人歯牙の含有水銀およびカドミウム量に関する研究

九州歯科大学大学院歯学研究科第2口腔外科学専攻 (指導: 池尻 茂教授)

九州歯科大学外科学教室 (指導: 草場威稜夫教授)

北 村 晃

(本論文要旨の一部は、昭和49年5月25日、第34回九州歯科学会総会で発表した。)

Study on Mercury and Cadmium Concentration in Human Teeth

By

Akira Kitamura

Second Department of Oral Surgery (Director: Prof. Shigeru Ikejiri)

Department of Surgery (Director: Prof. Izuo Kusaba)

Kyushu Dental College, Kitakyushu, Japan.

The metabolism of heavy metal has been investigated by atomic absorption spectrophotometry but the quantity of mercury and cadmium, which are frequent causes of pollution, in human teeth has not been determined well.

For this research, therefore, measurements were taken of mercury and cadmium levels through precise basic researches. Mercury was measured by non-flame circulation vapor caused by reagent and cadmium by acetylene-air combustion.

The teeth, obtained randomly from three different geographic areas, were defined as dry weight and were ashed by perchloric acid. Then the mercury and cadmium contents were determined.

1. The average mercury level in normal fifty seven teeth was $0.055\mu\text{g/g}$. The normal teeth had no significant differences among sex, age, type of teeth and geographic regions.

2. Eight normal deciduous teeth had $0.057\mu\text{g/g}$ of mercury level and forty nine permanent teeth had $0.055\mu\text{g/g}$. There were no significant differences between the two groups.

3. The carious teeth were divided into C_2 (6 cases), C_3 (34) and C_4 (66) and the averages of mercury concentration were $0.081\mu\text{g/g}$, $0.069\mu\text{g/g}$ and $0.075\mu\text{g/g}$ respectively. The four degree of caries group contained significantly higher level than the normal teeth. The mercury levels in carious teeth require further examination.

4. The amalgam filling and endodontically treated teeth which were excluded from statistical dealing indicated more than $0.4\mu\text{g/g}$ of mercury level.

5. The cadmium concentration in twenty five of normal teeth was $0.52\mu\text{g/g}$ on the average.

6. The mercury and cadmium levels in enamel tissue were apparently higher than those of dentine.

The fundamental study made it possible to determine the concentration of mercury and cadmium burden in teeth and to obtain statistical data attributable to region, sex, year, carious degree and tissue from the standpoint of environmental health. The findings on mercury in this study, in particular, presented base levels expected to be found in general population.

目 次

- A. 緒言
- B. 基礎的検討
 - I 測定装置・測定方法および測定値の算定
 - a. 試薬
 - b. 測定装置
 - c. 還元法
 - d. 測定値の算定
 - II 水銀量測定に関する基礎実験
 - a. ランプ安定時間
 - b. 標準液による吸光度
 - c. 過塩素酸の吸光度
 - d. 過塩素酸の干渉とその補正
 - e. その他の干渉と回収実験
 - III カドミウム量測定に関する基礎実験
 - a. ランプ安定時間の検討
 - b. ガスバーナーの高さ
 - c. 標準液による吸光度
 - d. 過塩素酸の干渉
 - e. 光散乱の補正
 - IV 小括
- C. 歯牙含有水銀量に関する検討
 - I 一般的事項
 - a. 対象検体
 - b. 試料の作製方法
 - II 健常歯牙の含有水銀量
 - III 無作為蒐集歯牙の含有水銀量
 - a. 含有水銀量
 - b. 含有水銀量の性別・地域別差
 - c. 含有水銀量の年令別・性別差
 - d. 齲歯の含有水銀量
 - e. 歯種別含有水銀量
 - f. 歯牙組織別含有水銀量
 - IV 小括
- D. 歯牙含有カドミウム (Cd) 量に関する検討
 - I 一般的事項
 - II 健常歯牙の含有Cd量
 - III 無作為蒐集歯牙の含有Cd量

- a. 含有Cd量
- b. 含有Cd量の年令別・性別・地域別差
- c. 齲歯の含有Cd量
- d. 歯種別含有Cd量
- e. 歯牙組織別含有Cd量

IV 小括

E. 考察ならびに総括

F. 結語

引用文献

A. 緒 言

原子吸光分析法の確立にともない、生体内微量元素に関する研究は、枚挙にいとまがない。しかし、歯牙含有の微量元素については、十分な検討が行なわれているとはいえないようである。

ことに、最近、環境汚染金属として注目されている水銀の歯牙含有量については、いまだ報告をみない。このことは、歯牙含有の水銀定量法が、今日、なお、確立されていないことによるものと考えられる。

この度、原子吸光分析法により、歯牙の含有水銀量を測定し得たので、定量法を概説し、歯牙含有水銀量に関する若干の検討結果を報告する。

なお、同じく汚染金属として知られているカドミウムの歯牙含有量についても、2, 3の検討を行なったので、その概要もあわせて報告する。

B. 基礎的検討

I 測定装置・測定方法および測定値の算定

a. 試薬

水銀量の測定に使用した主な試薬は、原子吸光用水銀標準液、10%塩化第1錫、50%硫酸溶液、2%硫酸酸性過マンガン酸カリウムであり、カドミウム量の測定には、原子吸光用カドミウム標準液を用いた(表1)。

