

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月17日現在

機関番号：16201

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K19273

研究課題名(和文) エネルギー分散型蛍光X線分析(EDX)の法医実務への応用

研究課題名(英文) Application of energy dispersive X-ray spectrometry (EDX) in forensic practice

研究代表者

田中 直子 (Tanaka, Naoko)

香川大学・医学部・講師

研究者番号：60700052

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：エネルギー分散型蛍光X線分析(EDX)の法医実務における有用性について検討した。剖検例の蝶形骨洞内貯留液をEDXで測定したところ、海水溺死事例の試料中より高濃度の塩素および臭素を検出し、蝶形骨洞内貯留液を用いた検査が海水溺死の判断の一助となる可能性が示唆された。次に、感電モデル動物の皮膚をEDXで測定したところ、通電導体として使用した金属の金属化現象がみられ、肉眼で確認できない電流斑の証明がEDXにより容易にできた。また、射創がみられた剖検例において射入口と射出口の皮膚をEDXで測定したところ、射入口の皮膚片より弾丸の成分が検出され、射入口と射出口の鑑別ができる可能性が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

エネルギー分散型蛍光X線分析(EDX)が法医実務に有用であるか検討したところ、溺死水域の推定、感電事例における通電導体の証明、射創における射入口と射出口の鑑別、体内の異物の同定、薬物、毒物摂取のスクリーニング検査等に関して有用であると考えられた。EDXは試料の前処理が不要で、簡単、迅速に多元素同時分析が可能であり、装置は比較的小型である。EDXを法医実務に応用することによりさらなる診断精度の向上が期待できる。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the usefulness of energy dispersive X-ray fluorescence spectrometry (EDX) for forensic practice. We detected both chlorine and bromine in liquid taken from the sphenoid sinus of seawater drowning victims by EDX. Detection of these elements from the liquid in the sphenoid sinus of drowning victims may be useful as a supportive measure for seawater drowning. We analyzed of skin samples by EDX in experimental electrocution. A relatively high peak of the metal, which was used as an electrical conductor, was detected in skin samples of the exposure group by EDX. EDX analysis is useful for the proof of metallization in electrocution, even where it is not identified on morphological examination. We investigated gunshot wounds in autopsy cases using EDX. Relatively high peak of metallic elements, which are found in bullets, were detected in the entrance wound compare to exit wound. EDX analysis may be also useful for differentiating entrance from exit wounds using EDX.

研究分野：法医学

キーワード：エネルギー分散型蛍光X線分析(EDX) 溺死 感電 射創 異物 薬物摂取

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

法医学実務では損傷や窒息をはじめ、様々な外因による死亡事例を対象としている。中毒死の事例では機器分析を駆使して原因物質の同定や定量を行なっているが、損傷や窒息による死亡事例においてもそれぞれの病態に応じた詳細な検査が行われる。迅速で的確な検査が求められるが、現在の方法では結果の確認までに時間を要し、スクリーニング検査には適していないものもある。例えば、感電死の事例では、導体の接触を証明する目的で、接触部分の皮膚に生じる銹性変化を確認するため、皮膚組織を用いて組織化学的検索や電子顕微鏡による検索を行っている。しかしこれら従来から用いられている方法では結果の確認までに時間を要する。そこで、操作が簡便で、短時間に多種類の元素を同時に分析可能なエネルギー分散型蛍光 X 線分析 (EDX) が法医学実務に有用であるか検討した。

2. 研究の目的

EDX は、短時間に多種類の元素分析を行うことができる。操作も簡便であるが、法医学領域での応用に関する報告や検討は少ない。そこで、本研究では法医学実務で用いる各種の検査における EDX の応用を検討した。具体的には、剖検例の溺死事例で比較的多くみられる蝶形骨洞内貯留液の元素分析から、海水溺死と淡水溺死の場合の違いを確認でき、溺死水域の推定に応用できるか、ラットを用いて実験的に作成した感電事例において、採取した皮膚の元素分析から導体との接触による金属化現象を迅速に証明できるか、薬物中毒事例の胃内容の元素分析から、スクリーニング検査として活用可能かについて検討した。

