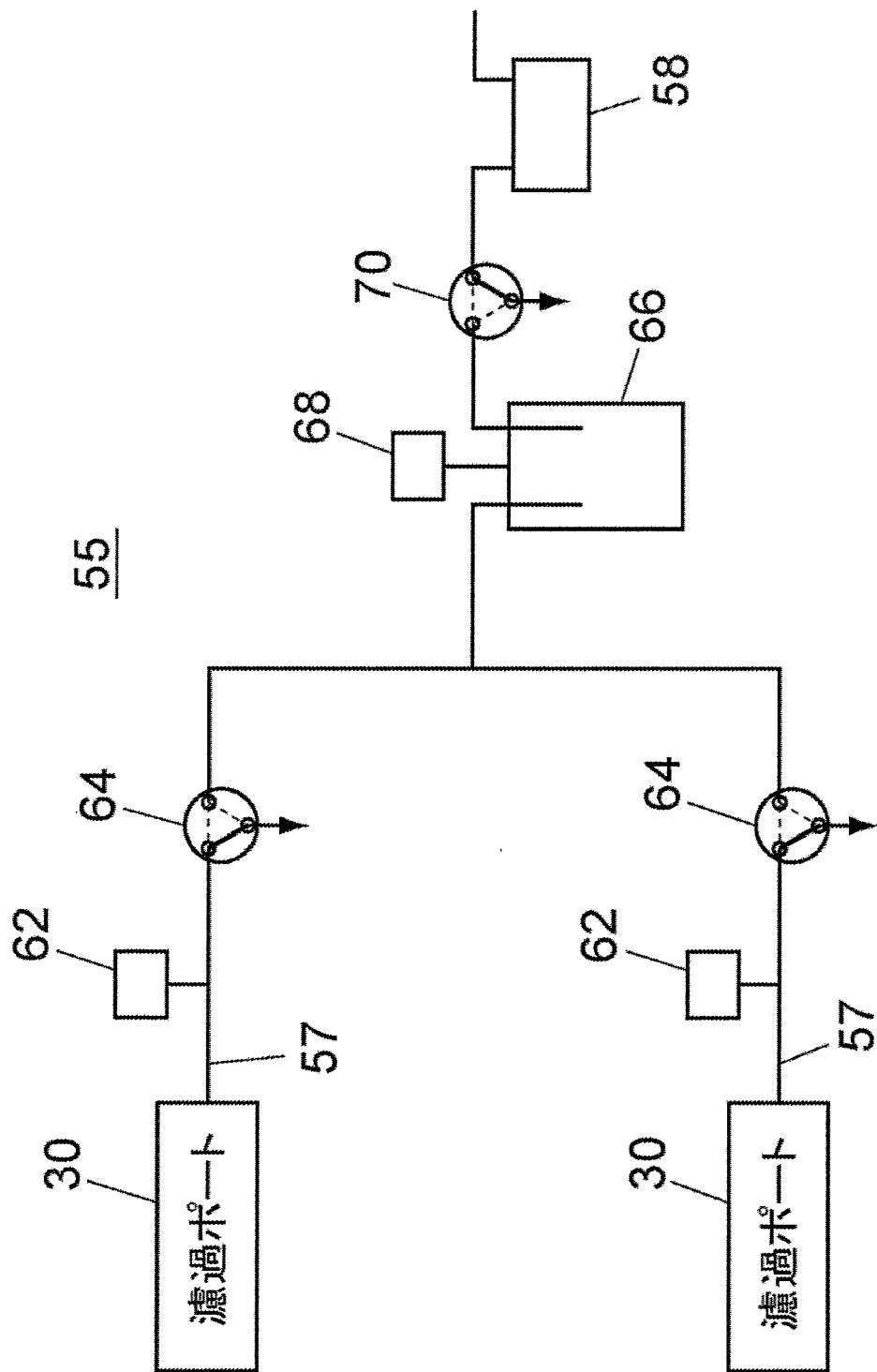
[図6C]



