

(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
2025年1月16日(16.01.2025)



(10) 国際公開番号
WO 2025/013403 A1

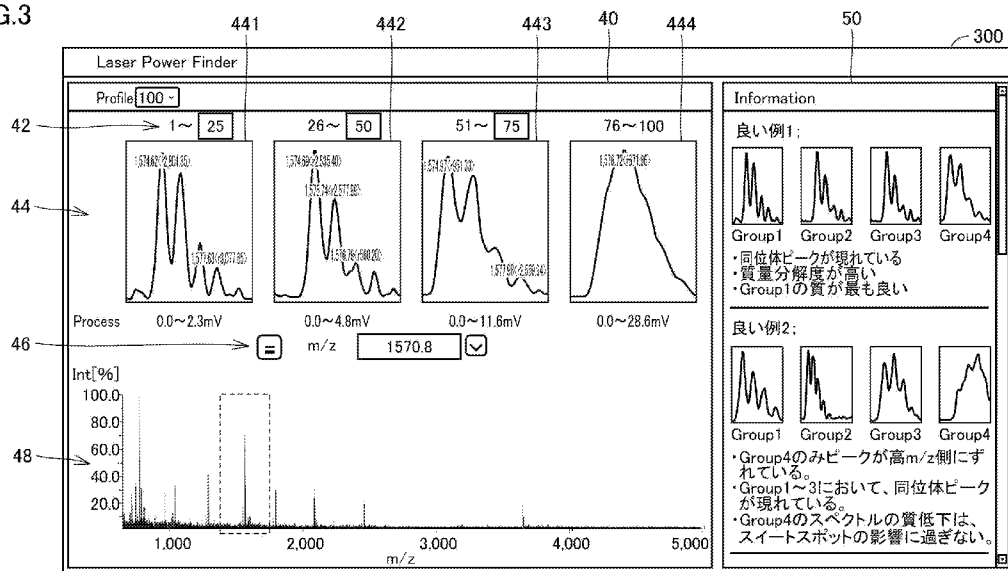
- (51) 国際特許分類:
G01N 27/62 (2021.01) H01J 49/16 (2006.01)
H01J 49/00 (2006.01) H01J 49/42 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2024/017902
- (22) 国際出願日: 2024年5月15日(15.05.2024)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2023-112014 2023年7月7日(07.07.2023) JP
- (71) 出願人: 株式会社島津製作所 (SHIMADZU CORPORATION) [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: 三井 一高 (MITSUI, Kazutaka); 〒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).
志知 秀治 (SHICHI, Hideharu); 〒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: 弁理士法人深見特許事務所 (FUKAMI PATENT OFFICE, P.C.); 〒5300005 大阪府大阪市北区中之島三丁目2番4号 中之島フェスティバルタワー・ウエスト 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC,

(54) Title: PROCESSING DEVICE AND PROCESSING METHOD

(54) 発明の名称: 処理装置および処理方法

【図3】

FIG.3



(57) Abstract: This processing device includes: a memory that stores a plurality of pre-integration mass spectra that a mass spectrometer has acquired by measuring, multiple times, samples prepared under identical conditions in one or a plurality of wells; a processor that processes the plurality of pre-integration mass spectra stored in the memory; and a display device. The processor: in accordance with the order of gross ion quantities in which the intensities in a predetermined range of mass-to-charge ratios have been integrated, divides the multiple pre-integration mass spectra into a plurality of

EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR,
HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG,
KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU,
LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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))

groups; for each of the plurality of groups, integrates the pre-integration mass spectra contained in that group to find a partial integrated mass spectrum; and displays on the display device designated information corresponding to the partial integrated mass spectra found for each group.

- (57) 要約: 処理装置は、質量分析装置が1つもしくは複数のウェルに同一条件で調製した試料を複数回測定して取得した複数の積算前マススペクトルを格納するメモリと、メモリに格納された複数の積算前マススペクトルを処理するプロセッサと、表示装置とを含む。プロセッサは、所定の質量電荷比範囲の強度を積算した総イオン量の順番に従って、複数の積算前マススペクトルを複数のグループに分割し、複数のグループの各々について、当該グループに含まれる積算前マススペクトルを積算して部分積算マススペクトルを求め、グループごとに求めた部分積算マススペクトルに応じた特定情報を表示装置に表示する。

明 細 書

発明の名称： 処理装置および処理方法

技術分野

[0001] 本開示は、レーザ脱離イオン化法によって試料をイオン化するイオン化部とイオン化した試料をイオントラップ質量分析により分析する分析部とを備える質量分析装置によって取得されたマスペクトルを処理する処理装置および当該マスペクトルの処理方法に関する。

背景技術

[0002] 特開２００８－０７０１２２号公報（特許文献１）に開示されているように、MALDI（Matrix Assisted Laser Desorption/Ionization）法などのレーザ脱離イオン化法によって試料をイオン化させる方法が知られている。

[0003] 特開２０１４－２２４７３２号公報（特許文献２）には、サンプルに対するレーザ光の照射位置を変更しつつ、各照射位置で発生したイオンを検出し、その検出したイオンの量に基づいて測定の際にレーザ光を照射するのに適した位置を選択する探索機能を有するMALDI質量分析装置が開示されている。

[0004] 特開２０２０－０９１１９７号公報（特許文献３）には、MALDI法などのレーザ脱離イオン化法によって試料をイオン化させ、電場により得られたイオンを捕捉するイオントラップを用いたイオントラップ質量分析装置が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献１：特開２００８－０７０１２２号公報

特許文献２：特開２０１４－２２４７３２号公報

特許文献３：特開２０２０－０９１１９７号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] レーザ脱離イオン化法によってイオン化した試料をイオントラップ質量分析により分析する質量分析装置においては、質のよいデータを取るためにレーザーパワーの調整が必要である。通常、ユーザは、出力されたマススペクトルに基づいてレーザーパワーの調整を行うが、経験値の必要な作業であり、時間を要する。

[0007] また、レーザー脱離イオン化法によりイオン化する場合、特許文献2に開示されているようにサンプル内の場所に応じてイオン化効率が異なり発生するイオンの量も変わるため、レーザーの照射位置によっても得られるマススペクトルの質が変わる。たとえば、サンプル内のイオン化効率の高いスイートスポットと呼ばれる位置にレーザーが照射された場合、イオントラップ質量分析においては、イオントラップに捕捉されたイオンによる空間電荷の影響によりマススペクトルの質が下がる。このように、マススペクトルの質の低下を招く要因がレーザーパワー以外にも複数あるため、その要因を特定することが難しい。結果、ユーザにとって質のよいマススペクトルを得るために最適なレーザーパワーを選択することが難しい。

[0008] 本開示は、かかる問題を鑑みてなされ、その目的は、レーザー脱離イオン化法によってイオン化した試料をイオントラップ質量分析により分析する質量分析装置において、レーザーパワーを調整する工程を容易にすることである。

課題を解決するための手段

[0009] 本開示の処理装置は、レーザー脱離イオン化法によって試料をイオン化するイオン化部とイオン化した試料をイオントラップ質量分析により分析する分析部とを備える質量分析装置によって取得されたマススペクトルを処理する装置である。処理装置は、質量分析装置が1つもしくは複数のウェルに同一条件で調製した試料を複数回測定して取得した複数の積算前マススペクトルを格納するメモリと、メモリに格納された複数の積算前マススペクトルを処理するプロセッサと、表示装置とを含む。プロセッサは、所定の質量電荷比範囲の強度を積算した総イオン量の順番に従って、複数の積算前マススペク

トルを複数のグループに分割し、複数のグループの各々について、当該グループに含まれる積算前マススペクトルを積算して部分積算マススペクトルを求め、グループごとに求めた部分積算マススペクトルに応じた特定情報を表示装置に表示する。

[0010] 本開示の処理方法は、レーザ脱離イオン化法によって試料をイオン化するイオン化部とイオン化した試料をイオントラップ質量分析により分析する分析部とを備える質量分析装置によって取得されたマススペクトルを処理する方法である。処理方法は、質量分析装置が1つもしくは複数のウェルに同一条件で調製した試料を複数回測定して得られた複数の積算前マススペクトルについて、所定の質量電荷比範囲の強度を積算した総イオン量の順番に従って、複数の積算前マススペクトルを複数のグループに分割するステップと、複数のグループの各々について、当該グループに含まれる積算前マススペクトルを積算して部分積算マススペクトルを求めるステップと、グループごとに求めた部分積算マススペクトルに応じた特定情報を表示装置に表示するステップとを含む。

発明の効果

[0011] 本開示によれば、イオン化部におけるレーザパワーを評価するための更なる情報として特定情報が表示されることで、ユーザは、レーザパワーの妥当性を容易に評価でき、レーザパワーを調整する工程を容易にできる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]質量分析システムの構成を示す模式図である。

[図2]プロセッサが実行する処理を示すフローチャートである。

[図3]表示装置に表示される画面の一例を示す図である。

[図4]測定結果画面の一例を示す図である。

[図5]変形例にかかるグループの区切りを設定するためのGUIを示す図である。

[図6]参考画面の一例を示す図である。

[図7]変形例にかかる測定結果画面の一例を示す図である。

[図8]プロセッサが実行する変形例にかかる処理を示すフローチャートである。

[図9]図8中のS107の処理を示すフローチャートである。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、本開示の実施の形態について、図面を参照しながら詳細に説明する。なお、図中同一または相当部分には同一符号を付してその説明は繰り返さない。

[0014] [質量分析システムの構成]

図1は、質量分析システムの構成を示す模式図である。質量分析システム100は、質量分析装置10および処理装置30を含む。本実施の形態において、質量分析装置10は、マトリックス支援レーザー脱離イオン化デジタルイオントラップ質量分析装置(MALDI-DIT-MS)である。なお、質量分析装置10は、レーザー脱離イオン化法によって試料をイオン化し、生成したイオンをイオントラップ質量分析により分析する質量分析装置であって、イオントラップにより捕捉したイオンを質量電荷比に応じてイオントラップから排出して質量分離するものであればよく、MALDI-DIT-MSに限定されない。

[0015] 質量分析装置10は、イオン源1、イオントラップ2、レーザー駆動部3、イオントラップ電源部4、イオン検出器5、出力部6、および制御部7を含む。本実施の形態では、イオン源1はMALDIイオン源である。制御部7は、レーザー駆動部3およびイオントラップ電源部4を制御する。

[0016] イオン源1は、サンプルプレート11、レーザー照射部13および引き出し電極14を含む。サンプルプレート11上には、複数のウェルが配列されており、複数のウェルのうち少なくとも一のウェル上にマトリックスと混合された試料12が用意される。制御部7は、レーザー駆動部3を制御する。レーザー駆動部3は、制御部7からの制御指令に従ってレーザー照射部13を駆動する。それにより、レーザー照射部13は、パルス状のレーザー光をサンプルプレート11上の試料12に照射する。その結果、試料12に含まれる各種成分

がイオン化される。生成されたイオンは、サンプルプレート 11 と引き出し電極 14 との間に形成されたイオン引き出し用の電場により引き出される。

[0017] 以上のように、イオン源 1 は、レーザ脱離イオン化法によって試料をイオン化し、本開示におけるイオン化部に相当する。

[0018] 本実施の形態では、イオントラップ 2 は、三次元四重極型イオントラップである。なお、イオントラップ 2 は、三次元四重極型イオントラップに限られず、他の四重極型イオントラップまたはリニア型イオントラップであってもよい。イオントラップ 2 は、リング電極 21 および一対のエンドキャップ電極 22, 24 を含む。一対のエンドキャップ電極 22, 24 は、リング電極 21 を挟むように互いに対向して設けられている。エンドキャップ電極 22 の略中央にイオン導入口 23 が設けられている。エンドキャップ電極 24 の略中央にイオン排出口 25 が設けられている。イオン源 1 から引き出されたイオンは、イオン導入口 23 を通してイオントラップ 2 内に導入される。

[0019] イオントラップ電源部 4 は、リング電極 21 に矩形波電圧を捕捉電圧として印加する。それにより、イオンを振動させながらイオントラップ 2 内に捕捉する捕捉電場が形成される。矩形波電圧がリング電極 21 に印加された状態で、イオントラップ電源部 4 により所定周波数の高周波信号がエンドキャップ電極 22, 24 に印加される。それにより、特定の質量電荷比を有するイオンが共鳴励起（励振）される。共鳴励起されたイオンは、イオン排出口 25 から排出される。

