

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 29 日現在

機関番号：82505

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24790649

研究課題名(和文) 多種類の超高感度質量分析計を用いた指紋からの薬物検出と体液中濃度との相関の解明

研究課題名(英文) Detection of drugs in fingerprints using highly sensitive mass spectrometers and elucidation of relationship between drug concentrations in body fluids

研究代表者

桑山 健次 (Kawayama, Kenji)

科学警察研究所・法科学第三部・主任研究官

研究者番号：40356233

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,100,000円

研究成果の概要(和文)：現存する最高レベルの検出感度を有する多種類の質量分析計を用いて、薬物摂取後の手指表面(指紋)上に分泌される極微量の薬物の検出を試みるとともに、同時に採取した体液(尿、血液等)中の薬物濃度との相関を調べることで、現時点で指紋からの薬物検出が法科学における薬物検査にどの程度応用できるか検証した。風邪薬等を摂取して数日経過した後に採取した指紋から尿や血液と同様に薬物や代謝物を検出できた。また、一週間放置された遺留指紋から数種類の薬物を検出できた。指紋は、尿や血液に代わる採取が容易な生体資料となり得る。また、事件現場の遺留指紋から、特定人物の指紋付着時の薬物との関係性を明らかにできる可能性がある。

研究成果の概要(英文)：The method to detect drugs from fingerprints after drug administration using highly sensitive mass spectrometers was developed. Moreover, the relationship between drug concentrations in fingerprints, urine, and blood were examined. Several subjects took commercially available pharmaceutical products. Some drugs and their metabolites were detected in fingerprints as well as in urine and blood several days after. In addition, some drugs were detected in latent fingerprints left on materials for a week. Fingerprint could be a useful alternative specimen to urine and blood. Drug testing from latent fingerprints in the scene of crimes might elucidate the relationships between a particular person and drugs.

研究分野：薬物分析

キーワード：法医鑑定学 薬物鑑定学 質量分析 指紋

1. 研究開始当初の背景

(1) 殺人や強姦事件をはじめとした犯罪を立証するため、犯行現場から様々な試料が採取され、司法解剖や遺留試料の科学的検査が行われる。薬物関連犯罪が疑われる場合には、事件に関わる人物(被疑者、被害者、参考人等)から、尿や血液を採取することがある。しかしながら、尿や血液の採取には、様々な制約(医師や監視員の確保、被採取者からの抵抗等)があり、迅速な試料採取が困難な場合がある。その間刻一刻と体内の薬物は消失(代謝・排泄)されてしまい、薬物関連犯罪を見逃してしまう可能性がある。一方、個人識別のために事件関係者から指紋を採取する必要があるが、尿や血液の採取に比べるとその制約は少なく、専門性の高い知識や特殊な道具・設備を必要とせず、その場で簡単に採取できる。

(2) 事件関係者から採取された指紋からの薬物検出が可能となれば、犯行時点から余計な時間を経過しないうちに(体内から薬物が消失する前に)指紋を採取し、指紋採取時点での体内の薬物の存在を明らかにできる。また、犯行現場に残された遺留指紋は事件関係者についての有力な情報を与える。遺留指紋からの薬物検出が可能となれば、個人の特定とともに、その人物の指紋付着時点における薬物への関与(摂取・接触)を明らかにできる。

(3) これまで、手指表面(指紋)上に分泌される薬物は極微量であるため、検出は不可能と考えられてきた。一方、近年の分析機器の発展は目覚しく、とりわけ物質を特定するための高感度分析装置である質量分析計の検出感度は年々向上しており、現在では100アトグラム(=1京分の1グラム)程度の極微量の物質の検出に成功した例もある。こうした質量分析計の高感度化に伴い、従来不可能であった指紋からの薬物検出も現実味を帯びてきたことから本研究の着想に至った。近年、指紋からの薬物検出の報告例はあるが、条件が限定されている。

2. 研究の目的

現存する最高レベルの検出感度を有する多種類の質量分析計(各薬物に応じて選択)を用いて、薬物摂取後の手指表面(指紋)上に分泌される極微量の薬物の検出を試みるとともに、同時に採取した体液(尿、血液、唾液)中の薬物濃度との相関を調べることで、現時点で指紋からの薬物検出が法科学における薬物検査にどの程度応用できるか検証する。検出が可能となれば、指紋は尿や血液に代わる採取が容易な薬物検査のための生体試料になり得る。また、遺留指紋からの薬物検出は、個人の特定とともにその人物の指紋付着時の薬物使用を証明できるため、薬物関連犯罪の捜査から薬物鑑定まで幅広く応

用できる。本研究では、法科学における薬物検査への応用を目的として、様々な状況下での指紋採取を想定し、指紋から薬物を精度よく検出できるか検証する。

3. 研究の方法

(1) 事件関係者から指紋を直接採取することを想定し、ヒトへの薬物投与後、薬物の種類・摂取量、摂取後経過時間の違いによる指紋中薬物検出の有無及び経時変化を調べた。また、指紋中薬物量の結果と、指紋採取と同時に採取した体液(尿、血液、唾液)中薬物濃度との相関を調べ、法科学における薬物検査のための生体試料として、指紋の有用性を評価した。