3. 研究の方法

(1) 剖検例で採取した蝶形骨洞内貯留液を試料として EDX で測定する。対照例、海水溺死事例、淡水溺死事例それぞれの試料中の元素のうち、海水に多く含まれる塩素および臭素の濃度を定量する。濃度の多寡と溺死場所に関する情報、プランクトン検査などの結果をふまえ、溺死水域の推定に有用であるかどうか検討した。

(2) 感電事例に関しては、Wistar 系のラット (6-8 週齢) を用いて感電モデルを作成した。麻酔下で皮膚を剃毛し、電極を接触させた。電圧および通電時間を変えることで電流による皮膚障害の程度を変化させることができる。通電後、通電部位の皮膚を採取し 2 分割した。一方は従来通りの組織切片を作成した。残りの半分の試料は EDX で測定し、従来の方と比較した。

(3) 射創がみられた剖検例に 2 例において、それぞれ射入口および射出口の皮膚を採取し固定後に EDX を用いて測定し、検出された元素を比較した。

(4) 外科手術時に消化管壁より採取された細長い異物や、死後 CT 検査で脳表面に高吸収域がみられた剖検例において、同部に付着していた黄色顆粒、さらに、死後 CT 検査で消化管内に高吸収域がみられた剖検例 2 例において、消化管内の褐色の糞石様のものあるいは白色結石を EDX で測定し、検出された元素からこれら異物の同定を行った。

(5) 薬物中毒と診断された剖検例の胃内容物を採取し、EDX を用いて点滴法にて測定し、検出された元素からスクリーニング検査としての有用性を検討した。

(6) 点滴法でヒ素を測定し、最低検出感度を検討した。

4. 研究成果

(1) 溺死事例での水域推定に関する検討について、剖検例において、溺死事例 22 例と非溺死事例 11 例の蝶形骨洞内貯留液を採取し、EDX にて測定した。海水溺死事例の蝶形骨洞内貯留液より塩素および臭素を検出した。淡水溺死事例における蝶形骨洞内貯留液中の塩素および臭素はいずれも定量下限未満であった。蝶形骨洞内貯留液から塩素および臭素を検出することが海水溺死の判断の一助となる可能性が示唆された。

(2) 感電モデルにおける導体金属の同定法に関する検討について、ラットを用いた動物実験において、ホルマリン固定した皮膚より導体金属として用いた銅を EDX にて検出し、スクリーニング検査としての有用性が明らかとなった。同皮膚の組織標本から熱傷の所見は確認できるものの、金属自体を証明するための組織染色は検出率が下がる。今回の結果から、肉眼で金属化現象の証明が困難な通電導体の証明にも EDX が有用であることが明らかになった。

(3) 射創がみられた剖検例に 2 例において、それぞれ射入口および射出口の皮膚を採取し固定後に EDX を用いて測定した。射入口の皮膚片より弾丸の成分である鉛、銅、アンチモンのピークが検出された。射出口の皮膚片ではこれらの元素は検出下限以下であった。この結果から、創口の形態的なのみではなく、EDX で皮膚片を測定し弾丸成分の検出程度により射入口と射出口の鑑別ができる可能性が示唆された。

(4) 外科手術時に消化管壁より採取された細長い異物を EDX で測定したところ、カルシウム、リン、硫黄の比較的高いピークが検出された。割合はそれぞれ 64.3%、22.1%、5.9% であり、これらの元素の構成割合と組織検査の結果もふまえて、異物は骨であることが明らかとなった。異物の同定に EDX が有用であると考えられた。

(5) 薬物中毒と診断された剖検例の胃内容物を採取し、EDX を用いて点滴法にて測定したところ、チタンとケイ素の比較的高いピークが検出され、マグネシウムのピークもみられた。本事例からは数種類の薬物が検出されており、これらの錠剤には滑沢剤や遮光剤、コーティング剤として酸化チタンやケイ酸、ステアリン酸マグネシウムなどが使用されている。胃内容物の EDX 分析