[0020] 制御部 7 は、リング電極 21 に印加される捕捉電圧の周波数およびエンドキャップ電極 22, 24 に印加される補助電圧の周波数を変化させる。それにより、イオン排出口 25 から排出されるイオンの質量電荷比が順次変化する。

[0021] イオン検出器 5 には、イオン排出口 25 から排出されたイオンが導入される。イオン検出器 5 は、例えば、コンバージョンダイノードおよび二次電子増倍管を含み、検出したイオン量に対応する電荷を検出信号として出力する。イオン検出器 5 から出力される検出信号は出力部 6 に与えられる。

- [0022] 以上のように、イオン源 1 においてイオン化した試料は、イオントラップ 2 により補足され、補足されたイオンは質量電荷比に応じてイオントラップ 2 から排出されて、順次イオン検出器 5 により検出される。すなわち、イオントラップ 2 およびイオン検出器 5 は、イオン化した試料をイオントラップ 質量分析により分析する本開示における分析部に相当する。
- [0023] 出力部 6 は、検出信号をデジタルデータに変換することによりマススペクトルを生成する。出力部 6 は、生成したマススペクトルを制御部 7 へ送る。なお、以下では、1 回の測定で得られたマススペクトルを「積算前マススペクトル」と称する。
- [0024] 処理装置 30 は、入出力インタフェース (I/F) 31、プロセッサ 32、メモリ 34、入力装置 36 および表示装置 38 により構成され、例えばパーソナルコンピュータである。入出力 I/F 31、プロセッサ 32、メモリ 34、入力装置 36 および表示装置 38 はバス 39 に接続されている。
- [0025] 処理装置 30 は、質量分析装置 10 の制御部 7 から測定により得られた積算前マススペクトルを受け取る。また、測定条件の入力および測定開始指示などを受け付けて、制御部 7 へ各種指令を送る。
- [0026] 入出力 I/F 31 は、質量分析装置 10 の制御部 7 に接続されており、測定により得られた積算前マススペクトルを制御部 7 から受信するとともに、入力装置 36 を介して受け付けた各種情報を制御部 7 へ送信する。
- [0027] メモリ 34 は、ROM (Read Only Memory)、RAM (Random Access Memory) および HDD (Hard Disk Drive) を含む。ROM は、プロセッサ 32 にて実行されるプログラムを格納する。RAM は、プロセッサ 32 におけるプログラムの実行により生成されるデータ、および入出力 I/F を経由して入力されたデータを一時的に格納する。RAM は、作業領域として利用される一時的なデータメモリとして機能できる。HDD は、不揮発性の記憶装置である。また、HDD に代えて、フラッシュメモリなどの半導体記憶装置を採用してもよい。
- [0028] また、ROM に格納されているプログラムは、記憶媒体に格納されて、プ

プログラムプロダクトとして流通されてもよい。または、プログラムは、情報提供事業者によって、いわゆるインターネットなどによりダウンロード可能なプログラムプロダクトとして提供されてもよい。

[0029] 記憶媒体は、DVD-ROM (Digital Versatile Disk Read Only Memory)、CD-ROM (compact disc read-only memory)、FD (Flexible Disk)、ハードディスクに限られず、磁気テープ、カセットテープ、光ディスク (MO (Magnetic Optical Disc) / MD (Mini Disc) / DVD (Digital Versatile Disc))、光カード、マスクROM、EPROM (Electrically Programmable Read-Only Memory)、EEPROM (Electrically Erasable Programmable Read-Only Memory)、フラッシュROMなどの半導体メモリなどの固定的にプログラムを担持する媒体としてもよい。また、記録媒体は、プログラムなどをコンピュータが読取可能な非一時的な媒体である。

[0030] メモリ34には、質量分析装置10により得られた積算前マススペクトルおよび当該積算前マススペクトルを取得した際の測定条件が格納される。また、メモリ34には、マススペクトルをユーザが解釈するための参考情報が予め格納されている。

[0031] 入力装置36は、キーボードおよびポインティングデバイス等を含み、種々のデータ等の入力および各種操作のために用いられる。たとえば、入力装置36は、レーザ照射部13から照射されるレーザ光の強度など測定条件、マススペクトルの処理条件などの入力を受け付ける。

[0032] 表示装置38は、液晶ディスプレイまたは有機エレクトロルミネッセンスディスプレイ等を含み、マススペクトル、種々の情報および画像を表示する。入力装置36および表示装置38は、タッチパネルディスプレイにより構成されてもよい。

[0033] 以上のように、質量分析装置10は、イオン源1でイオンを生成し、生成したイオンをイオントラップ2内で捕捉し、捕捉したイオンを質量電荷比に応じて排出させて質量分析を行う。ここで、イオン源1で生成されたイオン

の量が多すぎる場合、イオントラップ2内に多くのイオンが捕捉され、捕捉されているイオンによる空間電荷の影響を受けてマスペクトルの質が低下する。また、レーザパワーが低すぎる等の理由により、イオン源1で生成されたイオンの量が少なすぎると、ノイズの影響を受けてピークを検出できない。そのため、レーザパワーを適切に設定することで、質量分解度やシグナル/ノイズ比（S/N比）の高い質の良いマスペクトルを得ることができる。

[0034] MALDI法のように試料にレーザを照射してイオン化する方法を利用した場合、照射した位置における試料のイオン化効率の違いにより、レーザパワーを一定にしても生成されるイオンの量がばらつく。特に、試料の中でイオン化効率が周囲よりも高いスイートスポットと呼ばれる領域にレーザが照射された場合、レーザパワーの強さを適当な大きさに設定していても、イオン源1で生成されるイオンの量が多くなり、マスペクトルの質が低下する。このように、マスペクトルの質の低下を招く要因がレーザパワー以外にも複数あるため、一の積算前マスペクトルを確認するだけでは、マスペクトルの質の悪化原因を特定することが難しい。その結果、ユーザにとって質のよいマスペクトルを得るために最適なレーザパワーを調整することが難しい。

[0035] 本開示にかかる処理装置30は、マスペクトルの質の悪化原因を特定し易くして、レーザパワーを調整する工程を容易にする。以下、レーザパワーを調整する工程を容易にする方法について、具体的に説明する。

[0036] [処理装置が実行する処理]

図2は、プロセッサが実行する処理を示すフローチャートである。図2に示す処理は、プロセッサ32が、メモリ34に格納されたプログラムを実行することで実行される。以下では、ステップを「S」と省略する。

[0037] プロセッサ32は、質量分析装置10により得られた積算前マスペクトルを処理して、処理結果を表示装置38に表示する。プロセッサ32は、質量分析装置10が1つもしくは複数のウェルに同一条件で調製した試料を複

数回測定して取得した複数の積算前マススペクトルを処理する。プロセッサ 32 が処理する積算前マススペクトルは、メモリ 34 に格納されている。試料は、サンプルプレート 11 上の複数のウェルの少なくとも一のウェル上で同一条件で調整される。サンプルプレート 11 上の複数のウェルに試料が配置されている場合に、質量分析装置 10 は、一のウェル上に配置された試料を複数回測定して複数の積算前マススペクトルを取得してもよく、また、複数のウェル上に配置された各試料を 1 または複数回測定することで、複数の積算前マススペクトルを取得してもよい。

[0038] S101において、プロセッサ32は、総イオン量の順番に従って、複数の積算前マススペクトルを複数のグループに分割する。

[0039] 「総イオン量」は、積算前マススペクトル中の所定範囲の質量電荷比範囲の強度を積算することで得られる。質量分析装置10においてはイオントラップ2に捕捉されたイオンがイオン検出器5により検出されるため、「総イオン量」は、イオントラップ2に捕捉されたイオンの総量を示す特徴量に相当する。本実施の形態において、「総イオン量」として、一の積算前マススペクトルにおいて観測される全てのピークの信号強度を加算することで得られる「TIC (Total Ion Current)」を用いる。所定の範囲としては、イオントラップから排出する質量電荷比の下限から上限までが好ましい。

[0040] TICは、出力部6が生成したマススペクトルまたはイオン検出器5の検出結果に基づいて質量分析装置10の制御部7によって求められてもよい。この場合、TICは、積算前マススペクトルに対応付けてメモリ34に格納される。また、TICは、積算前マススペクトルに基づいてプロセッサ32によって求められてもよい。

[0041] グループの数は、2以上であればよく、3以上であってもよい。グループの数は、予め定められていてもよく、また、入力装置36を介してユーザによって設定されてもよい。複数のグループのそれぞれに含まれる積算前マススペクトルの数は、互いに同じであっても、少なくとも一部が異なってもよい。

- [0042] 以下では、一例として、プロセッサ32が複数の積算前マススペクトルを4つのグループに分割し、4つのグループのそれぞれに含まれる積算前マススペクトルの数が互いに共通するように分割するものとして説明する。たとえば、質量分析装置10が1つもしくは複数のウェルに同一条件で調製した試料で100回測定することで、100個の積算前マススペクトルが得られたものとする。この場合に、プロセッサ32は、TICの少ない下位25番目までの積算前マススペクトルをGroup1に分類し、下位26番目～50番目の積算前マススペクトルをGroup2に分類し、下位51番目～75番目の積算前マススペクトルをGroup3に分類し、76番目～100番目までの積算前マススペクトルをGroup4に分類する。
- [0043] S102において、プロセッサ32は、グループごとに、グループに含まれる積算前マススペクトルを積算する。一のグループに含まれる積算前マススペクトルを積算して得られたマススペクトルを、「部分積算マススペクトル」と称する。たとえば、プロセッサ32は、Group1～Group4の各々について、グループに含まれる25個の積算前マススペクトルを積算して部分積算マススペクトルを求める。これにより、プロセッサ32は、Group1～Group4から第1部分積算マススペクトル～第4部分積算マススペクトルをそれぞれ求める。
- [0044] S103において、プロセッサ32は、グループごとに求めた部分積算マススペクトルに応じた特定情報を表示装置38に表示する。プロセッサ32は、特定情報として、部分積算マススペクトルを表示してもよく、また、部分積算マススペクトルに基づいて得られる情報を表示してもよい。部分積算マススペクトルに基づいて得られる情報は、たとえば、レーザパワーが適当であるか否かを示した評価結果などを含む。なお、本実施の形態においては、プロセッサ32は、特定情報として、部分積算マススペクトルを表示するものとして説明する。
- [0045] 上述したように、質量分析装置10においては、照射した位置における試料のイオン化効率の違いにより、レーザパワーを一定にしても生成され

るイオンの量にばらつきが生じる。レーザパワーが小さすぎたり、あるいは大きすぎたりした場合、照射した位置に関わらず、いずれのグループにおける部分積算マスペクトルの質も悪くなると考えられる。一方、レーザパワーは適当であるものの、ある測定においてスイートスポットにレーザが照射された場合、総イオン量の多いグループの部分積算マスペクトルのみ質が悪くなると考えられる。

[0046] このように、特定情報は、レーザパワーが適当であるか否かを判断するためのさらなる情報としてユーザにとって有用な情報である。特定情報が表示されることで、ユーザは、レーザパワーの妥当性を容易に評価でき、レーザパワーを調整する工程を容易にできる。

[0047] [表示例]

図3は、表示装置に表示される画面の一例を示す図である。画面300は、測定結果画面40と参考画面50とを含み、プロセッサ32によって生成される。

[0048] プロセッサ32は、測定結果画面40と参考画面50とを一の画面300上に並べて表示する。なお、プロセッサ32は、測定結果画面40および参考画面50を表示装置38の表示画面上で別々に動かせるように表示してもよい。

[0049] 測定結果画面40には、レーザパワーを含む測定条件を設定するために、ある測定条件で測定した結果が表示される。測定結果画面40には、特定情報44が表示される。図3に示す例では、特定情報44として、グループごとに求めた第1部分積算マスペクトル441～第4部分積算マスペクトル444が表示されている。また、測定結果画面40には、グループの分割条件の入力を受け付けるためのGUI (Graphical User Interface) 42、第1部分積算マスペクトル441～第4部分積算マスペクトル444の表示範囲の入力を受け付けるためのGUI 46、および得られた全ての部分積算マスペクトルを積算して得られる1つのマスペクトルを示すグラフ48がさらに表示される。なお、全ての部分積算マスペクトルを積算し

