原 著

歯の微量元素に関する研究

第2報 国内4地域における歯の微量元素 (Pb, Cu, Cd, Zn)

金子 芳 洋*

概要：歯の微量元素に関する研究報告は数少なく、その衛生学的意義はほとんど知られていない。とくに日本人の歯の微量元素の分析報告はほとんど皆無に等しい。

著者は第1報において原子吸光分光分析による歯の微量元素 (Pb, Cu, Cd, Zn) の定量法を検討した。

今回、国内4地域(東京、三重県奥津、八丈島、群馬県安中)から99本の抜去正常永久歯を収集し、第1報に示した原子吸光分析法により歯の4種類の微量元素を測定し、次のごとき結論を得た。

(1) 4微量元素の濃度平均は乾燥重量あたり、Zn 198 μ g/g, Pb 7.29 μ g/g, Cu 1.48 μ g/g, Cd 0.12 μ g/g であった。

(2) 4種類の微量元素の度数分布ヒストグラムは対数正規分布を示した。

(3) 4種類の微量元素濃度は個人差が大きく、また同一人でも歯種により大きな差を示し、また地域差を示した。

(4) 東京の歯においては Pb (11.61 μ g/g) が高値で、農山村である三重県奥津 (4.65 μ g/g) の約2.5倍を示した。

(5) 八丈島の歯においては Zn (269 μ g/g), Cu (2.94 μ g/g), Cd (0.43 μ g/g) が高値を示した。

(6) 頭初の予想に反して東邦亜鉛安中製錬所から2 km 以内の住民から得た歯は Cd (0.10 μ g/g), Zn (186 μ g/g) 共に高値を示さなかった。

(7) 各金属間の関連では Ca と Cu, Zn と Cu および Cd, Cu と Cd において1%有意の相関を認めたが、相関係数値はあまり高くなかった。

Abstract: The natural occurrence of trace metals in human teeth: II. Estimation of trace metals (Pb, Cu, Cd, Zn) in human teeth from different geographic areas in Japan, by Yoshihiro KANEKO*. Up to the present, reports on trace heavy metals in teeth of Japanese are very scarce.

The author described a method for the application of atomic absorption spectrophotometry to the determination of trace heavy metals (zinc, lead, copper and cadmium) in extracted human permanent teeth in the first report.

This article reports on the level of Zn, Pb, Cu and Cd in extracted intact human permanent teeth from different geographic areas (Tokyo, Okitsu, Hachijō Island and Annaka) employing the analytical methods that were described in the first report.

The results were as follows:

(1) The mean values of metal concentrations of 99 samples were 198 μ g/g Zn, 7.29 μ g/g Pb, 1.48 μ g/g Cu and 0.12 μ g/g Cd on a basis of dry weight.

(2) Distribution forms of the four metals in teeth were logarithmic-normal.

* 東京歯科大学衛生学教室(主任: 上田喜一教授, 指導: 西村正雄教授)

* *Department of Hygiene, Tokyo Dental College (Director; Prof. Kiichi Ueda and Masao Nishimura)*
昭和47年1月17日受付

(3) The concentrations of the four metals showed wide variation from tooth to tooth and according to geographic locality.

(4) The mean concentration of Pb was highest in teeth collected from Tokyo (11.61 $\mu\text{g/g}$ Pb) and lowest in teeth from Okitsu, a rural village (4.65 $\mu\text{g/g}$ Pb).

(5) The mean concentrations of Zn, Cu and Cd were highest in teeth collected from Hachijō Island. (269 $\mu\text{g/g}$ Zn, 2.94 $\mu\text{g/g}$ Cu, 0.43 $\mu\text{g/g}$ Cd)

(6) The data on Annaka samples indicated that teeth from the residents exposed to smoke of the Tōhō zinc smelting plant did not have a higher concentration of Cd and Zn than other regions (0.10 $\mu\text{g/g}$ Cd, 186 $\mu\text{g/g}$ Zn).

(7) Significant correlations were observed between the Ca and Cu content, the Zn and Cu content, the Zn and Cd content and the Cu and Cd content at the 1% level of significance.

1. はじめに

生体内には多種類の微量金属が存在し、その生理的意義ならびに毒性について多くの研究がなされている、しかし歯の微量金属についての研究報告は少ない。

Drea (1936)¹¹⁾は歯に 15 種類の微量金属があることを報告し、その後 Brudevold^{2), 3)}は地域の異なる健全歯群を一括試料として、12 種類の微量金属のエナメル質外層および内層の分布状態を示した。また、1956 年から 1963 年にかけて Brudevold, Steadman ら^{4), 10)}はエナメル質各層別の 10 種類の微量金属について、12 本～147 本の歯を一括試料として一連の分析を行ない、相ついで報告し、同じ頃 Söremark ら^{11), 12)}は放射化分析により第 1 小臼歯の 7 種類の微量金属について報告した。

一方、わが国において歯に含有する微量金属の系統的研究はほとんどみられず、わずかに乳歯の Sr⁹⁰ に関する大西の報告^{13), 14)}、13 種類の微量金属に関する山中らの報告¹⁵⁾ および実験動物の新生象牙質の生体染色における醋酸鉛の沈着線についての岡田、三村の研究¹⁶⁾ がみられるくらいである。

生体内の Pb については鉛関係作業者の職業病と関連して古くから多くの研究がなされてきたが、口腔関係では歯肉に見られる鉛縁 (Burtonian line) として 1840 年にすでに観察されている^{17), 18)}。また、歯の Pb については Pfrieme (1934)¹⁹⁾ が正常人および鉛中毒者について各個人の抜去歯の一括試料 (灰分重量で約 3 g) の分析成績を報告し、近年では Brudevold ら⁶⁾、山中ら¹⁵⁾ も報告してい

る。しかしこれらの成績は試料数や分析法の感度から十分とはいえない。また、硬組織内に取込まれた Pb について、MacDonald²⁰⁾ らによる骨の Pb についての研究から Pb がアパタイト結晶格子内に取込まれる可能性を推論するに止まり、歯の Pb 沈着の生理的、衛生学的意義については不明確な点が多い。

また、Cruickshank^{21), 24)} (1936～1949) は各個人の歯の Zn 含有量についてエナメル質、象牙質別に分離して測定し、歯が人体中で Zn を一番多く含有することおよび結核症患者の歯が Zn 沈着の多いことを報告している。また、Brudevold ら (1963)¹⁰⁾ は Zn がハイドロアパタイト結晶の Ca と交代して入り込む可能性を示唆している。

しかし、Pb 同様歯の Zn の存在意義および取り込みの機構は不明な点が多い。

歯の Cu についての報告も数は少なく、Ginzburg ら²⁵⁾、Brudevold ら⁵⁾、山中ら¹⁵⁾、Söremark ら^{11), 12)} の報告があるが、いずれも試料に限度があり、また分析法の限界から個々の歯の Cu についての詳細は不明である。

職業病としての Cd 中毒は 1920 年代から知られており、とくに Cd を扱うアルカリ乾電池工場での中毒患者の歯にカドミウムリング (golden-yellow ring) が見られたことが報告されている^{17), 18)}。また近年、公害と関連して Cd の汚染問題、とくにわが国においてはイタイイタイ病との関連性から生体試料、環境土壌、河川、飲料水、食品中などの Cd の分析や動物実験の学会発表、研究報告^{26) - 33)} が盛んに行なわれている反面、歯に関連し

ては Leicester³⁴⁾の飲料水に CdCl_2 を添加した場合の動物実験および Hein³⁵⁾の食餌中に各種の微量金属塩を添加した場合のカリエスとの関係についての動物実験などの報告はあるが、人の歯についての報告は皆無である。

