

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2007-517564

(P2007-517564A)

(43) 公表日 平成19年7月5日(2007.7.5)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>A 6 1 B 5/117 (2006.01)</b>	A 6 1 B 5/10 3 2 2	4 C 0 3 8

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 10 頁)

(21) 出願番号	特願2006-548382 (P2006-548382)	(71) 出願人	503324324 ユニヴァーシティ・オヴ・サンダーランド イギリス国, エスアール2 7イーイー サンダーランド, ライホープ・ロード, ラ ンガム・タワー
(86) (22) 出願日	平成17年1月7日 (2005.1.7)	(74) 代理人	100099623 弁理士 奥山 尚一
(85) 翻訳文提出日	平成18年9月6日 (2006.9.6)	(74) 代理人	100096769 弁理士 有原 幸一
(86) 国際出願番号	PCT/GB2005/000038	(74) 代理人	100107319 弁理士 松島 鉄男
(87) 国際公開番号	W02005/066632	(72) 発明者	ローウェル, フレデリック・ジョン イギリス国, ディーエイチ3 3エルエス ダーラム, チェスター・ルーストリート , パーク・ロード・サウス
(87) 国際公開日	平成17年7月21日 (2005.7.21)		最終頁に続く
(31) 優先権主張番号	0400235.8		
(32) 優先日	平成16年1月7日 (2004.1.7)		
(33) 優先権主張国	英国 (GB)		

(54) 【発明の名称】 指紋を画像化するための試薬としてのナノ粒子

## (57) 【要約】

本発明は、プリント、例えば指紋、を検出するための新規分析方法及びそのような方法を実行するのに好適なナノ粒子に関する。

- 【特許請求の範囲】
- 【請求項 1】  
蛍光物質を封入している、ナノ粒子。
- 【請求項 2】  
ゾルゲルから誘導される、請求項 1 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 3】  
本質的に蛍光性である、請求項 1 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 4】  
リポーター分子のタンパク質コンジュゲートを捕捉する、請求項 1 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 5】  
前記リポーター分子は、巨大分子に共有結合している、請求項 3 に記載のナノ粒子。 10
- 【請求項 6】  
希土類原子を場合によりドーブした、セレン化カドミウム及び硫化カドミウムから誘導される、請求項 3 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 7】  
前記希土類原子は、ユウロピウム ( I I I ) 塩である、請求項 6 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 8】  
実質的に球形であり、直径 3 0 ~ 5 0 0 n m を有する、請求項 1 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 9】  
蛋白質 - 染料コンジュゲート又は DNA - 染料コンジュゲートをナノ粒子内に捕捉することに基づく蛍光染料を含む、請求項 1 に記載のナノ粒子。 20
- 【請求項 1 0】  
染料は、T e x a s R e d - 標識ゼラチン、ブタチログロブリン及びフルオレセイン - 標識ウシ血清アルブミン又はゼラチンから選択される、請求項 9 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 1 1】  
粒子表面が変性されて、表面コーティングを備えることが可能である、請求項 1 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 1 2】  
前記粒子は、受動吸着により又は共有結合を介して変性され、疎水性分子でその表面が被覆され得る、請求項 1 1 に記載のナノ粒子。 30
- 【請求項 1 3】  
前記疎水性分子は、ホスファチジルコリン及びホスファチジルエタノールアミンから選択される、請求項 1 2 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 1 4】  
ゾルゲル由来ナノ粒子は、その中に T e x a s R e d - ブタチログロブリンコンジュゲートを包埋する、請求項 2 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 1 5】  
高い蛍光強度を有する、請求項 1 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 1 6】  
前記表面コーティングは、親油性である、請求項 1 に記載のナノ粒子。 40
- 【請求項 1 7】  
皮脂由来成分に結合するように構成される、請求項 1 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 1 8】  
前記皮脂由来成分は、ワックス、コレステロール及びスクアレンを含む群から選択される、請求項 1 7 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 1 9】  
前記親油性コーティングは、ホスファチジルコリン及びホスファチジルエタノールアミンから選択される、請求項 1 6 に記載のナノ粒子。
- 【請求項 2 0】  
前記コーティングは、ゾルゲル粒子上に直接に受動吸着される、請求項 1 1 に記載のナノ 50

