

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2015-81908

(P2015-81908A)

(43) 公開日 平成27年4月27日 (2015.4.27)

(51) Int.Cl. F I テーマコード (参考)
G 0 1 N 27/62 (2006.01) G O 1 N 27/62 V 2 G O 4 1
 G O 1 N 27/62 D

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 13 頁)

(21) 出願番号	特願2013-221572 (P2013-221572)	(71) 出願人	509339821
(22) 出願日	平成25年10月24日 (2013.10.24)		アトナーブ株式会社
			東京都八王子市天神町16番地1
		(74) 代理人	100102934
			弁理士 今井 彰
		(74) 代理人	100164415
			弁理士 斉藤 翼
		(72) 発明者	ブラカッシ スリダラ ムルティ
			茨城県つくば市千現2丁目1-6 つくば
			研究支援センター D26 アトナーブ株
			式会社 つくばR&Dオフィス内
		Fターム (参考)	2G041 CA02 DA09 EA05 FA07 GA13
			GA14 GA30 LA06 LA07 MA06

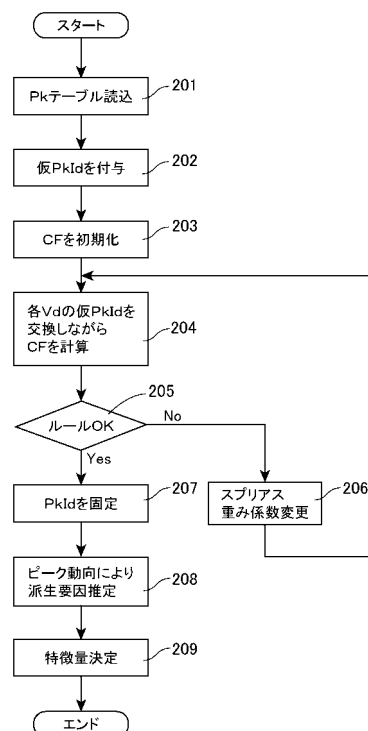
(54) 【発明の名称】 分析方法

(57) 【要約】

【課題】 センサーにより得られた3次元のスペクトラムデータに含まれる特徴量を得るためのピーク解析の方法を提供する。

【解決手段】 3次元のスペクトラムデータから2次元のピーク配列を求め、2次元のピーク配列に含まれるピーク動向からピークの派生要因を推定し、特徴量を求める際に、ピーク配列の中の第1の方向に並ぶ複数のピークに仮識別子を付け、ピーク配列の中の第2の方向に並ぶ複数のピークを接続するワーキングファンクションを生成し、第2の方向に並ぶ複数のピークを仮識別子に基づいてワーキングファンクションにより接続した値を、第1の方向に並ぶ複数のピークを入れ替えて求め、求められたワーキングファンクションの値が所定の範囲内であれば、そのワーキングファンクションにより接続されたピークの仮識別子を共通の識別子に変更する。

【選択図】 図5



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

センサーにより得られた 3 次元のスペクトラムデータに含まれる特徴量を得ることを含み、

前記特徴量を得ることは、

前記 3 次元のスペクトラムデータから 2 次元のピーク配列を求めることと、

前記 2 次元のピーク配列に含まれるピーク動向からピークの派生要因を推定し、特徴量を求めることとを含み、

前記ピークの派生要因を推定することは、

前記ピーク配列の中の第 1 の方向に並ぶ複数のピークに仮識別子を付けることと、

前記ピーク配列の中の第 2 の方向に並ぶ複数のピークを接続するワーキングファンクションを生成することと、

前記第 2 の方向に並ぶ複数のピークを前記仮識別子に基づいて前記ワーキングファンクションにより接続した値を、前記第 1 の方向に並ぶ複数のピークを入れ替えて求め、求められたワーキングファンクションの値が所定の範囲内であれば、そのワーキングファンクションにより接続されたピークの仮識別子を共通の識別子に変更することと、

前記共通の識別子が付されたピークの動向からピークの派生要因を推定することを含む、分析方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、化学物質の波形成分を含むデータなどのスペクトラムデータに含まれる特徴量を得る方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

高感度に化学物質を検出、分析する技術として、近年、フィールド非対称性イオン移動度分光計（FAIMS）と呼ばれる装置がある。この装置では、センサーに印加する直流電圧と交流電圧を変化させることにより、イオン化された化学物質の移動度の変化を、微細な構成のフィルタによって検出し、その検出結果の差異により化学物質に関連するデータを出力できる。

【0003】

特許文献 1 には、複数の電極を有する少なくとも 1 つのイオンチャネルの形状のイオンフィルタを有するイオン移動度分光計について記載されている。このイオン移動度分光計では、導電層に印加される時間変化する電位により、充填剤はイオン種を選択的に入れることができる。電位は、駆動電界成分および横電界成分を有し、好ましい実施形態において、電極のそれぞれは、駆動電界および横電界の両方の成分を生成するのに関与する。デバイスは、ドリフトガスフローがなくても用いることができる。さらに、特許文献 1 には、分光計の種々の用途であるようなマイクロスケール分光計を製作するための微細加工技術について記載されている。

