

(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
2018年10月11日(11.10.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/185889 A1

(51) 国際特許分類:
G01N 27/62 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/014276

(22) 国際出願日: 2017年4月5日(05.04.2017)

(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).

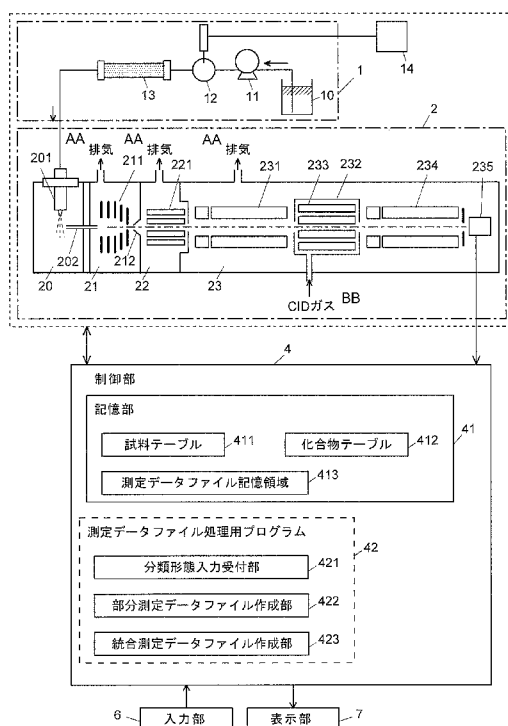
(72) 発明者: 杉本 真二 (SUGIMOTO, Shinji); 〒6048511 京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地 株式会社島津製作所内 Kyoto (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人京都国際特許事務所 (KYOTO INTERNATIONAL PATENT LAW OFFICE); 〒6008091 京都府京都市下京区東洞院通四条下ル元恵王子町37番地 豊元四条烏丸ビル Kyoto (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, DJ, 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, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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,

(54) Title: MEASUREMENT DATA FILE PROCESSING DEVICE AND PROGRAM FOR PROCESSING MEASUREMENT DATA FILE

(54) 発明の名称: 測定データファイル処理装置及び測定データファイル処理用プログラム



4 Control unit
6 Input unit
7 Display unit
41 Storage unit
42 Program for processing measurement data file
411 Sample table
412 Compound table
413 Measurement data file storage area
421 Classification format input receiving unit
422 Partial measurement data file creation unit
423 Integrated measurement data file creation unit
AA Exhaust
BB CID gas

(57) Abstract: This measurement data file processing device 4 is characterized by being provided with: a storage unit 41 which preserves a measurement data file in which a plurality of pieces of single-measurement data are stored, which are obtained by measuring, by means of an analysis device, a plurality of kinds of target compounds included in a plurality of samples; a classification format input receiving unit 421 which allows a user to input a format for classifying the plurality of pieces of single-measurement data into a plurality of measurement data groups; a partial measurement data file creation

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:

- 一 国際調査報告(条約第21条(3))

unit 422 which classifies, on the basis of the classification format, the plurality of pieces of single-measurement data into a plurality of single-measurement data groups and creates partial measurement data files; and an integrated measurement data file creation unit 423 which integrates, on the basis of a command by the user, the plurality of partial measurement data files to create an integrated measurement data file.

(57) 要約: 複数の試料に含まれる複数種類の目的化合物を分析装置で測定することにより得られた複数の単測定データを収納する測定データファイルが保存された記憶部41と、前記複数の単測定データを複数の測定データ群に分類する形態を使用者に入力させる分類形態入力受付部421と、前記分類の形態に基づいて複数の単測定データを複数の単測定データ群に分類して部分測定データファイルを作成する部分測定データファイル作成部422と、使用者による指示に基づき複数の部分測定データファイルを統合して統合測定データファイルを作成する統合測定データファイル作成部423とを備えることを特徴とする測定データファイル処理装置4。

明 細 書

発明の名称：

測定データファイル処理装置及び測定データファイル処理用プログラム 技術分野

[0001] 本発明は、複数の試料に含まれる複数の目的化合物を分析装置で測定して得たデータを収納する測定データファイル进行处理する装置及びプログラムに関する。

背景技術

[0002] 食品等の試料に含まれる農薬等の目的化合物を同定及び定量するために、クロマトグラフ質量分析装置が広く用いられている。クロマトグラフ質量分析装置を用いて試料中の目的化合物を同定及び定量する方法として、多重反応モニタリング（MRM: Multiple Reaction Monitoring）測定が知られている。

[0003] MRM測定では、目的化合物毎に、該目的化合物から生成されるプリカーサイオンと該プリカーサイオンの開裂により生成されるプロダクトイオンの組であるMRMトランジションを含むMRM測定条件を予め設定しておき、該MRM測定条件の下でプロダクトイオンの強度を測定する。多くの場合、プロダクトイオンの測定感度が最も高いMRMトランジションが定量MRMトランジション、プロダクトイオンの測定感度が次に高いMRMトランジションが確認MRMトランジションとして用いられる。クロマトグラフのカラムにおいて時間的に分離された化合物について、定量MRMトランジションのプロダクトイオンの強度と確認MRMトランジションのプロダクトイオンの強度をそれぞれ測定することにより、それぞれのMRMトランジションのマスクロマトグラムのデータが得られる。こうして得られたデータは測定データファイルにまとめられ、コンピュータに保存される。

