

(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 2018/185872 A1

(51) 国際特許分類:

G01N 30/86 (2006.01) G01N 30/80 (2006.01)
G01N 30/24 (2006.01) G01N 30/82 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/014215

(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: 玉置 宗一郎 (TAMAOKI Soichiro); 〒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). 大

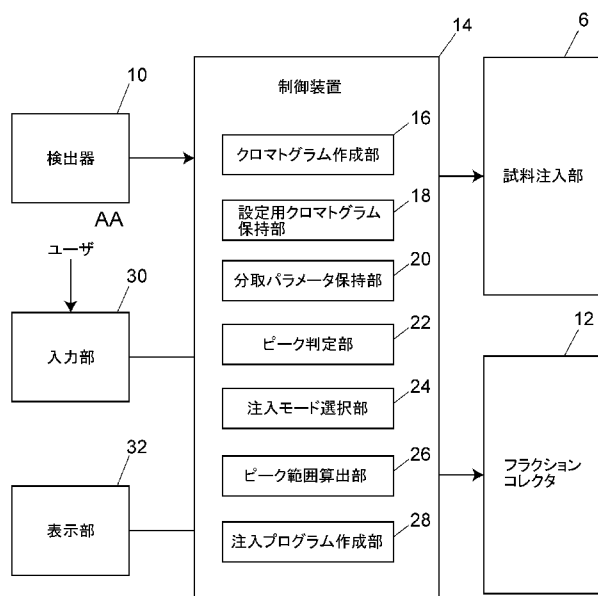
古場 努 (OKOBA Tsutomu); 〒6048511 京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地 株式会社島津製作所内 Kyoto (JP). 入来 隆之 (IRIKI Takayuki); 〒6048511 京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地 株式会社島津製作所内 Kyoto (JP). 上田 史織 (UEDA Shiori); 〒6048511 京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地 株式会社島津製作所内 Kyoto (JP).

(74) 代理人: 野口 大輔 (NOGUCHI Daisuke); 〒5560016 大阪府大阪市浪速区元町2丁目8-1 ラポール難波9階 野口特許事務所 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,

(54) Title: PREPARATIVE LIQUID CHROMATOGRAPH

(54) 発明の名称: 分取液体クロマトグラフ



- 6 Sample injection unit
- 10 Detector
- 12 Fraction collector
- 14 Control device
- 16 Chromatogram creating unit
- 18 Setting chromatogram holding unit
- 20 Preparative parameter holding unit
- 22 Peak determining unit
- 24 Injection mode selecting unit
- 26 Peak range calculating unit
- 28 Injection program creating unit
- 30 Input unit
- 32 Display unit
- AA User

(57) **Abstract:** Provided is a preparative liquid chromatograph that includes a control device that controls the operation of at least a sample injecting unit. The control device is provided with: a setting-use chromatogram holding unit that holds setting-use chromatograms created in advance for samples to be analyzed; and an injection program creating unit that is configured to create, on the basis of the setting-use chromatograms, an injection program that stipulates the timing at which each injection operation is to be executed such that peaks of a chromatogram of a sample to be analyzed injected



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, 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))

in an injection operation are not superimposed on peaks of the chromatograms of samples to be analyzed injected in other injection operations, when the injection frequency is set in a multiple number of injections mode.

(57) 要約: 分取液体クロマトグラフは、少なくとも試料注入部の動作を制御する制御装置が、分析対象試料について予め作成された設定用クロマトグラムを保持する設定用クロマトグラム保持部と、複数回注入モードでの注入回数が設定されたときに、各注入動作で注入される分析対象試料のクロマトグラムのピークが別の注入動作において注入される分析対象試料のクロマトグラムのピークと重ならないように、各注入動作が実行されるタイミングを規定する注入プログラムを設定用クロマトグラムに基づいて作成するように構成された注入プログラム作成部と、を備えている。

明 細 書

発明の名称：分取液体クロマトグラフ

技術分野

[0001] 本発明は、分析カラムを用いて試料を成分ごとに分離し、分離された試料成分をフラクションコレクタにより分画捕集する分取液体クロマトグラフに関するものである。

背景技術

[0002] 高速液体クロマトグラフを始めとする液体クロマトグラフを利用して、試料の含まれる複数の成分を分離して採取する分取液体クロマトグラフが知られている（例えば、特許文献1参照。）。分取液体クロマトグラフは、移動相を送液する送液装置や分析カラム、検出器等を備えたクロマトグラフ部と、そのクロマトグラフ部の後段側に設けられたフラクションコレクタ、及びこれらの動作を制御する制御装置を備えている。フラクションコレクタはクロマトグラフ部の検出器の信号に基づいて動作するように構成されており、分析カラムによって時間的に分離された試料成分がフラクションコレクタによって分画捕集される。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2012-193999号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 分取液体クロマトグラフでは、一度に大量の試料を分析流路中へ注入して成分ごとに分離することが求められる。しかし、分析流路中へ一度に注入することができる試料の量には限りがあり、その上限値はポンプ流量やカラム性能によって変わる。したがって、その上限値を超える量の試料が存在する場合には、同一試料を分割して複数回にわたって分析流路中へ注入するということが行われる。