最近の研究者の歯の微量金属の存在意義およびカリエス発生との関係に関する研究討論をみると、骨や歯のような石灰化組織はある種の金属 (Fe, Mn, Cu, Zn 等) には蓄積場所 (reservoir) として働き、またある種の金属 (Pb, radio-Sr 等) には体液からそれを取り去るように働くのではないかという推論³⁶⁾、また酵素活性に関係があるのではないかという考え方³⁷⁾、あるいは歯の微量金属とカリエス発生に関する研究者達の成績が相反して不明であるとの意見³⁸⁾などさまざまである。このように歯の微量金属についてはその代謝、存在意義などがほとんど明らかにされていないのが現状である。

著者は第1報³⁹⁾において原子吸光分析による歯の Pb, Cu, Cd, Zn 定量法の検討を報告した。今回、日本国内数地区の被検者より抜去した齲蝕のない歯を選び、第1報の方法で分析し歯の Pb, Cu, Cd, Zn 含有量について種々検討を加えた。

なお、齲蝕のない歯を選んだ理由は齲蝕および充填物の影響を除外するためである。また各歯の試料はエナメル質、象牙質に分離定量しないで1本として測定したが、その理由は次の通りである。(1) 本定量法は4微量金属およびCaを同時定量するので、1本の歯について分離定量すると試料量が少なく定量感度に問題があつて測定が困難である。(2) 今回の実験は個々の歯について4微量金属がどの位含まれているかを調査し、その分布と地域環境との関連性を検討することが主旨であるので分離の必要がないと考えた。

2. 方 法

2.1. 試料

都会地として東京都荒川区(T地区と略す)、農山村地として三重県奥津(O地区と略す)、漁村として八丈島(H地区と略す)、Cd汚染地区として群馬県安中(東邦亜鉛製錬所より2km以内の住

民でA地区と略す)住民の歯を各地区の歯科診療所に依頼して採集した。また試料とした歯は齲蝕のあるもの、充填のあるものは除外し、正常永久歯(肉眼的に齲蝕のないものを正常歯とした。また、以下歯とあるはこの試料とした抜去正常永久歯を示す)のみを選んだ。試料総数99本、内分けはT地区24本、O地区22本、H地区17本、A地区36本で総試料歯のうち前歯37本、臼歯62本である。歯は軟組織、歯石などの付着物を除去後水洗、120°C、24時間乾燥後重量測定し、この試料について灰化定量する。

2.2. 定量操作および測定

前記の試料を蓋付磁性ルツボに入れ、 HNO_3 5 ml を加え 48~72時間放置して溶解した後、10%第2リン酸ナトリウム液 5 ml を加えホットプレート上にて 70°C、5時間乾燥、マッフル炉に入れ 400~450°C にて10時間灰化する。灰化物を HCl 5 ml に溶解、20ml 定量メスフラスコに移し蒸留水で全量 20ml に定容し、それを試料保存液とする。この試料保存液について第1報の方法³⁹⁾にしたがつて各微量重金属を測定する、また APDC-MIBK による金属抽出時の試料中の pH の影響についてさらに検討した。その成績は図1、2のよ

図1 混合標準液の抽出時 pH と吸光率の関係

うに、酸性領域における pH の影響は比較的少なく、むしろ試料については Ca の沈澱が最も影響する。

また定量法については第1報³⁹⁾にくわしく説明してあるが、その概略を説明すると次のようである。

図2 試料液の抽出時 pH と吸光率の関係

a) Pb, Cu, Cd 定量操作

200ml 容量分液ロートに試料保存液 10ml を取り、40%クエン酸 3ml を加えた後 pH を 3.5 に調整、1% APDC 3ml, MIBK 5ml を加えて振盪静置後 MIBK 層を分離採取する。Pb, Cu, Cd 混合標準溶液についても同様に操作する。

b) Zn 定量操作

試料保存液 2ml を 20ml 容量メスフラスコに取り、40%クエン酸 3ml を加え pH 調整して 20ml 定容とする。Zn 標準溶液を同様に調製する。

c) Ca 定量操作

b 項で作製した溶液から 0.4ml を 20ml 容量メスフラスコに取り、40%クエン酸 1ml を加え、pH 調整して 20ml 定容とする。Ca 標準溶液を同様に操作で調製する。

d) 測定

測定装置は第1報と同じく日立 207 型原子吸光分光光度計および日立 QPD-54 記録計を使用した。フレームは空気-アセチレン、測定条件も第1報の通りであるが、測定時毎に多少の調整を必要とする。Pb, Cu, Cd については APDC-MIBK 同時抽出法、Zn および Ca については試料水溶液希釈直接法である。すなわち a 項で分離した MIBK 液、および b, c 項で調製した水溶液をそれぞれ噴霧燃焼させ吸光率を記録し、同様に処理した各標準溶液の吸光率から各金属標準直線を描き、内挿法にて試料中の金属濃度を算出した。

3. 成 績

歯99本(82人)の Ca および 4 微量金属(Pb, Cu,

表1 試料歯全例の測定成績

元素名	試料数	検出できた試料数	範囲	中央値	平均値	標準偏差
Ca*	98	98	129~316	266	261	36
Zn**	99	99	79~888	195	209	89
Pb**	96	93	1.12~64.67	7.16	10.83	11.46
Cu**	98	94	0.16~10.39	1.53	2.02	1.81
Cd**	97	80	0.01~1.25	0.11	0.20	0.24

* mg/g dry weight ** μ g/g dry weight

Cd, Zn ; 以下この4つの元素を指す時は単純に金属と略す)の測定成績を表1に示した。Ca は硬組織の特徴としてハイドロアパタイトを形成する主元素であるから金属測定のベースとして測定した。表1には各金属ごとに試料数、検出できた試料数、最少最大値の範囲、中央値、実測値からの平均値および標準偏差を示した。

金属を検出できなかったもの(N.D.)が、Pb 3例、Cu 4例、Cd 17例あった。著者らの定量法³⁹⁾⁴⁰⁾による検出限界は、歯1本(0.4~2.5g 程度の重量差を示す)を灰化後 20ml の同一量の塩酸溶液とし、その溶液について検出下限は Pb 0.035ppm, Cu 0.015ppm, Cd 0.0015ppm 程度である。したがって歯の乾燥重量1g の N.D. については実際に検出下限以下の場合と、実際には検出下限以上の含有量があつても歯の重量が少ないために測定下限に達しなかつた場合の2通りが含まれている。したがって Pb, Cu, Cd の測定最少値以下の含有量も当然あり得る、しかし、今回の成績処理にあたって測定法の特徴から測定および計算不可能のものとして N.D. とし、統計処理からは除外した。

また、各個人の口腔から多数の歯を同時に得られることは少ないが、同一人の口腔から得られた歯の測定成績を表2に示した。表2のごとく同一人の歯においても金属含有量は一定性を示さず、異なつた口腔から得た歯の測定値と同様なバラツキを示し、また例数が少ない(9名)ので同一人の17歯もそれぞれ1試料として全例99歯の内に含めて扱つた。