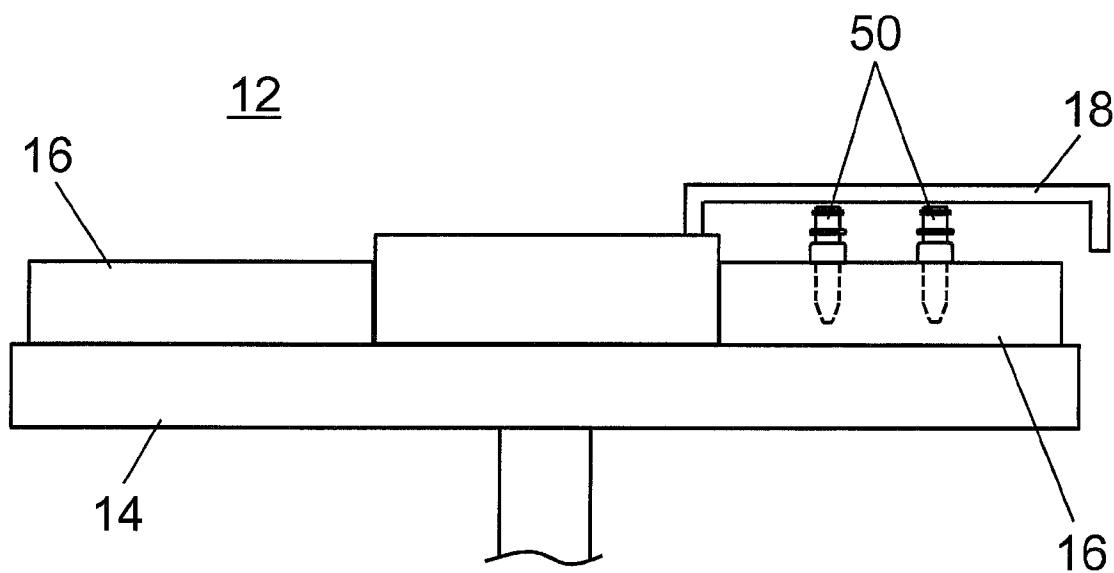
[図6D]



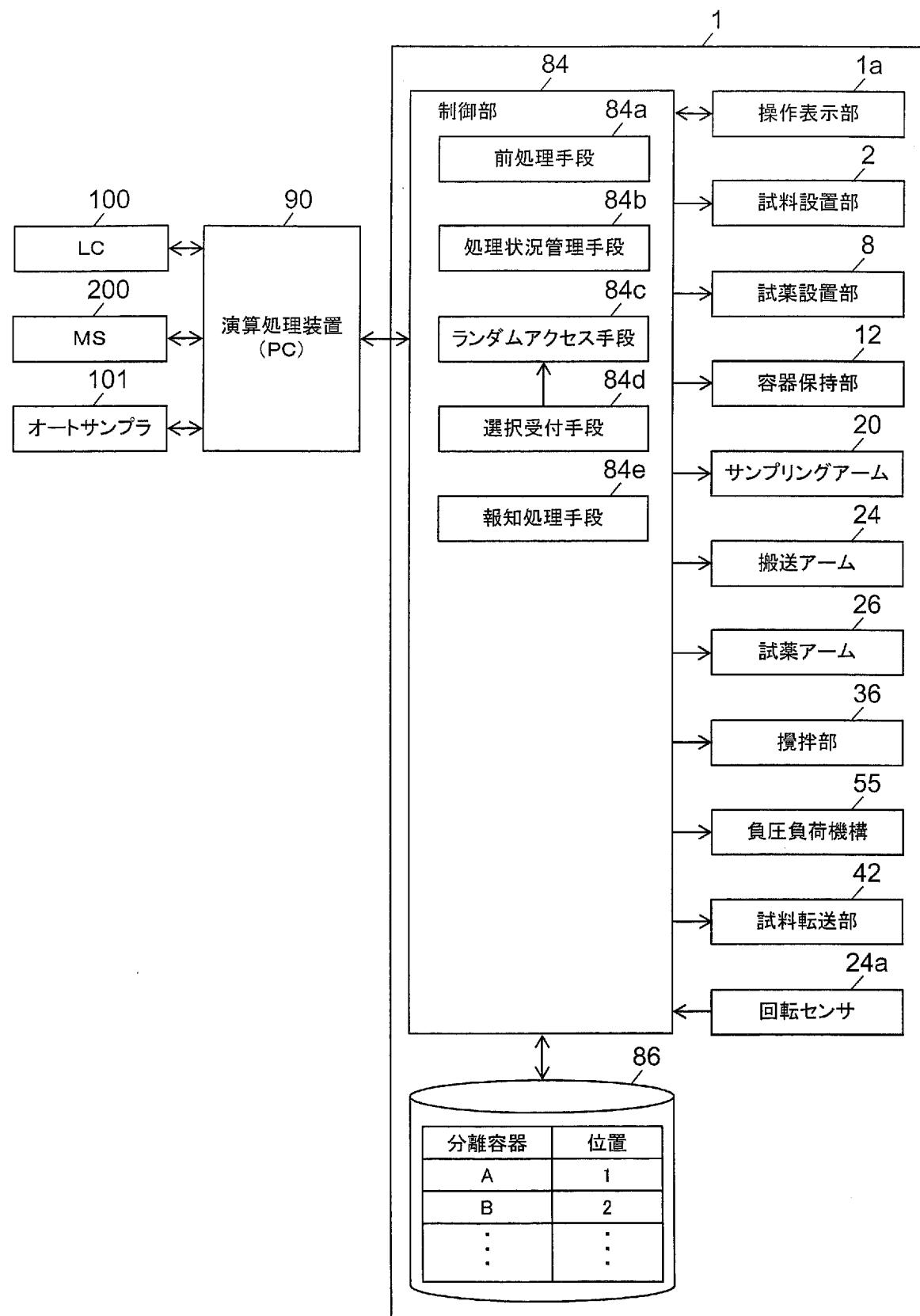
[図7]



