

## 法地質学における分析機器を用いた検査法の発展

杉田律子

科学警察研究所 〒277-0882 千葉県柏市柏の葉 6-3-1

## Development of forensic soil examination by analytical instruments on forensic geology

Ritsuko SUGITA

National Research Institute of Police Science , 6-3-1 Kashiwanoha, Kashiwa-shi, Chiba 277-0882, Japan

### Abstract

Forensic geology is an application of geology to help solving criminal and civil cases. Geological matters are found as trace evidence to prove contact of victim, suspect and the scene of crime. There are many techniques hired in forensic geology and all the results obtained by various examinations are combined to lead the final opinion on the similarity among the samples. In this review paper, development of soil evidence examination by instrumental analysis is described to support non-forensic geologists considering new application of their research work to the public.

**Keyword:** forensic geology, trace evidence, instrumental analysis, DNA, color and particle size distribution, chemical analysis

### 緒言

法地質学とは、事件や事故の解決に資するために地質学の技術や知識を応用する学問分野であり、すでに 100 年を超える歴史がある (Murray, 2011)。証拠資料として鑑定に付される可能性のある地質学的なものとしては、粘土鉱物や砂、小礫片などが混在した、いわゆる土の様なもの (以下「土砂」と呼ぶ。) が多いが、その他のものとしては岩石そのものや宝石類、埃などがあげられる。現在の土砂の鑑定法は主に地質学的な検査法を元に構成されているが、分析機器の発達とともに新たな検査法が研究され、鑑定法の更新が行われている。本総説では、主として土砂を試料とする機器分析による法科学的検査法の研究開発について紹介する。犯罪現場等から採取された証拠物は「鑑定資料」や単に「資料」と称せられることが多く、本総説では証拠物件を示す場合は「証拠資料」や「資料」を、また、実験に供するために証拠資料から分離されたものを「試料」と称することにする。

法科学分野では「Locard の相互付着の原則 (Lodard's Exchange Principle, 物質は接触した相手に相互に付着する)」(Nickolls, 1956) が知られている。これは犯人や被害者、あるいは犯罪に用いられた道具、犯罪現場の間で物質が相互に付着することを意味しており、土砂も例外ではない。そして、土砂を含む様々な物質は微細証拠資料として犯人の行動確認や証言の信頼性の裏付けなどに用いられることがある。このような証拠資料が犯罪現場などに存在している物質と起源が同じか否かを実験等により識別することを異同識別といい、その比較対照のためのサンプルを対照資料と呼ぶ。土砂の場合には、被害者や容疑者、または犯行に使われた道具などに付着している土砂 (証拠資料) が犯

罪現場の土砂 (対照資料) か否かという異同識別のための鑑定が実施されることが多い。そのために、色や粒径、成分、形態など様々な検査が実施され、最終的には各検査の結果を総合的に判断して異同識別を行っている。

鑑定と一般的な地質学研究の異なる点として、検査に使用できる試料量と時間の制限がある。特異な例を除いて地質学で用いることのできる試料は一般にグラム単位であるが、鑑定においては数 10 mg 程度しか消費できない場合もある。証拠資料は原則として全量を消費せず、一部は保存することが望ましいとされている。また、法的な手続きや裁判の関係で迅速な回答を求められることもある。

土砂は、その生成過程で母材である岩石・鉱物が様々な環境下で時間とともに変質し、元素の溶脱や付加が起こったり、有機物が付加されたり、さらに、植生や人為的影響を受けることがある (Fig.1)。そこで、異同識別では様々な観点や技術に基づいて複数の項目を検査することで試料間の類似性を明らかにしていく。当然のことながら、検査項目が多くなればその分、検査に必要な時間も長くなる。検査を効率的に行うためには、その順番が重要となる。迅速で簡易的な検査 (スクリーニング) により明らかに性状の異なる試料を選別し、手間がかかる精度の高い検査が必要な資料の数を絞り込み、時間の短縮をはかっている (Fig.2)。また、消費可能な試料量が限られるために、特に早い段階で実施される非破壊検査がその後の分析方法の選択のためにも重要となる。そのために、法地質学の研究では微量のものを迅速に検査できる方法の開発が重要なテーマのひとつとなっている。

本総説では、法地質学的資料の分析機器による検査法に関する研究を、主として法科学分野の専門雑誌に掲載された論文から引用して紹介する。

## 色と粒度分析

色と粒度分布による土砂の識別の有効性は早くから認められており（たとえば Nickolls, 1956）、簡易で機器分析の前処理と並行して実施可能であるために、土砂のスクリーニング法としてしばしば用いられている。

### 色の検査

色の検査については、古くから Dudley (1975), Janssen et al. (1983), Antoci and Petraco (1993) などによって異同識別に適した粒径の分類の仕方や前処理法の研究などが行われている。また、杉田・丸茂 (1992) および Sugita and Marumo (1996) は山梨県の甲府盆地北西部において採取された、異なる種類の岩石を母材としている土砂 73 点の風乾後、有機物分解後、および脱鉄処理後の色の比較を行い、識別能力の評価を行った。これらの研究ではマンセル土色帳を用いて肉眼で検査する方法が採られていたが、これはその当時の測色計では、再現性を確保するためには肉眼で検査するよりも大量の試料が必要であったことが主な理由である。その後、Croft and Pye (2004a) は肉眼で検査する場合と同じ程度の量の土砂の色を再現性良く測定することができる測色計について肉眼による検査と比較検討を行い、鑑定に利用できることを確認している。

色の検査は簡易で迅速であることから、スクリーニング法として優れており、特に比較対照する試料が多い時には他の検査に先んじて実施されている。今後、異同識別のための各種分析法の精度が向上しても、色の利用価値は変わらないものと考えられる。

### 粒径の検査

粒径分布は篩別法が古くから用いられているが、Wanogho et al. (1987a, 1987b, 1987c), Wanogho and Gettinby (1989) は、乾式篩別法、湿式篩別法ならびにレーザー回折式およびコールター方式の粒径分析装置について評価を行った。その結果、使用可能な試料量が極めて少量の場合、粒径分析装置でのみ分析が実施可能であった細粒 ( $63 \mu\text{m}$  以下) の画分については分析結果の再現性が良くなかったことから、法科学的な目的では湿式篩別が簡便で適していると結論した。再現性が悪い原因は  $15\text{mg}$  程度の少量の土砂では分析試料の作成が困難であるためと考察されている。一方、Sugita and Marumo (2001) は Sugita and Marumo (1996) が色の評価に用いた試料を使って、篩別とレーザー回折法を併用した方法について実験を行った。その結果、色の検査と粒径を組み合わせることで効果的なスクリーニングが可能であることを示した。レーザー回折法による粒度分析については Blott et al. (2004) および Blott and Pye (2006) が詳細な実験を行い、 $0.04\sim 2000 \mu\text{m}$  の粒径の試料の識別に適していることを明らかとした。また、あらかじめ有機物や比較的大きな貝殻片の除去等の処理をすることによって、より正確な粒径分布が得られることが示された。これらの研究では、先に述べた過去の研究で一度は少量の土砂には