図3に各金属の度数分布をヒストグラムで示す。Ca はほぼ正規に近い分布を示したが、Zn は幾分低含有量側に偏在したバラツキを示し、また

表 2 同一人から得られた歯の測定成績

氏 名	地域	性	年齢	部位	乾燥重量 (g)	Ca mg/g	Zn μ g/g	Pb μ g/g	Cu μ g/g	Cd μ g/g
柳 ○ 幸 ○	T	F	29	[7]	1.8817	251	149	7.65	0.32	0.15
				[7]	1.9640	248	155	4.18	0.41	0.08
				[6]	2.1581	236	79	4.91	1.11	0.21
				[5]	1.0168	285	172	3.93	2.36	0.12
				[5]	1.0097	287	149	3.96	2.37	0.08
				[4]	0.8636	290	156	19.45	2.08	0.05
伊○太○衛○	T	M	63	[4]	1.3720	270	208	12.24	2.04	0.03
				[5]	1.2564	265	191	13.37	0.48	N.D.
				[6]	2.4091	239	208	16.60	1.00	0.32
橋 ○ 清 ○	O	F	32	[1]	1.0874	267	193	3.68	3.68	N.D.
				[1]	1.0951	265	192	1.83	4.20	N.D.
				[2]	0.9130	274	192	7.67	2.63	N.D.
中 ○ チ ○	O	F	43	[3]	1.0161	261	148	2.95	1.18	N.D.
				[3]	1.2525	266	148	1.60	0.48	N.D.
				[5]	1.0543	294	152	2.28	0.57	0.12
原 ○ キ ○	O	F	46	[3]	0.8865	299	181	2.71	1.35	0.07
				[3]	1.1027	281	186	2.72	1.09	0.09
榎 ○ 房 ○	O	F	47	[3]	1.1549	286	195	8.31	0.52	N.D.
				[4]	1.0722	/	201	4.48	0.28	0.03
大 ○ マ ○ エ	O	F	46	[5]	0.7476	308	167	/	0.80	0.08
				[5]	0.7571	294	159	N.D.	4.75	N.D.
鈴 ○ し ○	O	F	62	[4]	0.8500	271	177	4.94	4.35	0.07
				[3]	0.9409	282	175	/	0.64	0.14
				[3]	0.9701	263	155	4.33	1.24	0.03
中 ○ ト ○	O	F	68	[1]	0.9025	305	194	3.32	0.66	0.11
				[6]	1.8290	129	82	10.83	0.16	N.D.

Pb, Cu, Cd はさらに低含有量側に偏在したバラツキを示した。

そこで全測定値を対数値(Ca, Zn, Pb は直接変換, Cu は測定値を10倍, Cd は100倍して対数値とした)として, その度数分布ヒストグラムを図4に示した。各金属とも対数正規に近い分布を示したので以後の統計処理は対数値について行なった。

したがって表3には試料数, 検出できた試料数, 対数値による平均値および標準偏差, 対数値からの常数変換値を示した。

また, 歯の各金属含有量の平均値および標準偏差を片対数グラフとして図5に示した。

Ca は対数値 2.412 ± 0.070 (常数変換値 258mg/g) で, 他の金属に比較して偏差が小さい。歯の金属含有量は $Zn > Pb > Cu > Cd$ の順で, とくに Zn は含有量が高い。Zn は対数値 2.297 ± 0.130 (常数変換値 198 μ g/g) で Ca よりは偏差は大きい, 他の3金属と比較しては小さい。Pb は対数値 0.862 ± 0.376 (常数変換値 7.29 μ g/g), Cu は対数値 1.170 ± 0.345 (常数変換値 1.48 μ g/g), Cd は対数値 1.093 ± 0.409 (常数変換値 0.12 μ g/g) で3金属とも Ca, Zn に比較して偏差が大きい。

3.1. 地域差について

表4には東京都荒川区(T), 三重県奥津(O), 八丈島(H), 群馬県安中(A)のCaおよびZn,

図 3 各金属の度数分布ヒストグラム
(3-1, 2, 3, 4, 5)

表 3 全測定値の対数値による成績

元 素 名	試 料 数	検出できた試料数	対 数 値***		常 数 変 換 値		
			平 均 値 (M)	標準偏差 (S.D.)	M	+ S.D.	- S.D.
Ca*	98	98	2.412	0.070	258.00	45.00	38.00
Zn**	99	99	2.297	0.130	198.00	69.00	51.00
Pb**	96	93	0.862	0.376	7.29	10.02	4.22
Cu**	98	94	1.170	0.345	1.48	1.79	0.81
Cd**	97	80	1.093	0.409	0.12	0.20	0.07

* mg/g dry weight ** µg/g dry weight

*** Ca: $\log(\text{mg/g})$, Zn, Pb: $\log(\mu\text{g/g})$, Cu: $\log(\mu\text{g/g} \times 10)$, Cd: $\log(\mu\text{g/g} \times 100)$

図 4 各金属の対数値による度数分布
ヒストグラム (4-1, 2, 3, 4, 5)

Pb, Cu, Cd について地域別測定値の代表値を示した。

なお図 6 に地域別に対数値による 平均値および標準偏差の常数変換値を図示し、また各金属の地域別平均値の有意差検定成績を表 5 に示した。

a) Ca について

図 6-1 に示すごとく、Ca の平均値は安中 271 mg/g>奥津 270mg/g>八丈島 243mg/g>東京 240

mg/g の順で、安中は八丈島および東京より 0.5% の有意差で高値を示し、奥津は八丈島、東京より 1% の有意差で高値を示した。奥津と安中、八丈島と東京の間には有意差がなかった。なお、奥津に 1 例(129mg/g)、八丈島に 2 例 (134mg/g, 141 mg/g) の非常に低い値を示すものがあつた。

b) Zn について

図 6-2 に示すごとく、Zn の平均値は八丈島 269

図 5 全試料における各金属の平均値

µg/g>東京 195µg/g>安中 186µg/g>奥津 172µg/g の順で、八丈島は圧倒的に高く 0.5% の有意差で安中、奥津より、また 1% の有意差で東京より高値を示した。また安中は 5% の有意差で奥津より高値を示し、東京、奥津間には有意差はなかった。八丈島には 534µg/g, 888µg/g の非常に高い値を示すものが 1 例ずつあった。

c) Pb について

図 6-3 に示すごとく、Pb の平均値は東京 11.61 µg/g>八丈島 8.64µg/g>安中 6.27µg/g>奥津 4.65 µg/g の順で、東京は 0.5% の有意差で奥津、安中より高値を示した。八丈島には 25~70µg/g の高値を示すものが 4 例あり、その他の 13 例はすべて 10µg/g 以下に分布していた。なお、東京の測定値の分布は 10µg/g 以上に半数以上が分布するのに比較して、他の 3 地区は測定値の大部分が 10µg/g 以下に偏在した傾向がみられた。

d) Cu について

図 6-4 に示すごとく、Cu の平均値は八丈島 2.94 µg/g>東京 1.80µg/g>奥津 1.11µg/g>安中 1.07

表 4 地域別測定成績

元素名	地域	試料数	検出で きた試料 数	範 囲	中央値	平均値 (M)	標準偏差 (S.D.)	対 数 値***		常 数 変 換 値		
								M	S.D.	M	+ S.D.	- S.D.
Ca*	T	24	24	198~290	238	241	25	2.380	0.045	240	26	24
	O	21	21	129~308	275	273	36	2.431	0.075	270	51	43
	H	17	17	134~313	266	249	53	2.385	0.107	243	68	54
	A	36	36	224~316	275	272	23	2.434	0.036	271	24	22
Zn**	T	24	24	79~286	198	201	44	2.290	0.112	195	57	45
	O	22	22	82~201	183	174	27	2.235	0.083	172	36	30
	H	17	17	123~888	295	302	173	2.430	0.195	269	152	97
	A	36	36	137~284	189	192	32	2.277	0.070	186	36	18
Pb**	T	24	23	3.93~46.93	12.24	15.17	11.29	1.065	0.322	11.61	12.74	6.07
	O	20	19	1.60~13.27	4.48	5.63	3.51	0.668	0.270	4.65	4.01	2.15
	H	17	17	1.12~64.67	9.16	15.67	18.43	0.936	0.473	8.64	17.00	5.73
	A	35	34	1.37~31.15	6.46	8.38	7.13	0.797	0.329	6.27	7.10	3.33
Cu**	T	24	24	0.32~10.08	2.15	2.44	2.07	1.255	0.352	1.80	2.25	1.00
	O	22	22	0.16~ 4.75	1.11	1.57	1.37	1.042	0.373	1.11	1.49	0.64
	H	17	17	1.11~10.39	2.90	3.47	2.29	1.468	0.243	2.94	2.20	1.26
	A	35	31	0.35~ 2.96	1.06	1.22	0.61	1.031	0.221	1.07	0.72	0.43
Cd**	T	24	19	0.03~ 0.32	0.08	0.10	0.08	0.914	0.290	0.08	0.08	0.04
	O	21	12	0.03~ 0.14	0.07	0.08	0.03	0.860	0.215	0.07	0.05	0.03
	H	17	17	0.02~ 1.25	0.50	0.55	0.31	1.630	0.397	0.43	0.63	0.26
	A	35	32	0.01~ 0.29	0.12	0.12	0.06	1.002	0.256	0.10	0.08	0.06