[0005] 試料を分割して複数回注入を行なう場合、ユーザは、試験的に試料注入を行なってピークの出現位置を確認し、各注入により出現するピーク位置が重ならないような試料注入のタイミングとなるように、注入プログラムを作成する必要があった。また、ユーザが注入プログラムを作成する場合、各注入の時間間隔を長くしすぎってしまうと、分取サイクルタイムに要する時間が長くなってしまふ。

[0006] そこで、本発明は、同一試料についての分析流路への注入動作を複数回にわたって実行する場合に、各注入動作のタイミングを規定する注入プログラムが容易に作成されるようにすることを目的とするものである。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明に係る分取液体クロマトグラフは、移動相を送液する送液装置と、前記送液装置によって送液される移動相が流れる分析流路と、前記分析流路中に試料を注入する試料注入部と、前記分析流路上における前記試料注入部よりも下流において試料を成分ごとに分離する分析カラムと、前記分析流路上における前記分析カラムよりも下流において前記分析カラムにより分離された試料成分を検出する検出器と、前記検出器の出口側において、前記検出器を経た試料成分を捕集するためのフラクションコレクタと、少なくとも前記試料注入部の動作を制御する制御装置と、を備えたものである。前記制御装置は、分析対象試料について予め作成された設定用クロマトグラムを保持する設定用クロマトグラム保持部と、前記分析対象試料について、前記試料注入部による前記分析流路への注入動作を複数回にわたって実行する複数回注入モードでの注入回数が設定されたときに、各注入動作で注入される前記分析対象試料のクロマトグラムのピークが別の前記注入動作において注入される前記分析対象試料のクロマトグラムのピークと重ならないように、前記各注入動作が実行されるタイミングを規定する注入プログラムを前記設定用クロマトグラムに基づいて作成するように構成された注入プログラム作成部と、を備えている。

[0008] 前記注入プログラム作成部の好ましい態様は、先に実行される前記注入動

作で注入される前記分析対象試料のクロマトグラムの最後のピークとその直後に実行される前記注入動作で注入される前記分析対象試料のクロマトグラムの最初のピークとの間の時間間隔が所定の時間間隔となるように、前記注入プログラムを作成するように構成されているものである。「最後のピーク」とはクロマトグラムにおいて最も出現時間の遅いピークを意味し、「最初のピーク」とはクロマトグラムにおいて最も出現時間の早いピークを意味する。

[0009] 上記の「所定の時間間隔」は、先に注入される試料のクロマトグラムの最後のピークとその直後に注入される試料のクロマトグラムの最初のピークの出現時間が重ならないようにするためのマージンとしての意味をもつものである。このマージンは、固定値（デフォルト値）であってもよいし、ユーザが任意に設定した値であってもよい。この「マージン」が短ければ短いほど、すべての注入動作が完了するまでに要する時間が短くなる。しかし、実際の分析時のピークの出現位置は、室温などの分析条件の変動によって、予め作成された設定用クロマトグラム上における出現位置から前後することがあり得るため、上記のマージンが短すぎる（例えば、0秒）とピークの出現時間が重なってしまうという事態も生じ得る。そのため、上記の「所定の時間間隔」は、ピークの出現時間の変動を加味して設定されていることが好ましい。

発明の効果

[0010] 本発明の分取液体クロマトグラフでは、少なくとも試料注入部の動作を制御する制御装置が、分析対象試料について予め作成された設定用クロマトグラムを保持する設定用クロマトグラム保持部と、複数回注入モードでの注入回数が設定されたときに、各注入動作で注入される分析対象試料のクロマトグラムのピークが別の注入動作において注入される分析対象試料のクロマトグラムのピークと重ならないように、各注入動作が実行されるタイミングを規定する注入プログラムを設定用クロマトグラムに基づいて作成するように構成された注入プログラム作成部と、を備えているので、ユーザが注入回数

を設定するだけで注入プログラムが自動的に作成されるようになる。これにより、ユーザが予備的な分析で得られたクロマトグラムを確認しながら注入プログラムを作成する必要がなくなり、複数回注入モードで試料注入を行なう際のユーザの設定作業が簡略化される。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]分取液体クロマトグラフの一実施例を示す概略流路構成図である。

[図2]同実施例の制御装置の構成を概略的に示すブロック図である。

[図3]同実施例の複数回注入モード選択時の動作を示すフローチャートである。

[図4]設定用クロマトグラムの一例である。

[図5]作成された注入プログラムによって得られると想定されるクロマトグラムの一例である。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明の分取液体クロマトグラフの一実施例について、図面を用いて説明する。