不向きであるとされた機器分析について、正反対とも言える結論が導かれた。

他の検査でも同様であるが、分析機器の進歩に伴い少ない量でも分析が可能となってきた。粒度や色を機器により検査できるようになったのは、このような進歩の恩恵を受けている好例と言えよう。

## 全岩分析

土砂のような粉末状のものの bulk analysis を全岩分析という日本語で表すのは正確ではないかもしれないが、岩石の場合と同様、ここでは全体を一括して分析するという意味で用いることとする。法地質学分野では、全岩無機分析には蛍光 X 線分析装置 (XRF)、誘導結合プラズマ質量電析装置 (ICP-MS)、誘導結合プラズマ発光分析装置 (ICP-AES) などを利用した異同識別や地域推定のための研究がなされている。また、安定同位体を用いた異同識別の試みも行われている。以下に元素組成や安定同位体による全岩分析について紹介する。

### 無機分析

XRF: XRF による土砂の異同識別については Hiraoka (1994) が提唱しており、また Hiraoka (1997) は琵琶湖周辺の花崗岩風化産物についてケイ素、カリウム、カルシウム、鉄、ルビジウム、ストロンチウムを指標として用いることで母材となった花こう岩体の推定が可能であるという研究を行っている。Rawlins and Cave (2004) は、移動や堆積作用の影響を受けていない単一の母材から現地で直接形成された比較的均質と考えられる土砂に含まれる 23 元素について、XRF 分析を実施した。2044 試料の分析結果を統計学的距離であるマハラノビス距離を用いて比較することで、XRF の分析結果を地域推定や異同識別に利用できる可能性を示唆した。ただし、この研究では分析に使用した一試料あたりの量が多いため、法科学的な利用には試料量や試料の採取法が結果に影響を与える可能性についても論じられている。

ICP-MS, ICP-AES: Jarvis et al. (2004) は ICP-MS および ICP-AES の両者を併用し、アルカリフュージョンにより試料調製を行った土砂の主成分元素と微量成分元素の網羅的な分析法について基礎的検討を行った。Pye and Blott (2004) は靴に付着させ回収した土砂と元の土砂を Jarvis et al. (2004) に基づき分析し、主成分 10 元素および微量成分 39 元素の含有量の比較を行った。また Pye et al. (2006) は機器の安定性や試料内変動に関する実験を行い、いずれの研究でも ICP-MS および ICP-AES は法地質学的に有効な分析法であると結論した。また、Pye et al. (2007) は分析試料の粒径を  $20\mu\text{m}$  以下、 $20\text{-}63\mu\text{m}$ 、 $63\text{-}150\mu\text{m}$ 、 $150\mu\text{m}$  以下、全岩の 5 つに分けてそれぞれ分析し、粒径と元素の含有量の関係や試料間でどの程度識別が可能かという識別能力についての検討を行った。その結果、ハンドリングのしやすさを含めて  $150\mu\text{m}$  以下の試料を用いるのが法科学的には適していると結論した。

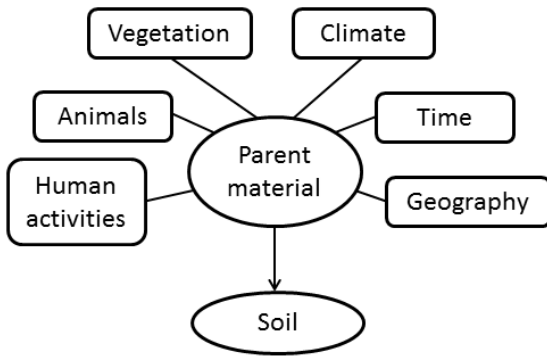


Fig. 1 Major factors affecting properties of soil.

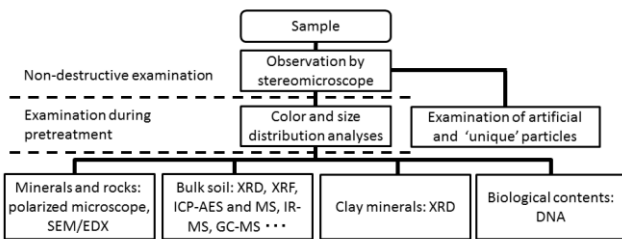


Fig. 2 Applicable examination methods at different steps on forensic praactice of soil evidence.

試料を固体のまま ICP-MS で分析するレーザーアブレーション (LA) を利用した法科学的な土砂の分析については, Arroyo et al. (2009) がゲルマニウムを内部標準として加えた粉末状の土砂をペレットに整形して分析試料とする方法を提唱した. Arroyo et al. (2010) は本法を汚染土壌の分析に応用し, 同じ土砂を溶液化した試料を用いた時の分析結果と比較し同程度の感度で分析できることを報告している. LIBS : Jantzi and Almirall (2011) はレーザー誘起ブレイクダウン分光法 (LIBS) を微量の土砂の元素分析に応用する試みとして, 内部標準にスカンジウムを用い, Arroyo et al. (2009) に準じて調製した試料の分析を行った. その結果, LA-ICP-MS の分析結果と比較して, 同程度の良好な結果が得られたと報告されている. LIBS は試料の消費量が極めて少なく, 軽元素の測定が可能であることから, 今後の実用化に向けた研究が待たれる.

SEM/EDX : Cengiz et al. (2004) は赤外分光分析用の試料作製に用いられている錠剤成型機を使って土砂のペレットを作成し, その表面をエネルギー分散型 X 線分析装置付走査型電子顕微鏡 (SEM-EDX) によりスキャンして全岩分析する方法を試みた. その結果, 粉末状の試料をそのまま分析する場合に比べて分析の標準偏差が約 1/10 になり, 識別能力の向上が期待できるとの報告を行った. Pye and Croft (2007) は, スポットサイズ, スキャン方法, 真空度, 加速電圧などの分析条件を変え, 分析値の変化や元素のピーク強度の比率, つまり Si/O, Si/Al, Si/K, Si/Ca および Si/Fe を指標とした異同識別について検討を行った. この研

Table 1 Targets of examinations listed by the types of major factors during soil forming process.