て得られる1つのマスペクトルを、「積算後マスペクトル」と称する。積算後マスペクトルは、質量分析装置10が1つもしくは複数のウェルに同一条件で調製した試料を複数回測定することで得られた複数の全ての積算前マスペクトルを積算することでも得られる。

[0050] 第1部分積算マスペクトル441～第4部分積算マスペクトル444が表示されることで、ユーザは各部分積算マスペクトルの形状に基づいて積算後マスペクトルの質を評価でき、各部分積算マスペクトルに対する評価結果に基づいてレーザパワーの妥当性をより詳細に評価できる。

[0051] プロセッサ32は、ユーザが入力装置36を用いてGUI46を操作することで、質量電荷比範囲の入力を受け付ける。プロセッサ32は、受け付けた質量電荷比範囲の部分積算マスペクトルをグループごとに表示装置38に表示する。表示装置38の表示領域にも限りがあるため、取得した質量電荷比の全範囲の部分積算マスペクトルを表示すると、各部分積算マスペクトルを並べて表示することが難しく、比較し難い。また、取得した質量電荷比の全範囲の部分積算マスペクトルを表示させた場合、個々の細かなピークを評価することが難しい。そこで、一部の質量電荷比範囲の部分積算マスペクトルだけを表示できるようにすることで、各部分積算マスペクトルを比較しやすい形式で表示しやすくすることができ、各部分積算マスペクトルをより容易に比較できる。ここで、部分積算マスペクトルで表示する一部の質量電荷比範囲としては、一の基準ピークの質量電荷比を中心に所定範囲（たとえば、 $\pm 5 Da$ ）であることが好ましい。基準ピークは、信号強度の高いピークであって、たとえば、試料に含まれる標準試料中の特定化合物のピーク、または、S/N比が3よりも大きい質の良いピークなどである。

[0052] 参考画面50には、表示された特定情報44に基づいてレーザパワーの妥当性を解釈するための参考情報が表示される。レーザパワーの妥当性を解釈するための参考情報が表示されることで、ユーザは、測定結果画面40に表示された特定情報44に基づくレーザパワーの妥当性の解釈を参考情報に基

づいて進めることができ、より容易にレーザパワーの妥当性を評価できる。

[0053] 参考情報は、複数の見本マススペクトルを総イオン量の順番に従って複数のグループに分割して得られるグループごとの部分積算マススペクトルと、グループごとの部分積算マススペクトルに基づいてレーザパワーが適当であるか否かが解釈された結果を示す解釈情報とを含む。以下では、複数の見本マススペクトルに基づいて作成された部分積算マススペクトルを、「見本部分積算マススペクトル」と称する。本実施の形態においては、グループごとの見本部分積算マススペクトルと解釈情報とが表示装置38に表示される。ユーザは、グループごとの見本部分積算マススペクトルと測定結果画面40に表示された部分積算マススペクトル（第1部分積算マススペクトル441～第4部分積算マススペクトル444）とを比較することで、より容易にレーザパワーの妥当性をより容易に評価できる。

[0054] たとえば、参考画面50には、適当なレーザパワーの下で得られる典型的なグループごとの見本部分積算マススペクトル、適当なレーザパワーよりも強いレーザパワーの下で得られる典型的なグループごとの見本部分積算マススペクトル、または適当なレーザパワーよりも弱いレーザパワーの下で得られる典型的なグループごとの見本部分積算マススペクトルなどが表示される。参考画面50の表示例については、図6を参照して後述する。

[0055] [測定結果画面]

図4は、測定結果画面の一例を示す図である。上述したように、測定結果画面40には、GUI42、特定情報44、GUI46、およびグラフ48が表示される。

[0056] GUI42は、グループの分割条件の入力を受け付ける。たとえば、GUI42は、入力欄421～入力欄423を含む。ユーザは入力装置36を用いて入力欄421～入力欄423に数値を入力することで、総イオン量の順番に従って、何番目から何番目までをGroup1に分類し、何番目から何番目までをGroup2に分類するかといった各グループの区切りを設定できる。

[0057] なお、各グループの区切りを設定する方法は、図4に示した方法に限られない。図5は、変形例にかかるグループの区切りを設定するためのGUIを示す図である。GUI 42aは、スライダー421a～423aを含む。ユーザは入力装置36を用いてスライダー421a～423aを動かすことで、各グループの区切りを設定できる。また、グループに含まれる数で区切るのではなく、パーセンタイル（百分率）で区切っても良い。

[0058] 図3に戻って、プロセッサ32は、第1部分積算マススペクトル441～第4部分積算マススペクトル444の各々に対応付けて、部分積算マススペクトルの質を示す特徴量として質量分解度445を表示する。プロセッサ32は、第1部分積算マススペクトル441～第4部分積算マススペクトル444の各々について、部分積算マススペクトルからピークを抽出し、抽出したピークごとに質量分解度445を求める。プロセッサ32は、求めた質量分解度445をピークに対応付けて表示装置38に表示する。なお、ピークの抽出方法ならびに、質量分解度445の演算方法については公知であるため、ここでは詳細に説明しない。

[0059] このように部分積算マススペクトルの質を示す特徴量が各部分積算マススペクトルに対応付けて表示装置38に表示されることで、ユーザは、各部分積算マススペクトルの質をより容易に評価でき、レーザパワーの妥当性をより容易に評価できる。

[0060] さらに、プロセッサ32は、第1部分積算マススペクトル441～第4部分積算マススペクトル444の各々に対応付けて、イオン検出器5が測定した実測値の最大値と最小値を示す信号強度範囲447を表示する。第1部分積算マススペクトル441～第4部分積算マススペクトル444においては相対強度が利用されることが多いため、第1部分積算マススペクトル441～第4部分積算マススペクトル444に示された各ピークの強度を単純に比較することはできない。そこで、実測値に対応する信号強度範囲447が表示装置38に表示されることで、第1部分積算マススペクトル441～第4部分積算マススペクトル444の信号強度を比較できる。

[0061] GUI 46 は、タブ 461 とボタン 462 とを含む。入力装置 36 を介してタブ 461 が選択されることで、リスト 461a が表示される。ユーザは、入力装置 36 を介してリスト 461a 中のいずれかの質量電荷比を選択することで、特定情報 44 として表示する部分積算マスペクトルの表示範囲である質量電荷比範囲を設定する。また、プロセッサ 32 は、設定された質量電荷比範囲をグラフ 48 中に設定枠 481 として示してもよい。これにより、測定した全質量電荷比範囲のうち、どの範囲が特定情報 44 として表示されているかをユーザは容易に特定できる。

[0062] ボタン 462 は、たとえば、リスト 461a に新たな質量電荷比を登録するための GUI である。ユーザは、入力装置 36 を介してボタン 462 を操作することでリスト 461a に新たな質量電荷比を登録できる。なお、プロセッサ 32 は、グラフ 48 に示された積算後マスペクトルからピークを抽出し、各ピークの質量電荷比を、リスト 461a に表示される質量電荷比として設定してもよい。

[0063] [参考画面]

図 6 は、参考画面の一例を示す図である。参考画面 50 には、少なくとも 1 の参考情報 52 が表示される。図 6 に示す例では、4 つの参考情報 52a ~ 52d が表示される。プロセッサ 32 は、参考情報 52 として、見本部分積算マスペクトル 522 と、見本部分積算マスペクトルの解釈結果 521 と、見本部分積算マスペクトル 522 から解釈結果 521 を得る過程を示した考察情報 523 とを表示する。

[0064] 解釈結果 521 は、見本部分積算マスペクトル 522 を求めるために利用した見本部分積算マスペクトルの測定条件の一つであるレーザパワーが適当であるか否かを解釈した結果を示す情報である。図 6 に示す例では、「良い例」または「悪い例」と表示することで、レーザパワーが適当であるか否かが示されている。

[0065] 考察情報 523 は、見本部分積算マスペクトル 522 の見方を示す情報であって、たとえば、得られた見本部分積算マスペクトル 522 からなぜ

解釈結果 5 2 1 が得られるかを解説した情報である。

[0066] 参考情報 5 2 は、たとえば、次のようにして得られる。質量分析システム 1 0 0 を提供する事業者またはユーザなどが、予め複数の見本部分積算マススペクトルを取得し、取得した複数の見本部分積算マススペクトルに基づいて複数の見本部分積算マススペクトル 5 2 2 を得る。事業者またはユーザなどは、得られた複数の見本部分積算マススペクトル 5 2 2 に基づいて、レーザパワーが適当であるか否かを評価する。事業者またはユーザなどは、複数の見本部分積算マススペクトル 5 2 2 に対応付けて、評価結果を解釈結果 5 2 1 としてメモリ 3 4 に保存するとともに、当該評価結果とした理由を考察情報 5 2 3 として複数の見本部分積算マススペクトル 5 2 2 に対応付けてプロセッサ 3 2 に保存する。

[0067] ユーザは、参考情報 5 2 を確認しつつ、測定結果画面 4 0 内の特定情報 4 4 を解析することで、レーザパワーの妥当性を容易に評価できる。

[0068] 以下、参考画面 5 0 に表示される参考情報 5 2 の一例について説明する。参考情報 5 2 a、5 2 b は、レーザパワーが適当であると考えられる場合の見本部分積算マススペクトルに関する情報である。参考情報 5 2 c は、レーザパワーが強すぎると考えられる場合の見本部分積算マススペクトルに関する情報である。参考情報 5 2 d は、レーザパワーが弱すぎると考えられる場合の見本部分積算マススペクトルに関する情報である。

[0069] たとえば、ユーザは、参考情報 5 2 a から、全てのグループの部分積算マススペクトルに同位体ピークが現れており、いずれのグループの部分積算マススペクトルの質量分解度も高く、かつ、総イオン量の最も少ないグループの部分積算マススペクトルの質が最も良い場合、レーザパワーは適当であると評価できる。

[0070] また、ユーザは、参考情報 5 2 b から、総イオン量の最も多いグループの部分積算マススペクトルのみピークの位置がずれており、また、総イオン量の最も多いグループ以外の部分積算マススペクトルに同位体ピークが現れている場合、総イオン量の最も多いグループの部分積算マススペクトルの質の

低下は単なるスイートスポットの影響に過ぎず、レーザパワーは適当であると評価できる。

[0071] また、ユーザは、参考情報 5 2 c から、総イオン量の最も少ないグループ以外の部分積算マスペクトルにおいて同位体ピークが現れていないまたは同位体ピークの数が少ない場合に、レーザパワーは高すぎると評価できる。

[0072] また、ユーザは、参考情報 5 2 d から、信号強度（ピーク強度）の最大値がいずれの部分積算マスペクトルにおいても所定値（図 6 に示す例では 1 . 0 m V）未満である場合には、レーザパワーは低すぎると評価できる。

[0073] 以上のように、参考情報 5 2 が表示されることで、ユーザは、より容易にレーザパワーの妥当性を評価できる。また、参考情報 5 2 として考察情報 5 2 3 がさらに表示されることで、ユーザは、より根拠をもってレーザパワーを評価できる。

[0074] [変形例にかかる測定結果画面]

上記実施の形態において、レーザパワーが適当であるか否かをユーザが解釈することを前提に測定結果画面 4 0 には、特定情報 4 4 として第 1 部分積算マスペクトル 4 4 1 ~ 第 4 部分積算マスペクトル 4 4 4 が表示されるものとして説明した。なお、処理装置 3 0 は、グループごとに求めた部分積算マスペクトルに基づいてレーザパワーの妥当性を判断し、当該判断結果を特定情報 4 4 として表示装置 3 8 に表示してもよい。

[0075] 図 7 は、変形例にかかる測定結果画面の一例を示す図である。図 8 は、プロセッサが実行する変形例にかかる処理を示すフローチャートである。図 9 は、図 8 中の S 1 0 7 の処理を示すフローチャートである。