[0004] 分析者は、コンピュータに保存された測定データファイル中のデータを確認し、定量MRMトランジションのマスクロマトグラムのピーク面積（あるいは

ピーク高さ)を予め標品等のMRM測定により得られた検量線と比較することにより目的化合物を定量し、また、定量MRMトランジションのマスクロマトグラムのピーク面積(あるいはピーク高さ)と確認MRMトランジションのマスクロマトグラムのピーク面積(あるいはピーク高さ)の比を、予め標品等のMRM測定により得られた比と比較することにより、マスクロマトグラムのピークが目的化合物のものであることを確認(同定)する(例えば特許文献1)。各目的化合物の定量及び同定を終えると、分析者はその結果を測定データファイルに追記してコンピュータに保存する。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2017-020877号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 食品等の試料に含まれる農薬等の目的化合物の分析では、1つの試料について数百種類の目的化合物を分析(多成分一斉分析)することがある。また、多くの場合、オートサンブラに複数の試料(例えば100個)をセットしておき、それらを順次、MRM測定してデータを収集する。こうして得られるMRM測定のデータ数は試料数と目的化合物の積となるため、数万ものMRM測定データを含む測定データファイルが保存されることになる。ある一人の分析者がこの測定データファイルを開いて各試料について目的化合物毎に定量や同定の作業を行っている間、その測定データファイルはロック状態となり、他の分析者は該測定データファイル内のデータの解析を行うことができない。そのため、膨大な量のデータを一人の分析者が解析しなければならず、分析者の負担が大きく、また解析の効率も悪いという問題があった。

[0007] ここではクロマトグラフ質量分析装置により取得したデータを解析する場合を例に挙げたが、他の分析装置で取得したデータを解析する際にも上記同様の問題があった。

[0008] 本発明が解決しようとする課題は、複数の試料に含まれる複数の目的化合物を分析装置で測定して得たデータの解析に係る分析者の負担を軽減するとともに解析の効率を高めることができる測定データファイル処理装置及び測定データファイル処理用プログラムを提供することである。

課題を解決するための手段

[0009] 上記課題を解決するために成された本発明に係る測定データファイル処理装置は、

a) 複数の試料のそれぞれに含まれる複数種類の目的化合物を分析装置で測定することにより得られた、それぞれが1試料に含まれる1種類の目的化合物を測定したデータである複数の単測定データを収納する測定データファイルが保存された記憶部と、

b) 前記複数の単測定データを、それぞれが1乃至複数の単測定データからなる複数の単測定データ群に分類する形態を使用者に入力させる分類形態入力受付部と、

c) 前記分類の形態に基づいて、前記複数の単測定データを複数の単測定データ群に分類し、前記複数の単測定データ群のそれぞれに対して、当該単測定データ群に含まれる単測定データを収納した部分測定データファイルを作成する部分測定データファイル作成部と、

d) 使用者による指示に基づき、複数の前記部分測定データファイルを統合して統合測定データファイルを作成する統合測定データファイル作成部とを備えることを特徴とする。

[0010] 本発明に係る測定データファイル処理装置は、複数の試料のそれぞれに含まれる複数種類の目的化合物を分析装置で測定することにより得られた複数の単測定データを収納する測定データファイル进行处理する装置である。上記の通り、単測定データとは、1試料に含まれる1種類の目的化合物のデータである。例えば、1試料に含まれる100種類の目的化合物を測定した結果からは100個の単測定データが得られ、100試料のそれぞれに含まれる100種類の目的化合物からは10,000個の単測定データが得られる。前記単測定データ群は、1

乃至複数の単測定データの集合である。

[0011] 本発明に係る測定データ処理装置では、まず、分類形態入力受付部が、複数の単測定データをどのように分類するかを使用者に入力させる。分類の形態の入力方法として、最も単純には使用者に複数の単測定データを分類する数（作成する部分測定データファイルの数）を入力させ、該複数の単測定データをその分類数で均等に分けるという方法を採用することができる。また、試料名又は目的化合物名を一覧表示し、使用者に試料単位あるいは目的化合物単位で複数の単測定データを分類させるという方法を採用することもできる。使用者により分類の形態が入力されると、部分測定データファイル作成部は、入力された形態で複数の単測定データを分類し、それぞれに対応する部分測定データファイルを作成する。こうして、1つの測定データファイルから複数の部分測定データファイルが作成され、これらをそれぞれを別の分析者が解析することが可能になる。分析者がそれぞれの部分測定データファイルを解析した後、使用者がそれらの統合を指示すると、統合測定データファイル作成部によりそれらが統合され、1つの統合測定データファイルが作成される。このように、本発明に係る測定データ処理装置では、1つの測定データファイルから複数の部分測定データファイルが作成されるため、複数人による同時解析が可能であり、分析者の負担が軽減され、また解析効率も高くなる。

[0012] 本発明に係る測定データ処理装置では、

前記部分測定データファイル作成部が、前記部分測定データファイルの作成時に、使用者による入力に基づき該部分測定データファイルの間に序列を付す

ことが好ましい。この態様の測定データ処理装置では、部分測定データファイル作成部が分類後の単測定データ群を収納した部分測定データファイルを作成する際の不具合によって複数の部分測定データファイルの統合時に単測定データが重複する等の事態が生じた場合に、部分測定データファイル間の序列に基づきいずれか一方の部分測定データファイルに収納された単測定データを採用する等の処理を行うことができる。なお、使用者による入力は