また、試料とした歯牙の湿式灰化には、過塩素酸を使用し脱灰溶解した。

以上の主な試薬は、いずれも和光純薬製で、精密分析用のものを用い、水は全て二回蒸留水を使用した。なお、使用ガラス器具などは、全て化学的に清浄なものを使用した。

b. 測定装置

Table 1

Reagents

Hg

Mercury Standard Solution

HgCl₂ in water

1 ml = 1,000 μg (20°C)

10% Stannous Chloride

SnCl₂

10 g

Sulfuric Acid (1 : 20)

60 ml

Water

40 ml

50% Sulfuric Acid

2 % Potassium Permanganate Sulfate

Potassium Permanganate

5 g

Sulfuric Acid (1 : 20)

250 ml

Cd

Cadmium Standard Solution

CdCl₂ in water

1 ml = 1,000 μg (20°C)

Wet ashing

Perchloric Acid

1 - 8 ml

Table 2

Experimental Apparatus

Atomic Absorption Spectrophotometer

Hitachi 207

Hollow Cathode Lamp

Hg, Cd, D₂

Recorder

QPD 54

Experimental Method

Hg

Non-flame

Circulate vaporize

Cd

Flame

Acetylene-Air combustion

日立207型原子吸光装置および QPD-54型記録計を用いた。光源は、日立製の水銀またはカドミウム用中空陰極ランプを使用した。なお、カドミウム量測定時には、D₂ランプを用いて、その値を補正した（表2）。

ちなみに、日立 207型原子吸光装置の使用条件の詳細は、表3に表示されている。

c. 還元法

水銀分析には、日立製水銀分析用附属装置を利用し、長谷川ら (1972)^{1,2)}、菅野 (1973)³⁾ の報告に従い、還元気化方式を採用した（図1）。まず、反応容器に一定量の試料を入れ、水を加えて 100 ml とする。ポンプを作動させ、コック A、B を循環状態にセットして後、試薬ビューレットから 50% 硫酸溶液 5 ml、10% 塩化第 1 錫溶液 10 ml を添加した。

カドミウム分析には、アセチレン・空気混合ガスによ

Fig. 1

る燃焼還元法を用いた。

d. 測定値の算定

記録された吸光度を読みとり、標準液による検量線か

ら、その測定値を算定した。測定値の対比検討に当っては、F-testで分散を吟味し、t検定を行ない、有意水準5%で差の有意義性を検討した。

なお、各集団の平均値は、算術平均値（±標準誤差）で表わした。

II 水銀量測定に関する基礎実験

a. ランプ安定時間

水銀用中空陰極ランプの出力と光量が安定するまでには、6 mAで、点灯後約1時間を要した（図2）。従っ

Fig. 2

て、ランプ点灯後約1時間半を経過して後、測定を開始することとした。

b. 標準液による吸光度の検討

原子吸光用水銀標準液を1,000倍ないし10,000倍に希釈して、各段階における吸光度を測定した。標準液を使用した水銀含有量0.1 μ g, 0.2 μ g, 0.4 μ g, 0.6 μ g, 0.8 μ gの平均吸光度は、それぞれ14.3mm, 28.5mm, 57.8mm, 86.4mm, 115.7mmで、水銀濃度と吸光度は、直線的な正の相関を示すことが確認され（図3）、その再現性も良

Fig. 3

Table 3 Experimental Condition

	Hg	Cd	D ₂
Lamp Current (mA)	6	10	20
" Volt (V)	100	100	100
Slit width	1	1	2
Absorption Sense	2.5	1.8	1.8
Coarse	6	5	5

Table 4

Absorbency in each mercury standard solution

Times μg/dl	1	2	3	4	5	Mean ± S.D. (mm)
0.1	16.0	15.0	13.5	16.0	14.3	14.3 ± 1.7
0.2	31.8	30.0	27.3	32.0	28.5	28.5 ± 3.4
0.3	47.5	45.8	41.3	47.5	42.5	42.9 ± 1.7
0.4	63.5	61.5	55.3	65.0	57.0	57.8 ± 6.9
0.5	79.5	77.0	69.0	80.1	71.0	72.1 ± 8.3
0.6	95.5	92.5	83.0	95.3	85.5	86.4 ± 9.5
0.7	111.0	107.5	96.8	110.8	100.0	100.6 ± 11.5
0.8	127.3	123.0	110.8	130.5	113.5	115.7 ± 13.8

好であった（表4）。

c. 過塩素酸の吸光度

歯牙の湿式灰化に使用する過塩素酸の吸光度について検討した。先に、水銀標準液の吸光度を測定した場合と同様な条件で、特級過塩素酸1 ml（1%）、2 ml（2%）の吸光度を測定したところ、それぞれ8.9（±2.0）mm, 16.8（±3.9）mmにもおよんだ。直線性の正の相関はみられるが、過塩素酸の干渉には、なお十分の検討が肝要なことが判明した（図4）。

Fig. 4

d. 過塩素酸の干渉とその補正

0.1 μ g あるいは0.2 μ gの水銀を含有した、1%および2%の特級過塩素酸溶液を作製し、その吸光度を測定した所、過塩素酸の量に比例して、一定の吸光度の上昇がみられた(図4)。その吸光度の上昇は、過塩素酸1 ml および2 mlで、水銀量に換算して、それぞれ0.06 μ g, 0.095 μ gにも相当し、水銀量の測定に際し、無視出来ぬ正の干渉がみられた。