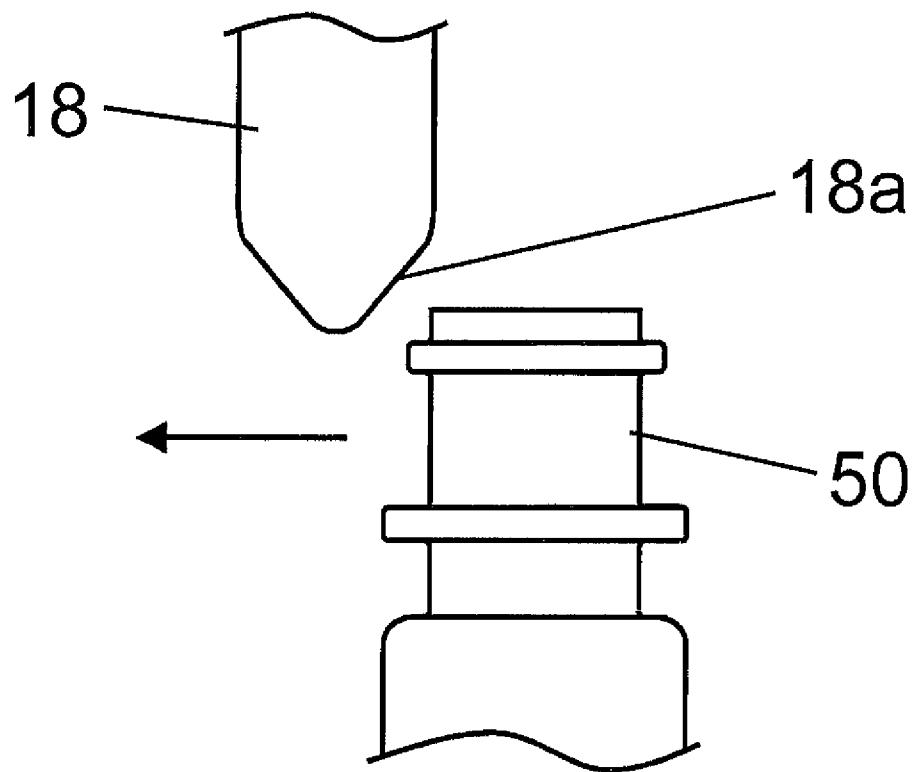
[図8]