[0013] 図1に分取液体クロマトグラフの構成を概略的に示す。

[0014] この分取液体クロマトグラフは、分析流路2において移動相を送液する送液装置4、分析流路2中に試料を注入する試料注入部6、試料を成分ごとに分離する分析カラム8、分析カラム8で分離された試料成分を検出する検出器10、分析カラム8で分離された試料成分を分画して捕集するフラクションコレクタ12、及びこの分取液体クロマトグラフ全体の動作制御を行なう制御装置14を備えている。

[0015] 試料注入部6は分析流路2上における送液装置4の下流に設けられている。試料注入部6は、試料を自動的に採取して送液装置4からの移動相が流れる分析流路2中に試料を注入するように構成されたオートサンプラである。分析流路2上における試料注入部6の下流に分析カラム8が設けられている。試料注入部6によって注入された試料は、送液装置4からの移動相によって分析カラム8へ搬送され、成分ごとに分離される。

- [0016] 分析流路 2 上における分析カラム 8 の下流に検出器 10 が設けられており、分析カラム 8 で分離された試料成分が検出器 10 で得られる検出波形においてピークとして表れる。フラクションコレクタ 12 は検出器 10 の後段側に設けられている。フラクションコレクタ 12 の動作は制御装置 14 によって制御される。
- [0017] 制御装置 14 は、送液装置 4、試料注入部 6、分析カラム 8 の温度調節を行なうカラムオープン（図示は省略）、及びフラクションコレクタ 12 の動作制御を行なう。制御装置 14 は、この分取液体クロマトグラフ専用のコンピュータ又は汎用のパーソナルコンピュータによって実現される。
- [0018] フラクションコレクタ 12 は、検出器 10 から流出する移動相のうち、所望の試料成分を含む部分を分画して捕集することができる構成であればいかなる構成のものであってもよい。例えば、フラクションコレクタ 12 は、検出器 10 の出口からの流路が流路切替バルブに接続され、その流路切替バルブの切替えによって所望の試料成分を含む移動相を個別の容器へ導くように構成されたものであってもよい。また、フラクションコレクタ 12 は、検出器 10 の出口からの流路が移動式のプローブに接続され、所望の試料成分を含む移動相がプローブの先端から個別の容器へ滴下されるように、プローブを移動させるように構成されたものであってもよい。
- [0019] 制御装置 14 は、検出器 10 で得られる信号波形から所望の（ユーザによって指定された分画捕集対象の）試料成分に相当するピークを検出し、そのピーク部分に相当する移動相が分画捕集されるように、フラクションコレクタ 12 の動作を制御する。制御装置 14 は、検出器 10 で得られる信号波形から所望の試料成分に相当するピークを検出するために、ピークの開始点と終了点をそれぞれ検出するためのしきい値である分取パラメータを保持している。
- [0020] この分取液体クロマトグラフは、試料の注入方式に関するモードとして複数回注入モードを選択することができる。複数回注入モードは、同一の試料を複数に分割して複数回にわたって分析流路 2 中へ注入する方式を実行する

モードである。複数回注入モードは、分析対象試料の量が、試料注入部 6 が分析流路 2 中に一度に注入することができる量の上限値を超えているような場合を選択される。

[0021] 複数回注入モードが選択されると、試料注入部 6 は、分析対象試料を分析流路 2 中へ注入する注入動作を設定された回数だけ実行する。制御装置 1 4 は、ユーザが複数回注入モードを選択し、その注入回数を設定したときに、試料注入部 6 による各注入動作のタイミングを規定する注入プログラムを自動的に作成する機能を有する。

[0022] 制御装置 1 4 の有する機能について、図 2 を用いて説明する。

[0023] 制御装置 1 4 は、クロマトグラム作成部 1 6、設定用クロマトグラム保持部 1 8、分取パラメータ保持部 2 0、ピーク判定部 2 2、注入モード選択部 2 4、ピーク範囲算出部 2 6 及び注入プログラム作成部 2 8 を備えている。制御装置 1 4 には、例えばキーボードやマウスなどの入力部 3 0 と、液晶ディスプレイなどの表示部 3 2 が接続されている。ユーザは入力部 3 0 を介して必要な情報を制御装置 1 4 へ入力することができる。表示部 3 2 には、例えば検出器 1 0 からの信号に基づいて作成されたクロマトグラムなど、種々の情報が表示される。

[0024] クロマトグラム作成部 1 6 は、検出器 1 0 からの信号に基づいて、試料のクロマトグラムを作成するように構成されている。通常、試料成分の分画捕集を行なう前に、対象となる試料を分析流路 2（図 1 を参照。）に注入し、その試料の予備的な分析を行なってクロマトグラムを作成する。予備的な分析においてクロマトグラム作成部 1 6 により作成されたクロマトグラムは、設定用クロマトグラムとして設定用クロマトグラム保持部 1 8 に保持される。設定用クロマトグラム保持部 1 8 は、設定用クロマトグラムを保持しておくための記憶領域である。