【0004】

特許文献 2 には、サンプルを分析するユニットを有するシステムが開示されている。分析するユニットは、少なくとも 2 つのパラメータにより制御される電界をイオン化された化学物質が通過するイオン強度を測定するイオン移動度センサーにサンプルを供給して得られた測定データに含まれるデータの 2 次元表現であって、第 1 のパラメータを変化させ、他のパラメータを固定したときのイオン強度を示す 2 次元表現の中に存在するピークを検出する機能ユニットと、検出されたピークと他の 2 次元表現の中に存在するピークとの連続性および生滅に基づいて検出されたピークを分類する機能ユニットと、分類されたピークに基づいてサンプルに含まれる化学物質を推定する機能ユニットとを有する。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特表2008-508693号公報

【特許文献2】国際公開WO2012/056709号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

イオン移動度センサーによりプラスイオンおよびマイナスイオンそれぞれに2次元（ピーク高さを入れると3次元）のピークが得られる。それらのピークは、イオンと空気中の分子との衝突の影響が含まれるのでガウシアン分布を持ち、さらに、さまざまな容易による偽のピーク（目的外のピーク、スプリアス、spurious）が含まれる。したがって、センサーから得られるスペクトルデータの中から、スプリアスの影響を除いて、目的とするピークを分離することが要望される。

10

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明の一態様は、センサーにより得られた3次元のスペクトラムデータに含まれる特徴量を得ることを含む方法である。特徴量を得ることは、以下のステップを含む。

1. 3次元のスペクトラムデータから2次元のピーク配列を求めること。
2. 2次元のピーク配列に含まれるピーク動向からピークの派生要因を推定し、特徴量を求めること。

【0008】

20

ピークの派生要因を推定することは、さらに、以下のステップを含む。

- ・ピーク配列の中の第1の方向に並ぶ複数のピークに仮識別子を付けること。
- ・ピーク配列の中の第2の方向に並ぶ複数のピークを接続するワーキングファンクションを生成すること。
- ・第2の方向に並ぶ複数のピークを仮識別子に基づいてワーキングファンクションにより接続した値を、第1の方向に並ぶ複数のピークを入れ替えて求め、求められたワーキングファンクションの値が所定の範囲内であれば、そのワーキングファンクションにより接続されたピークの仮識別子を共通の識別子に変更すること。
- ・共通の識別子が付されたピークの動向からピークの派生要因を推定すること。

【図面の簡単な説明】

30

【0009】

【図1】化学物質分析システムを表すブロック図。

【図2】OLPの構成を示すブロック図。

【図3】FAIMS装置の測定データの例を示す図。

【図4】分析方法（分析処理）の概要を示すフローチャート。

【図5】ピークを解析する処理の概要を示すフローチャート。

【図6】コストファンクションを計算する処理を示すフローチャート。

【図7】（a）は補正前のPkテーブルを示し、（b）はカーブフィッティングした概要を示し、（c）補正後のPkテーブルを示し、（d）は補正後のピークでカーブフィッティングした概要を示す。

40

【発明を実施するための形態】

【0010】

以下では、イオン移動度センサーの1つであるFAIMSをセンサーとして備えた装置を例にさらに詳しく説明する。FAIMS（Field Asymmetric Ion Mobility Spectrometry）では、Vd電圧（Dispersion Voltage、電界電圧（Vd）、交流）とVc電圧（Compensation Voltage、補償電圧、直流）の2つの変量に応じて変化するイオン電流を検出することが可能である。検出されたイオン電流の波形（スペクトラムデータ、スペクトロスコピックデータ）SDは化学物質固有の波形が含まれるので、化学物質の特定を行うことが可能である。得られるデータSDは、イオン電流の値を含めると3次元のデータとなる。また、化学物質は、その特性に応じて、たとえばVd電圧を固定化した場合に、Vc電

50

圧を変えることにより、測定対象の化学物質のイオン移動度の特性によりイオン電流値はピークを形成し、それが複数個になることもありうる。

【0011】

F A I M S (F A I M S 装置、F A I M S センサー) で得られるデータ S D は、2 次元データをパラメータとしてピーク (波形) を含むイオン電流が含まれ、全体としては3 次元データとなる。さらに1 つの化学物質から得られるデータ S D でも、複数のピークが含まれる。このため、ガスクロマトグラフィーなどの他の分析装置と同様に、分析技術の習熟が必要であり、分析結果から単純に結論を出すことが難しい。

