原 著

サンパウロ, ピラシカバ両市における 上水道へのフッ化物添加の現状*

Present Condition of Fluoridation in São Paulo
and Piracicaba in Brazil

近 藤 武** 樋 口 寿 英** 中 根 卓**
笠 原 香** 山 中 す み へ***

Takeshi KONDO **, Hisahide HIGUCHI **, Takashi NAKANE **,
Kaoru KASAHARA ** and Sumie YAMANAKA ***

Received April 15, 1992; accepted April 30, 1992

Abstract: The special service of public health sponsored by the Brazilian government began the fluoridation of water in Baixo Guandu, a small town in the state of Espírito Santo in 1953. In a survey done by the FDI in 1981, 7,500,000 inhabitants were drinking fluoridated water in 122 communities. Although so many people are drinking fluoridated water in Brazil, the present condition of fluoridation in Brazil is not known in Japan. For this reason we conducted an investigation of the water supply in São Paulo, Piracicaba, and other cities.

1. The water in São Paulo has been fluoridated to 0.7 ppm with 25 % H_2SiF_6 since 1985. Recovery rate of fluoride in tap water was 82.7 %.

2. The water in Piracicaba has been fluoridated to 0.7 ppm with Na_2SiF_6 since 1971. Recovery rate of fluoride in tap water was 99.6 %.

3. We measured the anion levels (F^- , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-}) in the drinking water of several large cities. We found artificial fluoride in the drinking water of Belem, Iguacu, and Ferraz de Vasconcelous.

4. We compared the public water allowance for fluoride concentration in Japan, Brazil and WHO. The Japanese allowance is 1/2 of that of Brazil and WHO.

索引用語: 上水道フッ化物添加, イオンクロマトグラフ, サンパウロ, 水質基準, 1人平均 DMF 歯数

Key words: Fluoridation, Anion level, São Paulo, Tap water allowance, Mean DMF teeth a person

* 本論文の要旨は, 第2回日本口腔衛生学会甲信越北陸地方会(1991年7月13日, 長野市で開催)で発表した。

** 松本歯科大学口腔衛生学講座(主任: 近藤武教授)

** Department of Community Dentistry, Matsumoto Dental College (Chief: Prof. Takeshi KONDO)

*** 東京歯科大学衛生学教室(主任: 高江洲義矩教授)

*** Department of Hygiene, Tokyo Dental College (Chief: Prof. Yoshinori TAKAESU)

まえがき

ブラジルにおける上水道へのフッ化物添加は、ブラジル特別公衆衛生財団により1953年リオデジャネイロ州に隣接する Espirito Santo 州 Baixo Guandu で最初に行われた。10年後の調査では、6～14歳の児童におけるむし歯が62.3%に減少したことが注目されていた。そして Baixo Guandu と平行して1959年より南部の Rio Grande do Sul 州の30地区でも始まった。添加濃度は0.9～1.0ppmF で行われ、その後添加地域は拡大していき1968年の調査では80地区に、1981年の FDI の調査によれば122地区、その対象は750万人となっている¹⁾。しかしながら、最近のブラジルにおける上水道フッ化物添加の状況および歯科事情については、わが国にはほとんど知らされていない。このため1991年3～4月に調査を行った。

調査地域および方法

1. 調査地域

調査は、現在上水道へのフッ化物添加が行われているサンパウロ市、およびサンパウロ市に隣接するピラシカバ市において行った。サンパウロ市は人口1,000万人以上のブラジル最大の都市で、年平均気温は18.9°C、年平均湿度78%で亜熱帯気候に属している。ピラシカバ市はサンパウロ市の北西に隣接する農業地帯の小都市でその人口はおよそ35万人である。気候はサンパウロ市とほぼ同じである。また、北部の5都市（ブラジリア、ベレン、マナウス、サルバドール、リオデジャネイロ）、西部の1都市（イグアス）と対照地域の意味でアメリカ・ロサンゼルス及び東京で末端水道水を採取し、F⁻を含む陰イオン濃度測定を行いフッ化物添加の有無を明らかにすることを試みた。

2. 分析法

末端水の陰イオン（F⁻、Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻）濃度を知るため以下のような採水、測定を行った。