[0076] 図 7 に示すように、プロセッサ 3 2 は、特定情報として、レーザパワーの妥当性を判断した判断結果 4 4 8 を表示してもよい。また、プロセッサ 3 2 は、判断結果 4 4 8 に加えて、当該判断結果 4 4 8 に至った理由を示す情報 4 4 9 をさらに表示してもよい。ユーザは、表示された判断結果 4 4 8 に基づいてレーザパワーの調整を行えばよく、レーザパワーの調整工程がより容易になる。なお、図 7 に示した例では、各グループの部分積算マスペクト

ルに加えて判断結果448および情報449が表示されるものとしたが、プロセッサ32は、特定情報44として判断結果448のみを表示してもよい。

[0077] 図8および図9を参照して、レーザパワーの妥当性を判断する方法について説明する。図8および図9に示す処理は、プロセッサ32が、メモリ34に格納されたプログラムを実行することで実行される。なお、S101およびS102は、図2に示した処理と共通するため、説明を省略する。

[0078] S104において、プロセッサ32は、部分積算マススペクトルごとに質量分解度を求める。上述したように、質量分解度は、部分積算マススペクトルの質を示す特徴量である。S104の処理は、部分積算マススペクトルごとに当該部分積算マススペクトルの質を示す特徴量を求める処理の一例である。プロセッサ32は、部分積算マススペクトルから強度の最も高いピークを抽出し、当該ピークから質量分解度を求める。

[0079] S105において、プロセッサ32は、部分積算マススペクトルごとにピークのずれを求める。ピークの位置がずれるということはピークの質が低下することを意味するため、ピークのずれは、マススペクトルの質を示す特徴量に相当する。S105の処理は、部分積算マススペクトルごとに当該部分積算マススペクトルの質を示す特徴量を求める処理の一例である。プロセッサ32は、ある質量電荷比近傍のピークについて、総イオン量の最も少ないグループの部分積算マススペクトルにおけるピークの位置を基準位置として、当該基準位置からのずれを求めることでピークのずれを求める。なお、ピークのずれを求める方法は、当該方法に限られない。たとえば、試料中に質量が既知の標準物質が含まれている場合に、プロセッサ32は、標準物質に対応するピークを抽出し、抽出したピークの位置と標準物質の質量から理論的に予測されるピークの位置との差を求めることでピークのずれを求めてもよい。

[0080] イオントラップ2内に多くのイオンが捕捉されると、捕捉されたイオンによる空間電荷の影響を受けてピークの位置である質量電荷比が低質量側また

は高質量側にずれる。すなわち、ピークのずれは、捕捉されたイオンによる空間電荷の影響度合いを示す特徴量であるともいえる。

[0081] S 1 0 6 において、プロセッサ 3 2 は、マススペクトルの質を示す特徴量に基づいて部分積算マススペクトルごとに質を評価する。一例として、プロセッサ 3 2 は、次のように部分積算マススペクトルの質を評価する。プロセッサ 3 2 は、質量分解度が予め定められた第 1 しきい値以下である場合、または、ピークのずれが予め定められた第 2 しきい値以上である場合に、マススペクトルの質が悪いと評価する。また、プロセッサ 3 2 は、質量分解度が第 1 しきい値よりも高く、かつ、ピークのずれが第 2 しきい値未満である場合に、マススペクトルの質が良いと評価する。なお、部分積算マススペクトルの質を評価する方法は、当該方法に限られない。

[0082] S 1 0 7 において、プロセッサ 3 2 は、各部分積算マススペクトルの質を評価した結果に基づいて、レーザパワーの妥当性を判断する。図 9 を参照して、プロセッサ 3 2 は、次のように各部分積算マススペクトルの質を評価した結果に基づいて、レーザパワーの妥当性を判断する。なお、上述したように、本実施の形態においては、総イオン量の少ない順に G r o u p 1, 2, 3, 4 が設定されている。以下では、G r o u p 1 ~ 4 の各グループの部分積算マススペクトルの質を評価するものとして説明する。

[0083] S 7 1 において、プロセッサ 3 2 は、すべての部分積算マススペクトルの質が悪いか否かを判断する。悪いと判断した場合（S 7 1 において Y E S）、プロセッサ 3 2 は、S 7 2 の処理を実行する。

[0084] S 7 2 において、プロセッサ 3 2 は、最大信号強度が所定値以上であるか否かを判断する。最大信号強度とは、イオン検出器 5 が測定した実測値の信号強度の最大値である。

[0085] 最大信号強度が所定値以上であると判断した場合（S 7 2 において Y E S）、プロセッサ 3 2 は、S 8 1 において、レーザパワーが目標値よりも強いと判断して、S 1 0 7 の処理を終了して、S 1 0 8 の処理へ進む。ここで、「目標値」とは、質の高いマススペクトルを得るのに適したレーザパワーで

あって、分析条件に応じて異なる。

- [0086] 最大信号強度が所定値以上ではないと判断した場合（S 7 2においてNO）、言い換えると、最大信号強度が所定値未満であると判断した場合、プロセッサ32は、S 8 2において、レーザパワーが目標値よりも弱いと判断して、S 1 0 7の処理を終了して、S 1 0 8の処理へ進む。
- [0087] 以上より、プロセッサ32は、すべての部分積算マススペクトルの質が悪いと判断した場合、レーザパワーが妥当ではないと判断する。
- [0088] すべての部分積算マススペクトルの質が悪くはないと判断した場合（S 7 1においてNO）、言い換えると、少なくとも一の部分積算マススペクトルの質は良いと判断した場合、プロセッサ32は、S 7 3の処理を実行する。
- [0089] S 7 3において、プロセッサ32は、少なくともGroup 1の部分積算マススペクトルの質がよく、かつ、Group 3, 4のいずれの部分積算マススペクトルの質も悪いか否かを判断する。ここで、Group 1は、総イオン量の最も少ないグループを意味し、Group 2, 3, 4の順で総イオン量は増える。少なくともGroup 1の部分積算マススペクトルの質がよく、かつ、Group 3, 4のいずれの部分積算マススペクトルの質も悪いと判断した場合（S 7 3においてYES）、プロセッサ32は、S 8 1の処理を実行する。
- [0090] S 8 1において、プロセッサ32は、レーザパワーが目標値よりも強いと判断して、S 1 0 7の処理を終了して、S 1 0 8の処理へ進む。すなわち、Group 1の部分積算マススペクトルの質がよく、かつ、Group 1以外のGroup 2, 3, 4の部分積算マススペクトルの質が悪い場合、または、Group 1, 2の部分積算マススペクトルの質がよく、かつ、Group 3, 4の部分積算マススペクトルの質が悪い場合に、プロセッサ32は、レーザパワーが目標値よりも強いと判断する。
- [0091] Group 1の質が悪い、または、Group 1の質は良いもののGroup 3または4の部分積算マススペクトルの質が良いと判断した場合（S 7 3においてNO）、プロセッサ32は、S 7 4の処理を実行する。

- [0092] S 7 4 において、プロセッサ 3 2 は、G r o u p 4 の部分積算マスペクトルの質が悪く、かつ、G r o u p 4 以外のグループのいずれの部分積算マスペクトルの質も良いか否かを判断する。G r o u p 4 の部分積算マスペクトルの質が悪く、かつ、G r o u p 4 以外のグループの部分積算マスペクトルの質がいずれもよいと判断した場合（S 7 4 において Y E S）、プロセッサ 3 2 は、S 8 3 の処理を実行する。
- [0093] S 8 3 において、プロセッサ 3 2 は、レーザパワーは適当であり、G r o u p 4 の部分積算マスペクトルはスイートスポットの影響を受けて質が低下していると判断して、S 1 0 7 の処理を終了して、S 1 0 8 の処理へ進む。すなわち、総イオン量の最も多いグループの部分積算マスペクトルの質だけが悪い場合に、プロセッサ 3 2 は、スイートスポットの影響を受けて一部の積算前スペクトルの質が低下しているに過ぎず、レーザパワーは適当であると判断する。
- [0094] G r o u p 4 の部分積算マスペクトルの質が良い、または、G r o u p 4 の質は悪いものの G r o u p 4 以外のグループの部分積算マスペクトルのいずれかの質が悪いと判断した場合（S 7 4 において N O）、プロセッサ 3 2 は、S 7 5 の処理を実行する。
- [0095] S 7 5 において、プロセッサ 3 2 は、G r o u p 2 ~ 4 のいずれの部分積算マスペクトルの質も良いか否かを判断する。G r o u p 2 ~ 4 のいずれの部分積算マスペクトルの質も良いと判断した場合（S 7 5 において Y E S）、プロセッサ 3 2 は、レーザパワーは適当であると判断して、S 1 0 7 の処理を終了して、S 1 0 8 の処理へ進む。すなわち、G r o u p 1 ~ 4 のすべての部分積算マスペクトルの質が良い場合、または、G r o u p 1 の部分積算マスペクトルの質だけが悪い場合に、プロセッサ 3 2 は、レーザパワーは適当であると判断する。
- [0096] G r o u p 2 ~ 4 の少なくとも一の部分積算マスペクトルの質が悪いと判断した場合（S 7 5 において N O）、プロセッサ 3 2 は、S 8 5 において、個別に判断が必要であると判断して、S 1 0 7 の処理を終了して、S 1 0

8の処理へ進む。個別に判断が必要というのは、レーザパワーの妥当性を一意に判断することができず、ユーザによって解釈した方が良いことを意味する。すなわち、プロセッサ32は、(1) Group 1, 4の部分積算マスペクトルの質が良く、Group 2, 3のうち少なくとも一方の部分積算マスペクトルの質が悪い場合、(2) Group 1, 4の部分積算マスペクトルの質が悪く、Group 2, 3のうち少なくとも一方の部分積算マスペクトルの質が良い場合、(3) Group 1, 3の部分積算マスペクトルの質が良く、Group 2, 4の部分積算マスペクトルの質が悪い場合、(4) Group 1の部分積算マスペクトルの質が悪く、Group 4の部分積算マスペクトルの質が良く、Group 2, 3のうち少なくとも一方の部分積算マスペクトルの質が良い場合、(5) Group 4の部分積算マスペクトルの質が良く、Group 1~3の部分積算マスペクトルの質が悪い場合に個別に判断が必要であると判断する。

[0097] S107の処理を終了すると、プロセッサ32は、S108の処理を実行する。

S108において、プロセッサ32は、S107において得られたレーザパワーの妥当性の判断結果を表示装置38に表示する。なお、プロセッサ32は、判断結果として、レーザパワーを強めた方が良いのか、あるいは弱めた方が良いのかといった情報を表示装置38に表示してもよい。なお、プロセッサ32は、S107の処理において、個別の判断が必要と判断した場合、各部分積算マスペクトルを参照してレーザパワーを判断した方がよい旨の情報を表示装置38に表示してもよい。

[0098] 図8, 9に示した例では、プロセッサ32は、S106において部分積算マスペクトルの質を評価してから、S106で得られた評価結果に基づいてS107においてレーザパワーの妥当性を判断するものとした。なお、プロセッサ32は、質量分解度およびピークのずれ量といったマスペクトルの質を示す特徴量に基づいてレーザパワーの妥当性を判断してもよい。

[0099] ユーザは、表示装置38に表示された情報に基づいてレーザパワーを調整

する。これにより、ユーザは、質の良いマススペクトルを得るための適当なレーザパワーに設定できる。ユーザは、適当なレーザパワーに設定して、レーザパワーの調整に利用した試料と同一試料を質量分析することで、質の良いマススペクトルを得ることができる。なお、「レーザパワーの調整に利用した試料と同一試料」とは、一のサンプルプレート 11 上で同一条件で調整された試料のことであって、レーザが既に照射されたウェル上の試料と、レーザが照射されていないウェル上の試料とを含む。また、調整後のレーザパワーの妥当性を評価する場合も、ユーザは、調整前のレーザパワーの妥当性の評価に利用した試料と同一の試料を質量分析すればよい。

[0100] [態様]