Environment	History	Parent material
organic matter	color	mineral composition
DNA	particle size distribution	mineral chemistry
	bulk chemistry	rock types

究では, 試料は 150 $\mu$ m 以下の粉末を使用し, 分析雰囲気は低真空 (50pa) を採用しているのが特徴である. その結果, 前述の Cengiz et al. (2004) の結果とは異なり, スキャンモードで分析を実施した場合には, 粉末のままでも高い識別能力があること, ただし, 本法は少量の土砂の場合には有効であるが, 使用可能な試料量が多い場合には ICP-MS や AES で, より信頼性の高い検査が望ましいと結論された. 二つの論文で異なる結果をもたらした原因は, Pye and Croft (2007) では 150 $\mu$ m 以下の粒径の試料を分析しているのに対し, Cengiz et al. (2004) は粉末の分析には 0.5mm 以下のより粗粒な試料を用いているためと考えられる.

全岩無機分析の今後の期待される展開 : 上述のように, 証拠資料の全岩無機分析で最も問題になるのは粒径と試料量の関係であると考えられる. つまり, 少量の試料で分析を実施する場合, 粒径の大きい粒子が全体に与える影響は大きいものとなるが, 径が小さいもののみを分析対象とすれば, 全体の均質化がある程度図られていると考えることができる. Pye et al. (2006) の研究はこの点に着目して試料の粒径を検討したものであるが, 今後, 少量の試料の分析における再現性の良い粒径の範囲や元素の種類について詳細な検討がさらに進めば Jantzi and Almirall (2011) やテープ上に固定した試料の分析法を考案した Jantzi and Almirall (2014) の研究成果も実用化につながるものと考えられる. 全岩分析は試料の粉末化や溶液化などが必要な破壊分析であり, 分析に使用した試料が全く残らないこともある. また, 消費される試料の量の割合が元の資料に対して大きい場合は実施そのものが見送られる可能性がある. したがって, 分析試料をできるだけ消費しない分析法の開発が期待されている.

XRF は Rawlins and Cave (2004) も指摘しているように ICP-MS や SEM-EDX などによる分析と比較すると, より多くの試料を必要とする点で不利である. 一方, 試料の作成法も含めて分析法としてはある程度確立された方法であることから, 比較的大量の試料が得られる岩石などの検査には利用価値が高いものと考えられる.

### 安定同位体分析

土砂中には生物や炭酸塩岩などに由来する炭素や窒素が含有されており,  $\delta^{13}\text{C}$  および  $\delta^{15}\text{N}$  の分析結果を法科学的に利用しようとする研究が Croft and Pye (2003, 2004b) により行われた. 同一地点で採取した土砂の季節による差異は, 他の地域の試料との差よりも小さく, また, 靴に付着させた土砂と複数の地点から採取した土砂との異同識別が可能であったことから, 異同識別に有効であると結論し

た。

上述の研究が行われた英国と日本では、地質も環境も大きく異なることから、その成果がそのまま日本で利用できるとは考えにくい。しかし、南北に長く伸びた地理的条件や植生や気候の変化に富んでいる日本では、その特徴に応じた安定同位体の地域差が現れる可能性もあることから、今後の研究に期待したい。

### 鉱物の分析

鉱物の分析の目的は、土砂中に含有されている鉱物種の同定と、特定の鉱物による土砂の識別との二つに大きく分類できる。鉱物粒の同定は現在でも顕微鏡検査が重要な位置を占めているが、検査者の経験や技術に頼るところが大であることから、経験を補完したり、より客観的に判断するために機器分析が導入されはじめている。また、個別の鉱物についても特徴の記載は偏光顕微鏡観察が中心となっていたが、分析機器を利用した検査法の研究が行われている。以下に、鉱物の分析の法科学的利用に関する研究を紹介する。

### 鉱物の同定

鉱物種の同定には以前から顕微鏡検査と並行してX線回折法 (XRD)、SEM-EDX や赤外分光法が用いられている。XRD は顕微鏡検査の難しい粘土鉱物の同定には欠かすことができない方法である。微量の土砂の検査では、XRD によって鉱物組み合わせを定性的に求め、異同識別に用いることが一般的に行われている。Marumo et al. (1986, 1988) や丸茂ほか (1989) は少量の土砂においても利用可能な XRD による一次鉱物および粘土鉱物の種別同定に関する研究を行い、実務に利用されている。特に Marumo et al. (1986) では、粘土鉱物分析の際に最も時間のかかる水ひによる  $2\mu\text{m}$  以下の粒子の分離を行わなくとも、湿式篩別で分離したシルト以下の粒径の試料で法科学的に有効な検査が行えることを示し、検査の迅速化に貢献した。また、Ruffell and Wiltshire (2004) は含有される鉱物の (060) 面のピーク強度を統計的に解析し定量的な評価を試みた。Marumo et al. (1986) の方法は色の検査も兼ねて前処理を実施できる利点がある一方で、水ひによる粘土鉱物の分離よりは時間が短縮されたとはいえ、定方位試料を作成するまでに長時間を必要とすることから、より迅速に分析が可能な方法が必要であると筆者は考えている。

鉱物の SEM-EDX による自動同定は McVicar and Graves (1997) によって試みられていたが、Pirrie et al. (2004, 2009) は SEM-EDX の粒子分析システム (QemSCAN®) を用いて、粒径と主成分元素に基づく鉱物の分類を行った。さらに Pirrie et al. (2013) は本法で得られた結果から lithotyping で土砂を分類し、試料の異同識別に利用する方法を提唱した。ここで lithotype とは NORM と類似した概念で、分析結果から推定される鉱物種または岩石種のことで、例えばある粒子の分析面積の 75% 以上が石英であれば「石英粒子」、粒子が石英や長石等からなる一定の条件を満足すれば「花

こう岩片」などのように分類する方法である。この自動同定の研究では数 10 種の鉱物群がリスト化されているが、重鉱物は「Fe Ca Al silicate」や「Mg Fe silicate」などと表現されていたり、方解石が 3 種類に分類されている (Pirrie et al., 2013)。私のこれまでの経験では、日本の土砂では一般に炭酸塩鉱物は極めて少なく、特に東日本では火山噴出物に由来する重鉱物の種類や量比が記載の特徴の一つとなっていることから、今後、Pirrie et al. (2013) を基に日本の地質条件に合った分類方法が開発されることを期待したい。