その後、精密分析用の過塩素酸を用い、同様の検討を行なったところ、0.1 μ gの水銀を含有した1%過塩素酸溶液では、水銀量の0.115 μ gの吸光度を示し、精密分析用過塩素酸1 mlの吸光度は、水銀量に換算して、0.015 μ gの正の干渉をもつにすぎないことが判った(図5)。

このように、水銀量の測定に際し、同じ過塩素酸でも、特級製品と精密分析用製品で、吸光度に対する干渉の差がみられることは、酸自体による干渉の差ではなく、主として試薬中に含まれる汚染水銀量の差に由来したものと考えられる。従って、以後の歯牙湿式灰化には、全て、精密分析用過塩素酸を用いた。

又、過塩素酸で湿式灰化した歯牙試料1 mlを、水銀還

元気化装置の反応容器に入れ、水を加えて、100 mlとして水銀量を測定するので、水銀標準液にも、1%の割合で、精密分析用過塩素酸を加えて検量線を作製し、標準添加法により、その干渉を除外した。

e. その他の干渉

任意の歯牙3本を、それぞれ過塩素酸3 mlないし8 mlを用いて溶解し、その1 mlに水銀0.1 μ gを添加し、さらに水を加えて100 mlとした。本試料の吸光度は、全ての試料歯牙について、水銀0.1 μ gの標準検量線と同じ吸光度を示し、回収能も良好であった(図6)。また、この結果よりして、歯牙中の他種元素に由る干渉は否定され、過塩素酸の干渉をも、十分に除外し得たことが知られる。

しかし、反面、歯牙含有の水銀量は、0.1 μ gを基準単位としては、測定不能であることも判明した。

依って、感度を10倍にし、0.01 μ gを基準単位とする水銀標準液(1%の割合に過塩素酸を添加)を作製し、各水銀濃度の吸光度を測定した。その結果、0.01~0.1 μ gの間でも、十分の直線性が得られることを確認し(図7

Fig. 5

Fig. 6

Table 5

Absorbency in each cadmium standard solution

μ g/ml \ Times	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	Mean $\pm$ S.D.
0.1	12.0	11.0	13.0	12.5	13.5	11.0	12.2	13.0	14.0	13.0	12.5 $\pm$ 1.0
0.2	22.5	21.5	26.0	24.0	26.0	23.5	25.2	26.0	27.0	25.5	24.7 $\pm$ 1.8
0.3	35.0	32.7	40.0	37.0	39.5	36.5	39.5	40.0	41.0	39.0	38.0 $\pm$ 2.7
0.4	56.0	43.0	52.0	48.0	52.1	49.0	52.5	52.9	54.5	52.5	50.3 $\pm$ 3.6
0.5	57.5	53.5	64.5	59.5	65.0	61.0	65.0	64.5	67.0	65.0	62.3 $\pm$ 4.5
0.6	68.0	65.0	78.0	71.0	78.0	72.0	78.0	77.0	—	78.1	73.9 $\pm$ 5.0

), 以後の本実験を行なった.

Ⅲ カドミウム量測定に関する基礎実験

a. ランプ安定時間

カドミウム用中空陰極ランプの出力と光量は, 10mA で, 点灯約20分後に安定した. 従って測定は点灯30分後に開始した (図8). 以下, カドミウムを Cd と略記する.

b. ガスバーナーの高さ

バーナーの長軸とランプの光軸とを一致させた後, バ

Fig. 7

Fig. 8

Table 6

Weight change for four weeks

Weeks	Cases	Weight Change (%)
1	20	100
2	20	95.8 ± 2.4
3	20	93.5 ± 1.6
4	20	93.5 ± 1.6

ナーの高さを調節した. バーナー部の目盛を 0.5より 2 まで移動させ, 各目盛毎に, 吸光度を $0.2\mu\text{g/ml}$ のカドミウム標準液を用いて調査した. いずれの目盛の位置でも測定可能であった (図9) が, 目盛 1 の高さの場合が最も吸光度がよく, ノイズも少なく, しかも安定していた.

c. 標準液による吸光度

原子吸光用 Cd 標準液を希釈して, $0.1\mu\text{g/ml}$ から $0.6\mu\text{g/ml}$ までの各種濃度の Cd 水溶液を調製し, その吸光度を測定した. 連日10日間に亘って行なった再現性も良好で (表5), 濃度と吸光度は正の相関を示して, 十分の直線性が認められた (図10).

d. 過塩素酸の干渉

下記した 5 試料について吸光度を測定し, Cd 標準液

Fig. 9

Fig. 10

による吸光度と対比検討した(図11)。

試料1；過塩素酸10倍稀釈液。

試料2；過塩素酸1 mlにCd0.5 μ gを添加し、水を加えて10 mlとした溶液。

試料3；過塩素酸1 mlにCd1.5 μ gを添加し、水を加えて10 mlとした溶液。

試料4；過塩素酸1 mlで歯牙を湿式灰化した溶液の10倍稀釈液。

試料5；試料4にCd0.5 μ gを添加した溶液。

以上の各試料のうち、試料2と3、および試料4と5の吸光度の差は、Cd標準液による0.1 μ g/ml, 0.05 μ g/mlの吸光度とよく一致し、過塩素酸は、Cdの吸光度に直接の干渉作用は示さない。しかし過塩素酸の10倍稀釈液は水(基線)に比べ、記録紙上で、約2 mm上昇し吸光度として表現されている、この過塩素酸による影響を除外するために、Cd標準液には、過塩素酸を添加し、その10倍稀釈液を用いて、検量線を作製することとした。