1) 採水法：サンパウロ市内2か所の末端水、その他の都市では宿泊したホテル、あるいは空港トイレ内の末端水を採取した。

2) 測定法：陰イオンの測定にはイオンクロマトグラフ法、そのうち F⁻ イオンについてはフッ素電極法をあわせて行った^{10,11)}。

(1) イオンクロマトグラフ法：分析装置および測定条件は次の通りである。横川北辰電機製イオンクロマトアナライザー IC-100を使用。検出器は電気伝導率検出器、

Fig. 1 São Paulo water supply

Fig. 2 Fluoride feeder used in Firacicaba

プレカラムは PAXI-051、分離カラムは SAXI-251（陰イオン交換体）、サプレッサは陽イオン交換膜チューブ型、恒温槽温度40°C、試料注入量は100μl、除去液は0.05M ドデシベンゼンスルホン酸溶液2～3ml/分、分離液は4mM Na₂CO₃+4mM NaHCO₃、2ml/分、離脱液（残留イオンの早出し）は0.1M Na₂CO₃ 溶液を使用した。

(2) フッ素電極法：常法にしたがい全イオン強度調整溶液 TISAB を試料に1:1の割合に加え、オリオン社製407型イオンメーターで測定した。

結 果

1. 添加都市の末端水陰イオン濃度（Fig. 1, 2, Table 1）

1) サンパウロ市

水道施設でのフッ化物添加は1985年より開始しており、隣接する州の肥料工場の副産物の25%ケイフッ化水素酸 H₂SiF₆ 溶液を所定の濃度（0.7ppm）になるように添加する方法を採用している。1日の平均添加量は6.1～7.6kg で、フッ素濃度は1時間ごとに測定を行っ

Table 1 Fluoride, chloride, nitrate and sulfate ion concentration in drinking water in Brazil, the United States, and Japan

Date	Place	Concentration (ppm)			
		F ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
Mar. 26	São Paulo-1	0.595	5.16	0.098	32.4
27	São Paulo-1	0.620	4.70	0.115	25.9
Apr. 1	São Paulo-1	0.600	5.71	0.29	31.3
11	São Paulo-2	0.642	6.45	0.88	10.5
12	São Paulo-2	0.630	6.21	0.326	10.2
13	São Paulo-2	0.389	4.23	0.248	7.57
Apr. 1	Piracicaba	0.702	11.8	0.97	64.0
2	Piracicaba	0.691	9.71	0.73	51.8
Mar. 30	Iguacu	0.791	2.54	1.61	14.9
Apr. 3	Brasilia	0.298	1.61	0.89	0.79
4	Belem	0.533	5.08	0.58	7.71
5	Belem	0.524	5.29	0.51	7.17
6	Manaus	0.254	7.16	1.54	10.9
7	Manaus	0.250	10.7	0.17	15.6
8	Sarvadol	0.164	21.4	0.798	13.2
9	Sarvadol	0.157	21.1	2.07	13.0
9	Rio de Janeiro	0.409	7.89	1.88	14.0
10	Rio de Janeiro	0.434	7.68	1.80	13.2
13	Ferr. Vesconcelos	0.666	4.27	0.364	5.63
Mar. 25	Los Angels	0.485	42.5	0.48	228
May	Tokyo-1	0.131	23.5	5.52	31.7
	Tokyo-2	0.116	18.6	9.04	24.8
	Tokyo-3	0.124	22.2	7.23	31.5

ている。添加濃度は0.6ppmで、原水には0.1ppm含まれていることから末端水として0.7ppmで給水している。Fig. 1は浄水場の全景で左側の高台に塩素のタンクとならんでケイフッ化水素酸のタンクも設置されている。

3月26日より4月13日の間に6回末端水の採水を行った。それらの末端水のフッ素濃度を測定した結果、平均濃度は0.579ppm、標準偏差は0.095であった。原水からの回収率を見ると82.7%であった。その他の陰イオン濃度についてみると、平均濃度はCl⁻ 5.41ppm、標準偏差0.87、NO₃⁻ 0.326ppm、標準偏差0.287、SO₄²⁻ 19.65ppm、標準偏差11.46であった。また同時に添加されている塩素の添加濃度は1.5ppmで、末端水の残留塩素量は0.3ppmになるように調整している。