【0012】

また、F A I M S では、通常の大気が存在する環境の下で測定する場合が多く、予測しない他の化学物質が混在することもあり得る。この場合、混在する他の化学物質の影響で、目的とする化学物質が本来示すべき特性が得られず、測定結果を誤って判断することが起こりえる。他の化学物質の混在だけでなく、その他の環境条件、例えば、温度、湿度、気圧、流量等の影響も避けられない。さらに、さまざまな要因のノイズがあるので偽のピーク (スプリアル) も含まれる。

【0013】

以下においては、F A I M S から得られる2 次元データ S D、または多次元データ S D を、センサーから得られるスペクトラムデータの典型例として本発明を説明する。データ S D にはイオン電流の特性が含まれる。特性の1 つは、データ S D に含まれるピークであり、ある次元のパラメータの近隣のデータ間の相関からピークは特定され得る。それらのピークの中の特定のピークを派生させる共通の要因 (派生要因) の1 つは、化学物質の特定のグループであると想定できる。

【0014】

グループ化された化学物質の特性、具体的にはイオン移動度の測定値を検出するのに用いたセンサーに固有の特性があればその影響を補正し、さらに温度、湿度等のセンサーに依存しない環境条件等の影響も補正することにより、それらの影響を排除できる可能性があり、特定の化学物質本来の特性を見出し得る可能性がある。

【0015】

具体的には、ある特定の V d 電圧に対し、V c 電圧を変化させた場合に現れるイオン電流のピークに対し、近隣の V d 電圧の場合のピークとの相関を調べ、それらが同じ化学物質から派生しているのか否かを判定し、測定結果に表れるピークを、派生させる化学物質毎にグループ化することが可能である。近隣のイオン電流のピークの相関は、ピークの現れる場所、ピークの幅、ピーク値だけでなく、イオン化された物質の理論上の特性等を考慮して判断される。さらに、測定系に存在する物質のイオン化エネルギー値を参照して、測定された化学物質の特性 (測定値) から、測定に用いた F A I M S センサーの特性に依存する部分を補正することにより、より正確なイオン電流値を求める。

【0016】

さらに、F A I M S センサーの特性に依存しない、温度、湿度、圧力、流量、等の環境条件の影響も補正して、より正確なイオン電流値を算出する。これにより、対象の化学物質の特定 (同定) を、より高い精度で行うことができる。また、測定対象の化学物質の特定時に参照するリファレンスデータに対しても、測定対象と同じ環境条件に対する補償処理を施し、測定結果が信頼に足る場合には、その結果の一部、あるいは全部をリファレンスデータの一部あるいは全部と入れ替えることにより、リファレンスデータの更新処理を行う。

【0017】

図1 は、化学物質を分析および解析して結果を出力するシステムを表すブロック図である。システム1 は、典型的には、ノート型のパーソナルコンピュータ10を中心としたシステム1として実現される。パーソナルコンピュータ (P C) 10 は、C P U 11 と、適当なメモリ12と、ハードディスクなどのストレージ13と、ユーザインタフェースを提供するローカルな入出力インタフェース14と、例えば、無線 L A N 15、有線 L A N 1

10

20

30

40

50

6を介して下界（外部）の機器とデータ交換するための通信インタフェース（トランシーバ）17と、これらを接続するバスシステム18とを備えている。ローカル入出力インタフェース14には、キーボード21などの入力機器と、液晶ディスプレイ22などの画像出力機器と、スピーカ23などの音響出力機器と、マイクロホン24などの音響情報を取得するための機器が接続されている。システム1は、これらの入出力デバイスをふくんでいてもよく、入出力デバイスを接続するためのインタフェースが用意されているのもであってもよい。

【0018】

バス18には、さらに、センサー61から得られた測定データの解析機能を含むデバイス（臭覚プロセッサ、OLP、OLFACTION PROCESSOR）40が接続されている。OLP40は、1つの集積化されたデバイス（半導体チップ）または複数の集積化されたチップ（チップセット）として提供することができる。

【0019】

PC10は、さらにセンサーコントローラデバイス50を備えている。センサーコントローラデバイス50は、OLP40により制御され、OLP40に対して各種のデータを供給する機能を果たす。センサーコントローラデバイス50は、各種のセンサーと接続され、データを取得（サンプリング）するためのセンサーインタフェース51と、いくつかのセンサーの測定条件を変えることができるセンサードライバ・コントローラユニット（SDCU）52とを備えている。

【0020】

典型的なセンサー61は、空気中の物質（化学物質）を検出するセンサーであり、非対称電界イオン移動度スペクトロメータ（FAIMS）または微分型電気移動度スペクトロメータ（DMS）が知られている。この種のスペクトロメータ（センサー、以降においては総称してDMS）は、高圧－低圧に変化する非対称電界に、イオン化した流体サンプル（例、ガス、液体又は蒸気）を入力し、イオンの電界移動度に基づいてそれらをフィルタリングした結果を出力する。DMS61の測定条件は、SDCU52により制御される。