Weinger et al. (2009a, 2009b) は顕微赤外分光光度計を用いたダイヤモンド全反射測定法 (D-ATR 法) による鉱物粒子の同定法を提唱した。この方法は顕微鏡下で 1 粒ずつ形態や偏光による光学的特徴などを観察しながら分析し、その鉱物種の同定を実施するもので、特に微量の試料中に含有される鉱物粒に対して有効である可能性を示した。D-ATR 法では鉱物粒を直接ダイヤモンドプリズムに押し付けて測定を行うが、脆い粒子の場合は油浸観察用オイル (屈折率 1.516) に入れて行うことで密着させなくても測定が可能であることも示されており、本法はより正確な鉱物同定に貢献できると考えられる。

### 特定の鉱物の検査

特定の鉱物をターゲットとした検査法としては、電子線が物質に入射することで発する可視または紫外領域の光であるカソードルミネッセンス (CL) を用いた方法や SEM 等による形態観察が挙げられる。CL の法科学的応用については Palenik and Buscaglia (2007) で紹介されており、長石や石英だけでなく、無機顔料を含んだ塗膜片などの人工物にも応用が可能であるとされている。

石英粒子の微細な表面形態は SEM により観察が可能で、堆積物の堆積環境の推定に有効であるとされている (Margolis and Krinsley, 1974, Higgs, 1979, Vos et al., 2014 など)。Bull and Morgan (2006) は本法が法地質学的な資料に利用できることを報告しており、Konopinski et al. (2012) はさらに小さいスケールの観察が可能な原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope: AFM) でも SEM で観察されるものと同様の特徴を有する形態が観察されることから、微小な鉱物粒であってもスケールに依存せず起源推定に利用できることを明らかとした。石英は日本の土砂には必ずと言ってよいほど含まれており、わが国でも表面形態による異同識別が可能であることが検証されれば、これまで検査が困難であった微量な資料の活用につながるものと期待される。

### 有機物と DNA

土砂中の有機物や DNA は非常に多種多様であり、分析法も何を対象とするかで異なる。しかし、有機物の多くは生物に起源を持ち、植生や気候などの環境により構成要素が変化してくる点で、無機元素とは異なる成因に基づく異同識別の指標として活用が期待されている。無機元素や鉱物などに比べて研究例は少ないが、以下に最近の論文を紹介

介する。

## 有機分析

ガスクロマトグラフィー (GC) やガスクロマトグラフ/質量分析装置 (GC-MS) は有機物分析においては非常に一般的であり、法科学の分野でも薬物分析では常用されているが、法地質学的な利用に関する研究はあまり進んでいない。土砂中の有機物として、法科学的な研究対象となることが多いのは植物由来の成分である。

土砂中の有機物の成分が植生と関係があることに着目した研究としては、Dawson et al. (2004) や Mayes et al. (2009) がある。Dawson et al. (2004) は植物の表面のクチクラ層のワックスに含有されるアルカン類の炭素鎖の長さが植物の種類によって異なることを利用して、GC 分析により土砂の異同識別を試みた。その結果、植生の異なる場所から採取した土砂では異なるアルカン類のパターンを示したが、現在の植生だけではなく以前の植生の影響も認められることが明らかとなった。また、Mayes et al. (2009) は複数の花壇から採取した土砂の植物由来の成分を、誘導体化したうえで GC-MS を用いて分析を行った。得られたチャートの脂肪酸アルコールとアルカン類のピークパターンは花壇ごとに異なり、同一花壇内では類似していることが示された。Lee et al. (2012) は土砂に誘導体化試薬を直接添加したオンライン誘導体化熱分解 GC-MS を用いた分析を行った。分析結果のチャートから同定された化合物のうち 33 化合物のピークのピーク面積を算出し、主成分分析法 (principal component analysis) により得られたスコアからクラスター分析および線形判別分析を行ったところ、使用した 40 試料の土砂は 6 つのグループに分類された。主成分分析の各成分に大きく寄与していたのはグニンや脂肪酸、尿素に由来する成分で、これらを異同識別の指標とすることで、良好な結果が得られることが示された。

一方、人間活動に由来する有機物として多環芳香族炭化水素 (PAH) が環境を示唆することが知られている (Dawson et al., 2011)。PAH は天然にも存在するが化石燃料や木材等の燃焼でも生成され、その温度によって構造が異なるとされている (Dawson et al., 2011)。Dawson et al. (2011) は土砂中の PAH を GC で分析し、得られた PAH の GC の分析結果を多変量解析法の一つである正準変量分析 (CVA: canonical variate analysis) により解析した。褐色森林土やピートといった土壌の種類や植生などによる土地の被覆状態と PAH の分析結果には相関があったことから、本法は地域の推定や異同識別に利用可能であるとの結論を得た。

これまでに報告されている法地質学的な有機物の分析方法や分析対象は研究者によって異なり、報文の数も少ないが、今後、さらに有効性が検証されれば異同識別の指標が増え、より正確な鑑定に有効と考えられる。