、序列の順序そのものの入力であってもよく、別の情報の入力（例えば解析難度等）をそのまま序列として用いるものであってもよい。

[0013] 本発明に係る測定データ処理装置は、

前記記憶部に、複数の試料又は複数の目的化合物の特性と対応付けた情報である目的化合物情報を予め保存しておき、

前記分類形態入力受付部は、前記目的化合物情報を使用者に提示して前記複数の単測定データを分類する形態を使用者に入力させる

ように構成することが好ましい。前記特性としては、試料あるいは目的化合物のカテゴリーや解析難度等を用いることができる。これにより、同一のカテゴリーに属する試料あるいは目的化合物の単測定データを1つの部分測定データファイルに集約したり、解析の難度に応じて複数の単測定データ群に分類し、それらを収納した部分測定データファイル进行分析者の熟練度に合わせて振り分けて解析させることができる。

[0014] また、本発明に係る測定データ処理装置では、

前記部分測定データファイル作成部が、前記複数の部分測定データファイルの作成時に、前記測定データファイルを参照専用のファイルとする

ことができる。この態様の測定データ処理装置では、分析者が測定データファイルに記載された単測定データを誤って消去したり上書きしたりするのを未然に防ぐことができる。

[0015] あるいは、本発明に係る測定データ処理装置では、

前記部分測定データファイル作成部が、前記測定データファイルを前記複数の部分測定データファイルのうちの1つとする

こともできる。この態様では、例えば分析責任者が測定データファイルを解析に使用し、他の分析者による解析結果を統合することができる。

[0016] また、上記課題を解決するために成された本発明に係る測定データファイル処理用プログラムは、

複数の試料のそれぞれに含まれる複数種類の目的化合物を分析装置で測定することにより得られた、それぞれが1試料に含まれる1種類の目的化合物を

測定したデータである複数の単測定データを収納する測定データファイルが保存された記憶部にアクセス可能なコンピュータを、

a) 前記複数の単測定データを、1乃至複数の単測定データからなる複数の単測定データ群に分類する形態を使用者に入力させる分類形態入力受付部と、

b) 前記分類の形態に基づいて、前記複数の単測定データを複数の単測定データ群に分類し、前記複数の単測定データ群のそれぞれについて、当該単測定データ群に含まれる単測定データを収納した部分測定データファイルを作成する部分測定データファイル作成部と、

c) 使用者による指示に基づき、複数の前記部分測定データファイルを統合して統合測定データファイルを作成する統合測定データファイル作成部として動作させることを特徴とする。

発明の効果

[0017] 本発明に係る測定データ処理装置や測定データ処理プログラムを用いることにより、複数の試料に含まれる複数の目的化合物を分析装置で測定して得たデータの解析に係る分析者の負担を軽減するとともに解析の効率を高めることができる。

図面の簡単な説明

[0018] [図1]本発明に係る測定データファイル処理装置を備えた液体クロマトグラフ質量分析システムの要部構成図。

[図2]本実施例の測定データファイル処理装置において用いられる試料テーブルの一例。

[図3]本実施例の測定データファイル処理装置において用いられる化合物テーブルの一例。

[図4]本実施例の測定データファイル処理装置において処理する測定データファイルに収納されたデータ（複数の単測定データ）の一例。

[図5]本実施例の測定データファイル処理装置において測定データファイルを処理する手順を説明するフローチャート。

[図6]本実施例において分類形態入力受付部により表示される画面の一例。

[図7]本実施例において統合測定データ作成部により作成される統合測定データファイルに収納されたデータについて説明する図。

発明を実施するための形態

[0019] 本発明に係る測定データ処理装置及び測定データ処理プログラムの一実施例について、以下、図面を参照して説明する。本実施例の測定データ処理装置及び測定データ処理プログラムは、液体クロマトグラフ質量分析装置を用いた測定により取得したデータを収納した測定データファイル进行处理するものである。

[0020] 本実施例において測定に用いられる液体クロマトグラフ質量分析装置は、大別して、液体クロマトグラフ部1、質量分析部2、及びそれらの動作を制御する制御部4から構成されており、制御部4が本実施例の測定データ処理装置に相当する。本実施例では、液体クロマトグラフ質量分析装置と測定データファイル処理装置を一体化した液体クロマトグラフ質量分析システムとして構成し、測定データファイル処理装置が液体クロマトグラフ質量装置の測定等の動作を制御する機能も併せ持つ構成としているが、これは本発明に必須の要件ではなく、液体クロマトグラフ質量分析装置と別体で測定データ処理装置を構成することもできる。

[0021] 液体クロマトグラフ部1は、移動相が貯留された移動相容器10と、移動相を吸引して一定流量で送給するポンプ11と、移動相中に所定量の試料液を注入するインジェクタ12と、試料液に含まれる各種化合物を時間方向に分離するカラム13とを備えている。また、液体クロマトグラフ部1には、インジェクタ12に複数の液体試料を所定の順番及びタイミングで1つずつ導入するオートサンプラ14が接続されている。

[0022] 質量分析部2は、略大気圧であるイオン化室20と真空ポンプ（図示なし）により真空排気された高真空の分析室23との間に、段階的に真空度が高められた第1中間真空室21と第2中間真空室22を備えた多段差動排気系の構成を有している。イオン化室20には、試料溶液に電荷を付与しながら