【0021】

DMS61の一例は、国際公開WO2006/013396または国際公開WO2006/013890に記載されたイオン移動度分析装置である。これらはモノリシックな、またはマイクロマシン型のコンパクトな質量分析装置であり、十分に携帯できるものである。センサーインタフェース51には、さらに、温度、湿度、などの環境情報（環境条件）を測定するための複数のセンサー群（環境情報センサー群）70が接続されている。環境条件測定用のセンサー群70は、温度センサー71、湿度センサー72、圧力センサー73、エアフローセンサー74を含む。さらに、センサーインタフェース51は、エアポンプ75を制御する機能を含む。エアポンプ75は、必須の構成ではない。エアポンプ75は、アプリケーションの要求、外界条件などにより上記の環境条件測定用のセンサー群70および／または臭覚センサーであるDMS61に強制的に外気を供給することを可能としている。62は化学物質を含むガスを臭覚センサーDMS61へ送り込む口であり、下界の状況により単独で、あるいはエアポンプ75の助けを借りて化学物質を臭覚センサー61へ送り込む。

【0022】

OLP40を含むシステムのもっとも小さい単位は、デバイス（集積回路チップ）40そのものである。OLP40を含むシステムは、PC10であっても良く、さらにはOLP40を搭載した水質検査装置、微小な麻薬物質の検出が可能な麻薬検出装置や、患者の呼気から疾患の罹患状態を調べる健康モニタ装置などであっても良い。

【0023】

OLP40は、解析機能を備えており、外気あるいは周辺の空気のおい（匂い、芳香、臭い）の要因となる化学物質をリアルタイムで検出（解析）することができるデバイスあるいは装置である。おいの情報は、健康および安全にかかわる多くのアプリケーションで重要な役割を果たす。OLP40は、おいの情報を出力する機能（臭覚機能）をポ

10

20

30

40

50

ータブルな家電装置やP C 1 0に搭載することを可能としている。

【0024】

にのいの要因は、周囲の空気に含まれる化合物、ガスなどの化学物質である。以下において、化学物質とは、化合物、分子および元素を含み、成分あるいは組成物に限らず、生成物も含む。それらにのいの要因は、水晶センサー（QCM、Quartz Crystal Microbalance）、電気化学的なセンサー、SAW（Surface Acoustic Wave）デバイス、光センサー、ガスクロマトグラフィーおよび質量分析装置などのセンサーにより検出できる。これらのセンサーは、化学物質の存在により変化（変動）する量（物理量）を検出できるものである。これらのセンサーの多くは、かさばっていて複雑であり、日常で使用されるアプリケーションに使用することは容易ではない。さらに、これらのセンサーの幾つかは、少量のガスまたはその他の特定の化学物質にのみ鋭敏であったり、感度が温度と湿度に応じて変わるなどの制限もある。

10

【0025】

近年、上述したようにコンパクトで携帯が可能で、にのいの要因を検出できる分析装置が検討されている。イオン移動度（Ion Mobility）および光学（赤外線、NMR）を使用した分析デバイスは、単一チップに纏められた小さなセンサーを提供可能であり、家庭における健康および安全管理のような種々様々のアプリケーションに使用できる可能性がある。

【0026】

これらの分析装置（センサー）は、特定の成分（化学物質）に敏感なセンサーと比較すると汎用性が高く、分析可能な範囲内では、ほとんどすべての成分の有無および強度（濃度）を同じ程度の精度で検出できる。しかしながら、分析装置は化学物質の存在を示唆する大量のデータを出力する。そのため、センサーの出力データをP C 1 0のC P U 1 1で処理しようとするするとC P U 1 1の処理能力が過大でないと、臭覚を実現しようとするために他のアプリケーションを実現できなくなったり、処理能力が著しく制限されたりする可能性がある。O L P 4 0は、そのような不便さに対しても解を提供できるものである。すなわち、図1に示したようなP C 1 0をベースとするシステム1に限らず、ワンチップ化されたO L P 4 0を搭載することにより、家電や携帯電話などの極めてハンディーな電子端末、ホームセキュリティ用の機器などに、経済的に臭覚機能を搭載することが可能となる。また、センサーはイオン移動度センサーに限定されず、上述したように、スペクトラムデータを出力するタイプであればよい。

20

30

【0027】

上述したフィールド非対称質量分析計（F A I M S、Field Asymmetric waveform Ion Mobility Spectrometry、またはD I M S、Differential Ion Mobility Spectrometry）のようなM E M Sセンサーを、O L P 4 0とともに用いることにより、高価なC P UまたはD S Pが不要で、大きな機械的な部品も不要で、さらに、複雑なコントロール回路類も解析回路類も不要な、低コストの、にのいを記録、認識できるシステム1を提供できる。