* mg/g dry weight ** µg/g dry weight

*** Ca: log (mg/g), Zn, Pb: log (µg/g), Cu: log (µg/g×10), Cd: log (µg/g×100)

T: 東京都荒川区 O: 三重県奥津 H: 八丈島 A: 群馬県安中 (東邦亜鉛製錬所より 2 km 以内の住民)

図 6 各金属の地域別平均値
 T : 東京 O : 三重県奥津
 H : 八丈島 A : 群馬県安中
 (6-1, 2, 3, 4, 5)

表 5 各金属の地域別平均値の有意差検定

Ca

O	**		
H		**	
A	***		***
	T	O	H

Zn

O			
H	**	***	
A		*	***
	T	O	H

Pb

O	***		
H		*	
A	***		
	T	O	H

Cu

O	*		
H	*	***	
A	**		***
	T	O	H

Cd

O			
H	***	***	
A			***
	T	O	H

*** 0.5%で有意

** 1%で有意

* 5%で有意

$\mu\text{g/g}$ の順で、八丈島で高く 0.5% の有意差で奥津および安中より、また 5% の有意差で東京より高値を示した。東京は安中より 1%、奥津より 5% の有意差で高かった。

e) Cd について

図 6-5 に示すごとく、Cd の平均値は八丈島 $0.43 \mu\text{g/g}$ > 安中 $0.10 \mu\text{g/g}$ > 東京 $0.08 \mu\text{g/g}$ > 奥津 $0.07 \mu\text{g/g}$ の順で、八丈島は圧倒的に高く、0.5% の有意差で他の 3 地区より高値を示した。また八丈島では測定値の分布状態が他の 3 地区と異なつてその範囲が広く、しかも範囲全体に比較的一様な分布を示し、大きな標準偏差を示した。しかし八丈島の低値でも他地区の最高値に近い数値を示し、他地区とかけはなれて高値を示した。なお、安中と東京、奥津間には有意差は認めなかつた。

3.2. 金属間の関連について

Ca, Zn, Pb, Cu, Cd の各金属間の対数値による相関図を図 7 に示した。また地区別各金属間の相関マトリックスを表 6 に示した。

Pb と他の金属との関係については、全試料歯の測定成績および地域別測定成績ともに有意の相関は見られなかつた。全試料成績では、Ca と Cu, Zn と Cu および Cd, Cu と Cd については 1% 有意の相関を示した。また地区別各住民の歯では、八丈島の Cu と Cd, 安中の Ca と Cd, 奥津における Ca と Zn に各々 1% 有意の相関が認められ、東京、奥津、八丈島の Zn と Cu に 5% 有意の相関が認められた。

$\text{Cd}(\mu\text{g})/\text{Ca}(\text{g})$ は東京 $0.44 \mu\text{g}$, 奥津 $0.30 \mu\text{g}$, 安中 $0.53 \mu\text{g}$, 八丈島 $2.59 \mu\text{g}$ を示し、また $\text{Cd}(\mu\text{g})/\text{Zn}(\mu\text{g}) \times 100$ は東京 0.06%, 奥津 0.05%, 安中 0.06%, 八丈島 0.20% で、両者とも八丈島で高値を示した。

4. 考 察

試料としての抜去永久歯で齲蝕のない正常歯を扱うか、充填物または齲蝕のあるものでも充填物、齲蝕部分を取り除いて試料とするかについては研究者によつて定説がない。Brudevold ら⁴⁾⁻¹⁰⁾ は充填物および齲蝕部分を取り除いた歯質について一括試料として F, Zn, Cu, Pb, Sn 等の分析を行い、その成績から Cu の定量において正常歯グループが他の一括試料と差が見られなかつたことを報告した。一方 Söremark ら^{11) 12)} は隣在歯にも充填物のない健全歯を使用して分析を行い、その他の歯の微量元素に関する報告者の分析はほとんど正常歯についてであった。

銀合金およびアマルガムには多少の差はあつても測定した 4 種類の微量元素は含まれており、充填歯では、歯質汚染の危険がある、したがつて著者の定量ではいわゆる正常永久歯を試料として使用した。

さて今回の全試料中に各個人の口腔の歯が一括して含まれている、その理由は Crowell と Hodge ら⁴⁾ によると歯の主要構成成分の分析成績から同一人の歯の成分含有量でも歯の種類により他人の歯と同じ位い変化があることを報告し、また Brudevold²⁾ も同じ点に触れている。

著者の測定した歯における Zn, Pb, Cu, Cd の定量成績でも、同一人の歯の成績において同様な

図 7 各金属間の相関関係 (7-1~10)

表 6 各金属間の相関マトリックス

		Ca		Zn		Pb		Cu	
		地 域 別	計	地 域 別	計	地 域 別	計	地 域 別	計
Zn	T	-0.336	0.144	/	/	/	/	/	/
	O	0.847*							
	H	0.358							
	A	0.318							
Pb	T	-0.277	-0.088	0.439	0.130	/	/	/	/
	O	-0.275		-0.021					
	H	0.236		-0.226					
	A	0.170		0.290					
Cu	T	-0.196	0.339*	0.470**	0.504*	0.174	0.246	/	/
	O	0.440		0.449**		-0.141			
	H	0.451		0.572**		0.233			
	A	-0.050		0.108		0.232			
Cd	T	0.000	0.101	-0.058	0.455*	-0.260	0.023	-0.243	0.360*
	O	0.192		-0.246		0.362		0.064	
	H	0.413		0.396		0.215		0.728*	
	A	0.487*		0.350		-0.090		-0.090	

* 1%有意 ** 5%有意

結果が見られ、とくに Pb, Cu, Cd においてその傾向がとくに大きかった。このことは各個人についても歯の石灰化の時期が異なり、その時期における外部環境の金属汚染時期が異なることによると考えられる。このことを裏づけることとして、環境の金属汚染の少ないと思われる奥津では歯の微量金属は低値を示した。

硬組織以外の臓器中の微量金属について、Smith ら⁴²⁾は肺の7種の微量金属の分析を行ない、生体に必須の微量金属 (Cu, Mn, Zn) は正規度数分布を示し、生体に必須でない微量金属 (As, Hg, Cd, Sb) は低含有量側に偏在し、対数正規分布を示したことを報告した。また7微量金属を対数変換した場合、すべて対数正規分布を示し、しかも必須元素は偏差が小さく、非必須元素は偏差が大きいことを示した。

また銅について、Molokhia ら⁴³⁾の皮膚の Cu についての報告ではほぼ正規分布に近く、Nixon と Smith⁴⁴⁾はエナメル質の Cu について低濃度側に偏在した分布を示し、酒井⁴⁵⁾は頭髮中の Fe, Cu, Zn において、また堀内ら⁴⁶⁾は血中鉛におい

て対数正規分布を示すことを確認した。

著者の成績では、測定値の度数分布ヒストグラムにおいて Ca はほぼ正規分布に近く、Zn はやや低含有量側に偏在し、Pb, Cu, Cd はさらに低含有量側に偏在を示したので対数変換をして各金属が対数正規分布を示すことを確認し、Smith らの肺における金属分布の成績と一致した。

4.1. Ca について

歯の Ca について従来の報告を要約して表7に示した。Crowell ら⁴¹⁾は1932年以前の報告を要約して示したが、試料の詳細と基礎となる重量単位、分析方法が不明であり、また試料数も比較的少ない、その定量値は一部を除いて約25~28%を示している。Crowell ら⁴¹⁾および Lefevre と Hodge⁴⁷⁾は歯のエナメル質、象牙質、セメント質を含む縦断試料についてその主要成分の詳細な分析を試みたが、乾燥重量を基礎とした無機質重量あたり平均値37.5%, 35.2%を報告した。この成績から著者が計算すると乾燥重量あたり約280 mg/g であつた。著者の成績ではエナメル質、象牙質、セメント質、歯髄を含んだ1本の歯として