上述した実施の形態は、以下の態様の具体例であることが当業者により理解される。

[0101] (第 1 項) 一態様に係る処理装置は、レーザ脱離イオン化法によって試料をイオン化するイオン化部とイオン化した試料をイオントラップ質量分析により分析する分析部とを備える質量分析装置によって取得されたマススペクトルを処理する装置である。処理装置は、質量分析装置が 1 つもしくは複数のウェルに同一条件で調製した試料を複数回測定して取得した複数の積算前マススペクトルを格納するメモリと、メモリに格納された複数の積算前マススペクトルを処理するプロセッサと、表示装置とを含む。プロセッサは、所定の質量電荷比範囲の強度を積算した総イオン量の順番に従って、複数の積算前マススペクトルを複数のグループに分割し、複数のグループの各々について、当該グループに含まれる積算前マススペクトルを積算して部分積算マススペクトルを求め、グループごとに求めた部分積算マススペクトルに応じた特定情報を表示装置に表示する。

[0102] 質量分析装置においては、照射した位置における試料のイオン化効率の違いにより、レーザパワーを一定にしても生成されるイオンの量にばらつきが生じる。レーザパワーが小さすぎたり、あるいは大きすぎたりした場合、照射した位置に関わらず、いずれのグループにおける部分積算マススペク

トルの質も悪くなると考えられる。一方、レーザパワーは適当であるものの、ある測定においてスイートスポットにレーザが照射された場合、総イオン量の多いグループの部分積算マスペクトルのみ質が悪くなると考えられる。このように、複数の積算前マスペクトルを総イオン量の順番に従って分割し、グループに含まれる積算前マスペクトルを積算することで得られる部分積算マスペクトルに応じた特定情報は、レーザパワーが適当であるか否かを判断するためのさらなる情報としてユーザにとって有用な情報である。

[0103] 第1項に記載の処理装置によれば、イオン化部におけるレーザパワーを評価するための更なる情報として特定情報が表示されることで、ユーザは、レーザパワーの妥当性を容易に評価でき、レーザパワーを調整する工程を容易にできる。

[0104] (第2項) 第1項に記載の処理装置において、プロセッサは、特定情報として部分積算マスペクトルの質量電荷比範囲の少なくとも一部をグループごとに表示装置に表示する。

[0105] 第2項に記載の処理装置によれば、部分積算マスペクトルの質量電荷比範囲の少なくとも一部が表示されることで、部分積算マスペクトルの形状に基づいてマスペクトルの質を評価でき、各部分積算マスペクトルに対する評価結果に基づいてレーザパワーの妥当性をより詳細に評価できる。

[0106] (第3項) 第2項に記載の処理装置は、ユーザ操作を受け付ける入力装置をさらに含む。プロセッサは、入力装置が質量電荷比範囲を受け付けた場合に、受け付けた質量電荷比範囲の部分積算マスペクトルをグループごとに表示装置に表示する。

[0107] 第3項に記載の処理装置によれば、表示装置の表示領域にも限りがあるものの、一部の質量電荷比範囲の部分積算マスペクトルだけを表示できるようにすることで、各部分積算マスペクトルを比較しやすい形式で表示しやすくすることができ、各部分積算マスペクトルをより容易に比較できるようになる。

- [0108] (第4項) 第2項または第3項に記載の処理装置において、メモリは、特定情報に基づいてイオン化部のレーザパワーが適当であるか否かをユーザが解釈するための参考情報を格納する。プロセッサは、参考情報を表示装置に表示する。
- [0109] 第4項に記載の処理装置によれば、ユーザは、特定情報に基づくレーザパワーの妥当性の解釈を参考情報に基づいて進めることができ、より容易にレーザパワーの妥当性を評価できる。
- [0110] (第5項) 第4項に記載の処理装置において、参考情報は、複数の見本マスペクトルを総イオン量の順番に従って複数のグループに分割して得られるグループごとの見本部分積算マスペクトルと、当該グループごとの見本部分積算マスペクトルに基づいてイオン化部のレーザパワーが適当であるか否かが解釈された結果を示す解釈情報とを含む。
- [0111] 第5項に記載の処理装置によれば、ユーザは、グループごとの見本部分積算マスペクトルと特定情報として表示されたグループごとの部分積算マスペクトルとを比較することで、より容易にレーザパワーの妥当性を評価できる。
- [0112] (第6項) 第2項～第5項のうちいずれか1項に記載の処理装置において、プロセッサは、各部分積算マスペクトルについて、マスペクトルの質を示す特徴量を当該部分積算マスペクトルから求め、各部分積算マスペクトルに対応づけて当該部分積算マスペクトルから求めた特徴量を表示装置に表示する。
- [0113] 第6項に記載の処理装置によれば、マスペクトルの質を示す特徴量が各部分積算マスペクトルに対応付けて表示されることで、ユーザは、各部分積算マスペクトルの質をより容易に評価でき、レーザパワーの妥当性をより容易に評価できる。
- [0114] (第7項) 第6項に記載の処理装置において、特徴量は、質量分解度である。

(第8項) 第1項～第7項のうちいずれか1項に記載の処理装置において

、プロセッサは、各部分積算マスペクトルについて、マスペクトルの質を示す特徴量を当該部分積算マスペクトルから求め、各部分積算マスペクトルから求めた特徴量に基づいて、イオン化部におけるレーザパワーが適当であるか否かを判断し、特定情報としてレーザパワーが適当であるか否かの判断結果を表示装置に表示する。

[0115] 第8項に記載の処理装置によれば、ユーザは、表示された判断結果に基づいてレーザパワーの調整を行えばよく、レーザパワーの調整工程がより容易になる。

[0116] (第9項) 第8項に記載の処理装置において、プロセッサは、各部分積算マスペクトルから求めた特徴量に基づいて、各部分積算マスペクトルについて、当該部分積算マスペクトルの質を評価し、各部分積算マスペクトルの評価結果に基づいて、総イオン量が最も少ない第1グループの部分積算マスペクトルの質はよく、第1グループ以外のグループの部分積算マスペクトルの質は悪い場合、イオン化部におけるレーザパワーが目標値よりも強いと判断する。

[0117] (第10項) 第8項または第9項に記載の処理装置において、プロセッサは、各部分積算マスペクトルの各特徴量に基づいて、すべてのグループの部分積算マスペクトルの質が悪いと判断した場合、イオン化部におけるレーザパワーが適当ではないと評価する。

[0118] (第11項) 第10項に記載の処理装置において、プロセッサは、複数の部分積算マスペクトルの信号強度の最大値が所定値以上である場合、イオン化部におけるレーザパワーが目標値よりも強いと判断する。

[0119] (第12項) 第10項または第11項に記載の処理装置において、プロセッサは、複数の部分積算マスペクトルの信号強度の最大値が所定値未満である場合、イオン化部におけるレーザパワーが目標値よりも弱いと判断する。

[0120] (第13項) 第8項～第12項のうちいずれか1項に記載の処理装置において、プロセッサは、各部分積算マスペクトルの特徴量に基づいて、総イ

オン量が最も多い第2グループの部分積算マスペクトルの質は悪く、第2グループ以外のグループの部分積算マスペクトルの質は良いと判断した場合、イオン化部におけるレーザパワーが適当であると判断する。

[0121] (第14項) 一態様に係る処理方法は、レーザ脱離イオン化法によって試料をイオン化するイオン化部とイオン化した試料をイオントラップ質量分析により分析する分析部とを備える質量分析装置によって取得されたマスペクトルを処理する方法である。処理方法は、質量分析装置が1つもしくは複数のウェルに同一条件で調製した試料を複数回測定して得られた複数の積算前マスペクトルについて、所定の質量電荷比範囲の強度を積算した総イオン量の順番に従って、当該複数の積算前マスペクトルを複数のグループに分割するステップと、複数のグループの各々について、当該グループに含まれる積算前マスペクトルを積算して部分積算マスペクトルを求めるステップと、グループごとに求めた部分積算マスペクトルに応じた特定情報を表示装置に表示するステップとを含む。

[0122] (第15項) 一態様に係るプログラムは、第14項に記載の処理方法をコンピュータに実行させるためのプログラムである。

[0123] (第16項) 一態様にかかるコンピュータ可読媒体は、第15項に記載のプログラムを記憶する。

[0124] 第14項～第16項に記載の処理方法、プログラムおよびコンピュータ可読媒体によれば、イオン化部におけるレーザパワーを評価するための更なる情報として特定情報が表示されることで、ユーザは、レーザパワーの妥当性を容易に評価でき、レーザパワーを調整する工程を容易にできる。

[0125] 今回開示された各実施の形態は、技術的に矛盾しない範囲で適宜組合わせて実施することも予定されている。そして、今回開示された実施の形態は、全ての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は、上記した実施の形態の説明ではなくて請求の範囲によって示され、請求の範囲と均等の意味および範囲内での全ての変更が含まれることが意図される。

符号の説明

[0126] 1 イオン源、2 イオントラップ、3 レーザ駆動部、4 イオントラップ電源部、5 イオン検出器、6 出力部、7 制御部、10 質量分析装置、11 サンプルプレート、12 試料、13 レーザ照射部、14 引き出し電極、21 リング電極、22, 24 エンドキャップ電極、23 イオン導入口、25 イオン排出口、30 処理装置、31 入出力I/F、32 プロセッサ、34 メモリ、36 入力装置、38 表示装置、39 バス、40 測定結果画面、42, 42a GUI、44 特定情報、46 GUI、48 グラフ、50 参考画面、52, 52a~52d 参考情報、100 質量分析システム、300 画面、421~423 入力欄、421a~423a スライダー、441~444 第1部分積算マススペクトル~第4部分積算マススペクトル、445 質量分解度、447 信号強度範囲、448 判断結果、449 情報、461 タブ、461a リスト、462 ボタン、481 設定枠、521 解釈結果、522 見本部分積算マススペクトル、523 考察情報。

請求の範囲

- [請求項1] レーザ脱離イオン化法によって試料をイオン化するイオン化部とイオン化した試料をイオントラップ質量分析により分析する分析部とを備える質量分析装置によって取得されたマススペクトルを処理する処理装置であって、
- 前記質量分析装置が1つもしくは複数のウェルに同一条件で調製した試料を複数回測定して取得した複数の積算前マススペクトルを格納するメモリと、
- 前記メモリに格納された前記複数の積算前マススペクトルを処理するプロセッサと、
- 表示装置とを備え、
- 前記プロセッサは、
- 所定の質量電荷比範囲の強度を積算した総イオン量の順番に従って、前記複数の積算前マススペクトルを複数のグループに分割し、
- 前記複数のグループの各々について、当該グループに含まれる積算前マススペクトルを積算して部分積算マススペクトルを求め、
- グループごとに求めた前記部分積算マススペクトルに応じた特定情報を前記表示装置に表示する、処理装置。
- [請求項2] 前記プロセッサは、前記特定情報として前記部分積算マススペクトルの質量電荷比範囲の少なくとも一部をグループごとに前記表示装置に表示する、請求項1に記載の処理装置。
- [請求項3] ユーザ操作を受け付ける入力装置をさらに備え、
- 前記プロセッサは、前記入力装置が質量電荷比範囲を受け付けた場合に、受け付けた質量電荷比範囲の前記部分積算マススペクトルをグループごとに前記表示装置に表示する、請求項2に記載の処理装置。
- [請求項4] 前記メモリは、前記特定情報に基づいて前記イオン化部のレーザパワーが適当であるか否かをユーザが解釈するための参考情報を格納し、

前記プロセッサは、前記参考情報を前記表示装置に表示する、請求項2または3に記載の処理装置。

[請求項5] 前記参考情報は、複数の見本マススペクトルを総イオン量の順番に従って複数のグループに分割して得られるグループごとの見本部分積算マススペクトルと、当該グループごとの見本部分積算マススペクトルに基づいて前記イオン化部のレーザパワーが適当であるか否かが解釈された結果を示す解釈情報とを含む、請求項4に記載の処理装置。

[請求項6] 前記プロセッサは、
各部分積算マススペクトルについて、マススペクトルの質を示す特徴量を当該部分積算マススペクトルから求め、
各部分積算マススペクトルに対応づけて当該部分積算マススペクトルから求めた前記特徴量を前記表示装置に表示する、請求項2または3に記載の処理装置。