ノ粒子。

【請求項 2 1】

TEMOS (テトラメチルオキシシラン) から形成される、請求項 1 に記載のナノ粒子。

【請求項 2 2】

アミノプロピルオキシシラン由来ゾルゲルを含む、請求項 2 1 に記載のナノ粒子。

【請求項 2 3】

前記粒子の製造は、グルタルアルデヒド処理を含んだ、請求項 2 2 に記載のナノ粒子。

【請求項 2 4】

前記グルタルアルデヒド処理の後、シアノボロヒドリド還元が実施された、請求項 2 3 に記載のナノ粒子。 10

【請求項 2 5】

前記シアノボロヒドリド還元後にエタノールアミン洗浄が実施された、請求項 2 4 に記載のナノ粒子。

【請求項 2 6】

未被覆のナノ粒子であり、正味の負電荷又は正味の正電荷を担う、請求項 1 に記載のナノ粒子。

【請求項 2 7】

親水性コーティングを備える、請求項 1 に記載のナノ粒子。

【請求項 2 8】

前記コーティングは、正味の負電荷又は正味の正電荷を担う、請求項 2 7 に記載のナノ粒子。 20

【請求項 2 9】

前記親水性コーティングは、ポリリシンを含む、請求項 2 7 に記載のナノ粒子。

【請求項 3 0】

請求項 1 に記載のナノ粒子の使用を含む、プリント (例えば指紋) の検出方法。

【請求項 3 1】

指紋サブ構造の詳細を決定することを含む、請求項 3 0 に記載の方法。

【請求項 3 2】

スキャンは、励起波長 595 nm で実施された、請求項 3 1 に記載の方法。 30

【請求項 3 3】

添付例に関連して詳述されたような、ナノ粒子又は方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、新規の分析方法及びそのような方法を実行するのに好適なナノ粒子に関する。

【背景技術】

【0002】

指紋跡は、多数の状況下で形成され得る。先ず第一に、指の表面から表面上への、血液又は塗料のような物質の移転がある。あるいは、指の表面自体が、湿った表面、例えば血液又は塗料、への圧痕を生じるか又はパテのような可塑性の又は展性のある表面にくぼみを残すこともある。これら又は他の例において、プリント画質を向上させる又は現像する必要なく、はっきりとしたプリントがしばしば形成される。 40

【0003】

もう一つ別の状況においては、表面への指の接触により、皮膚から分泌される化学物質の移転が必然的に起こるため、残渣が表面上に残り得る。そのようなプリントは、遺留指紋と呼ばれ、目に見えるようにするため一般に処置が必要である。化合物は、エクリン及びアポクリン汗腺並びに皮脂腺からの分泌物に由来する。一般に、手のひら上のエクリン腺及び皮膚の他の領域からの皮脂腺がその主要な寄与である。エクリン腺からの分泌物の 50

主成分は、水（最初は98～99%であるが、蒸発によりすぐに失われる）、塩化物を含むアニオン、カチオン、アミノ酸、蛋白質、尿素、乳酸及びグルコースであり、皮脂腺からのものは脂肪酸、トリグリセリド、コレステロール、スクアレン、コレステリルエステル及びワックスエステルである。

【0004】

遺留指紋の鮮明度を上げるために、多種多様な方法が今日まで使用されてきた。これらの方法は、指紋内の成分を標的にした特異的な方法及び特異な化学的相互作用というよりむしろ物理特性を用いる一般的方法の使用を含む。前者の例は、塩化物イオンを用いて暗色沈殿物を形成する硝酸銀の使用、アミノ酸と反応して紫色染料を形成するニンヒドリンの使用、蛋白質にくっつくアミドブラック、ヨウ素、ゲンチアナ紫及び脂肪酸と反応するスダンブラックの使用を含む。非特異的薬剤の例としては、強力接着剤、及びプリントの疎水性の皮脂由来成分に固着する粉剤がある。

10

【0005】

米国特許第6485981号明細書には、指紋の画像化及びドキュメント化の方法及び装置が記載されている。遺留指紋の脂質残分にごく近接してもたらされた蛍光染料は、光エネルギーに曝されると、蛍光を発する原因となる。現れた蛍光を発する画像は、写真に記録することができる。

【0006】

金属、炭素及び石松子ベースの、微細に粉末化された多様な打ち粉もある。例として、種々の蛍光染料を含み、かつ適用を容易にするためにそれらに磁性を施す成分も有し得る、蛍光性遺留指紋用粉末（fluorescent latent print powders）がある。

20

【0007】

これらの試薬を使用すると、一般に、その隆線パターン及びそのパターンの不規則性により容易に識別できる指紋がもたらされるので、指紋の「持ち主」を特定するのに、その総体的特徴を使用することができる。多孔性表面上に沈着した指紋の場合又は指紋の痕跡のみが存在する場合には、このやり方には問題があるかもしれない。

【発明の開示】

【課題を解決するための手段】

【0008】

遺留指紋を現像するための新規薬剤を開発した。これらの新規薬剤は、蛍光性ナノ粒子を含む。蛍光性ナノ粒子を製造するために、これは、蛍光染料誘導体の存在下にゾルゲル粒子として一般に形成される。