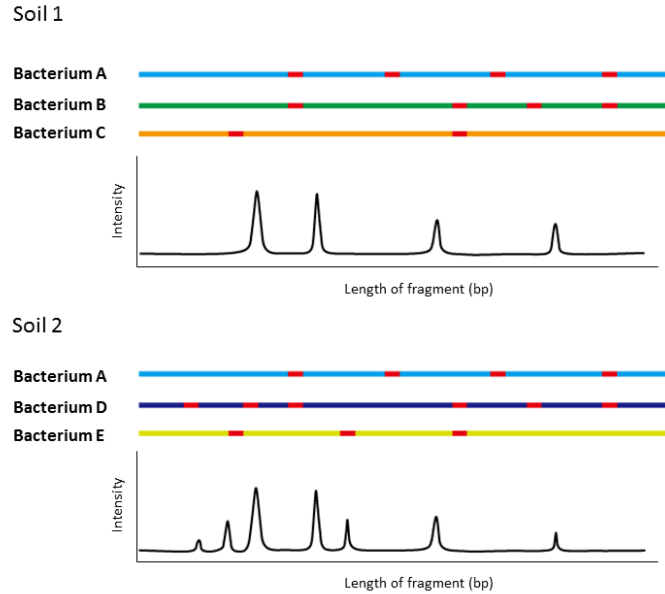
## DNA

近年、犯罪捜査において DNA の分析は重要なツールとなっており、ヒトについては高い個人識別能力を有する分

析法が開発されたことから各国でヒト DNA 型の鑑定が行われている (バトラー, 2009)。法地質学的な DNA の利用については、以下に紹介する論文のように、土砂中に含有されている微生物などの、DNA のある部分 (以下「領域」という) の塩基の配列や長さ、特定の配列の繰り返し回数の違いに着目して、比較する試料間での類似性から異同識別を行おうとする研究がおこなわれている。土砂中には植物や菌類など、多様な生物に由来する DNA が大量に含有されているが、比較的最近までの法地質学的な DNA 研究では電気泳動によりバンドパターンを解析したり、一試料ずつシーケンサーによって DNA の配列を読み取る方法で行われてきた (Horsewell et al., 2002, Heath and Sunders, 2006, 2008, 吉川ほか, 2008, Macdonald et al., 2008, Meyers and Foran, 2008, Lenz and Foran, 2010)。そのため、多数の試料を扱うことが難しく、土砂中に含まれている様々な生物種のうち利用価値が高いと考えられるものにターゲットを絞ったうえで、その特定の DNA 領域を分析する必要があった。

土砂中の微生物集団の DNA プロファイルによるアプローチとしてはバクテリアの 16S rRNA を分析対象としたものが多い (Horsewell et al., 2002, Heath and Sunders, 2006, 2008, 吉川ほか, 2008, Macdonald et al., 2008, Meyers and Foran, 2008)。これまでの研究では、この領域に含まれる DNA を PCR 増幅し、一定の塩基配列の部分で切断する酵素で切断して、その断片の長さを測定する末端標識制限酵素断片長多型分析 (T-RFLP) 法がしばしば用いられている (Fig. 3)。この方法が土砂中の微細物に有効と考えられているのは、同じ領域の DNA であっても酵素がターゲットとする配列の入っている位置や数がバクテリアの種類によって異なり、土砂中のバクテリアの種類は場所によって異なるので得られる断片の長さやその量が特徴的であると考えられるためである。分析結果のチャートのピークの強度は測定される断片の量に依存することから、断片長だけでなく定性的であるが量の比較も行うことができる。以下に紹介する研究は特に断らない限り T-RFLP 法によって実施されたものである。

Horsewell et al. (2002) は実験地域の土砂と、その土砂を付着させた靴底およびその靴でつけられた足跡から採取した土砂中の微生物 DNA プロファイルを比較した研究を行い、DNA プロファイルには類似性が認められる一方で、8 カ月後に同じ場所から採取した土砂試料の DNA プロファイルには相違点も認められたことを明らかとした。Heath and Sunders (2006) は森林、草原、砂丘の 3 か所のそれぞれ複数地点で採取した土砂の微生物の DNA プロファイルは、同一の地域では類似し、異なる植生の間では大きく異なっていることを示した。さらに、Heath and Sunders (2008) は Heath and Sunders (2006) と同じ地域の複数の土砂試料から得られた DNA プロファイルを統計的に解析し、数 10 cm 程度離れた場所でも差異が認められたことから、この分析法はわずかな生息環境の違いに影響を受ける可能性を示唆するとの結果を得た。このことから、この方法は、ピン



**Fig. 3** Schematic profiles by T-RFLP method obtained from soil samples containing different bacteria. Upper part of each figure shows sequence of DNA of different bacteria. Red bars in the DNA sequence indicate target arrangement of base molecules where are cut by enzyme.

ポイントで犯罪場所が明らかな場合には非常に利用価値が高いが、そうでない場合には結果の解釈に注意を要すると結論した。

また、Meyers and Foran (2008) は、母材や土地利用の異なる 5 地点から一年間にわたり毎月採取した土砂試料を分析した。その結果、土砂の異同識別法として有効であるが、時間とともに指標となる微生物の DNA のピーク強度比の変化等が認められることから、実際の事件への応用には十分な考察が必要であると結論した。

Lenz and Foran (2010) は、土地利用の異なる 5 か所の土砂に含まれている窒素固定バクテリアの DNA の *recA* 領域について T-RFLP 法を用いた研究を行った。分析の結果得られた DNA プロファイルから 5 か所の土砂には明確な原因は不明であるが、互いに識別可能なものとそうでないものが認められた。また、1 年間にわたって同じ場所から採取された試料は、畑作により人為的な改変が行われている一地点を除き、DNA プロファイルに大きな変化は見られなかった。

吉川ら (2008) は土砂中のバクテリア *Bacillus cereus* の株の多様性に着目し、同じ領域に含まれる一定の塩基配列の繰り返し回数の違いによる多型の解析 (variable number of tandem repeat (VNTR) 法) を実施した。その結果、離れた場所から得られた試料間では異なる型が検出され、およそ 2 年後であっても互いに識別可能であった。

Macdonald et al. (2008) は DNA を用いた土砂試料の異同識別にあたり乾燥状態が土壤中の生物に与える影響について検討し、菌類の方がバクテリアよりも乾燥による変化が少ないことから法科学的検査に適していることを明らかにした。また、バクテリアと菌類の DNA を同時に分析する方法はいずれか片方だけを分析した場合や色の検査の結

果よりも識別能力が高いことを示した。さらに、Macdonald et al. (2011) はバクテリアや菌類等を利用した土砂試料の異同識別能力は一般に菌類の方が高いが、バクテリアは例えば同一の公園内の異なる植生の土砂間でも異なることがあるため犯罪の場所をピンポイントに識別するには有効であるという結果を得た。

一方、最近、普及し始めた次世代シーケンサーは一回の分析で数 10 万以上の DNA の配列を一斉に解析することができるため、土砂のように多種多様な生物に由来する DNA を分析するのに、より適した方法と考えられる。例えば Giampaoli et al. (2014) は植物から原生動物までの多様な生物群の一斉分析を試み、試料中に含まれる DNA が由来する生物の科や属、さらに一部は種に至るまで同定して試料間の生物群の差異を異同識別に利用しようとする研究を実施している。このような方法はすでに環境中の微生物群の解析にはしばしば用いられており、今後、その結果を応用した法地質学的研究も進むものと期待される。一方で、土砂中の微生物等は、環境による影響の受け方が様々で世代交代が早いものも多いため、ルーチンの鑑定作業に利用されるためには多くの研究が必要である。