にてこれらの元素を検出したことから、薬物摂取のスクリーニング検査のひとつとして有用であると考える。

(6)死後 CT 検査で脳表面に高吸収域がみられた剖検例において、同部に付着していた黄色顆粒を EDX で測定したところ、ヨウ素の高いピークが検出された。ヨウ素は古くから造影剤に利用されており、この顆粒は 30 年以上前に受けた脊椎造影剤検査で用いられた油性造影剤の遺残物であると考えられた。この所見がみられた場合は比較的高齢であると推察でき、身元不明事例において年齢推定の一助となる可能性がある。さらに、死後 CT 検査で消化管内に高吸収域がみられた剖検例 2 例において、消化管内の褐色の糞石様のものあるいは白色結石を EDX で測定したところ、バリウムの高いピークが得られた。消化管造影検査後のバリウム遺残による合併症の報告は多いが、成分がバリウムであることを証明した事例は少ない。バリウム製剤の誤嚥による死亡例や医原性の硫酸バリウム肺塞栓なども報告されており、より正確な死因究明のためには原因物質の確認が重要であり、EDX が有用であると示唆された。

(7)EDX を用いて点滴法でヒ素の検量線を作成した .10-1000 $\mu\text{g}/\text{ml}$ の範囲で直線性が得られ、検出下限は 5 $\mu\text{g}/\text{ml}$ であった。血液中のヒ素の検出は難しいが、胃内容のヒ素の測定には活用でき、法医学分野に応用できる。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 27 件)

1. [Tanaka N](#), Takakura A, Miyatake N, Jamal M, Ito A, Kumihashi M, Tsutsui K, Ameno K, Kinoshita H. Comparison of histological findings and the results of energy-dispersive X-ray fluorescence spectrometry analysis in experimental electrical injury. *Leg Med.* 31 : 20-23, 2018. 査読有
2. [Tanaka N](#), Kinoshita H, Takakura A, Ohbayashi Y, Jamal M, Ameno K. Forensic odontological application for dental restorations in case of skeletal remains using energy-dispersive X-ray fluorescence spectrometry. *The Albanian Journal of Medical and Health Science.* 49 : in press, 2018. 査読有
3. [田中直子](#), 安賀文俊, 高倉彩華, モストファ ジャーマル, 筒井邦彦, 加茂和博, 組橋 充, 飴野 清, 木下博之. バリウム遺残の 2 例. *法医病理* 24 : 57-60, 2018. 査読有
4. [田中直子](#), 木下博之. エネルギー分散型蛍光 X 線分析(EDX)の法医病理学への応用. *法医病理* 24 : 130-137, 2018. 査読有
5. [Tanaka N](#), Takakura A, Kumihashi M, Jamal M, Ito A, Kimura S, Tsutsui K, Ameno K, Kinoshita H. Application of energy-dispersive X-ray fluorescence spectrometry (EDX) for arsenic identification in stomach contents. *Curr Study Environ Med Sci.* 10 : 10-13, 2017. 査読有
6. [Tanaka N](#), Takakura A, Kumihashi M, Jamal M, Ito A, Kimura S, Tsutsui K, Ameno K, Kinoshita H. Application of energy-dispersive X-ray fluorescence spectrometry (EDX) in forensics - titanium, silicon and magnesium in the stomach contents as good indicators for ingestion of pharmaceutical tablets. *Rom J Leg Med.* 25 : 89-91, 2017. 査読有
7. Kinoshita H, [Tanaka N](#), Takakura A, Kumihashi M, Jamal M, Ito A, Tsutsui K, Kimura S, Matsubara S, Ameno K. Flunitrazepam in stomach contents may be a good indicator of its massive ingestion. *Rom J Leg Med.* 25 : 193-195, 2017. 査読有
8. Takakura A, [Tanaka N](#), Omiya T, Omori H, Hirasaki A, Jamal M, Ito A, Ishimoto S, Tsutsui K, Kimura S, Ameno K, Kinoshita H. Spectrophotometric measurement of boric acid in a case of accidental ingestion. *The Albanian Journal of Medical and Health Sciences.* 48 : 49-53, 2017. 査読有
9. Kinoshita H, [Tanaka N](#), Takakura A, Abe H, Kumihashi M, Shibayama T, Jamal M, Ito A, Tsutsui K, Kimura S, Iwase H, Ameno K. An autopsy case of death by combined use of benzodiazepines and diphenidine. *Soud Lek.* 62 : 40-43, 2017. 査読有
10. [Tanaka N](#), Kinoshita H, Takakura A, Jamal M, Kumihashi M, Ito A, Tsutsui K, Kimura S, Matsubara S, Ameno K. Application of sensor gas chromatography for the determination of hydrogen gas in forensic medicine. *Review of Albanian Legal Medicine.* 13 : 57-63, 2017. 査読有
11. [田中直子](#), 安賀文俊, 高倉彩華, モストファ ジャーマル, 伊藤明日香, 組橋 充, 飴野清, 木下敏史, 戸上太郎, 影山淳一, 木下博之. 油性造影剤遺残の 1 例. *法医病理.* 23 : 29-32, 2017. 査読有
12. Jamal M, Ameno K, Miki T, [Tanaka N](#), Ito A, Ono J, Takakura A, Kumihashi M, Kinoshita H. Ethanol and acetaldehyde differentially alter extracellular dopamine and serotonin in Aldh2-knockout mouse dorsal striatum: A reverse microdialysis study. *NeuroToxicology.* 52 : 204-209, 2016. 査読有
13. [Tanaka N](#), Takakura A, Jamal M, Kumihashi M, Ito A, Ishimoto S, Tsutsui K, Kimura S, Ameno K, Kinoshita H. Stomach gas as a useful matrix for detecting ante-mortem gas exposure. A case of asphyxia by herium inhalation. *Rom J Leg Med.* 24 : 21-22, 2016. 査読有