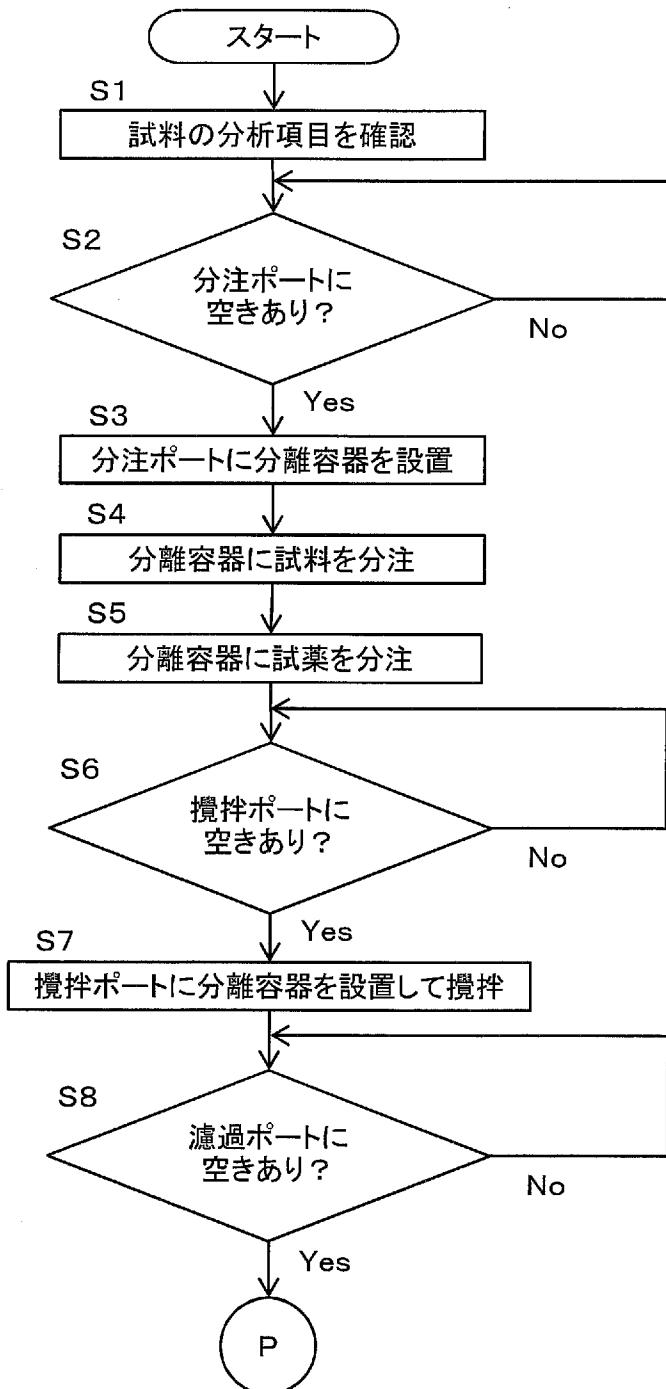
[図9]



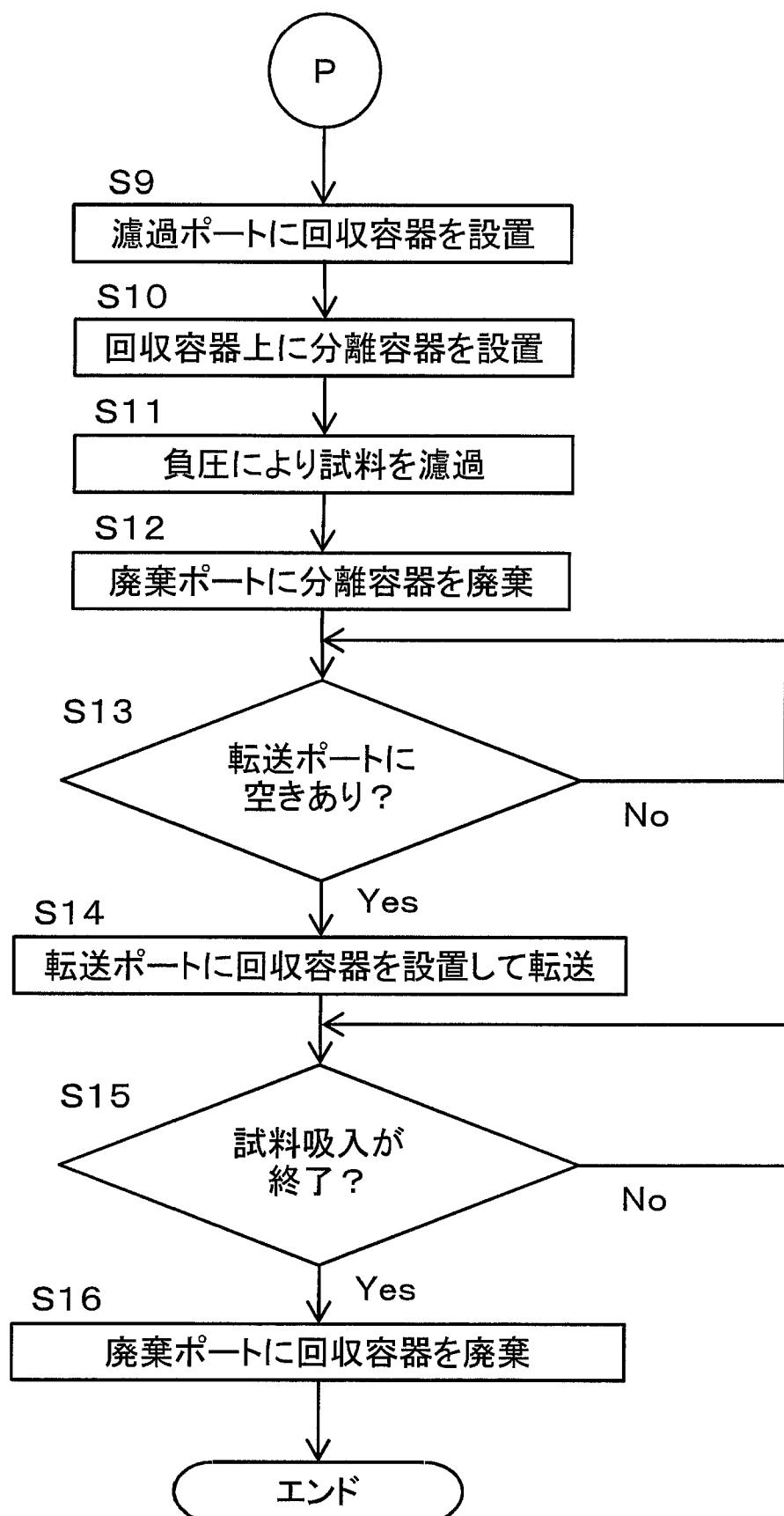
[図10]