[請求項7] 前記特徴量は、質量分解度である、請求項6に記載の処理装置。

[請求項8] 前記プロセッサは、
各部分積算マススペクトルについて、マススペクトルの質を示す特徴量を当該部分積算マススペクトルから求め、
各部分積算マススペクトルから求めた前記特徴量に基づいて、前記イオン化部におけるレーザパワーが適当であるか否かを判断し、
前記特定情報としてレーザパワーが適当であるか否かの判断結果を前記表示装置に表示する、請求項1～3のうちいずれか1項に記載の処理装置。

[請求項9] 前記プロセッサは、
各部分積算マススペクトルから求めた前記特徴量に基づいて、各部分積算マススペクトルについて、当該部分積算マススペクトルの質を評価し、
各部分積算マススペクトルの評価結果に基づいて、前記総イオン量が最も少ない第1グループの前記部分積算マススペクトルの質はよ

く、前記第1グループ以外のグループの前記部分積算マスペクトルの質は悪い場合、前記イオン化部におけるレーザパワーが目標値よりも強いと判断する、請求項8に記載の処理装置。

[請求項10] 前記プロセッサは、各部分積算マスペクトルの各特徴量に基づいて、すべてのグループの前記部分積算マスペクトルの質が悪いと判断した場合、前記イオン化部におけるレーザパワーが適当ではないと評価する、請求項8に記載の処理装置。

[請求項11] 前記プロセッサは、前記複数の部分積算マスペクトルの信号強度の最大値が所定値以上である場合、前記イオン化部におけるレーザパワーが目標値よりも強いと判断する、請求項10に記載の処理装置。

[請求項12] 前記プロセッサは、前記複数の部分積算マスペクトルの信号強度の最大値が所定値未満である場合、前記イオン化部におけるレーザパワーが目標値よりも弱いと判断する、請求項10に記載の処理装置。

[請求項13] 前記プロセッサは、各部分積算マスペクトルの前記特徴量に基づいて、前記総イオン量が最も多い第2グループの前記部分積算マスペクトルの質は悪く、前記第2グループ以外のグループの前記部分積算マスペクトルの質は良いと判断した場合、前記イオン化部におけるレーザパワーが適当であると判断する、請求項8に記載の処理装置。

[請求項14] レーザ脱離イオン化法によって試料をイオン化するイオン化部とイオン化した試料をイオントラップ質量分析により分析する分析部とを備える質量分析装置によって取得されたマスペクトルを処理する処理方法であって、

前記処理方法は、

前記質量分析装置が1つもしくは複数のウェルに同一条件で調製した試料を複数回測定して得られた複数の積算前マスペクトルについて、所定の質量電荷比範囲の強度を積算した総イオン量の順番に従って、当該複数の積算前マスペクトルを複数のグループに分割するス

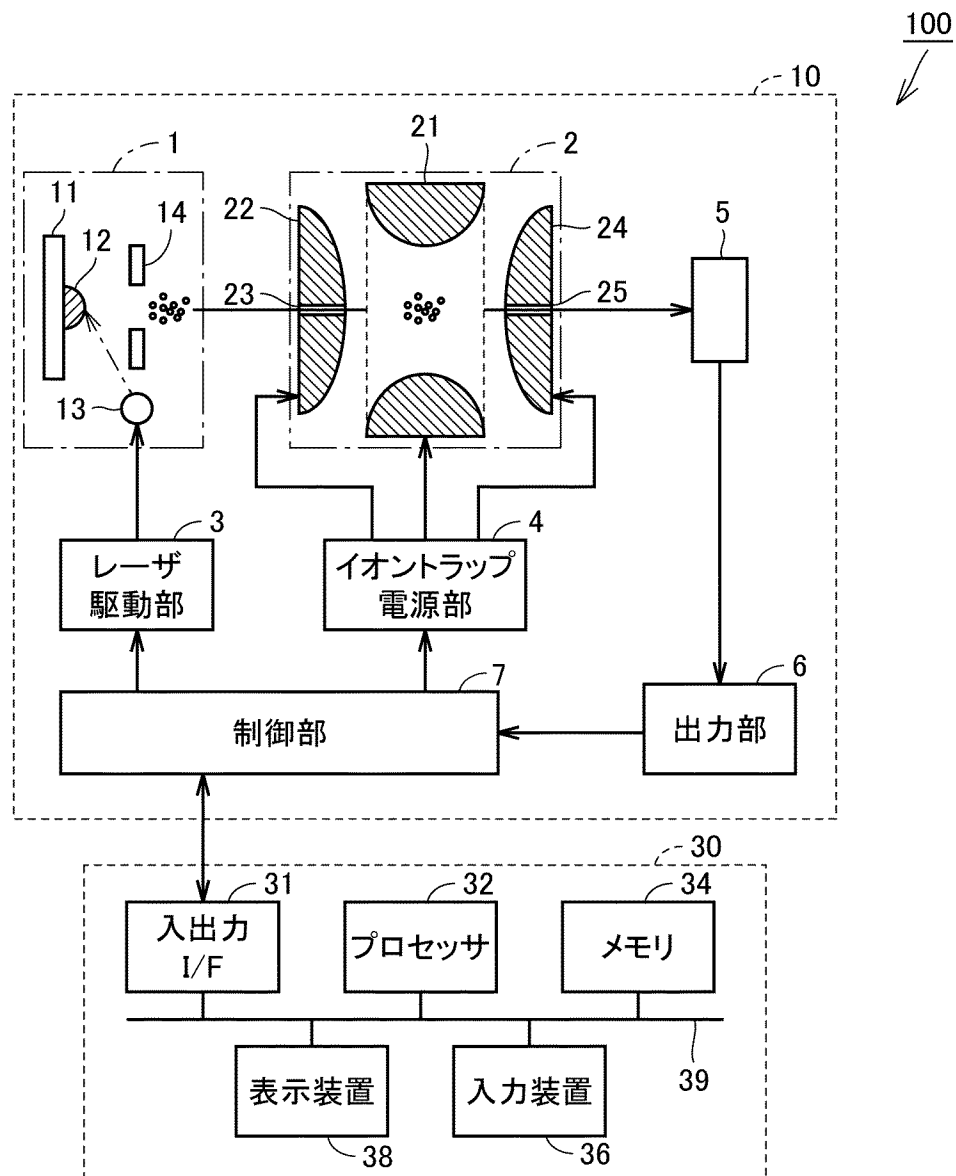
テップと、

前記複数のグループの各々について、当該グループに含まれる積算前マススペクトルを積算して部分積算マススペクトルを求めるステップと、

グループごとに求めた前記部分積算マススペクトルに応じた特定情報を表示装置に表示するステップとを含む、処理方法。

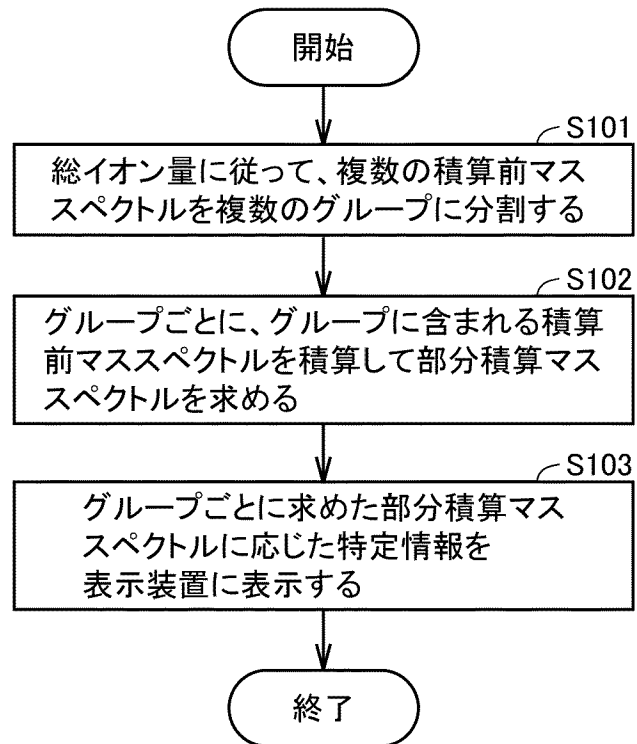
[図1]

FIG.1



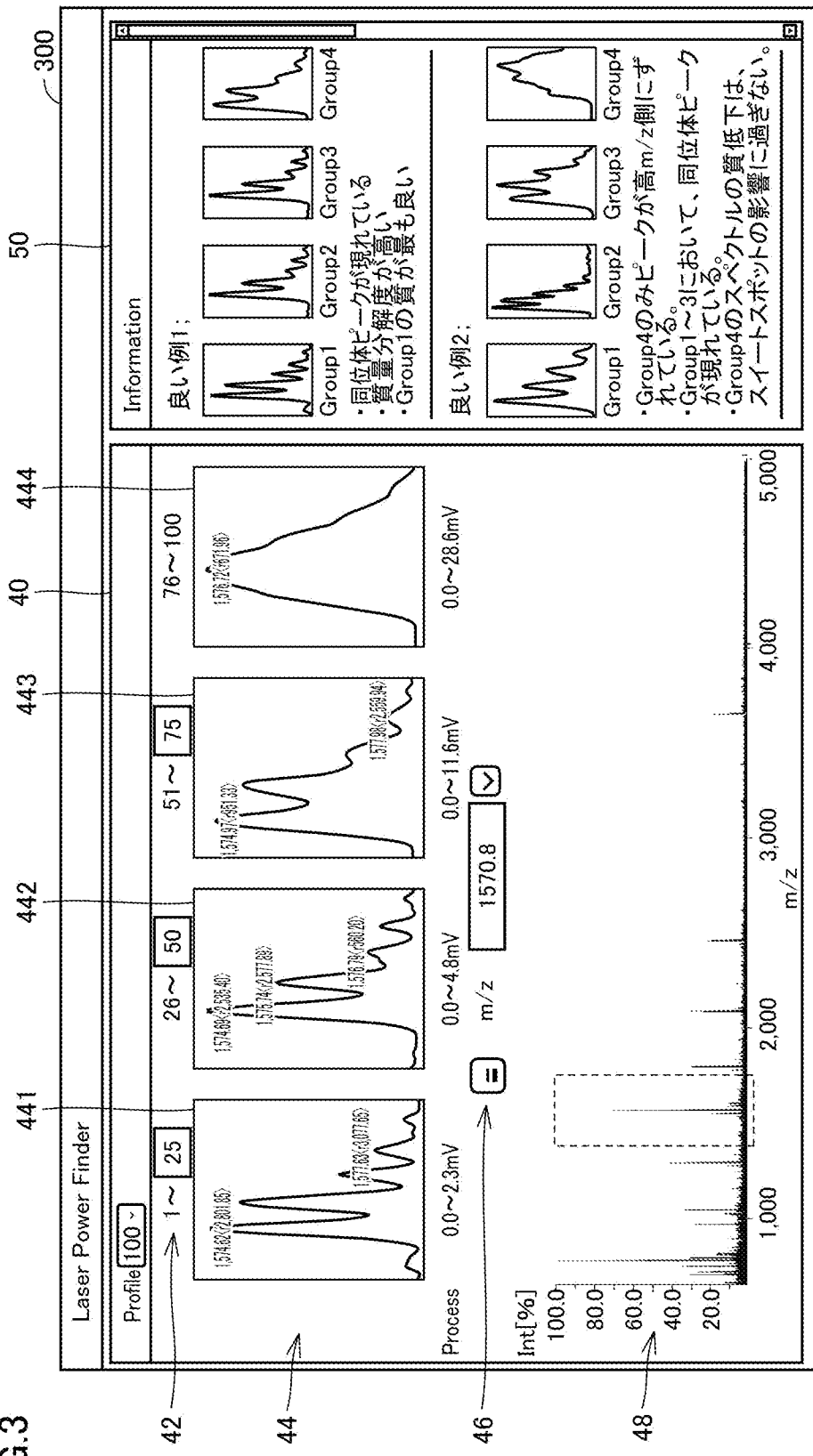
[図2]