表 7 歯の Ca 報告値

報 告 者	Ca 測 定 値	備 考
Crowell et al. (1934) による。 Pepys (1814) Lassaigne (1821) Ulrich (1925) Reeves (1928) Kaushansky (1930) Quinetarelli (1932)	27.2% 27.6% 36.3~38.1% 24.5%, 27.6% 28.46% 27.05%, 27.15%	永久歯。(試料数不明) 永久歯。(試料数不明) 永久歯。(試料数不明) 前歯20本, 臼歯20本。 正常永久歯23本。 第1大臼歯, 第2大臼歯。
Crowell et al. (1934)	37.5±9.8(27.0~47.0)**	永久歯90本, 化学分析(滴定法)。
Lefevre & Hodge (1937)	35.2±0.76(33.6~36.8)**	永久歯99本, 化学分析(滴定法)。
Brudevold (1962)	36.0(34~39) (E)*** 27.0(25~29) (D)***	文献による平均値。
Söremark & Samsahl(1961~2)	37.4±1.0 (E)*** 28.2±1.2 (D)***	正常第1小臼歯15本(Stockholm在住14~16歳) ガンマ線分光分析。
金子 (1971)	261mg/g (129~316)* (258mg/g)	正常永久歯98本の平均値。原子吸光分析。 (()) 内は対数平均値の常数変換値。

* dry weight. ** % of inorganic weight on basis of dry weight. ***% of dry weight. (E): enamel
(D): dentin

表 8 歯の Zn 報告値

報 告 者	Zn 測 定 値	$\frac{D+E}{2}$	備 考
Cruickshank (1936)	233±27μg/g (E)* 241±30μg/g (D)*	237 μg/g	正常前歯小臼歯10本。
Cruickshank (1940)	152±27μg/g (E)* 178±21μg/g (D)*	165 μg/g	正常永久歯53本(5人)。 ジチゾン法。
Cruickshank (1949)	♂: 195μg/g ♀: 199μg/g (E)* ♂: 196μg/g ♀: 205μg/g (D)*	199 μg/g	正常小臼歯(10~17歳)。ジチゾン法。 (E)……♂ 53本。 ♀ 46本。 (D)……♂ 33本。 ♀ 37本。
Söremark & Samsahl(1961~2)	276±106ppm (E)* 199±78.1ppm (D)*	238 ppm	正常第1小臼歯15本(14~16歳)の ガンマ線分光分析。
Brudevold (1960)	6.6~27.5μM/g (OE) 2.9~14.2μM/g (BE)		異なった地域における濃度範囲。
金子 (1971)	209μg/g (79~888)* (198μg/g)		正常永久歯99本の平均値。原子吸光分析。 (()) 内は対数平均値の常数変換値。

* dry weight (E): enamel (D): dentin (OE): outer enamel (BE): body enamel

平均 261mg/g, 対数平均値常数変換で 258mg/g
を示したが, ほぼ Crowell, Lefevre らの成績に
近いと思われる。Brudevold²⁾ および Söremark
と Samsahl⁽¹⁾⁽²⁾ の報告はエナメル質, 象牙質別の

分析で著者の成績とは直接比較はできないが, 従
来の報告にくらべて幾分高値のように思われる。

また, 成績の項(3.1.—a) で述べたごとく 150
mg/g 以下の測定値を示したものが3例あつたが,

Crowell と Hodge⁴¹⁾ の測定成績中にも無機質重量あたり 9.55% (著者の計算により乾燥重量あたり約 80mg/g) の非常に低い値を示したものがあつた。この理由については不明である。

4.2. Zn について

歯の Zn について、従来の報告を要約して表 8 に示した。また参考のために $\frac{\text{dentin} + \text{enamel}}{2}$ を計算して表中に示した。Cruickshank²³⁾ は $\frac{D + E}{2}$ を使用して歯牙組織中の Zn 量を正常人と結核患者について比較図示した。個々の歯は同量のエナメル質と象牙質からできていないから、 $\frac{D + E}{2}$ は正確には歯 1 本についての金属量を示すものではないが、歯 1 本 1 本についての著者の成績と比較する意味で計算した。その結果、著者の成績と従来の報告は大差がないように思われる。

Cruickshank^{21) 23) 24)} は 1936 年から 1949 年にかけて歯の Zn について詳細な研究を相ついで報告したが、その測定値の平均は必ずしも一致していない。これは表 8 にみるごとく試料がそれぞれ異なるので、歯の Zn の個人差、地域差を考えると当然のことと思われる。また歯の Zn の定量を行な

つたのは Cruickshank が最初であるが、これにより人体中の臓器組織中で歯が Zn を最も多量に含有することを示した²²⁾。

Brudevold ら¹⁰⁾ は発光分光分析によつてエナメル質、象牙質別一括試料について分析し、Zn 濃度はエナメル質表層で 1600~1700ppm と高く、珐琅境界部で 200~300ppm、歯髄隣接象牙質で 1200ppm、また根面象牙質で 900ppm と高い傾向を示した。しかし試料の取り扱いが違つたので著者の成績とは比較できなかった。なお、日本人についての従来の報告は見られなかった。

4.3. Pb について

歯の Pb について従来の報告を要約して表 9 に示した。Pfrieme¹⁹⁾ は個人別の歯について約 3g の灰化試料を分析し、灰分重量あたり平均値 45 μ g/g の測定値を示した。また鉛中毒者の骨に Pb が多量に沈着することは産業医学方面で可成り古くから知られている¹⁷⁾、同じ石灰化硬組織である歯には鉛中毒者の平均値で正常値の約 3 倍の灰分重量あたり 140 μ g/g を示したことを Pfrieme は報告した。著者の成績に鉛中毒患者の歯の試料はないから比較的 low 値であることは当然と思われる。

表 9 歯の Pb 報告値

報 告 者	Pb 測 定 値	備 考
Cantarow & Trumper (1944) ⁵¹⁾ による。		
Roche Lynch	42.5~247.5	$\left. \begin{array}{l} 47.1 \sim 274.7 \\ 11.2 \sim 62.7 \\ 5.3 \sim 69.0 \\ 17.2 \sim 25.5 \end{array} \right\} \mu\text{g/g}^*$ $\left. \begin{array}{l} 58.6 \sim 341.5 \\ 14.0 \sim 78.0 \\ 6.7 \sim 85.8 \\ 21.3 \sim 31.7 \end{array} \right\} \mu\text{g/g}^{**}$
Maulbetsch	10.1~56.5	
Pfrieme	4.8~62.1	
Bagchi	15.5~23.0	
Pfrieme (1934)	45 μ g/g (6.66~86.66)**	61人(1人につき約 3g ash 測定)。
Brudevold (1956)	70~500ppm (E)	一括試料による発光分光分析。 エナメル質内層から外層への分布値。
山 中 (他) (1959)	3.8ppm (ND-10) (E)* 8.6ppm (ND-30) (D)*	正常永久歯 20 本の発光分光分析。 $\left(\frac{D + E}{2} = 6.2 \right)$ 。
Brudevold (1960)	0.4~2.6 μ M/g (OE) 0.1~1.1 μ M/g (BE)	異なつた地域における濃度範囲。
金 子 (1971)	10.83 μ g/g (1.12~64.67)* (7.29 μ g/g))	正常永久歯 93 本の平均値。原子吸光分析。 (()) 内は対数平均値の常数変換値。

* dry weight ** ash weight *** fresh weight (E) : enamel (D) : dentin (OE) : outer enamel (BE) : body enamel