e. 光散乱の補正

歯牙含有のCd量測定に際しては、光散乱による内部干渉の補正も、重要な一課題である。この補正のために

Fig. 11

Fig. 12

は、日立製D₂ランプを使用し、以下の検討を行なった。

まず、Cd標準液と、歯牙を過塩素酸で湿性灰化した溶液の10倍稀釈液(No. 1 ~ No. 9)とを試料として、Cd用中空陰極ランプで吸光度を測定した(図12)。引続き同一試料の吸光度をD₂ランプでも測定した(図13)。この両者の吸光度を対比検討すると、D₂ランプで、Cd標準液は、過塩素酸添加に由ると考えられる2 mm前後の吸光度を示すにすぎないが、No. 1 ~ No. 8の歯牙試料では、可成りな吸光度がみられた。

しかし、Cdを0.05 μ g/mlの割合に添加した歯牙試料・No. 9の吸光度の差は、Cd標準液による0.05 μ g/mlの吸光度と、よく一致して回収能もよく(図12)、また、D₂ランプによる吸光度は、同じ値を示している(図13)。

従って、他種元素の光散乱による内部干渉を、D₂ランプを用いて補正することが出来る。すなわち、歯牙含有のCd量は、Cd用中空陰極ランプで測定した吸光度より、D₂ランプで測定した吸光度を差引いた値で、算定されねばならない。

ちなみに、Cd標準液について、この値を求め、検量

Fig. 13

Correlation between absorbency by Cd lamp and D₂ lamp

Fig. 14

線を引くと、十分な直線性をもち、しかも原点を通過する検量線を描きうる(図14)。この方法でも、過塩素酸の影響を除外し得る。

IV 小括

日立 207型 原子吸光装置を用いて、歯牙含有の水銀および Cd 量を測定するために、若干の基礎的検討を行なった。

1. 水銀分析には、日立製水銀分析用附属装置を利用して、還元気化方式を採用し、Cd 分析には、アセチレン・空気混合ガスによる 燃焼還元法を用いた。その結果、標準液の濃度と吸光度は正比例し、直線的な検量線をひきうることを知った。また吸光度の再現性もよい。

2. 試料歯牙の湿式灰化には、精密分析用過塩素酸を使用する。水銀あるいは Cd の吸光度に対する過塩素酸の干渉ないし影響は、標準添加法を用いて除外しうる。

3. Cd の吸光度に対する内部干渉は、D₂ランプを用いて除去・補正しうる。

以上の結果から、日立 207型原子吸光装置を用いて、歯牙中の水銀および Cd 量を、十分な精度で、分析定量しうる事が確認された。

なお、本法による水銀量測定は、総水銀量を主な対象としたものである。しかし、歯牙を試料とした今回の測定値は、主として無機水銀量を示しているものと考えられる。

C. 歯牙含有水銀量に関する検討

I 一般的事項

a. 対象検体

北海道大夕張地区(A)・北九州市地区(B)・宮崎県諸塚地区(C)で、歯科外来治療に際し、抜去された歯牙を対象検体とした。検体とした健常歯牙、齲歯な

Fig. 15

ど、すべて無作為に蒐集されたものである。検体総数は176歯牙で、うち 健常歯牙は59検体であった。

b. 試料の作製法

検体として蒐集された歯牙の歯石、歯周組織および裂溝附着物などは可及的に除去した。

その後、検体歯牙をそれぞれ、硬質ガラス製スピットグラスに保存し、真空デシケーター(シリカゲル)を用いて乾燥した。重量は、約4週間後に93.5%に減少し、その後の変動はほとんどみられなかった(表6)。従って、真空デシケーター中で、4週間乾燥した歯牙重量を、基礎的な乾燥重量とし、単位重量当りの水銀量を算定した。なお、一部歯牙は乳棒で軽打し象牙質とエナメル質に分離した。

このようにして乾燥した検体歯牙の0.1~0.3gに、過塩素酸1mlを加えて、試験管中に密封静置すると、3~5日で完全に溶解(湿式灰化)し、透明な溶液となる。その後に水を添加して100mlとし水銀の分析定量試料とした。

II 健常歯牙の含有水銀量

健常歯牙・59検体のうち、含有水銀量が検出定量された歯牙は、57検体にもおよんだ。すなわち、乳歯・8検体、永久歯・49検体である。永久歯を歯種別にみると、前歯は12検体、臼歯は9検体、智歯は28検体である。

これら各群の平均含有水銀量は、乳歯が0.0568(±0.0081) μg/gであり、永久歯のうち、前歯は0.0567(±0.0032) μg/g、臼歯は、0.0690(±0.0222) μg/g、智歯は0.0486(±0.0062) μg/gである。各群間の差に有意はみられない。また、永久歯49検体の平均含有水銀量は、0.0552(±0.0102) μg/gで、乳歯との差に有意はない(図15)。