[0025] 設定用クロマトグラムは、分画捕集対象の試料成分のピークを検出するためのしきい値である分取パラメータを設定するために使用されるほか、後述する注入プログラムの作成にも使用される。分取パラメータ保持部 2 0 は、

設定された分取パラメータを保持しておくための記憶領域である。

[0026] ピーク判定部 22 は、分取パラメータ保持部 20 に保持されている分取パラメータを用いて、設定用クロマトグラムや実際の分析で取得されたクロマトグラムにおけるピークの開始点及び終了点をそれぞれ判定し、ピークを検出するように構成されている。

[0027] 注入モード選択部 24 は、ユーザに試料の注入モードを選択させるように構成されている。注入モードとして、試料（同一試料）の全量を 1 回の注入動作によって分析流路 2（図 1 参照。）中へ注入する通常注入モードと、試料を複数に分割して複数回の注入動作によって分析流路 2 中へ注入する複数回注入モードがある。注入モード選択部 24 は、ユーザが複数回注入モードを選択したときに、さらにその注入回数をユーザに設定させるように構成されている。制御装置 14 はユーザにより設定された回数の注入動作によって試料の全量を分析流路 2 中へ注入するように、試料注入部 6 の動作を制御する。

[0028] ピーク範囲算出部 26 は、後述する注入プログラムの作成に用いられる設定用クロマトグラムにおけるピーク範囲 T_p を算出するように構成されている。ピーク範囲 T_p とは、設定用クロマトグラムに現れているピークのうち、最も出現時間の早い最初のピークの開始点が検出されてから最も出現時間の遅い最後のピークの終了点が検出されるまでの時間を意味する。設定用クロマトグラムにおける各ピークの検出は、ピーク判定部 22 が分取パラメータ保持部 20 に保持されている分取パラメータを用いて行なう。

[0029] クロマトグラム作成部 16、ピーク判定部 22、注入モード選択部 24、ピーク範囲算出部 26 及び注入プログラム作成部 28 は、制御装置 14 に設けられた演算素子がプログラムを実行することによって得られる機能である。

[0030] 設定用クロマトグラムが、例えば図 4 の波形を示すものであったとすると、ピーク判定部 22 によって 1～4 のピークが検出されるので、ピーク範囲 T_p は、最初のピーク 1 の開始点が検出された時刻 t_0 から最後のピーク 4

の終了点が検出された時刻 t_1 までの間の範囲である。すなわち、

$$T_p = t_1 - t_0$$

である。

[0031] 注入プログラム作成部 28 は、ユーザが複数回注入モードを選択して注入回数を設定したときに、試料注入部 6 がどのようなタイミングで試料の各注入動作を実行するかを規定する注入プログラムを作成するように構成されている。注入プログラムは、ピーク範囲算出部 26 によって算出されたピーク範囲 T_p を用い、各注入動作で注入される試料のクロマトグラムのピーク範囲 T_p が重ならないように作成される。具体的には、先に実施される注入動作で注入される試料のクロマトグラムの最後のピークの終了点と、その直後に実施される注入動作で注入される試料のクロマトグラムの最初のピークの開始点との間に一定の時間間隔 Δt が生じるように、各注入動作間の間隔（注入間隔） T_{in} が決定される。

[0032] 設定用クロマトグラムの各ピークの出現時間はあくまで予備的な分析を行ったときのデータであるため、実際の分析時の条件によって、設定用クロマトグラムの出現時間からずれるということがあり得る。時間間隔 Δt はそのようなずれが生じて、各注入動作で注入される試料のクロマトグラムのピーク範囲 T_p が重なることがないようにするためのマージンとしての意味合いをもつものである。このマージン Δt は固定値であってもよいし、ユーザが任意に設定できるようになっていてもよい。

[0033] 図 4 の設定用クロマトグラムを用いて注入プログラムを作成する場合、図 5 に示されているように、先に実施される注入動作で注入される試料のクロマトグラムの最後のピーク 4 の終了点の時刻 t_1 とその直後に実施される注入動作で注入される試料のクロマトグラムの最初のピーク 1 の開始点の時刻 t_0 との間に一定の時間間隔 Δt が生じるように注入間隔 T_{in} が算出される。先に実施される注入動作の注入時刻とその直後に実施される注入動作の注入時刻との時間間隔を算出された注入間隔 T_{in} に設定すると共に、ユーザ操作によって設定された注入回数に分割して同一試料注入動作が実行され

るように、注入プログラムが自動的に作成される。上記の注入間隔 T_{in} は、

$$T_{in} = T_p + \Delta t$$

と表すことができる。

[0034] 制御装置 14 による注入プログラム作成動作について、図 2 とともに図 3 のフローチャートを用いて説明する。

[0035] ユーザが複数回注入モードを選択して注入回数を設定すると（ステップ S 1、S 2）、設定用クロマトグラム保持部 18 に保持された分析対象試料の設定用クロマトグラムが読み出される（ステップ S 3）。ピーク判定部 22 は、読み出された設定用クロマトグラムに現れているピークを分取パラメータ保持部 20 に保持されている分取パラメータを用いて検出する（ステップ S 4）。なお、当該ピークはユーザ操作によって適宜補正することもできる。