【0028】

図2に、O L P 4 0の機能をブロック図により示している。O L P 4 0は、センサーコントローラデバイス50を介してセンサー61からのデータS D、および、温度湿度などの環境情報を含む周辺情報P Iとを受信する入力インタフェース41と、センサーコントローラデバイス50を介してセンサー61の測定条件を制御するコンディショナー42と、得られたデータおよび情報を解析（分析）して特徴量を見出して測定対象（コンテンツ）を提供する検索ユニット（解析ユニット）40sとを含む。周辺情報P Iには、センサーコントローラデバイス50を介して得られた情報の他に、C P U 1 1などから得られるアプリケーション情報、マイクロホン24から得られる音響情報、不図示のカメラから得られる画像情報、G P Sから得られる位置情報などを含めることが可能である。この検索ユニット40sが提供するコンテンツは、化学物質情報をコンテキスト情報としてそれを含むコンテンツ、コンテキスト情報に関連するコンテンツ、コンテキスト情報から想定されるコンテンツなど様々である。

40

50

【0029】

化学物質に関するコンテンツ（情報）には、化学物質そのものの名前、性質などが含まれる。化学物質に関連するコンテンツ（情報）には化学物質を含む製品の名前、性質、属性などが含まれる。化学物質から想定されるコンテンツ（情報）には、化学物質が直接または間接的に要因となる事象、化学物質が直接または間接的な結果となる事象などが含まれる。たとえば、爆弾、テロ、火災、その他の災害または脅威となる現象、様々な病気、障害、育成状況、天候、などの様々な生物学的、物理学的、化学的、および社会的な現象が含まれる。検索ユニット40sは、これらのコンテキスト情報を含むまたは関連するコンテンツをデータベースで持っていてよく、PC10の機能を用いてネットワーク上に供給されているコンテンツから選択してもよい。

10

【0030】

OLP40の検索ユニット40sは、入力インタフェース41を介して得られたスペクトラムデータASDおよび周辺情報PIを処理して特徴点（特徴量）を抽出する分析ユニット43と、複数のコンテキスト情報Cx、および複数のコンテキスト情報Cxに対しそれぞれランク付けされた複数のストック済みのデータ（スペクトラムデータ）SSD（本例においてはそれぞれのデータの特徴量）を含むデータベース44を有する。分析ユニット43は、ピーク配列を求めるユニット43aと、ピーク動向から派生要因からを求めるユニット43bと、派生要因から特徴量を得るユニット43cとを含む。派生要因を求めるユニット43bは、仮識別子（仮PkId）をピークに付与してワーキングファンクションを計算して最適なピーク動向を得るユニット43dと、ピーク動向から派生要因を得るユニット43eとを含む。

20

【0031】

データベース44は、さらに、コンテキスト情報Cxに対しそれぞれランク付けされた周辺情報PIを含んでいてもよい。周辺情報PIは、温度、湿度などの周辺情報PIに含まれる環境条件の一部の情報であってもよく、全てを含むものであってもよい。

【0032】

データベース44の一部あるいは全部は、ストレージ13に格納されていてもよい。OLP40は、さらに、得られたスペクトラムデータASDに対するストック済みのスペクトラムデータSSDのスコアScを算出する照合ユニット45と、スコアScおよびランクを含む総合評価Rsの高い順番で表示されるように、コンテキスト情報Cxを含む、または関連付されたコンテンツCCを出力する出力ユニット46とを有する。出力ユニット46は、出力ユニット46はコンテンツCCそのものではなく、コンテンツCCのタイトルを上記により定められた順番で、CPU11を介してディスプレイ22に表示する。ユーザ（クライアント）はディスプレイ22に表示されたタイトルTdから所望のものを選択して、コンテンツCCをディスプレイ22に表示する機能（機能ユニット）46aを含む。この例において、ディスプレイ22に表示されるタイトルTdが、評価の高い順番にコンテンツCCを出力するためのデータに対応する。

30

【0033】

すなわち、出力ユニット46は、照合ユニット45において算出されたスコアが高いストック済みのスペクトラムデータSSD（以降においてはゴールドデータとして参照される）に対するランク付けの高いコンテキスト情報Cxに関連付されたコンテンツCCが、算出されたスコアおよびランクを含む総合評価Rsの高い順番でクライアントに選択されるようにする出力データTdを出力する第1のユニット（機能ユニット）46aを含む。さらに、出力ユニット46は、周辺情報PIに含まれる環境条件に対するランクを含む総合評価Rsの高い順番で、コンテキスト情報Cxに関連付されたコンテンツCCがクライアントに選択されるようにタイトルTdが並んで表示されるデータ（出力データ）Tdを生成する第2のユニット（機能ユニット）46bを含んでいてもよい。