14. Tanaka N, Takakura A, Jamal M, Kumihashi M, Ito A, Tsutsui K, Kimura S, Ameno K, Kinoshita H. Detection of kerosene in stomach contents - useful indicator of vital reaction. *Rom J Leg Med.* 24 : 128-130, 2016. 査読有
15. Tanaka N, Kinoshita H, Takakura A, Jamal M, Ito A, Kumihashi M, Tsutsui K, Kimura S, Ameno K. Distinction between entrance and exit wounds by energy dispersive X-ray fluorescence spectrometry. *Leg Med.* 22 : 5-8, 2016. 査読有
16. Kinoshita H, Tanaka N, Takakura A, Kumihashi M, Jamal M, Ito A, Kimura S, Tsutsui K, Nagasaki Y, Matsubara S, Ameno K. Detection of butane metabolites as an indicator of butane abuse. *Rom J Leg Med.* 24 : 216-218, 2016. 査読有
17. Tanaka N, Kinoshita H, Takakura A, Wakabayashi A, Sudo H, Okano K, Suzuki Y. Application of energy dispersive X-ray fluorescent spectrometry (EDX) for the identification of a foreign body. *Review of Albanian Legal Medicine* 12 : 67-71, 2016. 査読有
18. Jamal M, Ameno K, Tanaka N, Ito A, Takakura A, Kumihashi M, Kinoshita H. Ethanol and acetaldehyde after intraperitoneal administration to Aldh2-knockout mice-reflection in blood and brain levels. *Neurochem Res.* 41 : 1029-1034, 2016. 査読有
19. 田中直子, 花田真理子, 平野成則, 高倉彩華, モストファ ジャーマル, 伊藤明日香, 組橋 充, 筒井邦彦, 木村正司, 飴野 清, 石丸伊知郎, 木下博之. センサガスクロマトグラフを用いた青酸の測定. *法医病理.* 22 : 79-82, 2016. 査読有
20. Tanaka N, Kinoshita H, Takakura A, Jamal M, Kumihashi M, Uchiyama Y, Tsutsui K, Ameno K. Combination of energy-dispersive X-ray fluorescence spectrometry (EDX) and head-space gas chromatography mass spectrometry (HS-GC/MS) is a useful screening tool for stomach contents. *Rom J Leg Med.* 23 : 43-44, 2015. 査読有
21. Kinoshita H, Tanaka N, Jamal M, Kumihashi M, Takakura A, Tobiume T, Tsutsui K, Ameno K. A fatal case of poisoning with ethanol and psychotropic drugs with putrefactive changes. *Soud Lek.* 60 : 25-27, 2015. 査読有
22. Tanaka N, Kinoshita H, Jamal M, Takakura A, Kumihashi M, Miyatake N, Ameno K. Squeezed splenic blood sampling as an alternative method for carboxyhemoglobin measurement. *Rom J Leg Med.* 23 : 106-108, 2015. 査読有
23. Tanaka N, Kinoshita H, Jamal M, Takakura A, Kumihashi M, Miyatake N, Tsutsui K, Ameno K. Detection of chlorine and bromine in free liquid from the sphenoid sinus as an indicator of seawater drowning. *Leg Med.* 17 : 299-303, 2015. 査読有
24. Tanaka N, Miyatake N, Kinoshita H, Fukunaga T. Correlation between death while bathing and meteorological parameters in the 23 wards of Tokyo. *Rom J Leg Med.* 23 : 167-170, 2015. 査読有
25. Kinoshita H, Tanaka N, Takakura A, Kumihashi M, Jamal M, Ito A, Tsutsui K, Kimura S, Matsubara S, Ameno K. Multiple drug poisoning case caused by a pharmacokinetic interaction involving paroxetine. *Rom J Leg Med.* 23 : 208-210, 2015. 査読有
26. Kinoshita H, Tanaka N, Jamal M, Takakura A, Kumihashi M, Tobiume T, Tsutsui K, Ameno K. A color test for the convenient identification of an ingested surface activating agent. *Soud Lek.* 60 : 40-42, 2015. 査読有
27. Kinoshita H, Tanaka N, Takakura A, Kumihashi M, Jamal M, Ito A, Tsutsui K, Kimura S, Nagano T, Matsubara S, Ameno K. Analysis of stomach contents by head-space gas chromatography/mass spectrometry to screen for ingestion of insecticide. *Review of Albanian Legal Medicine.* 11 : 85-89, 2015. 査読有