嗜好品や市販薬(コーヒー、タバコ、総合感冒薬等)を一定量摂取

一定時間毎に、指紋を各種シート(スライドガラス、ろ紙等)に圧着
同時期に体液(尿、血液、唾液)を採取

各試料から薬物抽出・分析(GC/MS, LC/MS, MALDI/MS)

薬物及び代謝物の定性・定量、経時変化の測定

(2) 事件現場に遺留された指紋からの薬物検出を想定し、薬物の種類・摂取量、指紋付着物の材質、指紋検出法、転写シート等の組み合わせによる遺留指紋中薬物量の違いを調べた。

嗜好品や市販薬を一定量摂取

一定時間毎に、指紋を各種材質(ガラス、プラスチック等)の物体に圧着

各種指紋検出法(アルミニウム粉末等)で指紋を顕在化

各種シート(粘着シート等)に指紋を転写

転写シートから薬物抽出・分析(GC/MS, LC/MS, MALDI/MS)

薬物及び代謝物の定性・定量、各組み合わせでの薬物量の比較

得られたデータをもとに、指紋と体液から検出される薬物量や経時変化の相関、薬物の種類(酸性、中性、塩基性化合物等)による各試料中薬物量の違い等を総合的に解析し、どのような種類・量の薬物を摂取し、どのような状態(付着物体の材質、経過時間等)の指紋が採取されると、薬物を検出できるか検証結果を総括した。

4. 研究成果

(1) 事件関係者から指紋を直接採取することを想定し、ヒトへの薬物投与後、薬物の種類・摂取量、摂取後経過時間の違いによる指紋中薬物検出の有無及び経時変化を検討した。コーヒー、タバコ、風邪薬等を被験者に摂取してもらい、一定時間ごとに指紋、尿、血液、唾液を採取し、各試料から抽出した薬物を質量分析計で分析した(図1)。

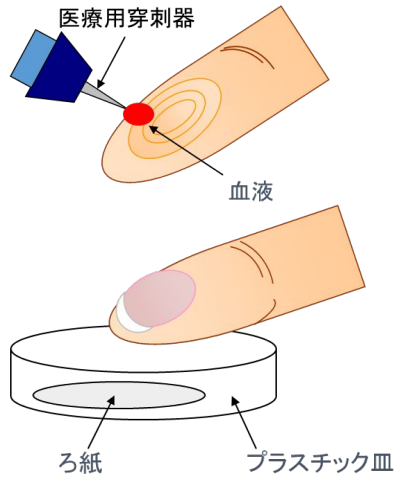


図1 血液及び指紋の採取方法

様々な質量分析計を用いて薬物の検出を試みた中で、液体クロマトグラフ-質量分析計が、検討した全ての薬物の検出に適していた。コーヒー摂取後に採取した指紋中のカフェイン及びその主代謝物パラキサンチン、喫煙後に採取した指紋中のニコチン及びその主代謝物コチニンの量は、摂取前と比べて有意に増加した。また、風邪薬を摂取して数日経過後に採取した指紋からも、尿や血液と同様に、摂取した薬物やその代謝物を検出できたことから、ヒトから直接採取した指紋からの薬物検出が可能であることが示された(図2)。

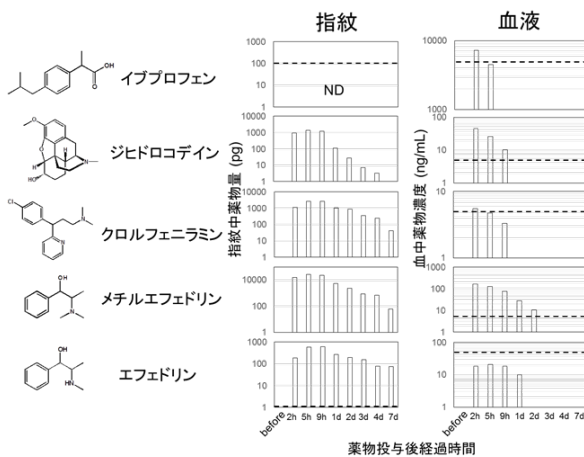


図2 風邪薬摂取後に指先から分泌された薬物量の経時変化

(2) 事件現場で採取された遺留指紋からの薬物検出を想定し、様々な物体に指紋を付着させ、一般的な指紋採取方法により遺留指紋を転写したシートから効率的に薬物を抽出する方法を検討した。喫煙者の指をガラスやプラスチックに圧着させ、アルミニウム粉末でその指紋を顕在化した後、粘着シートにより指紋を採取した。そのシート上の指紋付着部でピペット内の溶媒の吸引・吐出を繰り返すことで、外部に付着した汚染物の影響を受けずに指紋中の薬物を簡単に抽出でき(図3)、この抽出液を液体クロマトグラフ-質量分析計で分析するだけで、タバコ由来成分であるニコチンとその代謝物コチニンを検出できた。その量は非喫煙者の場合と比べて有意に大きかったことから、遺留指紋からの薬物検出の有用性が示された(図4)。