2) ピラシカバ市

水道施設でのフッ化物添加は1971年より開始し、オランダより輸入するケイフッ化ナトリウム Na₂SiF₆をFig. 2のような添加器を用いて、所定の濃度(0.7ppm)

になるように添加している。4月1~2日に2回末端水を採水し測定した結果、0.697ppmであった。原水からの回収率は99.6%であった。その他の陰イオン濃度についてみると、Cl⁻ 10.76ppm、NO₃⁻ 0.85ppm、SO₄²⁻ 57.9ppmであった。

2. その他の都市の末端水陰イオン濃度 (Table 1)

採水を行った都市はTable 1に示すように、ブラジルの7都市で行った。また、対照の意味でアメリカ・ロサ国内ンゼルス及び東京の上水も採水した。

1) ブラジルの都市

イグアスは世界で最大級の滝のある保養地で、パラグアイとアルゼンチンに接している。F⁻濃度は0.791ppmであり添加しているものと思われる。Cl⁻濃度2.5ppm、NO₃⁻濃度1.61ppm、SO₄²⁻濃度14.9ppmであった。首都ブラジリアの年平均気温は20.3°Cでサンパウロとほぼ同じである。F⁻濃度は0.298ppm、Cl⁻濃度1.61ppm、NO₃⁻濃度0.89ppm、SO₄²⁻濃度0.79ppmであ

Table 2 Comparison of threshold value of ions in drinking water of Japan, Brazil, and WHO

ion	Japan	Brazil	WHO
Cl ⁻	200	250	200
Cu ²⁺	1.0	1	3.0
CaCO ₃	300	200	—
Fe ²⁺	0.3	0.3	0.1
Mn ²⁺	0.3	0.1	0.05
NO ₃ ⁻	44.0	45	50~100
SO ₄ ²⁻	—	250	250
Zn ²⁺	1.0	15	5.0
As ³⁺	0.05	0.1	0.05
Pb ²⁺	0.1	0.1	0.1
CN ⁻	0.01*	0.2	0.05
Cr ⁶⁺	0.05	0.05	0.05
F ⁻	0.8	1.5	1.7
Se ²⁺	—	0.01	0.01

*: non detectable

(mg/l)

った。ベレンはアマゾン下流にある港町で年平均気温は26.3°C、年平均湿度は87%である。F⁻濃度は0.529ppmであるから添加されていることが予想される。Cl⁻濃度5.19ppm, NO₃⁻濃度0.55ppm, SO₄²⁻濃度7.44ppmであった。マナウスはアマゾンの中流にある自由貿易都市で年平均気温は26.7°C、年平均湿度は84%である。F⁻濃度0.252ppm, Cl⁻濃度8.93ppm, NO₃⁻濃度0.85ppm, SO₄²⁻濃度13.25ppmであった。サルバドールは大西洋に面した保養地である。F⁻濃度0.161ppm, Cl⁻21.25ppm, NO₃⁻濃度1.43ppm, SO₄²⁻濃度13.1ppmであった。リオデジャネイロは旧首都で年平均気温は23.7°C、年平均湿度は76%である。F⁻濃度0.422ppm, Cl⁻濃度7.79ppm, NO₃⁻濃度1.84ppm, SO₄²⁻濃度

13.6ppmであった。Ferraz de Vasconcelosの上水は、F⁻濃度0.666ppmであり、サンパウロの郊外であることから、サンパウロと同程度のフッ化物が添加されていることが推測される。また、Cl⁻濃度4.27ppm, NO₃⁻濃度0.364ppm, SO₄²⁻濃度5.63ppmであった。

2) 対照地域

ロサンゼルスの上水では、F⁻濃度0.485ppm, NO₃⁻濃度0.48ppmであったが、Cl⁻濃度は42.5ppm, SO₄²⁻濃度228ppmと今回の被験上水のうちもっとも高濃度であった。さらに東京の上水の3か所の平均濃度ではF⁻0.124ppm, Cl⁻21.4ppm, NO₃⁻7.26ppm, SO₄²⁻29.3ppmであった。

3. 水質基準の比較 (Table 2)