表10 歯の Cu 報告値

報 告 者	Cu 測 定 値	備 考
Ginzburg & El'piner (1947)	5.2 μ g/g**	正常歯。
Brudevold & Steadman (1955)	20ppm (O E)	一括試料の発光分光分析。
Brudevold (1960)	0.1~1.8 μ M/g (O E) trace-0.6 μ M/g (B E)	異なつた地域における濃度範囲。
山中 (他) (1959)	2.2ppm (ND-20)* (E) 1.3ppm (ND-5.0)* (D)	正常永久歯20本の発光分光分析。 $\left(\frac{D+E}{2}=1.75\right)$
Söremark & Samsahl (1961~2)	0.26 $\pm$ 0.11ppm (E)* 0.21 $\pm$ 0.10ppm (D)*	正常第1小臼歯15本(10~17歳)のガンマ線分 光分析。 $\left(\frac{D+E}{2}=0.24\right)$ 。
Nixon & Smith (1962)	9.5 $\pm$ 7.8ppm (O E) 11.3 $\pm$ 9.0ppm (B E)	正常永久歯100本の放射化分析。
金子 (1971)	2.02 μ g/g (0.16~10.39)* (1.48 μ g/g)	正常永久歯94本の平均値。原子吸光分析。 (())内は対数平均値の常数変換値。

* dry weight ** ash weight (E): enamel (D): dentin (O E): outer enamel (B E): body enamel

また Pfrieme は歯の Pb は年齢の増加と共に増加することを示したが、Brudevold と Steadman⁶⁾もエナメル質一括試料の層別分析においてやはり年齢と共に増加し、しかも Pb はエナメル質表層に多量に沈着していると報告した。

日本人の歯についての報告は少なく、山中ら¹⁵⁾は20本と試料数は少ないがその分析において乾燥重量あたり平均値エナメル質 3.8ppm、象牙質 8.6ppm を示し、 $\frac{D+E}{2}$ は 6.2ppm であるから比較的著者の成績の平均 10.83 μ g/g、対数平均値常数変換 7.29 μ g/g に近い。山中らおよび著者の日本人についての分析と諸外国の文献による Pb 値とはかなりの差があり、日本人の歯の Pb 量は低い値を示しているが、人種の違いによる差か、地域環境の影響による差かは今後研究の問題点の一つであろう。

4.4. Cu について

歯の Cu について従来の報告を要約して表10に示した。Ginzburg ら²⁵⁾は正常歯の灰化重量あたり Cu 5.2 μ g/g を報告し、Söremark ら¹¹⁾¹²⁾は正常第1小臼歯について平均乾燥重量あたりエナメル質 0.26ppm、象牙質 0.21ppm を示し、また

Nixon ら⁴⁴⁾は正常永久歯 100 本について外層エナメル質 9.5ppm、内層エナメル質 11.3ppm の平均値を報告した。これらの報告には相当に差が見られる。試料の扱いの相違、分析法の相違もあるが、地域差によるものと思われる。

Brudevold ら⁵⁾は年齢別一括試料のエナメル質について層別分析を行ない、歯の Cu はエナメル質中に一様に分布し、年齢差は見られないがかなりの個々の歯における差を報告した。またその成績から歯の Cu は石灰化時期に沈着し、萌出後に外部環境などの影響を受けないことを示唆した。

日本人の歯の Cu についての報告はやはり少なく、20本の正常永久歯についての分析を山中ら¹⁵⁾が報告しているが、乾燥重量あたり平均エナメル質 2.2ppm、象牙質 1.3ppm を示した。 $\frac{D+E}{2}$ は 1.75ppm であるから、著者の成績の平均 2.02 μ g/g、対数平均値常数変換 1.48 μ g/g と近似している。

4.5. Cd について

歯の Cd 含有量についての内外の文献報告は全く見られない。著者の成績では平均 0.20 μ g/g、対数平均値常数変換 0.12 μ g/g であった。

4.6. 地域の特徴について

a) 東京都荒川区

東京における特徴は Pb である。農山村である奥津に較べて平均値で約 2.5 倍の含有量を示した。Pfrieme¹⁹⁾ が農村と都市で歯の Pb 量に差がなかったことを報告したのは 1934 年であるが、それから 37 年経過した現在、工業の発達、自動車の普及等、都市の環境はかなり変化している。Pfrieme の報告と著者の成績を直接比較することは無理があると思われるが、20~30 年前における東京の歯の Pb 量が不明であるから推論するしか方法がない。堀内ら⁴⁶⁾ は大阪市およびその周辺都市に在住健康者の血液中鉛をジチゾン・ポーラログラフ法を用いて分析し、15 年前に較べて増加していることを認め、自動車交通量の増加をはじめとする今日の都市社会における環境的変動が関係あるものと推論している。また熊城、緒方⁴⁸⁾ は岡山市内の道路土壌中の鉛を原子吸光法を用いて分析し、鉛含有量の平均は国道交差点：480ppm、市内中級道路：110ppm、交通量のほとんどない道路：30ppm とかなり著明な差を示したことを報告し、排気ガス中の鉛に基づくものと推察した。著者の試料は東京都荒川区に在住している人の歯であるが、荒川区は自動車交通量は非常にはげしく、周辺に中小工場があり、また足立区宮城浄水場も近い等の条件があり、かなりの Pb による環境汚染があると思われる。Pfrieme、Brudevold らの報告にあるように歯の Pb は年齢と共に増加し、また鉛中毒患者では非常に高値を示すことを考えると萌出後に Pb は歯に沈着し易いと考えられるから、歯の Pb は環境の Pb 汚染を示し得ると考えられる。

Cu について、さきに触れたごとく Brudevold ら⁵⁾ の成績から歯の Cu は石灰化時期に取り込まれ、萌出後の変化が見られないことを考えると歯の石灰化時期に在住していた地域が問題であり、現住地は関係ないと考えられる。東京のように種々の所で生れた人が集まる都会ではその考察が難しい。東京における経歴の判明している試料でも出生地は種々で、東京に生れ育つた人の歯のみを試料とすれば、東京の Cu の特徴が判明すると思われるが、著者の今回の成績ではその判定はでき

なかつた。

b) 三重県奥津

三重県奥津に見られた歯の微量元素の特徴は Zn, Pb, Cd の含有量が他の 3 地域に較べて低値を示したことである。しかし Cu は安中に較べ平均値が幾分高値でまた分布範囲が広く、安中より高値を示すものが数例あつた。三重県奥津には戦前、電柱の硫酸銅による防腐処理場が数カ所あつた事実があるので、その排水による飲料水の汚染が考えられるかも知れない。前項で述べたごとく歯の Cu は石灰化時期の取り込みが問題と考えられるが、奥津における試料はすべて当該地において出生から現在まで住んでいた人の歯であるので、奥津の特徴を示していると考えられる。奥津の歯の Pb 含有量は 4 地域中最低値を示したが、奥津においては数年前まで自動車の交通がほとんどなかつたことから Pb による環境汚染がまだ比較的小さいと考えられる。

c) 八丈島

八丈島においては成績の項で述べたごとく Zn, Cu, Cd 共に高値を示したことが特徴であつた。堀内ら⁴⁹⁾ は日本人常用食品中の銅含有量の測定を行ない、いか、たこ類、えび、かに類、貝類に相当多量の銅を検出した。また石崎ら³⁰⁾ は常用食品の Cd および Zn 含有量の測定を行ない、頭足類、甲殻類、貝類に Zn, Cd 含有量が多いことを示し、また $Cd/Zn \times 100$ の値が他の食品よりも一般に高値であつた。Cruickshank²²⁾ は「かき」に Zn が多く含まれていることを指摘した。