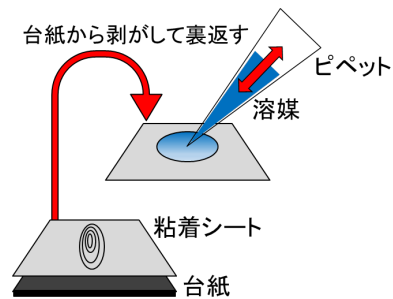


図3 指紋を転写した粘着シートからの薬物抽出法

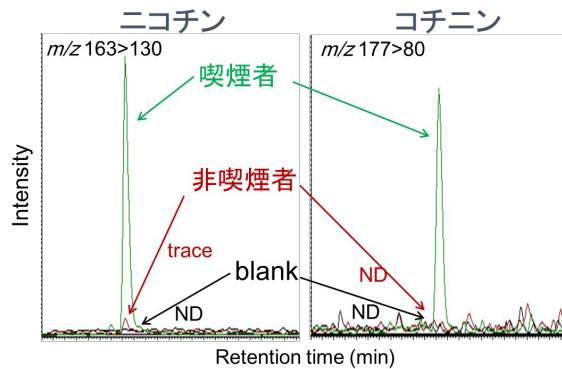


図4 喫煙者と非喫煙者の遺留指紋から検出されたニコチン及びその代謝物コチニンの量の違い

(3) 様々な状況下での遺留指紋からの薬物検出の可能性を評価するため、指紋付着物の材質、指紋の顕在化法、薬物抽出法等が薬物検出に与える影響を調べた。各種条件の違いにより、薬物の検出量が異なることが明らかとなったが、指紋の状態に応じた適切な薬物抽出法を用いることで、様々な状況下、遺留指紋から薬物を検出できることが実証された。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計5件)

桑山健次、山室匡史、辻川健治、金森達之、岩田祐子、井上博之、薬物検査に適した迅速・簡便な血液および唾液の採取法の検討 - 摂取薬物未変化体の検出を指向して - 、日本法科学技術学会誌、査読有、20、2015、83-92

DOI:10.3408/jafst.688

Hajime Miyaguchi, Kenji Kuwayama, Comparison of sample preparation methods for zolpidem extraction from hair, Forensic Toxicology、査読有、33、2015、159-164

DOI:10.1007/s11419-014-0256-3

Kenji Kuwayama, Tadashi Yamamuro, Kenji Tsujikawa, Hajime Miyaguchi, Tatsuyuki Kanamori, Yuko T. Iwata, Hiroyuki Inoue, Time-course measurements of drugs and metabolites transferred from fingertips after drug administration: Usefulness of fingerprints for drug testing, Forensic Toxicology、査読有、32、2014、235-242

DOI:10.1007/s11419-014-0228-7

Kenji Kuwayama, Tadashi Yamamuro, Kenji Tsujikawa, Hajime Miyaguchi, Tatsuyuki Kanamori, Yuko T. Iwata, Hiroyuki Inoue, Utilization of matrix-assisted laser desorption/ionization imaging mass spectrometry to search for cannabis in herb mixtures, Analytical and Bioanalytical Chemistry、査読有、406、2014、4789-4794

DOI:10.1007/s00216-014-7881-x

Kenji Kuwayama, Kenji Tsujikawa, Hajime Miyaguchi, Tatsuyuki Kanamori, Yuko T. Iwata, Hiroyuki Inoue, Time-course measurements of caffeine and its metabolites extracted from fingertips after coffee intake: a preliminary study for the detection of drugs from fingerprints, Analytical and Bioanalytical Chemistry、査読有、405、2013、3945-3952

DOI:10.1007/s00216-012-6569-3

[学会発表](計3件)

桑山健次、尿及び血液の代替資料からの薬物検査の有用性評価 - 唾液及び皮膚分泌物からの摂取薬物の検出 - 、日本薬学会第135年会、2015年3月28日、神戸サンポーホール(兵庫県神戸市)

Kenji Kuwayama, Detection of drugs in fingerprints by liquid chromatography/mass spectrometry and

correlation among drug concentrations in fingerprints, urine, blood and saliva、4th Asia Oceania Mass Spectrometry Conference、2013年7月11日、Taipei (Taiwan)

Kenji Kuwayama, Application of drug detection from fingertips and fingerprints to investigation of drug related crimes, Mass Spectrometry 2013、2013年3月6日、Biopolis (Singapore)

6 . 研究組織

(1)研究代表者

桑山 健次 (KUWAYAMA, Kenji)

科学警察研究所・法科学第三部・主任研究官

研究者番号：40356233