噴霧するエレクトロスプレイイオン化 (ESI: ElectroSpray Ionization) プロブ 201 が設置されている。イオン化室 20 と第 1 中間真空室 21 との間は細径の加熱キャピラリ 202 を通して連通している。第 1 中間真空室 21 と第 2 中間真空室 22 との間は頂部に小孔を有するスキマー 212 で隔てられ、第 1 中間真空室 21 と第 2 中間真空室 22 にはそれぞれ、イオンを収束させつつ後段へ輸送するための第 1 イオンガイド 211、第 2 イオンガイド 221 が設置されている。分析室 23 には、多重極イオンガイド (q2) 233 が内部に設置されたコリジョンセル 232 を挟み、その前段側にはイオンを質量電荷比に応じて分離する前段四重極マスフィルタ (Q1) 231 が設置されており、後段側には、同じくイオンを質量電荷比に応じて分離する後段四重極マスフィルタ (Q3) 234 及びイオン検出器 235 が設置されている。コリジョンセル 232 の内部には、測定条件に合わせてアルゴン、窒素ガスなどの衝突誘起解離 (CID: Collision-induced dissociation) ガスが適宜に供給される。

[0023] 質量分析部 2 では、選択イオンモニタリング (SIM: Selected Ion Monitoring) 測定、MS/MS スキャン測定 (プロダクトイオンスキャン測定)、多重反応モニタリング (MRM: Multiple Reaction Monitoring) 測定等を行うことができる。SIM 測定では、前段四重極マスフィルタ (Q1) 231 ではイオンを選別せず (マスフィルタとして機能させず)、後段四重極マスフィルタ (Q3) 234 を通過させるイオンの質量電荷比を固定してイオンを検出する。

[0024] 一方、MS/MS スキャン測定及び MRM 測定では、前段四重極マスフィルタ (Q1) 231 及び後段四重極マスフィルタ (Q3) 234 の両方をマスフィルタとして機能させる。前段四重極マスフィルタ (Q1) 231 ではプリカーサイオンとして設定された質量電荷比のイオンのみを通過させる。また、コリジョンセル 232 の内部に CID ガスを供給し、プリカーサイオンを開裂させてプロダクトイオンを生成する。MS/MS スキャン測定では後段四重極マスフィルタ (Q3) 234 を通過させるイオンの質量電荷比を走査しつつ、MRM 測定では後段四重極マスフィルタ (Q3) 234 を通過させるイオンの質量電荷比を固定し

て、プロダクトイオンを検出する。

- [0025] 制御部4は、記憶部41を有するとともに、機能ブロックとして、分類形態入力受付部421、部分測定データファイル作成部422、及び統合測定データファイル作成部423を備えている。制御部4の実体はパーソナルコンピュータであり、該コンピュータに予めインストールされた測定データファイル処理用プログラム42を実行することによりパーソナルコンピュータのCPUが上記各部として機能する。また、制御部4には、入力部6、表示部7が接続されている。記憶部41には、試料テーブル411と化合物テーブル412が保存されており、また測定データファイルを保存するための測定データファイル記憶領域413が設けられている。
- [0026] 試料テーブル411は、図2に示すように、試料毎に、試料名、試料の属するカテゴリー、及び試料の解析難度等の情報を対応付けたものである。化合物テーブル412は、図3に示すように、化合物毎に、化合物名、化合物の属するカテゴリー、化合物の解析難度、及び測定条件（保持時間、当該化合物の定量MRMトランジション及び確認MRMトランジションなど）等の情報を対応付けたものである。測定データファイル記憶領域413には、図4に示すように、複数の試料（本実施例では100個）に含まれる複数種類（本実施例では300種類）の目的化合物を測定したデータを、試料を一軸、目的化合物を別の一軸とする二次元テーブルとして収納した測定データファイルが保存されている。なお、1試料に含まれる1化合物を測定したデータが前記単測定データに対応しており、図4に示すデータは30,000個の単測定データを含んでいる。
- [0027] 次に、図5のフローチャートを参照し、本実施例の測定データファイル処理装置の動作を説明する。
- [0028] 使用者が測定データファイル処理用プログラムを起動する等して、測定データファイルの処理の開始を指示すると、分類形態入力受付部421は、まず、記憶部41に保存されている測定データファイルの中から処理を行う対象のものを使用者に選択させる（ステップS1）。続いて、分類形態入力受

付部421は、表示部7の画面に図6に示すような分類形態入力画面を表示する（ステップS2）。この画面には、「試料テーブルにより分類」、「化合物テーブルにより分類」、「試料単位で均等に分類」、及び「化合物単位で均等に分類」という4種類の分類形態が表示されており、使用者による分類形態の入力を受け付ける。「試料テーブルにより分類」あるいは「化合物テーブルにより分類」を使用者が選択入力すると、試料テーブル411（図2参照）あるいは化合物テーブル412（図3参照）を画面に表示し、該テーブル上での使用者による分類の入力を受け付ける。「試料単位で均等に分類」あるいは「化合物単位で均等に分類」を使用者が選択入力すると、次に分類数の入力画面を表示し、使用者による分類数の入力を受け付ける。そして、上記30,000個の単測定データを入力された数に分類する。この場合には、単測定データの並び順に（つまり図4の左又は上から順に）単測定データを複数に分類する。例えば試料単位で10個に分類する場合、試料Aから順に、10個の試料毎に単測定データ群（10個の試料、300種類の目的化合物に対応する3,000個の単測定データからなる単測定データ群）を作成し、それぞれに対応した部分測定データファイルを作成する。