## 結 言

本論では、機器分析による法地質学的検査法について述べてきたが、今後の法地質学の発展のためにはいくつかの課題がある。

まず、法地質学の発展は分析機器の高度化によって達成されてきた部分が大きく、迅速に精密な分析結果を得ることができることによるメリットは大きい。しかし、土砂は天然に由来することから、空間的な広がりや事件発生から

対照資料採取までの時間差による変質も考慮する必要がある。新たな技術が開発され、より微量・微細な試料で分析が可能になればなるほど、空間的、時間的な広がりの中での分析試料の代表性や、資料内でのばらつきの検証が重要になる。また、一つの試料から得られるデータの量も膨大であることから、統計的な解析も必要である。地質学では時間的・空間的広がりを意識し、多角的視野を持って研究試料にあたる必要があるとされるが、専門性の高い分析については分析化学や生化学の研究者と連携することによって、更なる発展が望めるものと考えられる。

分析機器の進歩に伴い、再現性や精度の向上あるいは試料量の縮小が可能となるのは法地質学にとって大きな利点ではあるが、高価な機器をどこまで実務に導入できるかについては費用対効果によるところが大きい。汎用性の高いSEM-EDXやGC-MSなどを利用した検査法は、有用性が高いことが示されれば普及させるための障害はそれほど高くないが、粒度分析装置のようなほぼ単一目的の装置が必要な検査法は速やかな導入が困難である。法地質学は犯罪捜査に貢献することが重要であるので、最新の分析技術と汎用性の高い分析技術の長所をよく理解し、研究を進めていく必要がある。

今回取り上げた研究の多くは欧米で行われており、地質学的にはほとんどが安定大陸地域である。一方で、日本は変動帯のため土壌も未成熟であり、地質的には非常に富んでいることから、その特徴を生かした法地質学検査法の開発が必要である。現状では国内の大学において十分な法科学教育はされておらず、そのため、法科学と地質学の両方の基礎を有する研究者は非常に少ない。今後の日本における法地質学の発展には、現在一線で活躍している地質学研究者のより一層の理解と協力は欠かすことができず、また、学生が法科学を学ぶ機会が増えることが必要であると考えられる。

**謝辞**：本総説の執筆にあたり科学警察研究所の吉川ひとみ主任研究官には土砂中のDNA検査に関する助言を頂いた。ここに記して感謝の意を表す。

## 引用文献

- Antoci, P.R., and Petraco, N., 1993, A technique for comparing soil colors in the forensic laboratory. *Journal of Forensic Sciences*, vol.38, 437-441.
- Arroyo, L., Trejos, T., Gardinali, P. R., and Almirall, J. R., 2009, Optimization and validation of a Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry method for the routine analysis of soils and sediments. *Spectrochimica Acta Part B*, vol. 64, 16-25, doi:10.1016/j.sab.2008.10.027.
- Arroyo, L., Trejos, T., Hosick, T., Machemer, S., Almirall, J. R., and Gardinali, P. R., 2010, Analysis of Soils and Sediments by Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (TLA-ICP-MS) : An Innovative Tool for Environmental Forensics. *Environmental Forensics*, vol. 11, 315-327, doi:10.1080/15275922.2010.494949.
- Blott, S.J., Croft, D.J., Pye, K., Saye, S.E., and Wilson, H.E., 2004, Particle size analysis by laser diffraction. in Pye, K., and Croft, D.J. eds., *Forensic Geoscience: Principles, Techniques and Applications, Geological Society Special Publication 232*, 63-73, Geological Society, doi:10.1144/GSL.SP.2004.232.01.08
- Blott, S.J., and Pye, K., 2006, Particle size distribution analysis of sand-sized particles by laser diffraction: an experimental investigation of instrument sensitivity and the effects of particle shape. *Sedimentology*, vol.53, 671-685, doi:10.1111/j.1365-3091.2006.00786.x.
- Bull, P.A., and Morgan, R.M., 2006, Sediment fingerprints: A forensic technique using quartz sand grains. *Science and Justice*, vol.46, 107-124. doi:10.1016/S1355-0306 (06) 71581-7.
- Butler, J. M.著 監訳福島弘文・五条堀孝 訳 藤宮仁・玉田一生・福岡義也・長崎華奈子, 2009, DNA 鑑定とタイピング 遺伝学・データベース・計測技術・データ検証・品質管理, 共立出版, 2-3.
- Cengiz, S., Karaca, A.C., Çakır, I., Üner, H.B., and Sevindik, A., 2004, SEM-EDS analysis and discrimination of forensic soil. *Forensic Science International*, vol.141, 33-37, doi:10.1016/j.forsciint.2003.12.006.
- Croft, D.J., and Pye, K., 2003, The Potential Use of Continuous-Flow Isotope-Ratio Mass Spectrometry as a Tool in Forensic Soil Analysis: A Preliminary Report. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, vol.17, 2581-2584.
- Croft, D.J., and Pye K., 2004a, Colour theory and the evaluation of an instrumental method of measurement using geological samples for forensic applications, in Pye, K., and Croft, D.J. eds, *Forensic Geoscience: Principles, Techniques and Applications, Geological Society Special Publication 232*, 49-62, Geological Society, doi:10.1144/GSL.SP.2004.232.01.07.
- Croft, D.J., and Pye, K., 2004b, Stable carbon and nitrogen isotope variations in soils: forensic applications. in Pye, K., and Croft, D.J. eds., *Forensic Geoscience: Principles, Techniques and Applications, Geological Society Special Publication 232*, Geological Society. 257-267, doi:10.1144/GSL.SP.2004.232.01.23.
- Dawson, L.A., Towers, W., Mayes, R.W., Craig, J., Vaisanen, R.K., and Waterhouse, E.C., 2004, The use of plant hydrocarbon signatures in characterizing soil organic matter. in Pye, K., and Croft, D.J. eds, *Forensic Geoscience: Principles, Techniques and Applications, Geological Society Special Publication 232*, Geological Society, 269-276. doi: 10.1144/GSL.SP.2004.232.01.24.
- Dawson, L.A., Rhind, S.M., Zhang, Z.I., Poggion, L., Kyle, C.E., Mayers, B., Alders, I., Osprey, M., Ross, J., and Cuthbert, A., 2011, Linking distribution of soil PAHs to location as a