[0036] ピーク範囲算出部 26 は、ピーク判定部 22 によって検出されたピークのうち最初のピークの開始点の時刻と最後のピークの終了点の時刻との差を求めることにより、ピーク範囲を算出する（ステップ S 5）。注入プログラム作成部 28 は、各注入動作で注入される試料のクロマトグラムのピーク範囲 T_p が重ならないように各注入動作間の時間間隔である注入間隔 T_{in} を算出し（ステップ S 6）、その注入間隔 T_{in} で設定された回数の注入動作が実行されるように注入プログラムを作成する（ステップ S 7）。

符号の説明

[0037]	2	分析流路
	4	送液装置
	6	試料注入部
	8	分析カラム
	10	検出器
	12	フラクションコレクタ
	14	制御装置

1 6	クロマトグラム作成部
1 8	設定用クロマトグラム保持部
2 0	分取パラメータ保持部
2 2	ピーク判定部
2 4	注入モード選択部
2 6	ピーク範囲算出部
2 8	注入プログラム作成部
3 0	入力部
3 2	表示部

請求の範囲

[請求項1]

移動相を送液する送液装置と、
前記送液装置によって送液される移動相が流れる分析流路と、
前記分析流路中に試料を注入する試料注入部と、
前記分析流路上における前記試料注入部よりも下流において試料を成分ごとに分離する分析カラムと、
前記分析流路上における前記分析カラムよりも下流において前記分析カラムにより分離された試料成分を検出する検出器と、
前記検出器の出口側において、前記検出器を経た試料成分を捕集するためのフラクションコレクタと、
少なくとも前記試料注入部の動作を制御する制御装置と、を備え、
前記制御装置は、
分析対象試料について予め作成された設定用クロマトグラムを保持する設定用クロマトグラム保持部と、
同一の前記分析対象試料について、前記試料注入部による前記分析流路への注入動作を複数回に分割して実行する複数回注入モードでの注入回数が設定された場合に、各注入動作で注入される前記分析対象試料のクロマトグラムのピークが別の前記注入動作において注入される前記分析対象試料のクロマトグラムのピークと重ならないように、前記各注入動作が実行されるタイミングを規定する注入プログラムを前記設定用クロマトグラムに基づいて作成するように構成された注入プログラム作成部と、を備えている分取液体クロマトグラフ。

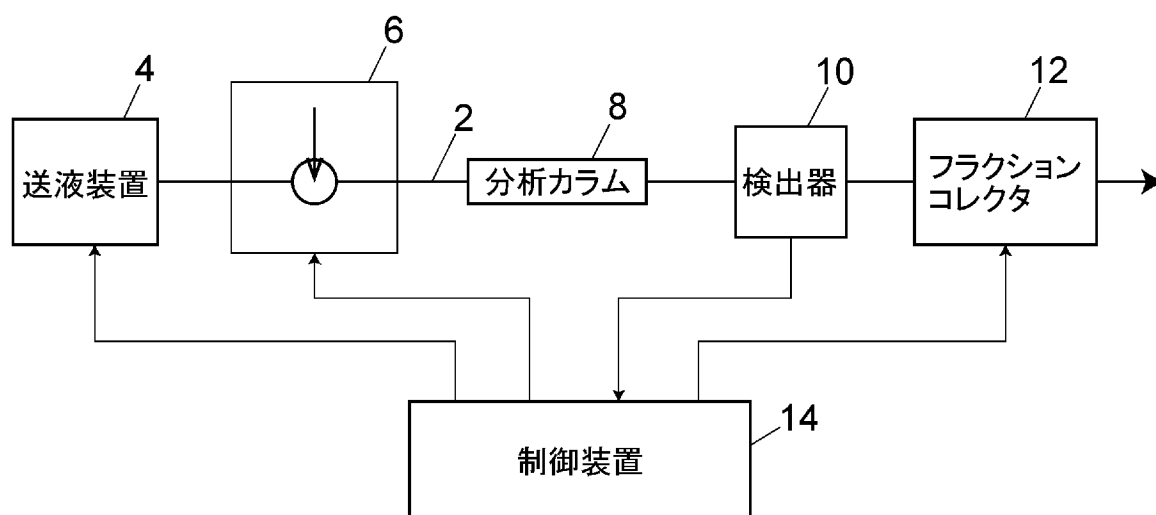
[請求項2]