[0029] 以下、使用者が「化合物テーブルにより分類」を選択した場合を例に以降の処理を説明する。上述のとおり、この場合には図4に示す化合物テーブルが画面に表示される。使用者は化合物テーブルの各項目（化合物名、カテゴリー、難度等）について化合物テーブルのリストを並び替えることができる。例えば、難度（解析の難度）順に化合物テーブルのリストを並び替えて、解析難度が高い順に300種類の化合物を複数（本実施例では10個）に分類することができる。

[0030] 使用者により分類の形態が入力されると（ステップS3）、部分測定データファイル作成部422は、測定データファイルに収納されている複数の単測定データ（図5参照）を該分類の形態に従って複数に分類し、それぞれに対応した部分測定データファイルを作成する（ステップS4）。本実施例では、化合物データの解析難度が高い順（あるいは低い順）に化合物単位で30,

000個の単測定データが10個の単測定データ群に分類され、それぞれに対応した（即ち計10個の）部分測定データファイルが作成される。また、解析難度が高い順に10個の部分測定データファイル間の序列が付される（ステップS5）。部分測定データファイルの序列をどのようにつけるかを使用者が指定することもできる。さらに、測定データファイルが参照専用（上書き不可）に設定される。部分測定データファイルには、単測定データ群に、各単測定データの解析結果を記載する欄（定量値の入力欄、化合物の同定結果記載欄等）を追加したデータが収納される。こうして作成された10個の部分測定データファイルは、それぞれ分析者による解析に供され、各分析者により各試料に含まれる各化合物の同定及び定量が行われ、解析結果記載欄にその結果（定量値、同定結果）が記載される（ステップS6）。

[0031] 分析者による単測定データ群の解析後、使用者が入力部6を介して部分測定データファイルの統合を指示すると、統合測定データファイル作成部423は10個の部分測定データファイルに収納された単測定データ群及び解析結果を統合して統合測定データファイルを作成する（ステップS7）。ここで作成される統合データファイルは、図4に示した測定データに解析結果記載欄が追加されたものである。

[0032] 統合測定データファイル作成部423は、作成した統合測定データファイルに含まれている単測定データ及び解析結果の試料名及び化合物名を、測定データファイル（即ち元の単測定データ）の試料名及び化合物名と照合し、単測定データに重複あるいは欠落がないかを確認する。単測定データが重複する場合には、序列が高い部分測定データファイルに収納されている単測定データ及び解析結果を採用して序列が低い部分測定データファイルの単測定データ及び解析結果を破棄する。通常、熟練度が高い分析者が難度が高い化合物の単測定データ群を解析するため、これにより熟練度が高い分析者による解析結果が優先される。一方、単測定データが欠落している場合には、測定データファイルから単測定データを復元するとともに、当該単測定データについて解析結果が未入力である旨を表示部7に表示する。

- [0033] このように、本実施例の測定データファイル処理装置や測定データファイル処理用プログラムを用いると、1つの測定データファイルから複数の部分分析データファイルが作成され、これらをそれぞれを別の分析者が解析することが可能になる。分析者がそれぞれの部分測定データファイルを解析した後、使用者がそれらの統合を指示すると、統合測定データファイル作成部423によりそれらが統合され、1つの統合測定データファイルが作成される。このように、本実施例では、1つの測定データファイルから複数の部分測定データファイルが作成されるため、複数人による同時解析が可能であり、分析者の負担が軽減され、また解析効率も高くなる。
- [0034] また、本実施例の測定データ処理装置や測定データファイル処理用プログラムでは、分類形態入力受付部421に試料テーブルや化合物テーブルを表示させ、使用者が試料や化合物の解析難度やカテゴリー等に基づき複数の単測定データを分類することが可能であるため、試料又は化合物の種類や解析の難度に応じて複数の単測定データ群に分類し、それらを収納した部分測定データファイルを分析者の熟練度に応じて振り分けて解析させることができる。
- [0035] 上記実施例は一例であって、本発明の趣旨に沿って適宜に変更することができる。例えば、上記実施例では、部分測定データファイル作成部422が、使用者により入力された形態に基づき複数の単測定データ群に分類し、それぞれに対応する部分測定データファイルを作成して序列を付すとともに、測定データファイルを参照専用を設定する構成とした。これに代えて、例えば、部分測定データファイル作成部422が、測定データファイルに解析結果入力欄を付したものを最も高い序列が付された単測定データ群に対応する部分測定データファイルとする構成を採ることもできる。この場合、統合測定データファイル作成部423は、この部分測定データファイル（測定データファイルに解析結果入力欄を付したもの）に、他の部分測定データファイルの解析結果記載欄の解析結果を反映して統合測定データファイルを作成する。また、単測定データが重複した場合の上記処理（序列が高い部分測定デ

ータファイルの単測定データを採用する処理)は測定データファイルに解析結果入力欄を付した部分測定データファイル以外の部分測定データファイルにのみ適用される。

[0036] また、上記実施例では、部分測定データファイル作成部422が複数の単測定データ群に解析結果入力欄を追加して部分測定データファイルを作成したが、複数の単測定データ群と別に解析結果記載欄のみからなるデータを作成し、これを単測定データ群に対応付けるようにしてもよい。この場合は、複数の単測定データ群は参照専用のデータとして(つまり上書き不可のデータとして)設定すればよい。