八丈島では貝類、イカ、イセエビ等、Cu, Zn, Cd を多く含むと思われる食品摂取が多いので、歯の Cu, Zn, Cd が高値を示したことと関連して興味のある問題である。また著者の成績から $Cd/Zn \times 100$ を計算すると、東京 0.06%, 三重県奥津 0.05%, 安中 0.06% とほとんど同値であつたが、八丈島だけは 0.20% と高値を示した。また $Cd(\mu g)/Ca(g)$ を計算すると、東京 0.44, 三重県奥津 0.30, 安中 0.53 とほとんど同値であるが、八丈島は 2.59 と圧倒的に高値を示した。

また各金属間の関連の項で述べたごとく、八丈島においての Zn と Cu, Cu と Cd には 5% と

1%有意の相関を示した。これらのことを総合して考える時、八丈島における歯と食品の Zn, Cu, Cd の関連性が十分考えられる。

Wilson 病における Cu 代謝異常はよく知られているが、Fell ら⁵⁰⁾は Wilson 病患者の生検試料について銅の分析を行ない、肝臓で正常の5倍の Cu を検出したが、頭髮および爪においては正常値を示したことを報告した。Wilson 病と歯の Cu との関係は従来の研究が見られず、著者の成績からは八丈島における歯の銅が高値を示したと Wilson 病との関係は不明である。また八丈島の歯に $534\mu\text{g/g}$, $888\mu\text{g/g}$ と高い Zn の測定値を示すものがあつた。石崎ら²⁹⁾はイタイイタイ病発生地帯の住民の毛髪中の Zn, Cd を分析し、平均値の数倍に相当する 450ppm , 890ppm の Zn を検出したものがあつた、しかし Cd の測定値はそれ程高値ではなかつた。八丈島の歯の測定試料2例中 Zn は $888\mu\text{g/g}$ に対し Cd は $0.31\mu\text{g/g}$ でそれ程高値ではない、また Zn $534\mu\text{g/g}$ を示した歯の Cd は $0.73\mu\text{g/g}$ で比較的高値を示していた。

d) 群馬県安中

安中は Cd 汚染地域として選び、とくに東邦亜鉛安中製錬所から 2 km 以内の住民からの歯を試料としたが、頭初の予想に反して Cd の測定値はそれ程高値を示さず、東京、奥津よりはその平均値は幾分高値であつたが有意差はなく、かえつて八丈島より 0.5% の有意差で低値を示した。各金属間の関連においても Ca と Cd に 1% 有意の相関を見たが、 $\text{Cd}(\mu\text{g})/\text{Ca}(\text{g})$, $\text{Cd}/\text{Zn} \times 100$ 共に前項で述べたごとく東京、奥津と大差はなかつた。

小林ら³¹⁾は群馬県安中市の製錬所に因る農作物などの重金属 (Cd, Pb, Zn) 汚染について製錬所からの距離別に調査をした。そして葉菜類に多量の重金属を検出し、煙突からの距離と重金属量に相関関係を見出し、また桑の葉の中の Cd と Zn、小麦粉中の Cd と Zn にそれぞれ $r=0.998$, $r=0.95$ の強い相関関係があることを示した。このことから安中における Cd 汚染は排煙が主であると考えられる。

一方、Kubota ら²⁷⁾はアメリカの 19 の地域につ

いて血中の Zn, Pb, Cu, Cd を測定し、その地域差を検討したが、製錬所のある Billings と El Paso の住民の血液中の Cd は高値を示さなかつたことを報告し、また Kubota らも述べているように Cd の食品から人体への取り込み機構は完全に解明はされておらず、また歯への取り込み機構はさらに不明であるが、八丈島と安中の成績と、食品と排煙汚染の関係がどのように硬組織、とくに歯への Cd の取り込みと関係があるかは今後の研究の重要な問題と推察される。

5. 結 論

東京都荒川区、三重県奥津、八丈島および群馬県安中から総数99本の抜去正常永久歯を収集し、第1報に報告した原子吸光分析法により歯の Zn, Pb, Cu, Cd および Ca を測定した結果次のような成績を得た。

1) Ca および 4 微量元素の平均値は、乾燥重量あたり Ca は平均 261mg/g (対数平均値常数変換 258mg/g)、Zn は平均 $209\mu\text{g/g}$ (対数平均値常数変換 $198\mu\text{g/g}$)、Pb は平均 $10.83\mu\text{g/g}$ (対数平均値常数変換 $7.29\mu\text{g/g}$)、Cu は平均 $2.02\mu\text{g/g}$ (対数平均値常数変換 $1.48\mu\text{g/g}$)、Cd は平均 $0.20\mu\text{g/g}$ (対数平均値常数変換 $0.12\mu\text{g/g}$) であつた。

2) Ca および 4 微量元素は個々の歯により、また個人の差、同一個人でも歯種によりその含有量の差が著しかつた。

3) Ca 含有量の分布は正規分布に近似し、Zn, Pb, Cu, Cd の 4 微量元素は対数正規分布を示した。また対数正規分布において Zn は偏差が小さく Pb, Cu, Cd は大きい偏差を示した。

4) 4 種類の微量元素は地域によりかなりの差を認めた。

5) 東京においては Pb の含有量が多く、平均 $15.17\mu\text{g/g}$ (対数平均値 $11.61\mu\text{g/g}$) で農山村地である三重県奥津の約 2.5 倍を示した。

6) 三重県奥津においては 4 微量元素共に低値を示し、Zn は平均 $174\mu\text{g/g}$ (対数平均値 $172\mu\text{g/g}$)、Pb は平均 $5.63\mu\text{g/g}$ (対数平均値 $4.65\mu\text{g/g}$)、Cu は平均 $1.57\mu\text{g/g}$ (対数平均値 $1.11\mu\text{g/g}$)、Cd は平均 $0.08\mu\text{g/g}$ (対数平均値 $0.07\mu\text{g/g}$) を示し

た。

7) 八丈島においては Zn (平均 $302\mu\text{g/g}$: 対数平均値 $269\mu\text{g/g}$), Cu (平均 $3.47\mu\text{g/g}$: 対数平均値 $2.94\mu\text{g/g}$), Cd (平均 $0.55\mu\text{g/g}$: 対数平均値 $0.43\mu\text{g/g}$) が高値を示し, 他の3地域より 0.5~5% の有意差を示した。また Cd(μg)/Ca (g) および Cd/Zn $\times 100$ の値が他の3地域より高値を示した。

8) Zn, Cd 汚染地域と思われる群馬県安中においては Zn (平均 $192\mu\text{g/g}$: 対数平均値 $186\mu\text{g/g}$), Cd (平均 $0.12\mu\text{g/g}$: 対数平均値 $0.10\mu\text{g/g}$) 共に高値は示さなかった。

9) 各金属間の相関係数はあまり高くないが, Zn と Cu および Cd, Cu と Cd, Ca と Cu が 1% 有意の相関を示した。

稿を終るにあたり, 種々御指導御校閲を下された上田喜一教授ならびに西村正雄教授に深甚の謝意を表します。また, 試料収集に御協力頂いた各地域の歯科診療所ならびに終始研究に協力して頂いた稲森幾多郎学士はじめ教員諸氏に感謝いたします。

本研究の要旨は第41回日本衛生学会総会 (昭和46年4月), 第184回東京歯科大学学会 (昭和46年6月), 第20回口腔衛生学会 (昭和46年10月) に発表した。

文 献

- 1) Drea, W. F.: Spectrum analysis of dental tissues for trace elements; J. dent. Res., 15: 403-406, 1936.
- 2) Brudevold, F.: in "Chemistry and prevention of dental caries", ed. by Sognnaes, R. E., 1962, Charles C Thomas Publisher, Springfield, Illinois, U. S. A.
- 3) Brudevold, F.: Dental tissues factors in dental caries; Int. dent. J., 12: 496-507, 1962.
- 4) Brudevold, F., Gardner, D. E. and Smith, F. A.: The distribution of fluoride in human enamel; J. dent. Res., 35: 420-429, 1956.
- 5) Brudevold, F. and Steadman, L. T.: A study of copper in human enamel; J. dent. Res., 34: 209-216, 1955.
- 6) Brudevold, F. and Steadman, L. T.: The distribution of lead in human enamel; J. dent. Res., 35: 430-437, 1956.
- 7) Brudevold, F. and Steadman, L. T.: A study of tin in enamel; J. dent. Res., 35:

749-752, 1956.