- forensic tool. *Special Publication - Royal Society of Chemistry*, vol.338, 199-205.
- Dudley, R.J., 1975, The use of colour in the discrimination between soils. *Journal of Forensic Science Society*, vol.15, 209-218.
- Giampaoli, S., Berti, A., Di Maggio, R.M., Pilli, E., Valentini, A., Valeriani, F., Gianfranceschi, G., Barni, F., Ripani, L., and Romano Spica, V., 2014, The environmental biological signature: NGS profiling for forensic comparison of soils. *Forensic Science International*, vol. 240, 41-47, doi:10.1016/j.forsciint.2014.02.028.
- Heath, L. E., and Saunders, V. A., 2006, Assessing the potential of bacterial DNA profiling for forensic soil comparisons. *Journal of Forensic Sciences*, vol.51, 1062-1068, DOI: 10.1111/j.1556-4029.2006.00208.x
- Heath, L. E., and Saunders, V. A., 2008, Spatial variation in bacterial DNA profiles for forensic soil comparison, *Canadian Society of Forensic Science Journal*, vol.41, 29-37, DOI:10.1080/00085030.2008.10757163.
- Higgs, R., 1979, Quartz-grain surface features of Mesozoic-Cenozoic sands from the Labrador and western Greenland continental margins. *Journal of Sedimentary Petrology*, vol.49, 599-610.
- Hiraoka, Y., 1994, A possible approach to soil discrimination using X-ray fluorescence analysis. *Journal of Forensic Sciences*, vol.39, 1381-1392.
- Hiraoka, Y., 1997, Characterization of weathered products from granites around southern Lake Biwa, central Japan - Application to forensic geology, *Journal of the Geological Society of Japan*, vol.103, 36-46.
- Horswell, J., Cordiner, S. J., Maas, E. W., Martin, T. M., Sutherland, K., Bjorn W., Speir, T. W., Noogales, B., and Osborn. A. M., 2002, Forensic comparison of Soils by Microbial Community DNA Profiling. *Journal of Forensic Sciences*, vol.47, 350-353
- Janssen, D.W., Ruhf, W.A., and Prichard, W. W., 1983, The use of clay for soil color comparisons, *Journal of Forensic Sciences*, vol.28, 773-776.
- Jantzi, S.C., and Almirall, J.R., 2011, Characterization and forensic analysis of soil samples using laser-induced breakdown spectroscopy ( LIBS ). *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, vol.400, 3341-3351, DOI: 10.1007/s00216-011-4869-7.
- Jantzi, S.C., and Almirall, J.R., 2014, Elemental analysis of soils using laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry (LA-ICP-MS) and laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) with multivariate discrimination: Tape mounting as an alternative to pellets for small forensic transfer specimens. *Applied Spectroscopy*, vol.68, 963-974, doi: 10.1366/13-07351.
- Jarvis, K.E., Wilson, H.E., and James, S.L., 2004, Assessing element variability in small soil samples taken during forensic investigation. in *Pye, K., and Croft, D.J. eds., Forensic Geoscience: Principles, Techniques and Applications, Geological Society Special Publication 232*, Geological Society, 171-182, doi:10.1144/GSL.SP.2004.232.01.16.
- 吉川ひとみ, 藤浪良仁, 横山栄二, 杉田律子, 安田二郎, 鈴木真一, 2008, Bacillus cereus の VNTR 型解析による法科学的土壌資料の異同識別. *日本法科学技術学会誌*, vol.13, 167-175. DOI: 10.3408/jafst.13.167.
- Konopinski, D.I., Hudziaki, S., Morgan, R.M., Bull, P.A., and Kenyon, A.J., 2012, Investigation of quartz surface textures by atomic force microscopy for forensic analysis. *Forensic Science International*, vol.223, 245-255, doi:10.1016/j.forsciint.2012.09.011.
- Lee, C. S., Sung, T. M., Kim, H. S., and Jeon, C. H., 2012, Classification of forensic soil evidences by application of THM-PyGC/MS and multivariate analysis. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, vol.96, 33-42, doi:10.1016/j.jaap.2012.02.017.
- Lenz, E. J., and Foran, D. R., 2010, Bacterial profiling of soil using genus-specific markers and multidimensional scaling. *Journal of Forensic Sciences*, vol.55, 1437-1442, DOI: 10.1111/j.1556-4029.2010.01464.x.
- Macdonald, L.M., Singh, B.K., Thomas, N., Brewer, M.J., Campbell, C.D., and Dawson L.A., 2008, Microbial DNA profiling by multiplex terminal restriction fragment length polymorphism for forensic comparison of soil and the influence of sample condition. *Journal of Applied Microbiology*, vol.105, 813-821, DOI:10.1111/j.1365-2672.2008.03819.x.
- Macdonald, C.A., Ang, R., Cordiner, S.J., and Horswell, J., 2011, Discrimination of soils at regional and local levels using bacterial and fungal T-RFLP profiling. *Journal of Forensic Sciences*, vol.56, 61-69, DOI: 10.1111/j.1556-4029.2010.01542.x.
- Margolis, S. V, and Krinsley, D. H., 1974, Processes of formation and environmental occurrence of microfeatures on detrital quartz grains. *American Journal of Science*, vol.274, 449-464.
- Marumo, Y., Nagatsuka, S., and Oba, Y., 1986, Clay mineralogical analysis using the <0.05mm fraction for forensic science investigation-Its application to volcanic ash soils and yellow-brown forest soils. *Journal of Forensic Sciences*, vol. 31, 92-106.
- Marumo, Y., Nagatsuka, S., and Oba, Y., 1988, Rapid clay mineralogical analysis for forensic science investigation - Clay mineralogy over the short distances. *Journal of Forensic Sciences*, vol.33, 1360-1368.
- 丸茂義輝, 永塚鎮男, 大羽裕, 1989, X線による微量土壌試料中の一次鉱物の同定. *科学警察研究所報告法科学編*, 42 卷, 4-10.