30

【0009】

従って、本発明の第一の態様で、蛍光性ナノ粒子が提供される。

【0010】

好ましくは、本発明のナノ粒子は、ゾルゲル由来ナノ粒子であり、種々の蛍光性リポーター分子で標識された生物学的巨大分子を捕捉することにより蛍光性を得ることができる。そのような組合せの例として、蛋白質用のTexas Red及びフルオレセイン並びにDNA用臭化エチジウムがある。前者の染料は巨大分子に共有結合しており、後者では、染料分子は、DNAと共に挿入されている。あるいは、内因性の蛍光を有するナノ粒子、例えば硫化カドミウム及びセレン化カドミウムから誘導されるもの（及び希土類原子、例えばユウロピウム（III）塩、でドーブされたもの）、は、何れも使用することができる。

40

【0011】

ナノ粒子のサイズは、様々であってよいが、好ましくは、実質的に球形のこともあるナノ粒子は直径30～500nmを有してよい。

【0012】

製造の間にナノ粒子内に蛋白質-染料コンジュゲートが捕捉されることに基づいて、様々な蛍光染料が使用されている。染料の例は、Texas Red-標識されたゼラチン

50

及びブタチログロブリン並びにフルオレセイン - 標識されたウシ血清アルブミン及びゼラチンを含む。

【0013】

ゾルゲル加工は、ゾルゲル転移による、溶剤で満たされた固体ポリマーマトリックス骨格の二相物質の形成を一般に含む。溶剤が除去されると、ゲルは、キセロゲルに変換される。ゾルゲルは、生物学的巨大分子、例えば蛋白質及び酵素又は全細胞、の封入の為のシステムを含む様々な分析システムにおいて、マトリックスとして広く使用されている。

【0014】

生物学的用途において、ゾルゲル工程は、生物学的存在を捕捉し又は封入する不溶性枠組み又は不溶性ケージの製造を含む。

【0015】

そのような粒子は、受動吸着により又は共有結合を介して変性され、疎水性分子でその表面を被覆することができ、そのことは、表面上の遺留指紋から誘導される疎水性沈積物への結合を促進する。理論上何れの疎水性分子も使用することはできるのだが、疎水性分子の例として、ホスファチジルコリン及びホスファチジルエタノールアミンがあげられる。

【0016】

Texas Red - ブタチログロブリンコンジュゲートがその中に包埋されたゾルゲル由来ナノ粒子は、Texas Red 染料の蛍光により示されるように、表面上の遺留指紋に結合することが示された。

【0017】

ナノ粒子は、パッシブ指紋を検出するために現在使用されている金属粒子よりもはるかに小さいので、指紋のサブ構造をさらに詳細に識別することが可能であろうし、また、この新規詳細を使用して、たとえ不完全な指紋でも、より高い精度で、指紋の所有者を識別することができる。表面上の粒子の高い蛍光強度を使用して、そのような指紋の検出の感度を改良することも可能であろう。

【0018】

これらの粒子の表面を変性したので、これらに種々の表面コーティングを付けることができる。指紋現像のために、最終コーティングは、皮脂由来成分、例えばワックス、コレステロール及びスクアレンと優先的に結合する、親油性（「水を嫌う」）の生体適合性化学物質である。そのような親油性化学物質の例は、ホスファチジルコリン及びホスファチジルエタノールアミンを含む。このコーティングを得るために、TEMOS（テトラメチルオキシシラン）から形成されたゾルゲル粒子上に直接に、静電相互作用を介して化学物質を受動吸着させるか、又は、アミノプロピルオキシシラン由来ゾルゲルを使用してこれらを粒子に共有結合させる。後者のケースでは、グルタルアルデヒド処理による結合の後、シアノボロヒドリド還元があり、次いで、エタノールアミンで洗浄して、非特異性結合を還元する。

【0019】

正味の負電荷及び正味の正電荷を担持する親水性（「水を好む」）化学物質で被覆される他のゾルゲル由来ナノ粒子も調製した。前者の例として、未被覆ナノ粒子があり、後者の例には、ポリリシンで被覆されたナノ粒子がある。これらの親水性粒子を指紋に適用し、粒子内に包埋された蛍光染料による蛍光について表面をスキャンすると、蛍光は多少見られるが、特徴的パターンの像形成は観察されない（図1a）。このスキャンは、Texas Red 染料を使用した場合、励起波長595nm及び発光波長612nmで行なった。その一方、親水性被覆粒子を使用する場合は、不規則性のパターンが、表面上の皮脂由来成分への選択的結合を明確に見えるように示している（図1b）。ナノ粒子を添加しない場合、蛍光は見られない（図1c）。