40

【0034】

OLP40は、出力ユニット46により出力されたコンテンツCCの中（コンテンツCCのタイトルTdの中）から選択されたコンテンツCCの情報を取得するモニタリング

50

ユニット 47 と、得られたスペクトラムデータ A S D を、選択されたコンテンツ C C に含まれるコンテキスト情報 C x に対してランク付けてデータベース 44 に加える更新ユニット 48 とを含む。

【0035】

データベース 44 は、さらに、ストック済みのスペクトラムデータ S S D の特徴量 C A v を含む。以下においては、特徴量 C A v がゴールデンデータとして参照されることがある。照合ユニット 45 は、得られたスペクトラムデータ A S D の特徴量およびストック済みのスペクトラムデータ S S D に含まれる特徴量 C A v に基づきスコア S c を算出する機能（機能ユニット）45 a を含む。この算出する機能 45 a は、得られたスペクトラムデータ A S D に含まれる特徴量のランク付けを行い、ランクの高い特徴量からスコア S c を算出する水平ランキング機能を含む。

10

【0036】

照合ユニット 45 は、得られたスペクトラムデータ A S D の特徴量およびストック済みのスペクトラムデータ S S D の特徴量の少なくともいずれかを周辺情報 P I により補正する機能（機能ユニット）45 b と、ストック済みのスペクトラムデータ S S D の中から照合対象となるスペクトラムデータを周辺情報 P I に基づき選択する機能（機能ユニット）45 c とを含む。

【0037】

図 3 に、化学物質の典型的な F A I M S の出力データ（測定データ）A S D の例を示す。データ A S D は、V d 電圧をステップ状に変化させながら、V c 電圧を変えた場合のイオン電流の値として得られるスペクトラムデータ（スペクトロスコピックデータ）である。この図 3 では、最初の固定化された V d 電圧に対する、V c 電圧とイオン電流が、3次元表示のもっとも奥のラインに表されている。その後、V d 電圧を少しずつ増加させながら、同様に測定していき、三次元表示の奥から徐々に前の方へ出力が得られている。この例では、特定の V d 電圧に対して、少なくとも 3 個のピークが表れていることが分かる。

20

【0038】

F A I M S センサー 61 では、V d 電圧（Dispersion Voltage、M H z 程度の周波数、たとえば、1 から 20 M H z 程度の周波数で、適当なデューティサイクル（たとえば 30 % 程度）のサイクリックに変化する交流またはパルスなどの交流電圧値）と、V c 電圧（Compensation Voltage、直流電圧値）の 2 つの変量に応じて変化するイオン電流を検出することにより、化学物質の特定を行うことが可能である。たとえば、一定の電界電圧 V d に対して補償電圧 V c を変化させることによりイオン電流の 2 次元のスペクトルが得られる。さらに、電界電圧 V d を変化させることにより 3 次元のスペクトルが得られる。電界電圧 V d は、たとえば、約 1, 000 V / c m から約 30, 000 V / c m までの範囲、あるいはそれ以上の範囲を変化させる。一定の補償電圧 V c に対して電界電圧 V d を変化させて 2 次元のデータを取得し、さらに補償電圧 V c を変化させて 3 次元のデータを取得してもよい。いずれの場合もイオン電流を得るためのパラメータ（電界電圧 V d および補償電圧 V c）は 2 次元のスペクトルデータ S D となる。

30

【0039】

化学物質は、その特性に応じて、たとえば電界電圧 V d を固定化した場合に、複数のピークを形成することがある。たとえば化学物質（Dimethyl-Sulfoxide、 $(CH_3)_2SO$ ）の場合、特定の V d 電圧に対し、V c 電圧を変化させたとき、化学物質のイオン移動度の特性により、イオン電流に 3 個のピークが得られる。

40

【0040】

図 4 は、プロセッサ（O L P）40 の分析ユニット 43 で行う分析処理を中心にフローチャートにより示している。これらの処理はコンピュータ上で稼働するプログラム（プログラム製品）として提供することが可能であり、適当な記録媒体に記録して提供することができ、インターネットなどのコンピュータネットワークを介して提供することも可能である。また、プロセッサ 40 で全てを行う代わりに、ネットワークを介して、複数の端末やサーバーにより、その処理を分散・分担させて解析することも可能である。

50

【0041】

ステップ100で、DMS (F A I M S) 62の測定データADSを入手する。測定データSDは、プラスイオンおよびマイナスイオンのそれぞれの3次元のスペクトラムデータであるが、以降ではプラスイオンのデータをもとに説明する。ステップ110で測定データSDからピークを分離して2次元のピークテーブル (Pkテーブル) を生成する。Pkテーブルには、ピークポジション、ピーク高さ、ピーク幅などのこのピークを特定するための情報を含む。ピーク分離には、ガウシアンフィッティング、Bスプラインフィッティングなどの手法を用いることができる。