- Mayes, R.W., Macdonald, L.M., Ross, J.M., and Dawson, L.A., 2009, Discrimination of Domestic Garden Soils Using Plant Wax Compounds as Markers. *in Ritz, K., Dawson L., and Miller, D. eds., Criminal and Environmental Soil Forensics*, Springer, 463-476.
- McVicar, M. J., and Graves, W. J., 1997, The forensic comparison of soils by automated scanning electron microscopy. *Canadian Society of Forensic Science Journal*, vol.30, 241-261, DOI: 10.1080/00085030.1997.10757104
- Meyers, M. S., and Foran, D. R., 2008, Spatial and temporal influences on bacterial profiling of forensic soil samples. *Journal of Forensic Sciences*, vol.53, 652-660, DOI: 10.1111/j.1556-4029.2008.00728.x.
- Murray R., 2011, *Evidence from the Earth (2nd ed.)*, Mountain Press, 200p.
- Nickolls, L.C., 1956, *The Scientific Investigation of Crime*, Butterworth and Co. (Publishers) LTD., 398p.
- Palenik, C.S., and Buscaglia, J.A., 2007, Application of Cathodoluminescence in Forensic Science. *in Blackledge, R.D. (ed.) , Forensic Analysis on the Cutting Edge –New Methods for Trace Evidence Analysis*, John Wiley and Sons, 141-173.
- Pirrie, D., Butcher, A.R., Power, M.R., Gottlieb, P., and Miller, G.L., 2004, Rapid quantitative mineral and phase analysis using automated scanning electron microscopy (QemSCAN) ; potential applications in forensic geoscience. *in Pye, K., and Croft, D.J. eds., Forensic Geoscience: Principles, Techniques and Applications, Geological Society Special Publication 232*, Geological Society, 123-136, doi:10.1144/GSL.SP.2004.232.01.12.
- Pirrie, D., Power M.R., Rollinson G.K., Wiltshire, P.E.J., Newberry J., and Campbell H.E., 2009, Automated SEM-EDS ( QEMSCAN® ) mineral analysis in forensic soil investigations: testing instrumental reproducibility. *in Ritz, K. Dawson, L., and Miller, D. eds., Criminal and Environmental Soil Forensics*, Springer, 411-430.
- Pirrie, D., Rollinson G.K., Power M.R., and Webb, J., 2013, Automated forensic soil mineral analysis; testing the potential of lithotyping. *in Pirrie, D., Ruffell, A., and Dawson, L.A. eds., Environmental and Criminal Geoforensics, Geological Society Special Publication 384*, 47-64. doi:10.1144/SP384.17.
- Pye, K., and Blott, S.J., 2004, Comparison of soils and sediments using major and trace element data. *In: Pye, K., and Croft, D.J. eds., Forensic Geoscience: Principles, Techniques and Applications, Geological Society Special Publication 232, Geological Society*, 183-196, doi:10.1144/GSL.SP.2004.232.01.17.
- Pye, K., Blott, S.J., and Wray, D.S., 2006, Elemental analysis of soil samples for forensic purposes by inductively coupled plasma spectrometry - precision considerations. *Forensic Science International*, vol.160, 178-192, doi:10.1016/j.forsciint.2005.09.012.
- Pye, K., and Croft, D. J., 2007, Forensic analysis of soil and sediment traces by scanning electron microscopy and energy-dispersive X-ray analysis: An experimental investigation. *Forensic Science International*, vol.165, 52-63, doi.org/10.1016/j.forsciint.2006.03.001.
- Pye, K., Blott, Croft, D. J., and Witton, S. J., 2007, Discrimination between sediment and soil samples for forensic purposes using elemental data: An investigation of particle size effects. *Forensic Science International*, vol.167, 30-42, doi.org/10.1016/j.forsciint.2006.06.005.
- Rawlins, B.G., and Cave, M., 2004, Investigating multi-element soil geochemical signatures and their potential for use in forensic studies. *in Pye, K., and Croft, D.J. eds., Forensic Geoscience: Principles, Techniques and Applications, Geological Society Special Publication 232*, Geological Society, 197-206, doi:10.1144/GSL.SP.2004.232.01.18.
- Ruffell, A., and Wiltshire, P., 2004, Conjunctive use of quantitative and qualitative X-ray diffraction analysis of soils and rocks for forensic analysis. *Forensic Science International*, vol.145, 13-23, doi:10.1016/j.forsciint.2004.03.017.
- 杉田 律子, 丸茂 義輝, 1992, 土砂検査の法地質学的検討 - 蕪崎地域における応用例. 第 2 回環境地質学シンポジウム論文集, 277-282.
- Sugita, R., and Marumo, Y., 1996, Validity of color examination for forensic soil identification. *Forensic Science International*, vol.83, 201-210, doi:10.1016/S0379-0738 (96) 02038-5.
- Sugita, R., and Marumo, Y., 2001, Screening of soil evidence by a particle combination of simple techniques: validity of particle size distribution. *Forensic Science International*, vol.122, 155-158, doi:10.1016/S0379-0738 (01) 00490-X.
- Vos, K., Vandenberghe, N., and Elsen, J., 2014, Surface textural analysis of quartz grains by scanning electron microscopy ( SEM ) : From sample preparation to environmental interpretation. *Earth Science Review*, vol.128, 93-104, doi:10.1016/j.earscirev.2013.10.013.
- Wanogho, S, Gettinby, G., and Caddy, B., 1987a, Particle size distribution analysis of soils using laser diffraction. *Forensic Science International*, vol.33, 117-128, doi:10.1016/0379-0738 (87) 90147-2.
- Wanogho, S., Gettinby, G. Caddy, B., and Robertson, J., 1987b, Some factors affecting soil sieve analysis in forensic science 1. Dry sieving. *Forensic Science International*, vol.33, 129-137, doi:10.1016/0379-0738 (87) 90148-4.
- Wanogho, S., Gettinby, G. Caddy, B., and Robertson, J., 1987c, Some factors affecting soil sieve analysis in forensic science 2. Wet sieving. *Forensic Science International*, vol.33, 139-147, doi:10.1016/0379-0738 (87) 90149-6.
- Wanogho, S., and Gettinby, G., 1989, Determination of particle

- size distribution of soils in forensic science using classical and modern instrumental methods. *Journal of Forensic Sciences*, vol.34, 823-835.
- Weinger, B.A., Reffner, J.A., and De Forest, P.R., 2009a, A Novel Approach to the Examination of Soil Evidence: Mineral Identification Using Infrared Microprobe Analysis. *Journal of Forensic Sciences*, vol.54, 851-856, DOI: 10.1111/j.1556-4029.2009.01064.x.
- Weinger, B.A., Reffner, J.A., and De Forest, P.R., 2009b, Rapid, reliable and reviewable mineral identification with infrared microprobe analysis., in *Ritz, K. Dawson, L., Miller, D. eds., Criminal and Environmental Soil Forensics*, Springer, 431-443.