

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4709772号  
(P4709772)

(45) 発行日 平成23年6月22日(2011.6.22)

(24) 登録日 平成23年3月25日(2011.3.25)

(51) Int.Cl. F 1  
A 6 1 B 5/117 (2006.01) A 6 1 B 5/10 3 2 2

請求項の数 22 (全 6 頁)

(21) 出願番号	特願2006-548382 (P2006-548382)	(73) 特許権者	503324324
(86) (22) 出願日	平成17年1月7日(2005.1.7)		ユニヴァーシティ・オヴ・サンダーランド
(65) 公表番号	特表2007-517564 (P2007-517564A)		イギリス国, エスアール2 7イーイー
(43) 公表日	平成19年7月5日(2007.7.5)		サンダーランド, ライホープ・ロード, ラ
(86) 国際出願番号	PCT/GB2005/000038		ンガム・タワー
(87) 国際公開番号	W02005/066632	(74) 代理人	100099623
(87) 国際公開日	平成17年7月21日(2005.7.21)		弁理士 奥山 尚一
審査請求日	平成19年12月19日(2007.12.19)	(74) 代理人	100096769
(31) 優先権主張番号	0400235.8		弁理士 有原 幸一
(32) 優先日	平成16年1月7日(2004.1.7)	(74) 代理人	100107319
(33) 優先権主張国	英国 (GB)		弁理士 松島 鉄男
		(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
			最終頁に続く

(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) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

蛍光物質を封入している、ナノ粒子であって、前記ナノ粒子が蛋白質 - 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み、ゾルゲルから誘導されるナノ粒子。

【請求項 2】

実質的に球形であり、直径30～500nmを有する、請求項1に記載のナノ粒子。

【請求項 3】

前記染料は、スルホローダミン101酸クロリド - 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1に記載のナノ粒子。

【請求項 4】

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 5】

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4に記載のナノ粒子。

【請求項 6】

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5に記載のナノ粒子。

## 【請求項 7】

ゾルゲル由来ナノ粒子は、その中にスルホローダミン 101 酸クロリド - プタチログロブリンコンジュゲートを包埋する、請求項 1に記載のナノ粒子。

## 【請求項 8】

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 9】

前記表面コーティングは、親油性である、請求項 4に記載のナノ粒子。

## 【請求項 10】

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 11】

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 10に記載のナノ粒子。

10

## 【請求項 12】

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 9に記載のナノ粒子。

## 【請求項 13】

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 4に記載のナノ粒子。

## 【請求項 14】

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

20

## 【請求項 15】

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 14に記載のナノ粒子。

## 【請求項 16】

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 15に記載のナノ粒子。

## 【請求項 17】

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 16に記載のナノ粒子。

## 【請求項 18】

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 17に記載のナノ粒子。

30

## 【請求項 19】

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 20】

請求項 1 ないし 19 のいずれか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 21】

指紋サブ構造の詳細を決定することを含む、請求項 20に記載の方法。

## 【請求項 22】

スキャンは、励起波長 595 nm で実施された、請求項 20 または請求項 21に記載の方法。

40

## 【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

50

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。

【 0 0 0 3 】

もう1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。

10

【 0 0 0 4 】

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な方法の使用を含む。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タ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。

20

【 0 0 0 5 】

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。

【 0 0 0 6 】

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。

30

【 0 0 0 7 】

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 】

【 0 0 0 8 】

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。

40

【 0 0 0 9 】

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。

【 0 0 1 0 】

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

50

、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。

【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。

10

【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。

20

【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。

30

【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。指紋現象のために、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。

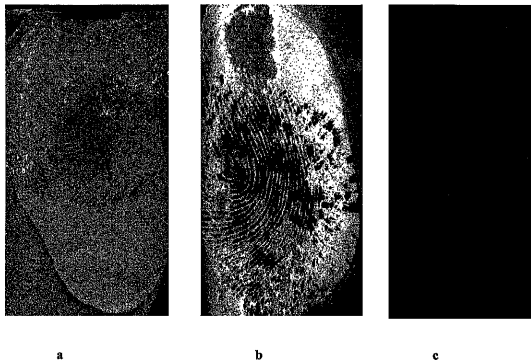
40

【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

50

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、親油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)。



---

フロントページの続き

(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

審査官 富永 昌彦

(56)参考文献 国際公開第03/083481(WO, A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
A61B 5/117

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="#">JP4709772B2</a>	公开(公告)日	2011-06-22
申请号	JP2006548382	申请日	2005-01-07
申请(专利权)人(译)	盐湖城OVU桑德兰		
当前申请(专利权)人(译)	盐湖城OVU桑德兰		
[标]发明人	ローウェ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	ローウェル,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		
优先权	2004000235 2004-01-07 GB		
其他公开文献	JP2007517564A JP2007517564A5		
外部链接	<a href="#">Espacenet</a>		

摘要(译)

本发明涉及一种用于检测印刷品(例如指纹)和适于实施这种方法的纳米颗粒的新型分析方法。