前記注入プログラム作成部は、先に実行される前記注入動作で注入される前記分析対象試料のクロマトグラムの最後のピークとその直後に実行される前記注入動作で注入される前記分析対象試料のクロマトグラムの最初のピークとの間の時間間隔が所定の時間間隔となるように、前記注入プログラムを作成するように構成されている請求項1に記載の分取液体クロマトグラフ。

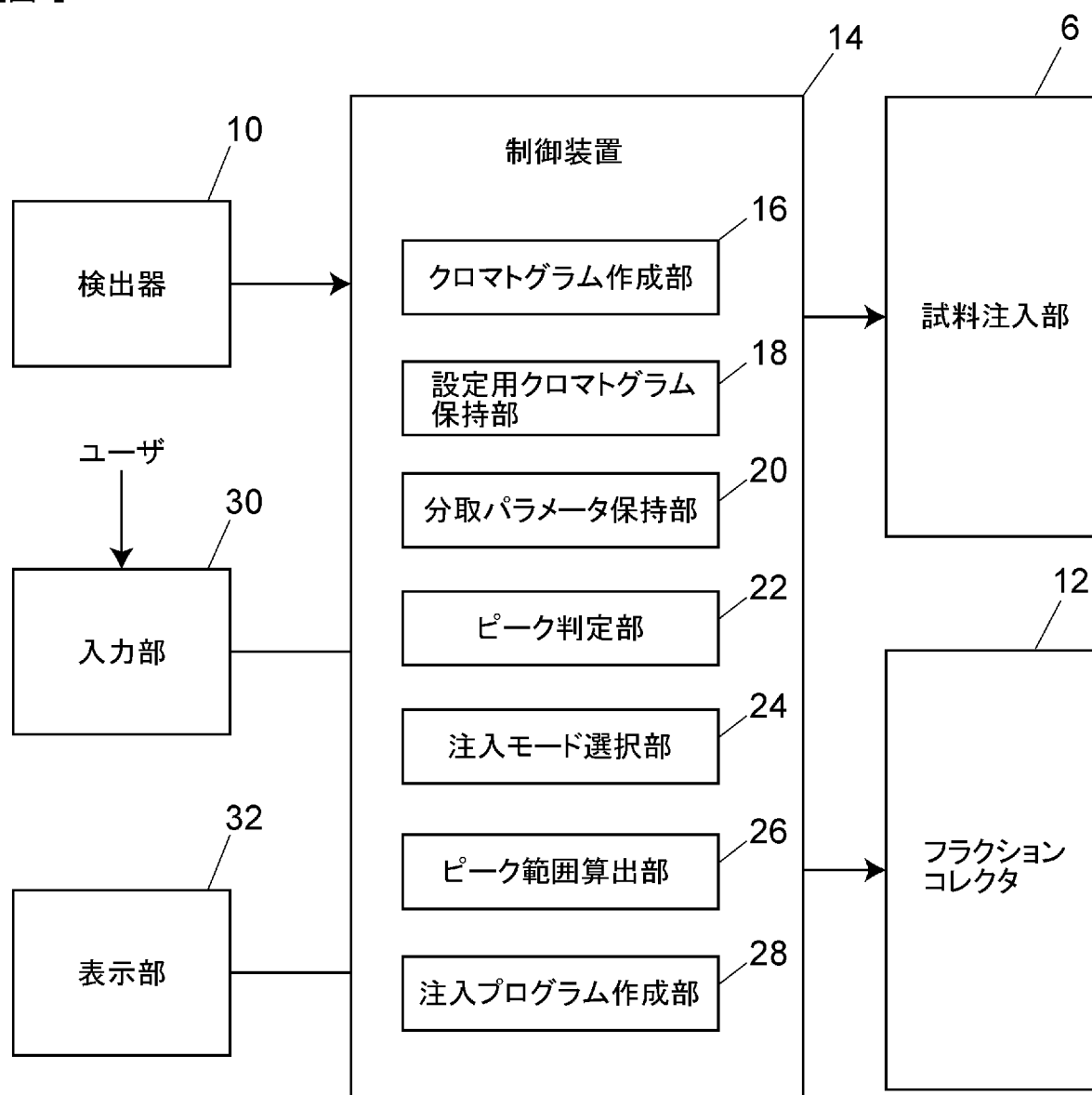
[請求項3] 前記設定用クロマトグラムにおける最初のピークの開始点が検出された時刻から最後のピークの終了点が検出された時刻までの時間間隔であるピーク範囲を算出するように構成されたピーク範囲算出部をさらに備え、

前記注入プログラム作成部は、先に実行される前記注入動作の注入時刻とその直後に実行される前記注入動作の注入時刻との注入間隔を、前記ピーク範囲算出部によって算出された前記ピーク範囲に前記所定の時間間隔を加算した時間に設定するように構成されている請求項2に記載の分取液体クロマトグラフ。