ブラジルの水質については、水質基準値にあたる許容濃度と、推奨濃度よりなっている。その結果はTable 2にみるように、ブラジル及びWHOの飲料水の水質基準は各項目ともわが国の基準とほぼ同様であるが、Cu²⁺, Zn²⁺, F⁻などで基準値がわが国に比べて高い。特にF⁻についてみるとブラジルの基準値は1.5mg/l, WHOのそれが1.7mg/lとなっておりわが国の約2倍である。しかしブラジルでのF⁻の推奨値は1mg/lとおさえられている。

4. サンパウロ市郊外 Ferraz de Vasconcelos の児童の1人平均 DMF 歯数 (Table 3)

末端水のF⁻濃度より、1985年よりフッ化物添加を実施している地域と推測される。その地域には公立の内科・歯科診療所があり、児童を中心に治療が行われている。この診療所に受診した児童92名について診査を行った。その結果はTable 3に示すように6歳では1人平均 DMF 歯数0.31と非常に低い値を示した。また、増齡的な増加もあまりみられなかった。この1人平均 DMF 歯数をブラジルおよび長野県の値と比較するといずれの

Table 3 Comparison of DMF teeth in persons living in Ferraz de vasconcelos, Brazil, and Nagano

Age	Persons	Tooth No. per Person	DMF Teeth per Person	DMF Teeth per Person in Brazil	DMF Teeth per Person in Nagano
5	8	1.38	0.00	—	—
6	26	4.81	0.31	1.2	0.35
7	8	7.50	1.38	2.2	0.80
8	6	9.50	1.34	2.8	1.39
9	12	12.7	2.44	3.6	1.95
10	15	18.6	2.80	4.6	2.40
11	14	20.1	2.36	5.8	3.09
12	3	20.7	1.67	6.7	3.94

年齢でも低い値を示していた。

5. イオンクロマトグラフ法とフッ素電極法による飲料中フッ素の測定値の比較 (Fig. 3)

イオンクロマトグラフ法は、共存する陰イオンを同時に測定することができる利点をもっている。これに対してフッ素電極法はフッ素イオンのみであるが、その精度は高いといわれている。このため両方を比較してみた。結果は Fig. 3 に示すように両方の間の相関係数 $r=0.97$ 、回帰直線は $y=0.854x+0.0543$ であり、両方の測定値は一致する結果がえられた。

Fig. 3 Comparison of fluoride concentration in drinking water in Brazil by two methods

考 察

1. 添加フッ化物の種類と添加方法

1) 添加フッ化物の種類

サンパウロ市の場合は25%ケイフッ化水素酸溶液を使用しており、隣接する州の肥料製造工業より送られてくる。その生成過程はつぎのようである。肥料である過リン酸石灰の製造の過程で、 $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{F}_2$ に硫酸を加えて反応させる。その際に HF が発生するが、この HF は不純物として混在するケイ素と反応し、四フッ化ケイ素を経て20~35%ケイフッ化水素酸が生成される。

ケイフッ化水素酸溶液は腐食性で取扱がフッ化ナトリウムより面倒なうえ、高価であるにもかかわらず、アメリカでもっとも多量に消費されている。その理由としては、シカゴなどの大浄水場がこれを使用していること、

これらの浄水場では割引価格で多量購入できること、安価な添加装置が使用できること、液状のために埃もたず従業員への中毒に対する不安がないこと、運搬に人力を必要としないこと等であると考えられている⁹⁾。サンパウロ市はシカゴと同様に大浄水場であるし、また近くに肥料製造工場があるためケイフッ化水素酸がほかのフッ化物と比較して適している。

これに対して、ピラシカバ市は給水人口は35万人ほどの小都市であるため、オランダから輸入するケイフッ化ナトリウムを粉末添加器により添加している。粉末添加器には定容積で添加するものと定重量で添加するものに分けられる。定容量添加器の誤差は、重量にして3~5%であり、定重量添加器の1%に比べて大きい。しかし、安価で添加量の自動調整も容易であるために、比較的規模の大きい浄水場ではこの型が使用されるようになっていく。

2. フッ素添加濃度

歯牙フッ素症を予防のための至適添加濃度を求める式には Galagan によるものがある¹⁰⁾。しかしこの式で至適濃度を求めるためには、平均最高気温を知ることが必要である。しかしサンパウロの平均最高気温は不明であるので、現在の添加濃度 0.7ppm を美濃口-Coffman の実験式に挿入して、既知の年間平均気温である 18.9°C により CFI を求めてみた¹¹⁾。その結果は 0.44 となり境界域の 0.4~0.6 の間になった。このことから歯牙フッ素症が多発するとは予想されない。