【0042】

さらに具体的には、ベースライン特性を直線または多項式で近似し、ガウシアン特性、ローレンツ特性などを用いてカーブフィッティングし、ピークを見つける。イオン電流の測定値に対して平滑化フィルタ処理を行い、検出／特定された各々のピークの高いピークから順次、ベースラインの補正処理を行い、さらにガウシアン特性、スプライン近似などの方法によりピークフィッティング処理を行う。これらの処理により、複数のピークが重なり合った場合にも、ピークを分離処理することが可能となる。複数のピークに対して、ユニークな番号を付し、またそのピークの特性 (ピーク位置、ピーク値、ピーク幅などの特性) を求める。

10

【0043】

ステップ120において、Pkテーブルにリストアップされたピークの動向を判断して各ピークの派生要因を推定し、ピークの高さなどを基に特徴量を抽出する。ステップ130において抽出された特徴量からF A I M S 61の測定対象を特定し、コンテンツなどの情報により提供する。

20

【0044】

図5に特徴量を抽出する処理をさらに詳しく示している。ステップ201でPkテーブルを読み込む。Pkテーブルは、Vc電圧 (補償電圧) を第1の方向、Vd電圧 (電界電圧) を第2の方向とした2次元のテーブルであり、測定したVd電圧毎に、ピークポジション (ピークのVc電圧) と、ピーク高さ、ピーク幅、その他のピーク特性値とが保持されている。

【0045】

ステップ202で、Pkテーブルの各Vdのピークに仮識別子 (識別情報、Pk Id) を付与する。仮Pk Idを付与する方法は、Vc値の順番であってもよく、最も確からしい順番であってもよく、ランダムであってもよい。

30

【0046】

ステップ203で、コストファンクションCFを初期化する。CFの一例は、ピークポジション、ピーク高さなどを含めてフィッティングする関数であり、多項式を用いた最小二乗法によりフィッティングしたときの誤差を求める関数であってよい。最小二乗法の代わりに、バイウエイトなどのロバスタ的なフィッティング手法を用いてもよい。

【0047】

ステップ204において、仮Pk Idが同じピークをVd方向にCFを用いてフィッティングし、その値を求める。さらに、Vc方向の仮Pk Idが異なるピークを入れ替えてCFの値を求め、CFの値が所定の範囲、たとえば、最も小さくなるように仮Pk Idを更新し、CFにより接続された仮Pk Idを共通のPk Idに更新する。

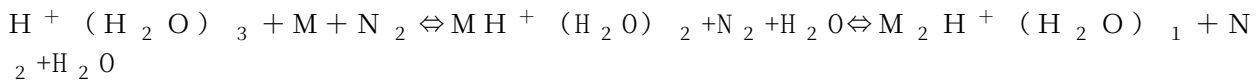
40

【0048】

ステップ204で、上記のCFの値を最小にすることにより得られたピーク動向をルールと照合する。ルールの一例は、イオン化する段階で現れる水などのリアクタントイオン (Reactant Ion) とイオン化された対象の試料 (Product Ion) のピーク特性に関する理論上のルールである。これらの理論上のルールに関しては、例えば「G.A.Eiceman, Z.Karpas著、Ion Mobility Spectrometry, CRC出版」や、「Alexandre A, Shvartsburg著、Differential Ion Mobility Spectrometry, CRC出版」などに詳述されており、ここではその詳細は述べないが、以下に簡単に説明する。通常の空気中には、窒素 (N_2)、酸素 (O

50

2)と水(H₂O)が含まれているが、そこへ微小な化学物質(仮にMとする)が混入し、さらにイオン化された場合、その組成は一般に以下のように変化する。



【0049】

上の式は、イオン化された分子の変遷を表しているが、その成分量まではあらわしていない。最初の項は、リアクタントイオン、次の項はモノマー(Monomer)、最後の項はディマー(Dimer)を表している。最初に、イオンは水分と結び付きやすく、水の分子3個と結合して水イオンとなる。この状態で電界強度が高くなると、水の分子1個が、化学物質Mに置き換わり、モノマーと呼ばれる、Mの分子1個と、水の分子2個からなるイオン

10

【0050】

得られたピーク動向がルールと照合して不合理がなければステップ207において得られた仮PkIdを固定し、ステップ208においてピーク動向を精査し、ピークの派生要因、典型的には化学成分を推定する。ピークの派生要因が推定されれば、ステップ209において、ピーク高さ、幅などから分析対象のスペクトルデータSDの特徴量を決定し、出力する。

【0051】

一方、得られたピーク動向が不合理な場合は、ステップ206において、ステップ204においてスプリアスとして破棄されたピークの重み係数を変え、スプリアスとして破棄されにくい状況に変更して、ステップ204を繰り返す。

20

【0052】

図6に、仮PkIdを用いてCFを計算するステップ204をさらに詳しく示している。また、図7にPkテーブル(Pkポジションテーブル)80の一例と、それに含まれる仮PkIdをCFにより接続した例を示している。