Fig. 16

さらに、各年代別に、その平均含有水銀量を対比してみても、各年代とも $0.05\mu\text{g/g}$ 前後値を示し、相互間の差には有意はない (図16)。

また、永久歯49検体のうち、男性・25検体の平均含有水銀量は $0.0598 (\pm 0.0232) \mu\text{g/g}$ であり、女性・24検体では、 $0.0504 (\pm 0.0055) \mu\text{g/g}$ である。この両者間の差にも、有意はない。

次に、健常歯牙59検体を地区別に分類すると、検体数はA地区・15検体、B地区・34検体、C地区・10検体となり、それぞれの平均含有水銀量は、 $0.0630 (\pm 0.0137) \mu\text{g/g}$ 、 $0.0520 (\pm 0.0051) \mu\text{g/g}$ 、 $0.0553 (\pm 0.0131) \mu\text{g/g}$ である。各群相互間の差に有意はない。

なお、健常歯牙で、60才台の1例に、 $0.208\mu\text{g/g}$ と高い値がみられているが、本例は、A地区の症例である。

Ⅲ 無作為蒐集歯牙の含有水銀量

a. 含有水銀量

男性・75検体、女性・101検体計176歯牙の含有水銀量を測定した。水銀量の $0.1\mu\text{g/g}$ 以下の検体が、176検体中121検体 (68.8%) を占めて最も多く、次いで $0.1\mu\text{g/g}$ 以上 $0.2\mu\text{g/g}$ までの検体が176検体中35検体 (19.9%) であった。この両群で、計88.7%を占めている。

$0.4\mu\text{g/g}$ 以上の検体も9検体にみられるが、これらの歯牙は、いずれも根管治療中の歯牙・根充歯牙もしくはアマルガム充填歯牙などであった。一方、含有水銀量を検出出来なかった検体は、4歯牙にすぎない。従って、これら13検体を除いた男性・71検体、女性・92検体、計163歯牙を主な対象として、以下の検討を行なった。

男性・71歯牙の平均含有水銀量は、 $0.0712 (\pm 0.0074) \mu\text{g/g}$ で、女性・92歯牙のそれは、 $0.0645 (\pm 0.0019) \mu\text{g/g}$ であり、全検体の平均含有水銀量は、 $0.0674 (\pm 0.0048) \mu\text{g/g}$ であった (表7)。

b. 含有水銀量の性別・地域別差

北海道大夕張地区 (A)・北九州市地区 (B)・宮崎県諸塚地区 (C) の三地区別に全検体を分類し、各地区毎に男女間の歯牙含有水銀量を比較検討したところ、三地区とも性差はみられなかった。

また、男性の三地区相互間における歯牙含有水銀量の差にも、有意はみられなかった。女性では、C地区の $0.0896 (\pm 0.0119) \mu\text{g/g}$ は、B地区の $0.0507 (\pm 0.0014) \mu\text{g/g}$ に比べ、明らかに高値であった。しかし、このいずれの値も、女性・92検体の平均含有水銀量 $0.0645 (\pm 0.0019) \mu\text{g/g}$ との差には、有意がみられなかった (表7)。

c. 含有水銀量の年齢別・性別差

年齢を10才毎に区分し、また各年代を男女別に分ち、歯牙含有の水銀量を対比検討した。10才未満では、平均含有水銀量は $0.0926 (\pm 0.0123) \mu\text{g/g}$ で、10才台では $0.0871 (\pm 0.0148) \mu\text{g/g}$ である。この両群における含有水銀量は、他年代群に比べて高値である (表8)。

各年代毎に、男女間の歯牙含有平均水銀量を比較した場合、10才台で、男性の $0.1464 (\pm 0.0195) \mu\text{g/g}$ は、女性の $0.0602 (\pm 0.0087) \mu\text{g/g}$ に比べ、有意に高値であった。他の年代群では、男女間に差はほとんどみられなかった (表8)。

d. 齲歯の含有水銀量

齲蝕の程度を $C_1 \sim C_4$ に分類し、その各群について、歯牙含有水銀量を調査した。平均含有水銀量は、 C_2 群 (6検体) で $0.0810 (\pm 0.0237) \mu\text{g/g}$ 、 C_3 群 (34検体)

Table 7 Mercury concentration among three regions

Regions	Male	Female	Total
A	20* $0.0732 \pm 0.0132^{**}$	14 0.0580 ± 0.0247	34 0.0670 ± 0.0133
B	13 0.0644 ± 0.0168	48 0.0507 ± 0.0014	61 0.0536 ± 0.0051
C	38 0.0725 ± 0.0099	30 0.0896 ± 0.0119	68 0.0800 ± 0.0078
Total	71 0.0712 ± 0.0074	92 0.0645 ± 0.0019	163 0.0674 ± 0.0048

* number of cases

** mean $\pm$ S.E. $\mu\text{g/g}$ (dry weight)

で $0.0685 (\pm 0.0103) \mu\text{g/g}$, C_4 群 (66検体) で $0.0745 (\pm 0.0076) \mu\text{g/g}$ であった. いずれも 健常歯牙の平均含有水銀量 $0.0545 (\pm 0.0057) \mu\text{g/g}$ に比べて 高値であった (表 9).