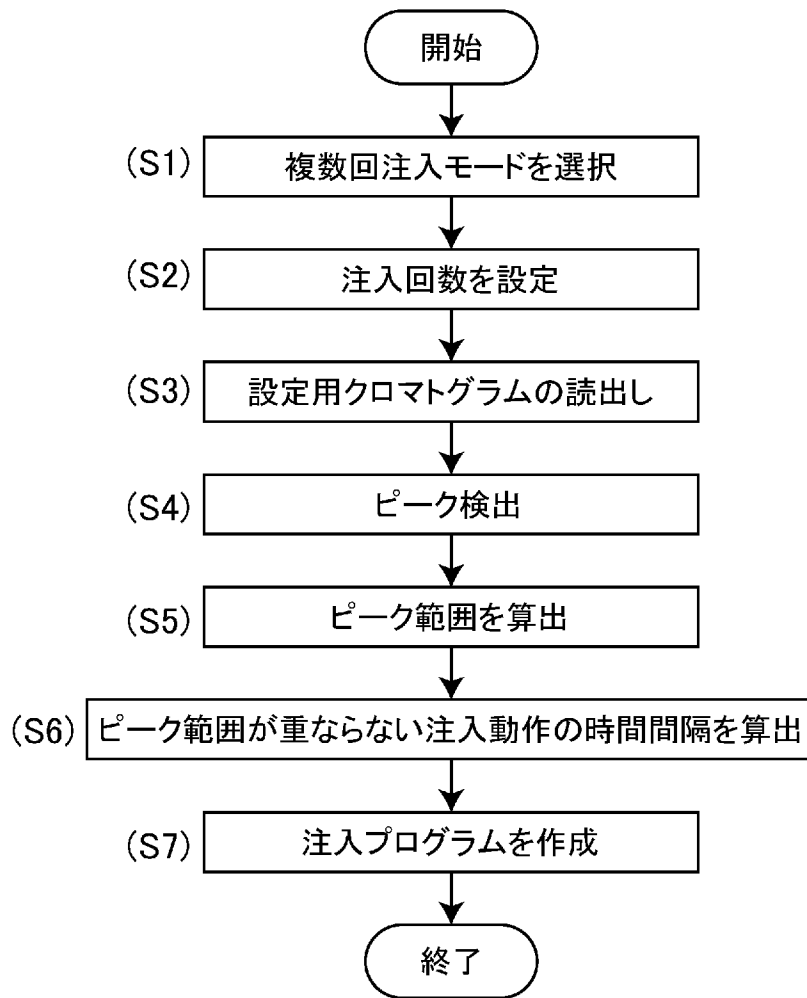
[図1]



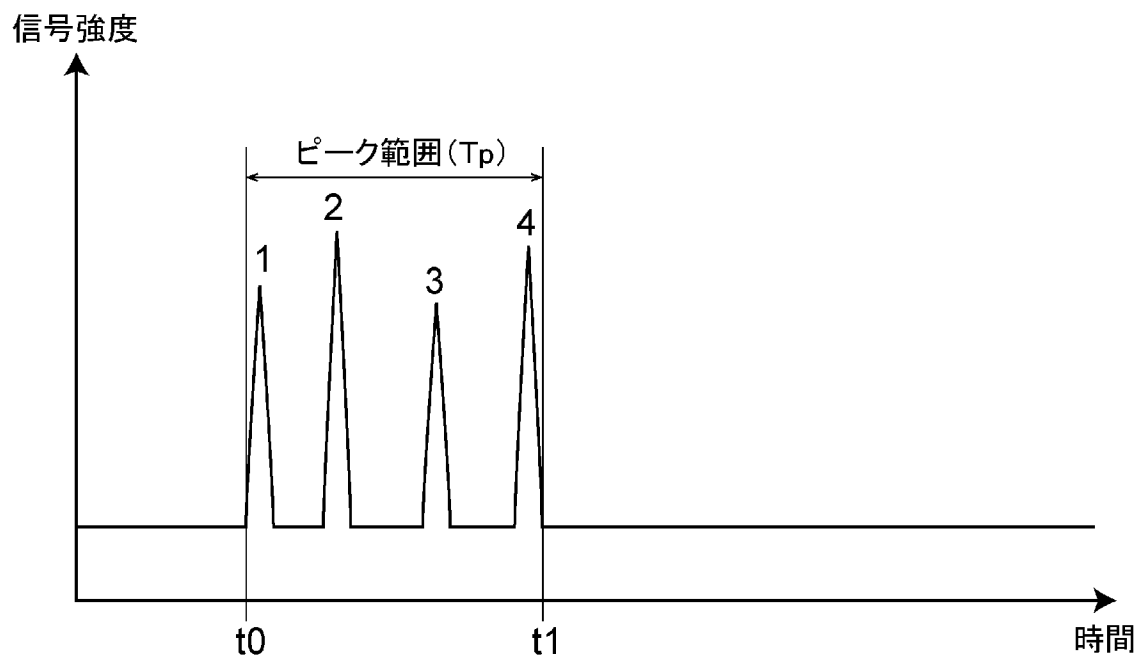
[図2]