FIG.2



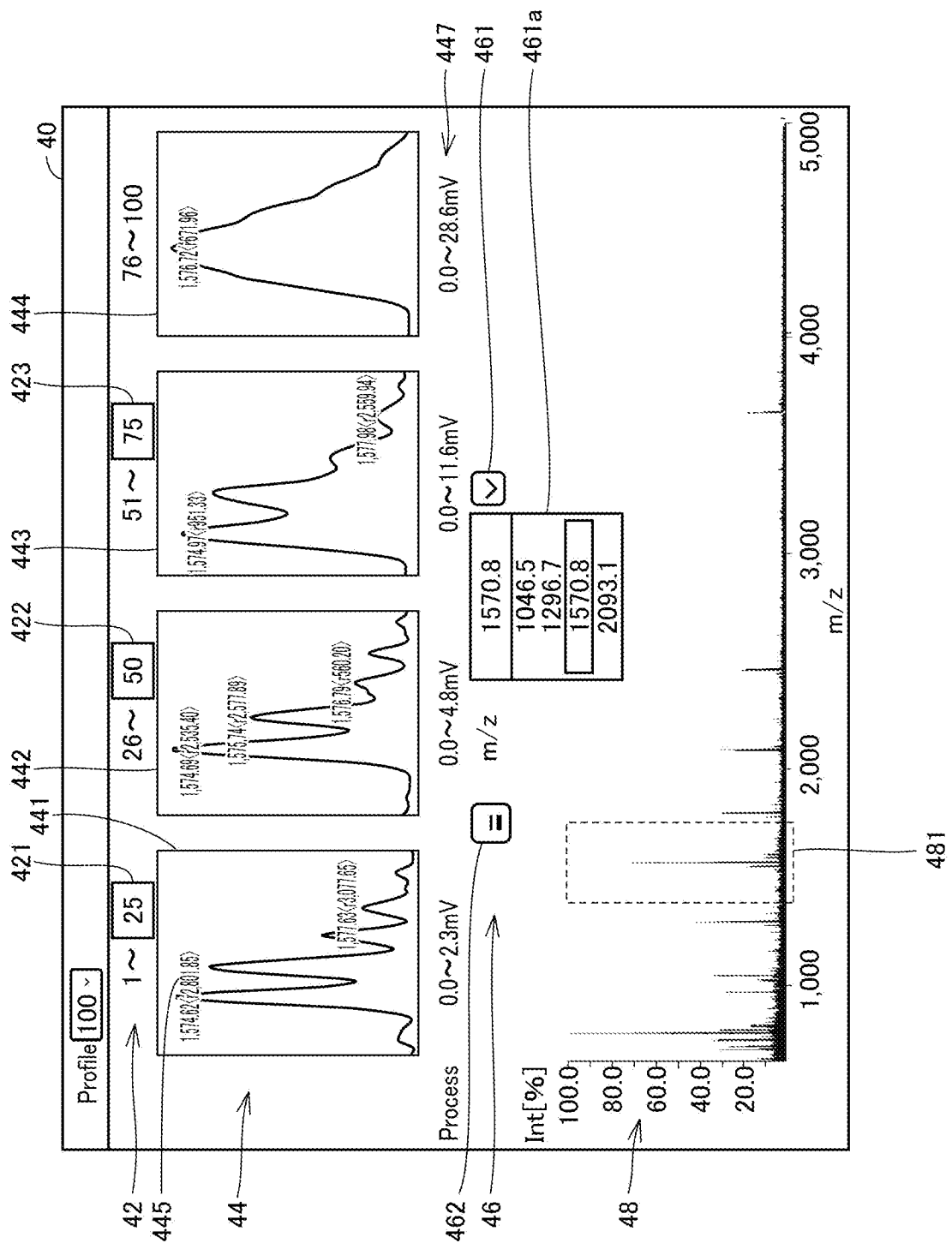
[図3]

FIG.3



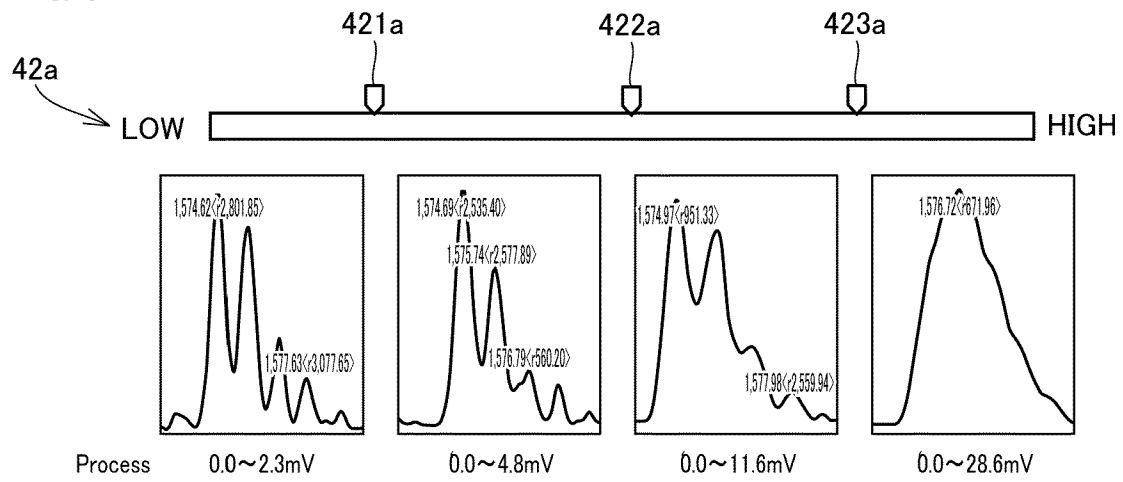
[図4]

FIG.4



[図5]

FIG.5



[図6]

FIG.6

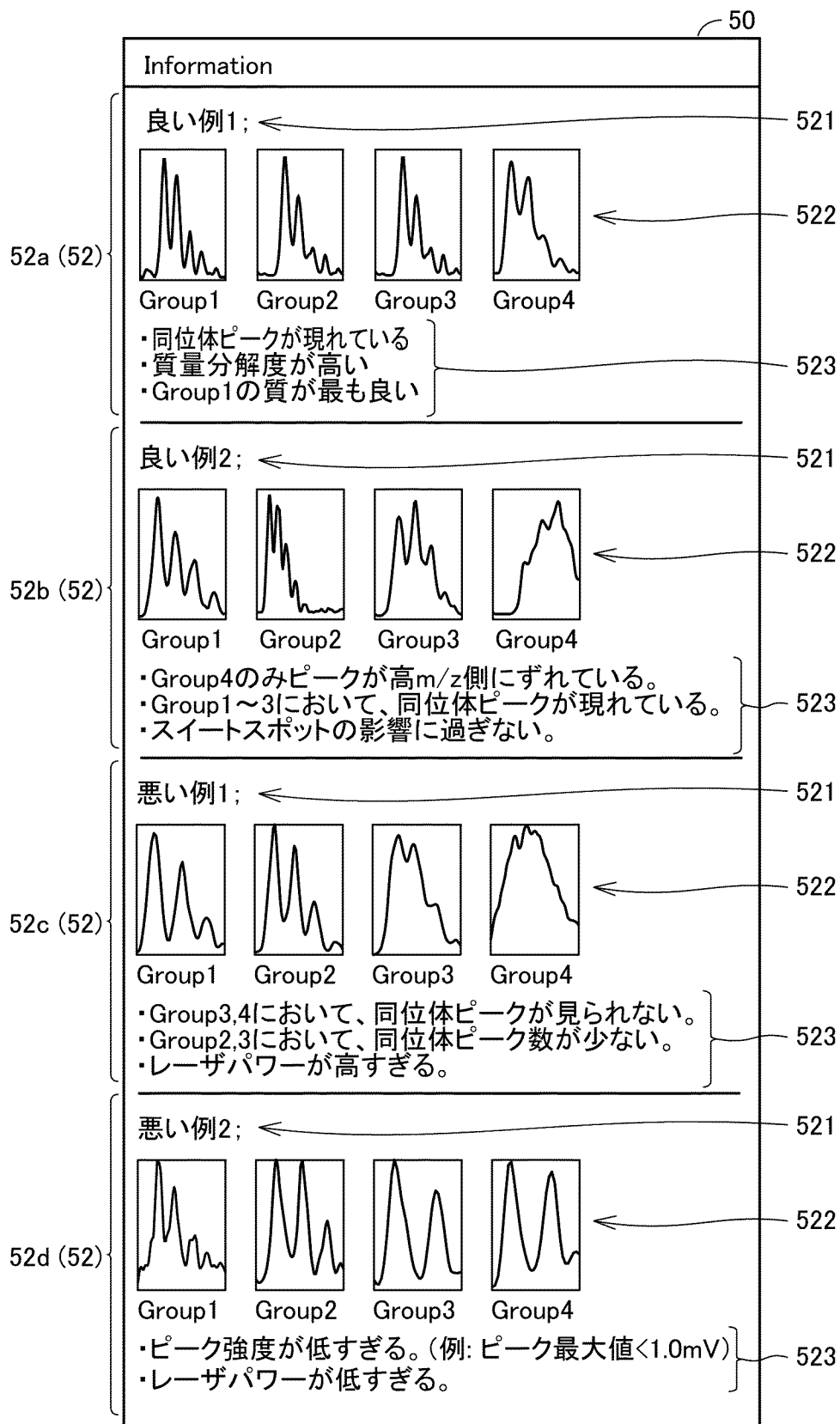
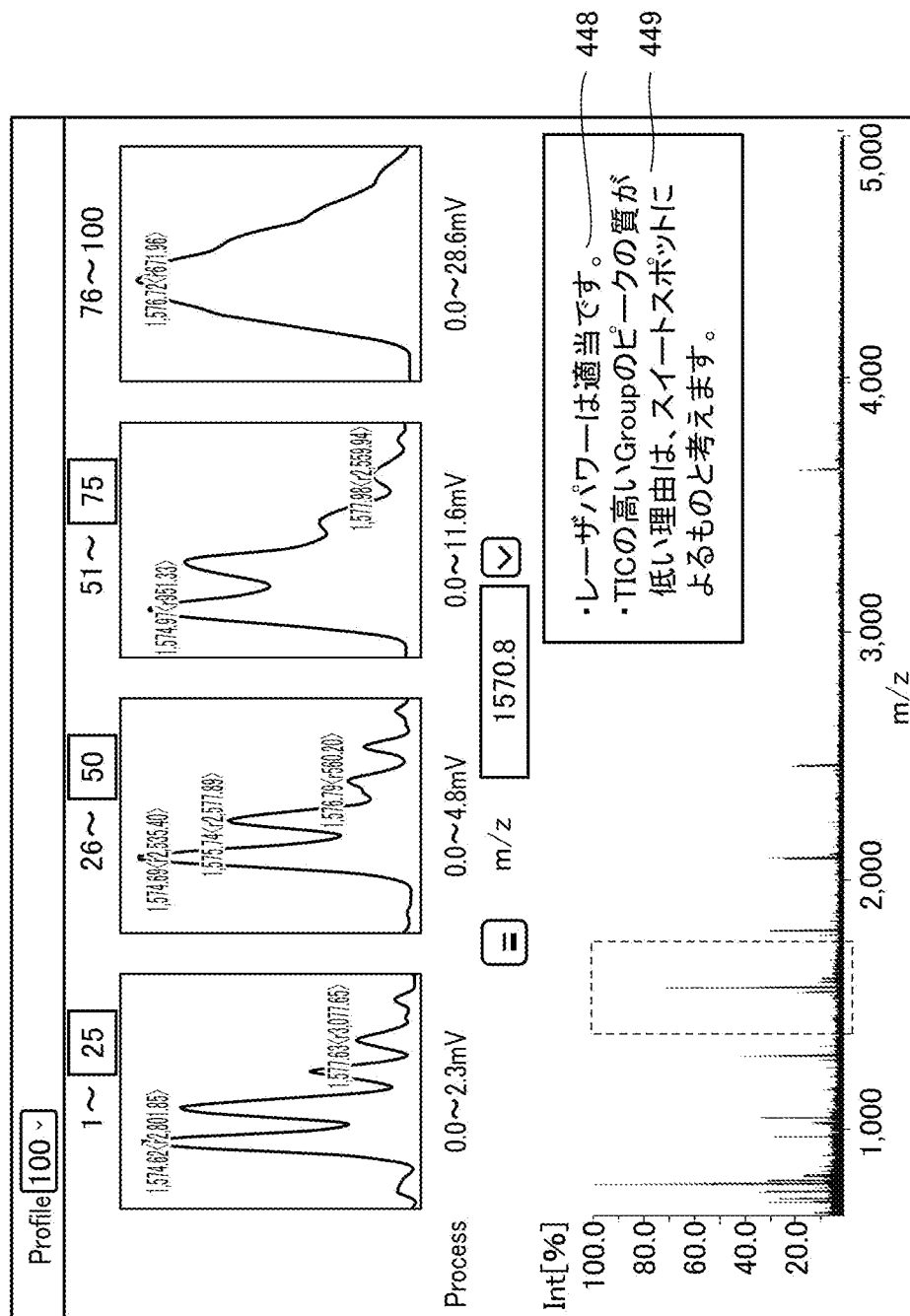