また, C_3 群および C_4 群の測定値の分散は, ともに, 健常歯牙の場合と異なった分散を示していたが, 平均値の差の検定では, 健常歯牙と C_4 群 との差のみに, 有意が認められた. なお, C_1 の歯牙は蒐集し得なかった.

e. 歯種別含有水銀量

乳歯・31検体のうち, 前歯・8検体の平均含有水銀量は, $0.0714 (\pm 0.0109) \mu\text{g/g}$ で, 臼歯・23検体のそれは $0.1093 (\pm 0.0143) \mu\text{g/g}$ である. 永久歯では, 前歯 (36検体) が $0.0600 (\pm 0.0094) \mu\text{g/g}$, 小臼歯 (26検体) が $0.0690 (\pm 0.0091) \mu\text{g/g}$, 大臼歯 (28検体) が $0.0552 (\pm 0.0107) \mu\text{g/g}$, 智歯 (42検体) が $0.0520 (\pm 0.0048) \mu\text{g/g}$ であった. 乳歯の方が, 永久歯に比べて,

Table 8 Male and female mercury concentration by age

Age	Male	Female	Total
<10	12*	8	20
	$0.0818 \pm 0.0200^{**}$	0.1088 ± 0.0286	0.0926 ± 0.0123
10	5	11	16
	0.1464 ± 0.0195	0.0602 ± 0.0087	0.0871 ± 0.0148
20	13	19	32
	0.0533 ± 0.0120	0.0554 ± 0.0089	0.0545 ± 0.0074
30	4	11	15
	0.0451 ± 0.0144	0.0570 ± 0.0135	0.0538 ± 0.0120
40	19	16	35
	0.0657 ± 0.0102	0.0612 ± 0.0164	0.0636 ± 0.0300
50	11	15	26
	0.0471 ± 0.0222	0.0492 ± 0.0048	0.0483 ± 0.0102
>60	7	12	19
	0.1003 ± 0.0346	0.0540 ± 0.0214	0.0711 ± 0.0203

* number of cases

** mean $\pm$ S.E. $\mu\text{g/g}$ (dry weight)

Table 9 Male and female mercury concentration by carious degree

	Male	Female	Total
Normal	27*	30	57
	$0.0590 \pm 0.0102^{**}$	0.0524 ± 0.0047	0.0545 ± 0.0057
C_2	2	4	6
	0.0690	0.0896 ± 0.0332	0.0810 ± 0.0237
C_3	12	22	34
	0.0536 ± 0.0070	0.0807 ± 0.0151	0.0685 ± 0.0103
C_4	30	36	66
	0.0894 ± 0.0125	0.0621 ± 0.0088	0.0745 ± 0.0076

* number of cases

** mean $\pm$ S.E. $\mu\text{g/g}$ (dry weight)

ことに乳臼歯は、有意に含有水銀量が多い（図17）。

永久歯では、前歯と智歯との測定値の分散に有意差がみられたが、平均含有水銀量の相互間の差は、有意ではない。

f. 歯牙組織別含有水銀量

検体歯牙をエナメル質と象牙質とに分離出来た73検体について、歯牙組織別の含有水銀量を検討した。エナメル質（男性11検体・女性21検体）は $0.0768 (\pm 0.0107) \mu\text{g/g}$ 、象牙質（男性15検体・女性26検体）は $0.0473 (\pm 0.0064) \mu\text{g/g}$ であった。すなわち、エナメル質では、象牙質より水銀含有量が多い傾向にある（図18）。

IV 小 括

健康歯牙における含有水銀量は、乳歯で $0.0563 (\pm 0.0081) \mu\text{g/g}$ 、永久歯前歯で $0.0567 (\pm 0.0031) \mu\text{g/g}$ 、永久歯臼歯で $0.0690 (\pm 0.0222) \mu\text{g/g}$ 、永久歯智歯で $0.0486 (\pm 0.0062) \mu\text{g/g}$ であり、各群相互間の差に有意はなく、健康歯牙・57検体の平均含有水銀量は $0.0545 (\pm 0.0057) \mu\text{g/g}$ である。年代・性別差および地域差

も、ほとんどなく、その含有量は比較的安定している。

ところが、無作為な歯牙蒐集で、病的歯牙ことに齲歯が採取されると、その平均含有水銀量は多くなり、その程度は乳歯ことに乳臼歯で著しい（図17）。従って、無作為蒐集歯牙の検討で、乳歯の平均含有水銀量が、永久歯に比べて、有意に高い値を示したのは、齲蝕乳歯の含有水銀量が多かったことに由来するもので、前述のように、健康歯牙では、乳歯も永久歯も含有水銀量に、差はないものと考えられる。

また、無作為蒐集歯牙を3地域に分類し対比したところ、C地区で、 $0.0800 (\pm 0.0078) \mu\text{g/g}$ と、他2地区に比べ、高い値を示し、ことに女性で有意な高値〔 $0.0896 (\pm 0.0119) \mu\text{g/g}$ 〕を示した。このことも、そのほとんどの検体が齲歯であったことによる。

さらに歯牙を組織別にみた場合、象牙質に比べて、エナメル質に、含有水銀量は多かったが、両者間の差に有意はなかった。

なお、含有水銀量を検出出来なかった歯牙4検体のうち、2検体は健康歯、他の2検体は齲歯であった。一方、含有水銀量が $0.4 \mu\text{g/g}$ 以上の9検体は、すべて治療歯牙であった。