[0037] 上記実施例では、液体クロマトグラフ質量分析装置を用いたMRM測定により得られたデータを収納した測定データファイル进行处理する場合について説明したが、他の測定(SIM測定やプロダクトイオンスキャン測定等)により取得したデータや、他の分析装置を用いた各種測定により得られたデータを収納した測定データファイル进行处理する場合にも上記同様の測定データファイル処理装置や測定データファイル処理用プログラムを用いることができる。

符号の説明

- [0038] 1…液体クロマトグラフ部
- 10…移動相容器
 - 11…ポンプ
 - 12…インジェクタ
 - 13…カラム
 - 14…オートサンブラ
- 2…質量分析部
- 20…イオン化室
 - 201…ESIプローブ
 - 202…加熱キャピラリ
 - 21…第1中間真空室
 - 211…第1イオンガイド

- 2 1 2 …スキマー
- 2 2 …第2 中間真空室
 - 2 2 1 …第2 イオンガイド
- 2 3 …分析室
 - 2 3 1 …前段四重極マスフィルタ
 - 2 3 2 …コリジョンセル
 - 2 3 3 …多重極イオンガイド
 - 2 3 4 …後段四重極マスフィルタ
 - 2 3 5 …イオン検出器
- 4 …制御部
 - 4 1 …記憶部
 - 4 1 1 …試料テーブル
 - 4 1 2 …化合物テーブル
 - 4 1 3 …測定データファイル記憶領域
 - 4 2 …測定データファイル処理用プログラム
 - 4 2 1 …分類形態入力受付部
 - 4 2 2 …部分測定データファイル作成部
 - 4 2 3 …統合測定データファイル作成部
- 6 …入力部
- 7 …表示部

請求の範囲

- [請求項1] a) 複数の試料のそれぞれに含まれる複数種類の目的化合物を分析装置で測定することにより得られた、それぞれが1試料に含まれる1種類の目的化合物を測定したデータである複数の単測定データを収納する測定データファイルが保存された記憶部と、
- b) 前記複数の単測定データを、それぞれが1乃至複数の単測定データからなる複数の測定データ群に分類する形態を使用者に入力させる分類形態入力受付部と、
- c) 前記分類の形態に基づいて、前記複数の単測定データを複数の単測定データ群に分類し、前記複数の単測定データ群のそれぞれに対して、当該単測定データ群に含まれる単測定データを収納した部分測定データファイルを作成する部分測定データファイル作成部と、
- d) 使用者による指示に基づき、複数の前記部分測定データファイルを統合して統合測定データファイルを作成する統合測定データファイル作成部と
- を備えることを特徴とする測定データファイル処理装置。
- [請求項2] 前記部分測定データファイル作成部が、前記部分測定データファイルの作成時に、使用者による入力に基づき該部分測定データファイルの間に序列を付す
- ことを特徴とする請求項1に記載の測定データファイル処理装置。
- [請求項3] 前記分類形態入力受付部が試料又は目的化合物を一覧表示し、使用者に試料単位あるいは目的化合物単位で複数の単測定データを分類させる
- ことを特徴とする請求項1に記載の測定データファイル処理装置。
- [請求項4] 前記記憶部に、複数の試料又は複数の目的化合物の特性と対応付けた情報である目的化合物情報を予め保存しておき、
- 前記分類形態入力受付部は、前記目的化合物情報を使用者に提示して前記複数の測定データを分類する形態を使用者に入力させる

ことを特徴とする請求項1に記載の測定データファイル処理装置。

[請求項5] 前記部分測定データファイル作成部が、前記複数の部分測定データファイルの作成時に、前記測定データファイルを参照専用のファイルとする

ことを特徴とする請求項1に記載の測定データファイル処理装置。

[請求項6] 前記部分測定データファイル作成部が、前記測定データファイルを前記複数の部分測定データファイルのうちの1つとする

ことを特徴とする請求項1に記載の測定データファイル処理装置。

[請求項7] 複数の試料のそれぞれに含まれる複数種類の目的化合物を分析装置で測定することにより得られた、それぞれが1試料に含まれる1種類の目的化合物を測定したデータである複数の単測定データが収容する測定データファイルが保存された記憶部にアクセス可能なコンピュータを、