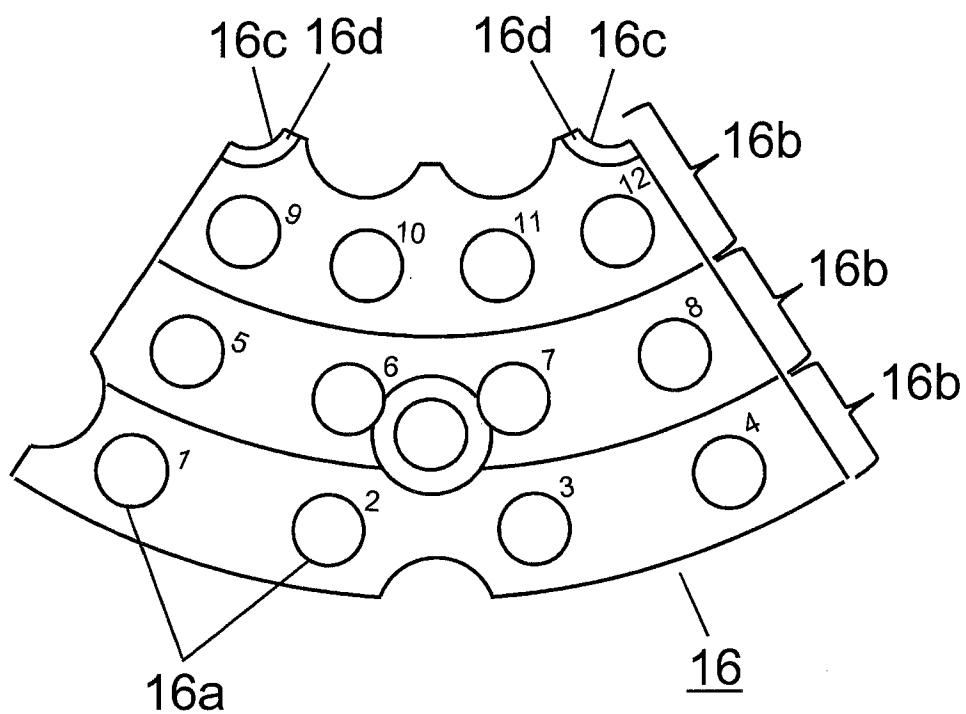
[図11A]



[図11B]