- 8) Steadman, L. T., Budevold, F. and Smith, F. A.: Distribution of strontium in teeth from different geographic areas; J. A. D. A., 57: 340-344, 1958.
- 9) Steadman, L. T., Brudevold, F., Smith, F. A., Gardner, D. E. and Little, M. F.: Trace elements in ancient indian teeth; J. dent. Res., 38: 285-292, 1959.
- 10) Brudevold, F., Steadman, L. T., Spinelli, M. A., Amdur, B. H. and Grøn, P.: A study of zinc in human teeth; Arch. oral Biol., 8: 135-144, 1963.
- 11) Söremark, R. and Samsahl, K.: Gamma-ray spectrometric analysis of elements in normal human enamel; Arch. oral Biol., 6: 275-283, 1961.
- 12) Söremark, R. and Samsahl, K.: Gamma-ray spectrometric analysis of elements in normal human dentin; J. dent. Res., 41: 603-606, 1962.
- 13) 大西栄蔵: 乳歯に蓄積する Sr^{90} および乳歯セリウムについて; 歯界展望, 19: 943-956, 1962.
- 14) 大西栄蔵: 放射能と歯; 歯界展望, 27: 161-171, 1966.
- 15) 山中 彬, 吉岡仁司: 歯牙硬組織内の微量元素について; 阪大歯誌, 4: 705-708, 1959.
- 16) 岡田正弘, 三村 二: 鉛塩に依る骨および歯牙組織新生化部位生体染色法; 口病誌, 11: 365, 1937.
- 17) Hunter, D.: The diseases of occupation; The English Univ. Press LTD., London, 4th ed., 1969, p. 232-453.
- 18) Elkins, H. B.: The chemistry of industrial toxicology; John Wiley & Sons, Inc. Publishers, New York, 2nd ed., 1959, p. 34-58.
- 19) Pfrieme, F.: Über den normalen und pathologischen Bleigehalt der Zähne von Menschen und Tieren; Arch. f. Hyg., 111: 232-242, 1934.
- 20) MacDonald N. S., Ezmirlian, F., Spain, P. and McArthur, C.: The ultimate of skeletal deposition of strontium and lead; J. Biol. Chem., 189: 387-399, 1951.
- 21) Cruickshank, D. B.: The natural occurrence of zinc in teeth; Preliminary experiments; Brit. Dent. J., 61: 530-531, 1936.
- 22) Cruickshank, D. B.: The natural occurrence of zinc in teeth. II. Some general considerations; Brit. Dent. J., 63: 395-399, 1937.
- 23) Cruickshank, D. B.: The natural occurrence of zinc in teeth. III. Variations in tuberculosis; Brit. Dent. J., 68: 257-271, 1940.
- 24) Cruickshank, D. B.: The frequency distribution of the zinc concentration in the de-

- ntal tissues of the normal population; Biochem. J. 44 : 299-302, 1949.
- 25) Ginzburg, M. M. and El'piner, I. E. : Polarographic determination of copper and tin in sound and carious teeth, *Stomatologia* 1 : 13, 1947 (in "A study of copper in human enamel", by Brudevold, F. & Steadman, L. T. : J. dent. Res., 34 : 209, 1955.)
 - 26) Berlin, M. and Ullberg, S. : The fate of Cd¹⁰⁹ in the mouse; *Arch. Environ. Health*, 7 : 686-693, 1963.
 - 27) Kubota, J., Lazar, V. A. and Losee, F. : Copper, zinc, cadmium and lead in human blood from 19 locations in the united states; *Arch. Environ. Health*, 16 : 788-793, 1968.
 - 28) 石崎有信, 福島匡昭 : イタイイタイ病 : 日衛誌, 23 : 271-285, 1968.
 - 29) 石崎有信, 福島匡昭, 坂元倫子 : 生物体内のCdの分布について(第1報) ; 日衛誌, 24 : 375-379, 1969.
 - 30) 石崎有信, 福島匡昭, 坂元倫子 : 生物体内のCdの分布について(第2報) ; 食品のCdおよびZn含有量, 日衛誌, 25 : 207-222, 1970.
 - 31) 小林 純, 森井ふじ, 村木茂樹, 中島 進 : 群馬県安中市の製錬所に因る農作物などの重金属(Cd, Pb, Zn) 汚染について ; 日衛誌, 25 : 364-375, 1970.
 - 32) 第40回日本衛生学会総会号 ; 日衛誌, 25 : 75-86, 1970.
 - 33) 第41回日本衛生学会総会号 ; 日衛誌, 26 : 163-172, 1971.
 - 34) Leicester, H. M. : The effect of cadmium on the production of caries in the rat : J. dent. Res., 25 : 337-340, 1946.
 - 35) Hein, J. W. : Effect of various agents on experimental caries, in "Advances in experimental caries research" ed by Sognnaes, R. F., American association for the advancement of science, Washington. 1955, p. 197-222.
 - 36) Lazzari, E. P. : Dental biochemistry ; Lea & Febiger, Philadelphia, 1968, p. 63-64.
 - 37) Chairman ; Hardwick, J. L. : Round table discussion on trace elements ; *Caries Res.*, 3 : 88-98, 1969.
 - 38) Losee, L. F. and Ludwig, T. G. : Trace elements and caries ; J. dent. Res. Supplement to No. 6, 49 : 1229-1235, 1970.
 - 39) 金子芳洋 : 歯の微量金属に関する研究, 第1報 原子吸光分析による歯の微量金属(Pb, Cu, Cd, Zn)の定量法について ; 口腔衛生会誌, 21 : 227-240, 1971.
 - 40) 金子芳洋, 稲森幾多郎, 西村正雄 : 歯の微量金属の衛生学的意義(その1) ; 日衛誌, 26 : 34, 1971.
 - 41) Crowell, C. D., Hodge, H. C. and Line, W. R. : Chemical analysis of tooth samples composed of enamel, dentine and cementum ; J. dent. Res. 14 : 251-268, 1934.
 - 42) Smith, H. and Molokhia, M. M. : Trace elements in the lung ; *Arch. Environ. Health*, 15 : 745-750, 1967.
 - 43) Molokhia, M. and Portnoy, B. : Neutron activation analysis of trace elements in skin, I. Copper in normal skin ; *Br. J. Derm.*, 81 : 110-114, 1969.
 - 44) Nixon, G. S. and Smith, H. : Estimation of copper in human enamel by activation analysis ; J. dent. Res., 41 : 1013-1016, 1962.
 - 45) 酒井 淳 : 頭髮中のFe, Cu およびZnの含有量について ; 日衛誌, 25 : 420-437, 1970.
 - 46) 堀内一弥, 堀口俊一, 石井順太郎 : 都市在住健康日本人の血液中鉛量の再検討 ; 日衛誌, 23 : 134, 1968.
 - 47) Lefevre, M.L. and Hodge, H. C. : Chemical analysis of tooth samples composed of enamel, dentine and cementum, II ; J. dent. Res., 16 : 279-287, 1937.
 - 48) 熊城一男, 緒方正名 : 交差点における道路土壌の鉛汚染 ; 医学と生物学, 82 : 89-91, 1971.
 - 49) 堀内一弥, 堀口俊一, 村上 靖 : 日本人常用食品中の銅含有量に関する研究, 第2報 ; 日衛誌, 20 : 146-147, 1965.
 - 50) Fell, G. S., Smith, H. and Howie, R. A. : Neutron activation analysis for copper in biological material applied to Wilsons disease ; J. clin. Path., 21 : 8-11, 1968.
 - 51) Cantarow, A. and Trumper, M. : Lead poisoning ; The Williams & Wilkins company, Baltimore, 1944, p. 14.