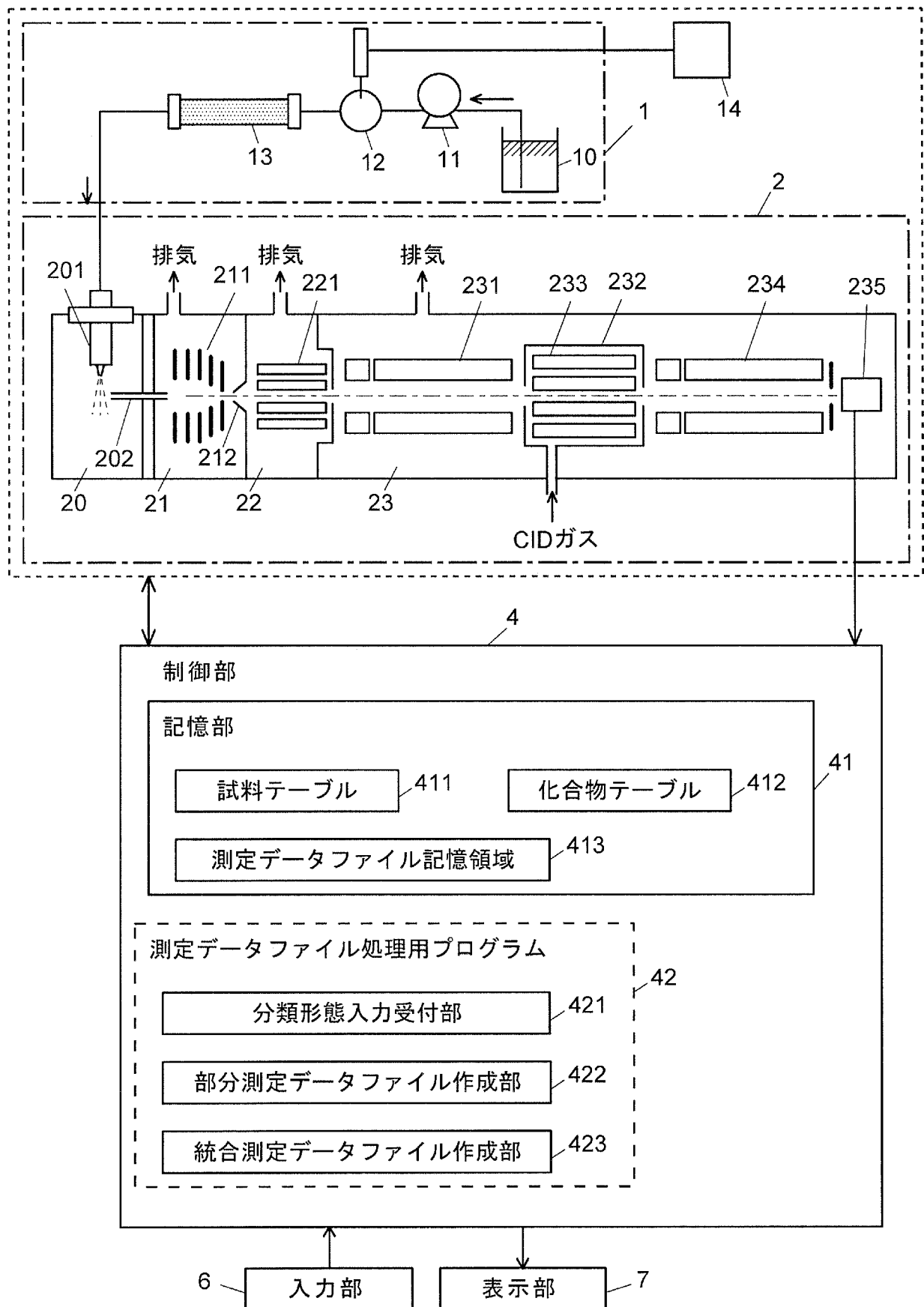
a) 前記複数の単測定データを、1乃至複数の単測定データからなる測定データ群に分類する形態を使用者に入力させる分類形態入力受付部と、

b) 前記分類の形態に基づいて、前記複数の単測定データを複数の単測定データ群に分類し、前記複数の単測定データ群のそれぞれについて、当該単測定データ群に含まれる単測定データを収納した部分測定データファイルを作成する部分測定データファイル作成部と、

c) 使用者による指示に基づき、複数の前記部分測定データファイルを統合して統合測定データファイルを作成する統合測定データファイル作成部と

として動作させることを特徴とする測定データファイル処理用プログラム。

[図1]



[図2]

No.	化合物名	カテゴリー	難度
1	試料A	カテゴリー1	1
2	試料B	カテゴリー1	1
3	試料C	カテゴリー1	1
4	試料D	カテゴリー2	4
...	...	...	...
100	試料X	カテゴリー9	5

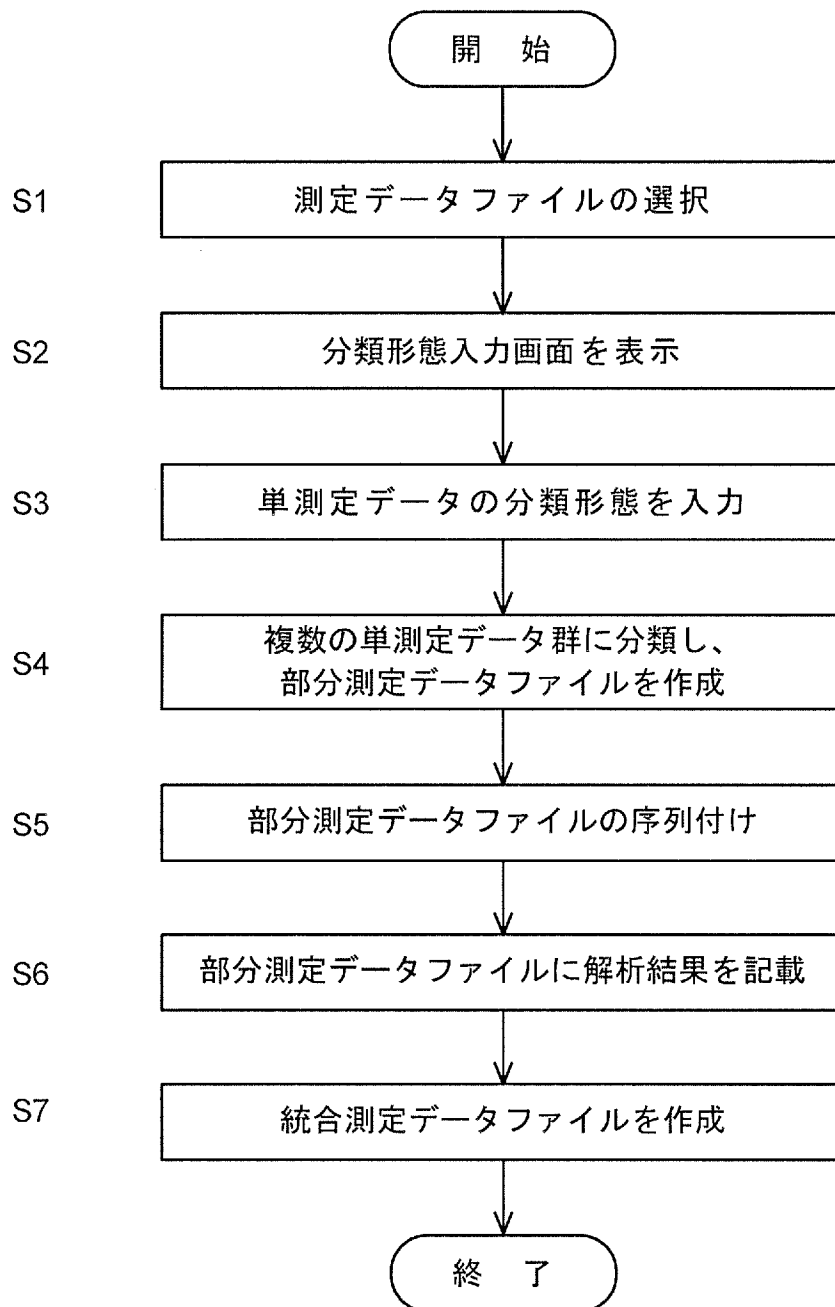
[図3]