[図12]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/073056

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G01N30/24(2006.01)i, G01N1/10(2006.01)i, G01N27/62(2006.01)i, G01N30/06 (2006.01)i, G01N35/04(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
G01N30/24, G01N1/10, G01N27/62, G01N30/06, G01N35/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2010/087387 A1 (Hitachi High-Technologies Corp.), 05 August 2010 (05.08.2010), paragraphs [0018], [0026], [0083] to [0101]; fig. 1, 11, 12 & JP 5519538 B & US 2011/0291004 A1 & US 2013/0075603 A1 & DE 112010000843 T & CN 102301218 A	1-9
A	JP 08-029432 A (Shimadzu Corp.), 02 February 1996 (02.02.1996), paragraphs [0020] to [0079]; fig. 1 (Family: none)	1-9

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
27 November, 2014 (27.11.14)

Date of mailing of the international search report
09 December, 2014 (09.12.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/073056

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 60-105967 A (Japan Tectoron Instruments Corp.), 11 June 1985 (11.06.1985), page 2, lower left column, line 4 to page 3, upper right column, line 3; fig. 1 (Family: none)	1-9
A	JP 2012-251937 A (Hitachi High-Technologies Corp.), 20 December 2012 (20.12.2012), paragraphs [0015] to [0024]; fig. 1, 2 (Family: none)	1-9
A	JP 06-265556 A (Hitachi, Ltd.), 22 September 1994 (22.09.1994), paragraphs [0007], [0010], [0035] to [0047], [0056]; all drawings (Family: none)	4-6
A	JP 09-127137 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 16 May 1997 (16.05.1997), paragraph [0015] (Family: none)	4-6
A	WO 2010/150842 A1 (Hitachi High-Technologies Corp.), 29 December 2010 (29.12.2010), paragraph [0039] & JP 5242787 B & US 2012/0079875 A1 & EP 2447697 A1 & CN 102460107 A	7
A	JP 5396534 B2 (Hitachi High-Technologies Corp.), 22 January 2014 (22.01.2014), paragraphs [0023] to [0038]; fig. 1 & US 2012/0322139 A1 & EP 2543994 A1 & WO 2011/108177 A1 & CN 102762980 A	1-9
A	JP 2010-060474 A (Hitachi High-Technologies Corp.), 18 March 2010 (18.03.2010), entire text; all drawings & US 2011/0157580 A1 & WO 2010/026837 A1	1-9

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. G01N30/24(2006.01)i, G01N1/10(2006.01)i, G01N27/62(2006.01)i, G01N30/06(2006.01)i, G01N35/04(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. G01N30/24, G01N1/10, G01N27/62, G01N30/06, G01N35/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2014年
日本国実用新案登録公報	1996-2014年
日本国登録実用新案公報	1994-2014年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2010/087387 A1 (株式会社日立ハイテクノロジーズ) 2010.08.05, [0018]、[0026]、[0083] - [0101]、[図1]、[図 11]、[図12] & JP 5519538 B & US 2011/0291004 A1 & US 2013/0075603 A1 & DE 112010000843 T & CN 102301218 A	1-9
A	JP 08-029432 A (株式会社島津製作所) 1996.02.02, 【0020】 - 【0079】、【図1】 (ファミリーなし)	1-9

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願目前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 27.11.2014	国際調査報告の発送日 09.12.2014
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/JP） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 土岐 和雅 電話番号 03-3581-1101 内線 3252 2J 4459

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 60-105967 A (日本テクトロン株式会社) 1985.06.11, 2頁左下欄4行－3頁右上欄3行、第1図 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2012-251937 A (株式会社日立ハイテクノロジーズ) 2012.12.20, 【0015】－【0024】、【図1】、【図2】 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 06-265556 A (株式会社日立製作所) 1994.09.22, 【0007】、【0010】、【0035】－【0047】、【0056】、【全図】 (ファミリーなし)	4-6
A	JP 09-127137 A (三洋電機株式会社) 1997.05.16, 【0015】 (ファミリーなし)	4-6
A	WO 2010/150842 A1 (株式会社日立ハイテクノロジーズ) 2010.12.29, 【0039】 & JP 5242787 B & US 2012/0079875 A1 & EP 2447697 A1 & CN 102460107 A	7
A	JP 5396534 B2 (株式会社日立ハイテクノロジーズ) 2014.01.22, 【0023】－【0038】、【図1】 & US 2012/0322139 A1 & EP 2543994 A1 & WO 2011/108177 A1 & CN 102762980 A	1-9
A	JP 2010-060474 A (株式会社日立ハイテクノロジーズ) 2010.03.18, 【全文】、【全図】 & US 2011/0157580 A1 & WO 2010/026837 A1	1-9