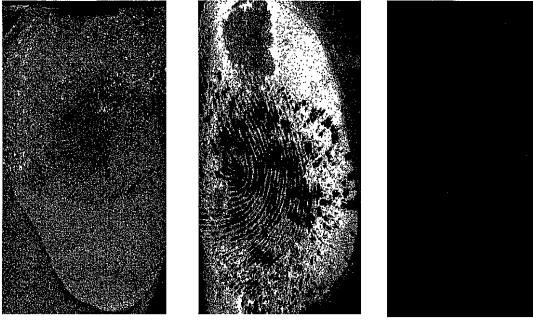
10

20

30

40

【 図 1 】



a

b

c

## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

/GB2005/000038

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
IPC 7 G01N33/533 G01N33/58 G01N33/92		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
IPC 7 G01N		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
EPO-internal, WPI Data, PAJ, BIOSIS, EMBASE		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 6 306 662 B1 (MENZEL E. ROLAND) 23 October 2001 (2001-10-23)  the whole document	1, 3, 6, 11, 12, 15-17, 20, 27, 28, 30, 31, 33
X	US 6 194 213 B1 (BARBERA-GUILLEM EMILIO) 27 February 2001 (2001-02-27)  the whole document	1, 3, 6, 11, 12, 15-18, 20, 27-29, 33
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in 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 document 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. *Z* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
1 June 2005		13/06/2005
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 851 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016		Authorized officer  Dietz Schlereth, D

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/GB2005/000038

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2002/001716 A1 (BARBERA-GUILLEM EMILIO) 3 January 2002 (2002-01-03)  the whole document	1,3,6,7, 11-13, 15-19, 26-28,33
X	WO 03/083481 A (MUELLER-SHULTE, DETLEF, P; MUELLER-SCHULTE, DETLEF, P) 9 October 2003 (2003-10-09)  the whole document	1-3,6,8, 11,12, 15, 21-23,33
X	US 6 048 546 A (SASAKI ET AL) 11 April 2000 (2000-04-11)  the whole document	1-3,8, 11,12, 15-17, 21,33
P,X	WO 2004/063387 A (CORNELL RESEARCH FOUNDATION, INC; WIESNER, ULRICH, B; OW, HOOSWENG) 29 July 2004 (2004-07-29)  the whole document	1-3,8, 11,12, 15, 20-22,33
A	US 6 495 352 B1 (BRINKER C. JEFFREY ET AL) 17 December 2002 (2002-12-17) the whole document	1-33
A	US 4 176 205 A (MOLINA, ORLANDO G) 27 November 1979 (1979-11-27) the whole document	1-33

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International Application No

PCT/GB2005/000038

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 6306662	B1	23-10-2001	NONE	
US 6194213	B1	27-02-2001	AU 1953501 A EP 1240351 A1 WO 0142489 A1	18-06-2001 18-09-2002 14-06-2001
US 2002001716	A1	03-01-2002	AU 3705701 A EP 1266032 A1 WO 0161045 A1 US 2005019486 A1	27-08-2001 18-12-2002 23-08-2001 27-01-2005
WO 03083481	A	09-10-2003	DE 10214019 A1 AU 2003223998 A1 WO 03083481 A2 EP 1490691 A2	16-10-2003 13-10-2003 09-10-2003 29-12-2004
US 6048546	A	11-04-2000	NONE	
WO 2004063387	A	29-07-2004	US 2004101822 A1 AU 2003303290 A1 AU 2003303309 A1 WO 2004063387 A2 WO 2004074504 A2	27-05-2004 09-09-2004 10-08-2004 29-07-2004 02-09-2004
US 6495352	B1	17-12-2002	NONE	
US 4176205	A	27-11-1979	NONE	

## フロントページの続き

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(72) 発明者 シーカー, ブレンデン・ジョン

イギリス国, ティーエス 20・1 エイチジー ティーズ・ヴァリー, ストックトン オン ティーズ, ノートン, スタンリー・ストリート 7

Fターム(参考) 4C038 FF01 FF03 FG10

专利名称(译)	纳米粒子作为成像指纹的试剂		
公开(公告)号	<a href="#">JP2007517564A</a>	公开(公告)日	2007-07-05
申请号	JP2006548382	申请日	2005-01-07
申请(专利权)人(译)	盐湖城OVU桑德兰		
[标]发明人	ローウエルフレデリックジョン シーカーブレンデンジョン		
发明人	ローウエル,フレデリック・ジョン シーカー,ブレンデン・ジョン		
IPC分类号	A61B5/117 G01N33/533 G01N33/58 G01N33/92		
CPC分类号	G01N33/533 B82Y15/00 G01N33/588 G01N33/92 Y10T428/2982 Y10T428/2991		
FI分类号	A61B5/10.322		
F-TERM分类号	4C038/FF01 4C038/FF03 4C038/FG10		
优先权	2004000235 2004-01-07 GB		
其他公开文献	JP4709772B2 JP2007517564A5		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

#### 摘要(译)

本发明涉及用于检测诸如指纹的印刷品的新型分析方法，以及适用于实施这种方法的纳米颗粒。