D. 歯牙含有カドミウム（Cd）量に関する検討

I 一般的事項

北海道大夕張地区（A）・北九州市地区（B）・宮崎県諸塚地区（C）の3地区で、歯科外来治療時に、無作為に蒐集された男性歯牙・28検体、女性歯牙・42検体、計70検体について、含有Cd量を分析定量した。うち健康歯牙は25検体（男性8，女性17）であった。

試料作製に際しては、含有水銀量の検討の場合と同様な方法で湿式灰化して後、水を加えて 10ml とした。本溶液について、Cd量を定量し、乾燥重量 1g 当りの歯牙含有Cd量を算定した。

Mercury concentration by type of teeth

Fig. 17

Mercury concentration by tissue

Fig. 18

Table 10 Cadmium concentration by age

Age	Cases	Mean $\pm$ S.E.*
<10	5	0.5076 $\pm$ 0.1794
10	6	0.4565 $\pm$ 0.1068
20	17	0.5554 $\pm$ 0.0741
30	8	0.5597 $\pm$ 0.1470
40	18	0.4617 $\pm$ 0.0693
50	8	0.5027 $\pm$ 0.1049
>60	8	0.4099 $\pm$ 0.0755

* $\mu\text{g/g}$ (dry weight)

Table 11 Cadmium concentration among three regions

Regions	Male	Female	Total
A	8* 0.4393 $\pm$ 0.0557**	15 0.4088 $\pm$ 0.0959	23 0.4287 $\pm$ 0.0547
B	23 0.5667 $\pm$ 0.1497	2 0.5045 $\pm$ 0.0632	25 0.5095 $\pm$ 0.0616
C	11 0.5464 $\pm$ 0.0787	11 0.6095 $\pm$ 0.0825	22 0.5786 $\pm$ 0.0600
Total	42 0.4905 $\pm$ 0.0480	28 0.5138 $\pm$ 0.0480	70 0.5045 $\pm$ 0.0346

* number of cases

** $\mu\text{g/g}$ (dry weight)

II 健康歯牙の含有Cd量

健康歯牙・25検体の平均含有Cd量は、0.5201 (± 0.0520) $\mu\text{g/g}$ であった。

III 無作為蒐集歯牙の含有Cd量

a. 含有Cd量

上記の健康歯牙・25検体を含む、無作為蒐集歯牙・70検体の平均含有Cd量は、0.5045 (± 0.0346) $\mu\text{g/g}$ で、健康歯牙のみを対象とした場合の0.5201 (± 0.0520) $\mu\text{g/g}$ に比べわずかに低値であるが、その差には有意はない。

b. 含有Cd量の年齢別・性別・地域別差

無作為蒐集歯牙・70検体を、年齢別 (表10) および性別・地域別 (表11) に分類し、その平均含有Cd量を対比検討した。各群間の差に有意はない。

c. 齲歯の含有Cd量

齲歯・45検体を、齲蝕の程度別に分類し、その平均含有Cd量を検討したところ、C₂群 (6検体) は0.2800 (± 0.1025) $\mu\text{g/g}$ 、C₃群 (20検体) は0.4753 (± 0.0632) $\mu\text{g/g}$ 、C₄群 (19検体) は0.5590 (± 0.0671) $\mu\text{g/g}$ であった。

Table 12

Cadmium concentration by carious degree

Degree	Cases	Mean $\pm$ S.E. $\mu\text{g/g}$ *
Normal	25	0.5201 $\pm$ 0.0520
C ₂	6	0.2800 $\pm$ 0.1025
C ₃	20	0.4753 $\pm$ 0.0632
C ₄	19	0.5590 $\pm$ 0.0671

*dry weight

C₂群で最も低値を示し、ことにC₄群に比べて有意に少ない。また、C₂群の平均含有Cd量は、健康歯牙の平均含有Cd量0.5201 (± 0.0520) $\mu\text{g/g}$ に比べても、低値である。しかし、その差は有意ではない (表12)。

d. 歯種別含有Cd量

乳歯・8検体の平均含有Cd量は0.5317 (± 0.124) $\mu\text{g/g}$ で、永久歯・62検体の平均含有Cd量は0.5038 (± 0.0436) $\mu\text{g/g}$ であり、その両者間の差に有意はない。

永久歯をさらに歯種別に分類したところ、その平均含有Cd量は、前歯 (13検体) で0.3116 (± 0.0663) $\mu\text{g/g}$ 、小臼歯 (8検体) で0.6012 (± 0.0806) $\mu\text{g/g}$ 、大臼歯 (14検体) で0.5364 (± 0.0870) $\mu\text{g/g}$ 、智歯 (27検体) で0.5506 (± 0.0700) $\mu\text{g/g}$ となる。前歯の平均含有Cd量は、小臼歯・智歯のそれに比べて有意に低い値を示した (図19)。

e. 歯牙組織別含有Cd量

エナメル質と象牙質に分離出来た検体について、それぞれの含有Cd量を定量し、平均値で対比検討したところ、エナメル質 (8検体) の0.5365 (± 0.0959) $\mu\text{g/g}$

Fig. 19

は、象牙質（14検体）の $0.3628 (\pm 0.0707) \mu\text{g/g}$ に比べ高値である。しかし、その差は有意ではない（表13）。

Table 13

Cadmium concentration by tissue

	Cases	Mean $\pm$ S.E.*
Enamel	8	0.5365 ± 0.0959
Dentine	14	0.3628 ± 0.0707

* $\mu\text{g/g}$ (dry weight)