No.	化合物名	カテゴリー	難度	実行時間帯	定量MRM	確認MRM
1	化合物A	カテゴリーa	1	0.00-5.00	163.10>130.00	163.10>117.00
2	化合物B	カテゴリーa	5	0.00-5.00	167.20>68.00	167.20>110.00
3	化合物C	カテゴリーb	3	3.00-7.00	163.10>130.00	163.10>117.00
4	化合物E	カテゴリーc	1	4.00-7.00	167.20>68.00	167.20>110.00
...	...	...	...	...	...	...
300	化合物X	カテゴリーk	1	25.00-30.00	167.20>68.00	167.20>110.00

[図4]

No.	試料名	化合物A		化合物B		...	化合物X	
		定量MRM	確認MRM	定量MRM	確認MRM		定量MRM	確認MRM
1	試料A	78	45	89	28	...	77	15
2	試料B	55	35	68	17	...	85	19
3	試料C	68	42	80	23	...	65	13
4	試料D	0	0	25	9	...	60	11
...	...	...	...	...	...	...	...	...
100	試料X	67	42	50	13	...	43	9

[図5]



[図6]

分類形態を入力してください

☐ 試料テーブルにより分類
☒ 化合物テーブルにより分類
☐ 試料単位で均等に分類
☐ 化合物単位で均等に分類

[図7]

No.	試料名	化合物A				化合物E				...	化合物X			
		定量MRM	定量値	確認MRM	同定結果	定量MRM	定量値	確認MRM	同定結果		定量MRM	定量値	確認MRM	同定結果
1	試料A	78	150	45	○	62	103	22	○	...	77	154	15	○
2	試料B	55	110	35	○	48	79	14	○	...	85	170	19	○
3	試料C	68	130	42	○	56	93	18	○	...	65	130	13	○
4	試料D	0	0	0	-	18	29	7	○	...	60	120	11	○
...	...	...	...	...	...	...	...	...	...	...	...	...	...	...
100	試料X	67	128	42	×	35	58	10	○	...	43	86	9	○

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/014276

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G01N27/62(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)

G01N27/62

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	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	MassBank, Manuals for Sharing Mass Spectra on MassBank System, Part 4: Preparation of MassBank Records, ver.2.1, MassBank Project, 09 August 2012 (09.08.2012), pages 1 to 38	1-7
Y	Keiri·Kaikei Jimusho Muke Excel Speed Up Koza, 26 April 2016 (26.04.2016), URL, https://www.excelsspeedup.com/filter/	1-7
Y	JP 11-3264 A (Hitachi, Ltd.), 06 January 1999 (06.01.1999), paragraphs [0003], [0004] (Family: none)	2
A	JP 2017-20877 A (Shimadzu Corp.), 26 January 2017 (26.01.2017), (Family: none)	1-7

☐ 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
 "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
 "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)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"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
 "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
 "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
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
26 June 2017 (26.06.17)

Date of mailing of the international search report
11 July 2017 (11.07.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. G01N27/62 (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. G01N27/62

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	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017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)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

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
Y	MassBank データ公開・マススペクトルデータベース構築マニュアル 第4部: データ作成編, 第2.1版, MassBank Project, 2012.08.09, PP. 1-38	1-7
Y	経理・会計事務所向けエクセルスピードアップ講座, 2016.04.26, U R L, https://www.excel-speedup.com/filter/	1-7
Y	JP 11-3264 A (株式会社日立製作所) 1999.01.06, [0003] [0 004] (ファミリーなし)	2

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」 国際出願日前で、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

26.06.2017

国際調査報告の発送日

11.07.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

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)

吉田 将志

2W

4636

電話番号 03-3581-1101 内線 3258

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 2017-20877 A (株式会社島津製作所) 2017. 01. 26, (ファミリーなし)	1-7