しかし宝塚市でのサーベイランスでは、実測値と CFI を美濃口-Coffman の実験式を挿入して求めたところ、フッ素濃度で2倍ほどの差が出ている¹²⁾。このことから、CFI が 0.44 だからといえ、問題がないとはいえないであろう。ピラシカバ市にはカンピーナス大学ピラシカバ歯学部があるが、上水道へのフッ化物添加によって、どの程度のう蝕抑制、および歯牙フッ素症の発生があるか定期的な調査は行われていない。しかし、大学の小児歯科外来では、明らかな歯牙フッ素症に罹患した児童が受診することがあるといわれている。このため是非とも、ある地域を定めてう蝕症の抑制率と歯牙フッ素症の発生について継続した調査が望まれる。

3. 水質基準と各都市の末端水中の陰イオン濃度

陰イオン濃度について、わが国、ブラジル及び WHO の水質基準を比較すると、 F^- 以外は 大差はないといえる。 F^- の基準値についてみると、ブラジルはわが国より平均気温が高い熱帯に属する北部地域に多くの人々が住んでいる。飲水量は気温に比例するといわれているの

で、その点から見るとわが国より低値であることが望ましく、その意味でブラジルでは推奨値 1 mg/l を採用することが賢明と思われる。各都市の上水中の陰イオン濃度は、いずれも基準値を下回っていたので、一応問題はないと思われる。 F^- 濃度はサンパウロ市やピラシカバ市のようにフッ化物添加を行っている上水では 0.5 ppm を越えており、イグアス、ベレン、Ferraz de Vasconcelos などのブラジル各都市もフッ化物添加が推測される。

一方、 Cl^- 濃度は、下水や排水などの人為的な汚染によって高くなるが、ロサンゼルスやサルパドールなどのように海岸に近いところでは、海水の影響も受けていると考えられる。また、 NO_3^- 濃度もし尿や工場排水などの人為的な汚染によって高くなるが、今回の結果ではブラジルは低値であって、東京の上水がもっとも人為的な汚染を受けていることが推測される。更に、 SO_4^{2-} 濃度では、工場排水の混入のほかに、温泉地でも高くなり、また、浄水法によっては薬品（硫酸マグネシウム）を用いた浄水処理によっても高くなることがわかっている。

このように浄水中の陰イオン濃度は、地質的因子、人為的因子によって影響を受けることがわかっているが、これらの陰イオン濃度は上水の安全性に係わるのみならず、最近広く求められている水の味にも影響し、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ 、 K^+ 、 HCO_3^- 、 CO_3^{2-} などのイオンとともに上水の味に影響するものと考えられる⁹⁾。

4. 児童の1人平均の DMF 歯数

1981年の WHO のまとめによると、ブラジルの12歳児の1人平均 DMF 歯数は6.6本以上でもっとも多い国の一つになっている⁷⁾。また、保健省の調査でも6歳の1.2本から増齢とともに増加し、12歳では6.7本になっている。当時わが国は4.5~6.5本の国に該当していたが、現在では減少のきざしがみられ、1987年の長野県の調査では3.94本に減少している⁹⁾。

今回歯科検診を行った児童は、サンパウロの郊外の Ferraz de Vasconcelos の公立歯科診療所を訪れた児童で、1985年から5年間フッ化物が添加された上水を飲用していると推測される。5年間の添加がどの程度う蝕症の発生抑制に影響を与えているかは不明であるが、1人平均 DMF 歯数の著しい減少がみられている。ブラジルの全国値を対照とすると6歳ではう蝕症の抑制率は74.2%、7歳では37.2%である。このように著しい抑制率が得られているが、なにぶん調査人数が少ないので結論をだすことは出来ない。そのため、多数の人数での調査により抑制率を求めることが必要であろう。年齢別にみた1人平均 DMF 歯数は少ないが、個々についての