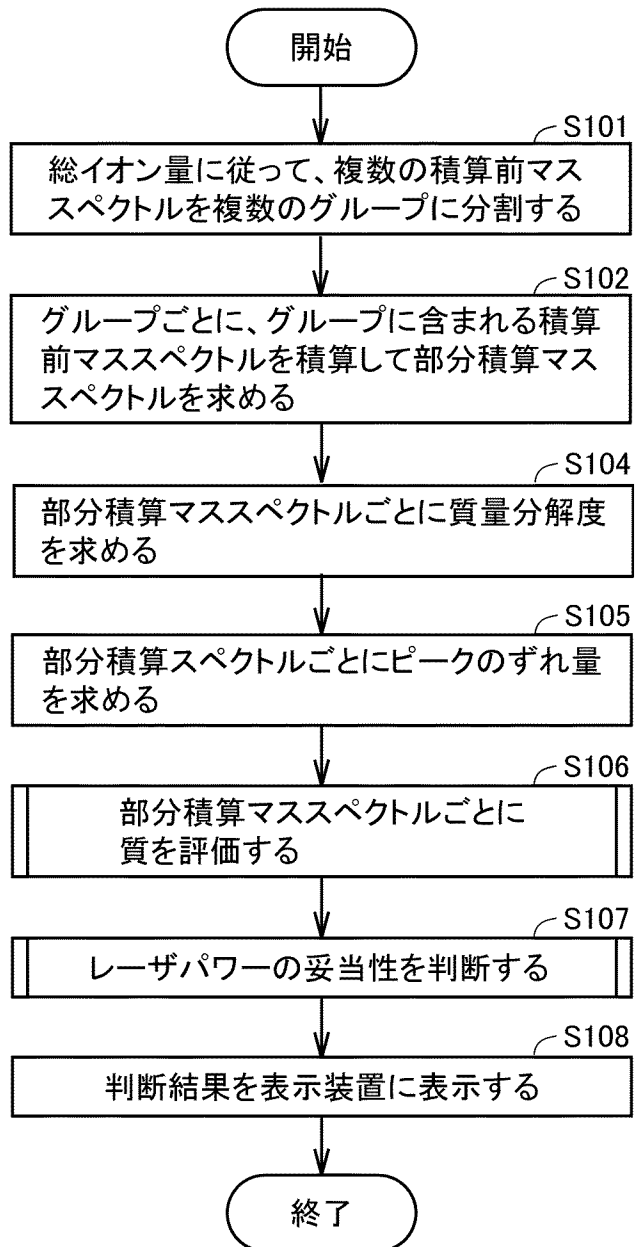
FIG.7

[図7]



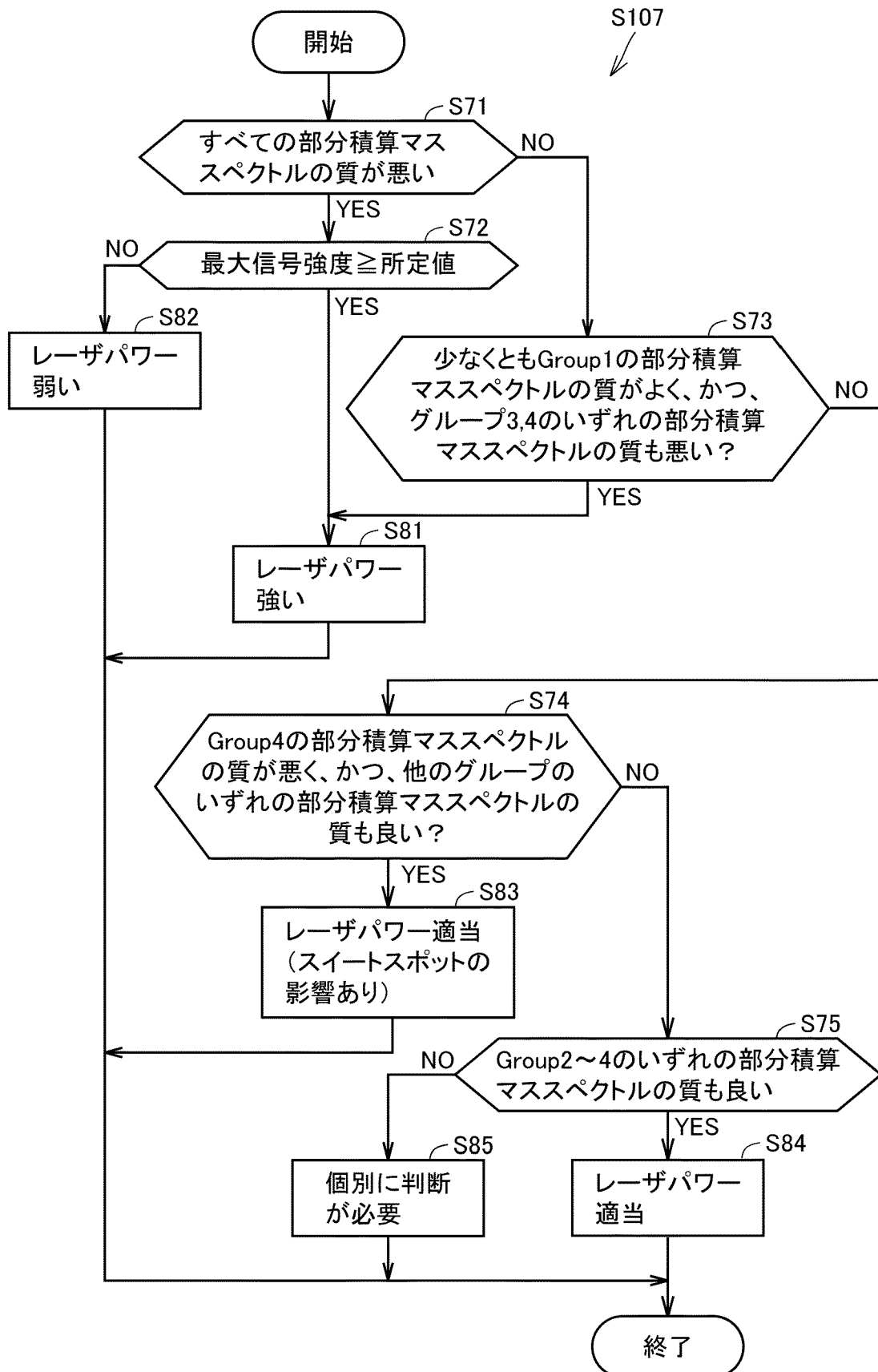
[図8]

FIG.8



[図9]

FIG.9



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/017902

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**G01N 27/62**(2021.01)i; **H01J 49/00**(2006.01)i; **H01J 49/16**(2006.01)i; **H01J 49/42**(2006.01)i

FI: G01N27/62 E; G01N27/62 D; H01J49/00 360; H01J49/16 400; H01J49/42 400

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; H01J49/00; H01J49/16; H01J49/42

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024

Registered utility model specifications of Japan 1996-2024

Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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	JP 2020-077554 A (SHIMADZU CORPORATION) 21 May 2020 (2020-05-21) paragraphs [0001]-[0050], fig. 1-4	1-14
A	WO 2021/215038 A1 (SHIMADZU CORPORATION) 28 October 2021 (2021-10-28) paragraphs [0001]-[0077], fig. 1-17	1-14
A	JP 2019-132751 A (JEOL LTD.) 08 August 2019 (2019-08-08) paragraphs [0024]-[0080], fig. 1-12	1-14
A	JP 2015-516570 A (BIOSPARQ B.V.) 11 June 2015 (2015-06-11) paragraphs [0106]-[0226], fig. 2-13	1-14
A	WO 2018/173223 A1 (SHIMADZU CORPORATION) 27 September 2018 (2018-09-27) paragraph [0039], fig. 7	1-14

☐ 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

“D” document cited by the applicant in the international application

“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

29 May 2024

Date of mailing of the international search report

18 June 2024

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2024/017902

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2020-077554	A	21 May 2020	US 2020/0152438 A1 paragraphs [0001]-[0053], fig. 1-4	
				EP 3651184 A1	
WO	2021/215038	A1	28 October 2021	US 2023/0132727 A1 paragraphs [0001]-[0121], fig. 1-17B	
				EP 4141434 A1	
				CN 115461838 A	
JP	2019-132751	A	08 August 2019	(Family: none)	
JP	2015-516570	A	11 June 2015	US 2015/0066377 A1 paragraphs [0123]-[0232], fig. 2-13	
				WO 2013/154425 A1	
				EP 2836958 A1	
				NL 2009015 C	
				CN 104380311 A	
				RU 2014145011 A	
				IN 9363DEN2014 A	
				BR 112014025246 A	
				NL 2009015 C2	
WO	2018/173223	A1	27 September 2018	US 2020/0035479 A1 paragraph [0054], fig. 7	
				EP 3605077 A1	
				CN 110506205 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

G01N 27/62(2021.01)i; H01J 49/00(2006.01)i; H01J 49/16(2006.01)i; H01J 49/42(2006.01)i
FI: G01N27/62 E; G01N27/62 D; H01J49/00 360; H01J49/16 400; H01J49/42 400

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））

G01N27/62; H01J49/00; H01J49/16; H01J49/42

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 - 2024年
日本国実用新案登録公報 1996 - 2024年
日本国登録実用新案公報 1994 - 2024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	JP 2020-077554 A（株式会社島津製作所） 21.05.2020（2020 - 05 - 21） [0001]-[0050], 図1-4	1-14
A	WO 2021/215038 A1（株式会社島津製作所） 28.10.2021（2021 - 10 - 28） [0001]-[0077], 図1-17	1-14
A	JP 2019-132751 A（日本電子株式会社） 08.08.2019（2019 - 08 - 08） [0024]-[0080], 図1-12	1-14
A	JP 2015-516570 A（ビオスパーク・ベー・フェー） 11.06.2015（2015 - 06 - 11） [0106]-[0226], 図2-13	1-14
A	WO 2018/173223 A1（株式会社島津製作所） 27.09.2018（2018 - 09 - 27） [0039], 図7	1-14

☐ 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
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“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
“I” 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抵触するものではなく、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
29.05.2024

国際調査報告の発送日
18.06.2024

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

権限のある職員（特許庁審査官）

三宅 克馬 2W 1571

電話番号 03-3581-1101 内線 3258

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2024/017902

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2020-077554	A	21.05.2020	US	2020/0152438	A1	
				[0001]-[0053], FIGs. 1-4			
				EP	3651184	A1	

WO	2021/215038	A1	28.10.2021	US	2023/0132727	A1	
				[0001]-[0121], Figs. 1-17B			
				EP	4141434	A1	
				CN	115461838	A	

JP	2019-132751	A	08.08.2019	(ファミリーなし)			

JP	2015-516570	A	11.06.2015	US	2015/0066377	A1	
				[0123]-[0232], FIGs. 2-13			
				WO	2013/154425	A1	
				EP	2836958	A1	
				NL	2009015	C	
				CN	104380311	A	
				RU	2014145011	A	
				IN	9363DEN2014	A	
				BR	112014025246	A	
				NL	2009015	C2	

WO	2018/173223	A1	27.09.2018	US	2020/0035479	A1	
				[0054], FIG. 7			
				EP	3605077	A1	
				CN	110506205	A	