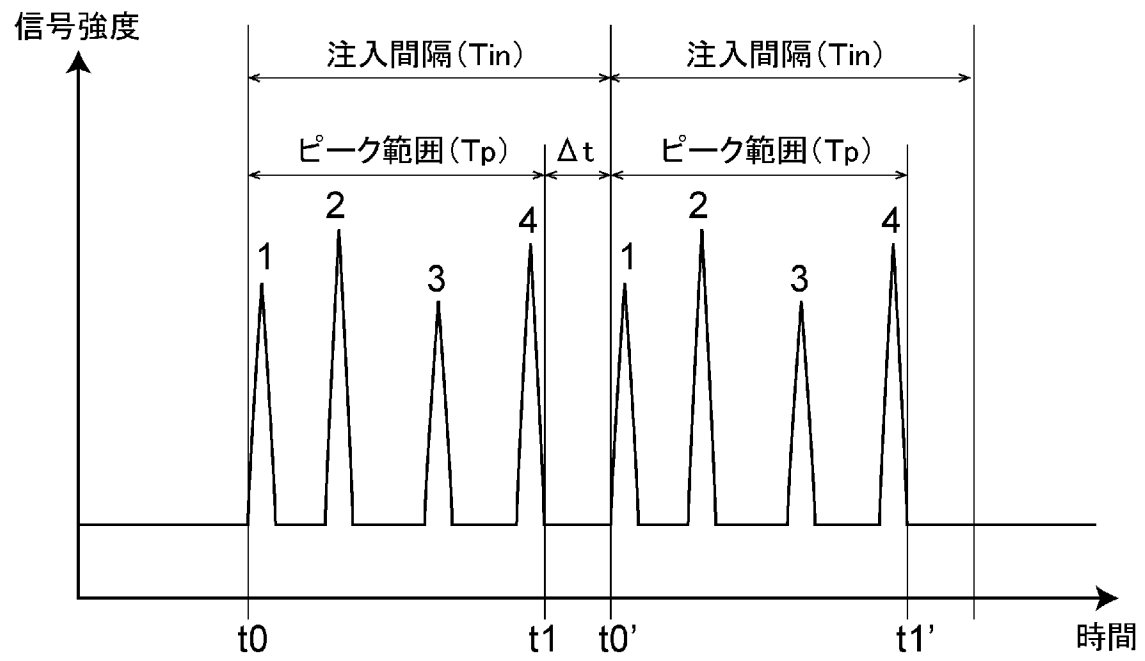
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/014215

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G01N30/86(2006.01)i, G01N30/24(2006.01)i, G01N30/80(2006.01)i, G01N30/82(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)

G01N30/86, G01N30/24, G01N30/80, G01N30/82

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.
X A	JP 2012-173148 A (Shimadzu Corp.), 10 September 2012 (10.09.2012), fig. 1 to 3; paragraphs [0030] to [0049] (Family: none)	1 2-3
A	JP 2005-127814 A (Shimadzu Corp.), 19 May 2005 (19.05.2005), fig. 4; paragraphs [0029] to [0030] (Family: none)	1-3
A	JP 63-32367 A (JASCO Corp.), 12 February 1988 (12.02.1988), fig. 3 (Family: none)	1-3



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

21 June 2017 (21.06.17)

Date of mailing of the international search report

04 July 2017 (04.07.17)

Name and mailing address of the ISA/

Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/014215

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 2005-257575 A (Shimadzu Corp.), 22 September 2005 (22.09.2005), fig. 4 (Family: none)	1-3
A	US 5301261 A (POOLE John S.), 05 April 1994 (05.04.1994), fig. 3 & EP 387409 A2 fig. 3	1-3

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. G01N30/86(2006.01)i, G01N30/24(2006.01)i, G01N30/80(2006.01)i, G01N30/82(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（I P C））

Int.Cl. G01N30/86, G01N30/24, G01N30/80, G01N30/82

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 7 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 7 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 7 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
X A	JP 2012-173148 A（株式会社島津製作所）2012.09.10, 図1-3, [0030]-[0049]（ファミリーなし）	1 2-3
A	JP 2005-127814 A（株式会社島津製作所）2005.05.19, 図4, [0029]-[0030]（ファミリーなし）	1-3
A	JP 63-32367 A（日本分光工業株式会社）1988.02.12, 第3図 （ファミリーなし）	1-3

☒ 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

2 1 . 0 6 . 2 0 1 7

国際調査報告の発送日

0 4 . 0 7 . 2 0 1 7

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / 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）

高田 亜希

電話番号 03-3581-1101 内線 3252

2 J

5 7 0 5

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	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 2005-257575 A (株式会社島津製作所) 2005.09.22, 図4 (ファミリーなし)	1-3
A	US 5301261 A (POOLE John S.) 1994.04.05, Fig.3 & EP 387409 A2 Fig.3	1-3