DMF 歯数をみると、少ない児童と多い児童の差は著しく、この差を減少させることが将来の課題であろう。

ブラジルには歯科医療の健康保険制度は存在しないので、貧困階層は公立歯科診療所で受診することになる。しかし、これらの診療所も小児が中心であり、成人が受診することはほとんど出来ない。この点から、歯科医療および公衆衛生活動が十分に行き渡らず、出生率の高い現状では上水道にフッ化物を添加してう蝕症を減少させるのも有用な公衆衛生的手段であろう。

5. イオンクロマトグラフ法とフッ素電極法による飲料水中フッ素の測定値の比較

両方の間には強い相関関係が得られたことから、共存する陰イオンを同時に測定することができる、イオンクロマトグラフ法は飲料水中のフッ素を測定するには優れた方法といえる。 F^- 濃度のみの分析の場合には、電極法が精度も十分であるが、上水中の人為的な汚染物質である他の陰イオン濃度も同時に評価する場合には、イオンクロマトグラフ法が容易かつ便利である。

結 論

1. サンパウロ市では25%ケイフッ化水素酸を上水に添加し、給水濃度は 0.7 ppm で末端水では 0.58 ppm でその回収率は82.7%であった。
2. ピラシカバ市ではケイフッ化ナトリウムを上水に添加し、給水濃度は 0.7 ppm で末端水では 0.697 ppm でその回収率は99.6%であった。
3. ブラジル国内の末端水のフッ素濃度についてはベレン、イグアス、Ferraz de Vasconcelos では 0.5 ppm 以上の濃度を検出し、フッ化物の添加が推測された。
4. フッ素以外の陰イオン濃度については、 Cl^- 20 ppm 以下、 NO_3^- 2 ppm 以下、 SO_4^{2-} 70 ppm 以下であり特に異常値はみられなかった。
5. 水質基準でのフッ素濃度について日本、ブラジル、WHO を比較してみると、ブラジル、WHO の基準値はわが国の2倍であった。
6. フッ化物添加地域と推測される Ferraz de Vasconcelos の児童の1人平均 DMF 歯数は6歳で0.31と低値を示した。また、著しい増齢的な増加もみられなかった。
7. イオンクロマトグラフ法とフッ素電極法による末端水中のフッ素測定値を比較したところ、相関係数 $r = 0.97$ と強い相関がえられた。

謝 辞

今回の調査に際して、現地水道局との折衝をしていた

だきましたサンパウロ市在住の勝野正、清子先生ご夫妻に感謝いたします。

文 献

- 1) 外務省大臣官房領事移住部編：第6回南米移住地保健衛生調査報告書，53，外務省，東京，1969.
- 2) Minoguchi, G.: Table of Fluoride Concentration (ppm) in Drinking Water Corresponding to CFI (Community fluorosis index-Dean) Values in Different Annual Temperature Zones, 京大口科紀要, **13**; 26-34, 1973.
- 3) 長野県衛生部編：昭和63年度長野県歯科保健（う蝕予防）推進の手引き，19，長野県衛生部，1989.
- 4) 日本歯科医師会編：世界の弗素化ニュース（1959-1966年），23-27，日本歯科医師会，東京，1967.
- 5) 岡 高明：水と健康，水の嗜好的要素と保健的要素，水，**28**；21-27，1986.
- 6) 大西正男：飲料水弗素添加の衛生工学的諸問題，歯界展望，**25**；993-999，1965.
- 7) 大西正男，森本基編：日本の歯科医療—WHO国際協力研究を追って—，歯界展望／別冊，グラビア，1981.
- 8) 宝塚市フッ素問題調査研究会編：宝塚市の斑状歯をめぐるフッ素問題調査研究に関する中間報告書，26-27，宝塚市フッ素問題調査研究会，宝塚市，1988.
- 9) 上田喜一，飯塚喜一，高江洲義矩，森 崇，近藤 武，鈴木隆男，矢崎 武，上野真人，小西 保，樋出守世：日本斑状歯グラフ，歯界展望，**31**；1-17，1968.
- 10) 山中すみへ，田中界治，西村正男：イオンクロマトグラフィーによる各種試料中のフッ素イオン濃度の分析，口腔衛生会誌，**35**；524-525，1985.
- 11) 山中すみへ，古賀 寛，高江洲義矩：飲料水中の陰イオン（ F^- ， Cl^- ， NO_3^- ， SO_4^{2-} ）濃度の分析，口腔衛生会誌，**41**；572-573，1991.