〔学会発表〕(計 17 件)

1. Tanaka N, Takakura A, Jamal M, Ito A, Kimura S, Ameno K, Kinoshita H. Application of energy dispersive X-ray fluorescence spectrometry (EDX) in forensic practice -foreign bodies-. 24th Congress of the International Academy of Legal Medicine (IALM). Fukuoka. 2018.
2. Tanaka N, Takakura A, Kumihashi M, Jamal M, Ito A, Kimura S, Tsutsui K, Ameno K, Kinoshita H. Application of energy dispersive X-ray fluorescence spectroscopy (EDX) in the stomach contents; a good indicator for ingestion of pharmaceutical tablets. 10th International Symposium Advances in Legal Medicine (ISALM). Dusseldorf, Germany. 2017.
3. Kinoshita H, Tanaka N, Takakura A, Kumihashi M, Jamal M, Ito A, Kimura S, Tsutsui K, Ameno K,. Direct measurement of tissue sample by energy dispersive X-ray fluorescent spectrometry (EDX) for the identification of metal deposition in case of electrocution. 10th International Symposium Advances in Legal Medicine (ISALM). Dusseldorf, Germany. 2017.
4. Jamal M, Ito A, Tanaka N, Takakura A, Ameno K, Kinoshita H. The role of apolipoprotein E and the ethanol exposure in age-related changes in choline acetyltransferase and brain-derived neurotrophic factor in the mouse hippocampus. 19th International Society of Addiction Medicine. Abu Dhabi, UAE. 2017.