【0053】

ステップ210において、仮PkIdを用いて各PkIdで接続されたCFを計算し、そのCF値を保存する。ステップ211で、第2の方向であるVd値を、測定されたステップ、スペクトルデータSDに含まれるステップ、または分析のために設定されたステップでアップまたはダウンする。ステップ212で、全てのVd値のピーク、すなわち、Pkテーブル80に含まれるすべてのピークに対して解析が終了するとこのルーチンは終了する。

30

【0054】

ステップ213で、Vd値の仮PkIdを交換(スワップ)して、全てケースのCFを計算する。たとえば、Pkテーブル80に含まれるピークPであって、前後のVdに共通する仮PkIdがないピークPについても、他のピークPと入れ替えてCFを計算する。

【0055】

ステップ214で、計算したCF値の中に、記憶しているCF値より低いものがなければ、ステップ211に戻ってVd値を1ステップアップあるいはダウンして上記の処理を繰り返す。ステップ214において、CF値に低いものがあれば、ステップ215において、記憶されているCF値を置き換えて(更新し)、ステップ216において、低いCF値が得られたCFにより接続されている仮PkIdのピークに同じ仮PkIdを割り当てる。また、ステップ217において、前後のVdに含まれるピークPに接続されない仮PkIdのピークをスプリアスとして記憶する。

40

【0056】

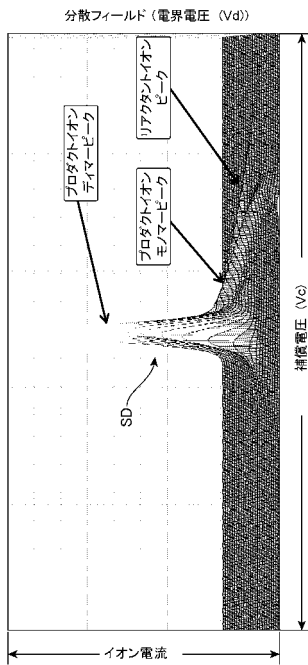
以上のような処理を行うことにより、図7(c)に示すように、Pkテーブル80に含まれるピークからスプリアスピークPsを発見して排除できる。また、PkテーブルのPkIdをCFの低い値、たとえば、ピークフィッティングしたときの最小二乗誤差が最小となるように自動的に変更できる。

50

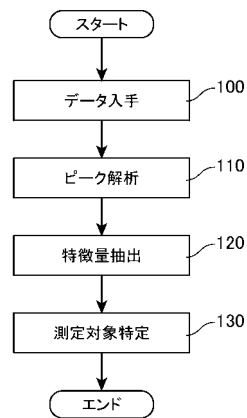
1 システム、 10 PC、 40 OLP

[illegible]

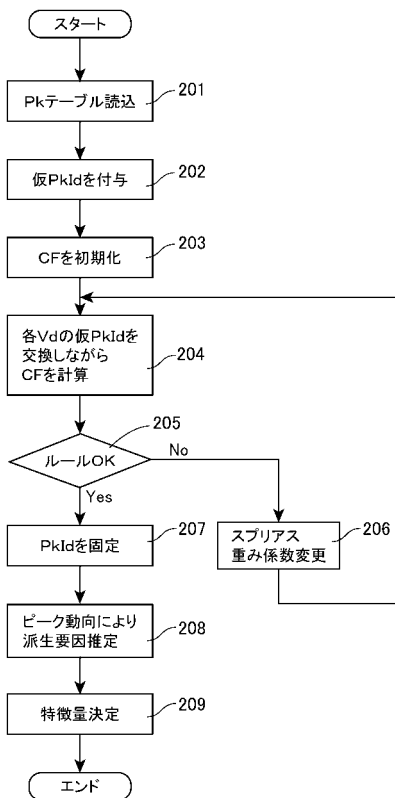
【図 3】



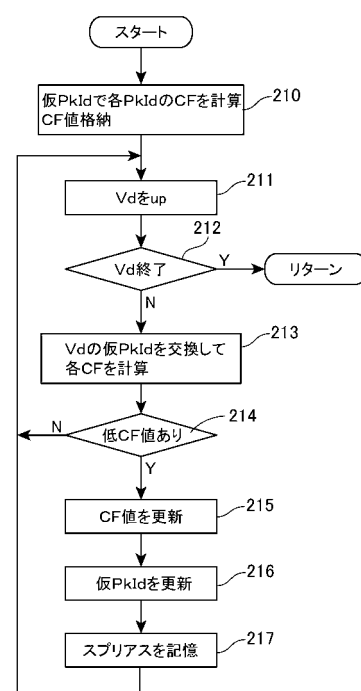
【図 4】



【図 5】



【図 6】



【図 7】