5. モストファ ジャーマル, 伊藤明日香, 田中直子, 飴野 清, 高倉彩華, 木下博之. ApoE deficiency and ethanol decrease in ChAT and BDNF age-dependently in the mouse hippocampus. 第 101 次日本法医学会学術全国集会. 岐阜. 2017.
6. 田中直子, 高倉彩華, モストファ ジャーマル, 伊藤明日香, 組橋 充, 木村正司, 飴野 清, 木下博之. センサガスクロマトグラフによる血液中の青酸測定. 第 101 次日本法医学会学術全国集会. 岐阜. 2017.
7. 木下博之, 田中直子, モストファ ジャーマル, 高倉彩華, 伊藤明日香, 飴野 清. 法医実務におけるアルコールの影響評価. 第 52 回日本アルコール・アディクション医学会学術総会. 横浜. 2017.
8. 田中直子, 高倉彩華, モストファ ジャーマル, 伊藤明日香, 組橋 充, 筒井邦彦, 木村正司, 飴野 清, 木下博之. 蛍光 X 線分析による胃内容測定の有用性 -薬物摂取の指標として-. 第 29 回日本中毒学会中四国地方会. 高知. 2017.
9. 田中直子, 高倉彩華, 榎野陽介, モストファ ジャーマル, 伊藤明日香, 木村正司, 加茂和博, 飴野 清, 岩瀬博太郎, 木下博之. 気道内異物の 1 剖検例. 第 34 回日本法医学会学術中四国地方集会. 松山. 2017.
10. 木下博之, 田中直子, 高倉彩華, 組橋 充, モストファ ジャーマル, 伊藤明日香, 木村正司, 加茂和博, 飴野 清. 覚せい剤検査における胆汁の有用性. 第 34 回日本法医学会学術中四国地方集会. 松山. 2017.
11. Kinoshita H, Tanaka N, Takakura A, Jamal M, Kumihashi M, Ito A, Ishimoto S, Tsutsui K, Kimura S, Ameno K. Matrix for detection of ante-mortem exposed gas in case of helium inhalation. International Academy of Legal Medicine, intersocial symposium P5 medicine & justice. Venice, Italy. 2016.
12. 石本沙樹, 田中直子, モストファ ジャーマル, 高倉彩華, 伊藤明日香, 組橋 充, 木村正司, 飴野 清, 木下博之. センサガスクロマトグラフによる青酸の測定. 第 100 次日本法医学会学術全国集会. 東京. 2016.
13. 田中直子, 木下博之, モストファ ジャーマル, 高倉彩華, 伊藤明日香, 石本沙樹, 組橋 充, 木村正司, 飴野 清. 蛍光 X 線分析法を用いた射創における射入口と射出口の鑑別. 第 100 次日本法医学会学術全国集会. 東京. 2016.
14. 木下博之, 田中直子, 高倉彩華, モストファ ジャーマル, 伊藤明日香, 木村正司, 飴野 清. 胃内容の薬物濃度測定の有用性. 第 33 回日本法医学会学術中四国地方集会. 広島. 2016.
15. 田中直子, 木下博之, 高倉彩華, モストファ ジャーマル, 伊藤明日香, 組橋 充, 筒井邦彦, 飴野 清. ヘリウムガス吸引による窒息の 1 剖検例. 第 28 回日本中毒学会中四国地方会. 宇部. 2016.
16. Kinoshita H, Tanaka N, Takakura A, Jamal M, Kumihashi M, Uchiyama Y, Tsutsui K, Ameno K. Combination of energy-dispersive X-ray fluorescence spectrometry (EDX) and head-space gas chromatography mass spectrometry (HS-GC/MS) is a useful screening tool for stomach contents. International Academy of Legal Medicine. Dubai, UAE. 2015.
17. 田中直子, 木下博之, ジャーマル モストファ, 高倉彩華, 組橋 充, 内山 勇, 木村正司, 飴野 清. 蛍光 X 線分析法を用いた感電時の皮膚への金属付着の検討. 第 99 次日本法医学会学術全国集会. 高知. 2015.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年:
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年:

国内外の別：

〔その他〕
なし

6．研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。