IV 小 括

健常歯牙・25検体の平均含有Cd量は $0.5201 (\pm 0.0520) \mu\text{g/g}$ であり、無作為蒐集歯牙・70検体の平均含有Cd量は $0.5045 (\pm 0.0346) \mu\text{g/g}$ であった。年令別、性別、地域別差はみられなかった。また、乳歯と永久歯との差にも、有意はなかった。

齲歯の含有Cd量を、その程度別にみた場合、C₂群（6検体）の平均含有Cd量は $0.2800 (\pm 0.1025) \mu\text{g/g}$ で、C₄群（19検体）の $0.5590 (\pm 0.0671) \mu\text{g/g}$ に比べ、有意に少なく、齲蝕の程度が進行するに伴い、含有Cd量は増加する傾向がうかがわれた。しかし、C₂群は検体数も少なく、標準誤差も大きい。従って、なお向後の検討を要する。永久歯・62検体を歯種別にみた場合、前歯（13検体）の $0.3116 (\pm 0.0663) \mu\text{g/g}$ は、小臼歯（8検体）の $0.6012 (\pm 0.0806) \mu\text{g/g}$ 、智歯（27検体）の $0.5506 (\pm 0.0700) \mu\text{g/g}$ に比べ、有意に低値である。しかし、小臼歯・8検体のうち5検体はC₄の齲歯であり、また、前歯13検体のうちC₂・C₃・C₄の各3検体を除いた、健常歯牙・4検体の平均含有Cd量は $0.5090 (\pm 0.0917) \mu\text{g/g}$ であり、智歯・27検体のうち、C₂・1検体、C₃・11検体、C₄・1検体を除外した健常歯牙・14検体の平均含有Cd量は $0.5137 (\pm 0.0800) \mu\text{g/g}$ で、健常歯牙のみでは、その相互間の差に有意はみられない。

E. 考察ならびに総括

原子吸光分析法の普及に伴い、歯牙含有の微量金属に関する知見の報告も数多い。しかし、歯牙含有の水銀量を定量分析した報告には、いまだ接し得ていないのみならず、Cd量についても、2～3の報告^{7,10-12)}をみるにすぎない。

最近、環境汚染金属として、水銀・Cdが共に、注目されているのは、すでに周知のところである。

著者は、原子吸光法を用い、歯牙含有の水銀およびCd量の定量分析を試み、興味ある若干の知見を得た。ここに、その大要を総括し、考察を加えて報告する。

まず、歯牙含有の水銀量の測定に当っては、還元気化方式を採用し、原子吸光分析法で定量した。その方法の詳細は、長谷川ら（1972）^{1,2)}、菅野（1973）³⁾などの記載に準じており、総水銀量を測定対象としたものである。

一方、Cd量の定量には、試料にジエチルジチオカルバミン酸ナトリウム（DDTC）を加えてキレート化合物とし、これをメチルイソブチルケトン（MIBK）で抽出して、その抽出液について原子吸光法を行なう方法が、一般的である（鈴木ら：1973）⁴⁾。

しかし、本法により、歯牙含有Cd量を測定し、報告された値も、変動の幅が大きいようである。従って、今回は、試料をアセチレン・空気混合ガスで燃焼還元し、原子吸光分析に際しては、D₂ランプを用いて、光学的に散乱線を除去し、他元素による内部干渉を除外補正する方法⁵⁾によった。

基礎実験を重ね、歯牙含有の水銀およびCd量を分析定量するに際し、著者の方法が、ほぼ満足すべき定量法であることを確認し、北海道大夕張地区（A）・北九州市地区（B）・宮崎県諸塚地区（C）で、無作為に蒐集された歯牙検体について、その含有水銀量およびCd量を測定した。ことに、従来、その報告をみない歯牙含有水銀量については、検出基礎単位を $0.01 \mu\text{g}$ とすることにより定量可能となった。

無作為に蒐集された歯牙176検体について、含有水銀量の頻度分布ヒストグラム（図20）をみると、ピークは低値側に偏位しており、汚染物質特有の分布〔Schütte（1964）⁶⁾、大塩（1973）⁷⁾〕が示唆された。

健常歯牙・57検体の平均含有水銀量は $0.0545 (\pm 0.0057) \mu\text{g/g}$ であり、乳歯と永久歯の平均含有水銀量の差には、有意はみられなかった。

Distribution of mercury concentration

Fig. 20

齲歯・106検体の平均水銀含有量は、 $0.0730 (\pm 0.0060) \mu\text{g/g}$ で、健常歯牙の場合に比べ、ことにC₄群〔66検体： $0.0745 (\pm 0.0076) \mu\text{g/g}$ 〕では、明らかな高値を示した。

健常歯牙を含む無作為蒐集歯牙の平均含有水銀量の対比検討で、乳歯群、10才未満の歯牙群で、平均含有水銀量が、それぞれ、 $0.0995 (\pm 0.0106) \mu\text{g/g}$ 、 $0.0926 (\pm 0.0123) \mu\text{g/g}$ と有意に高かったのも、検体歯牙として、齲歯が多く含まれていたことによるものである。

$0.4 \mu\text{g/g}$ 以上の含有水銀量が検出された9歯牙は、いずれも治療歯でアマルガムなど歯科用充填物の除去を行なったにもかかわらず、著しく高値を示していた。このことは、歯科治療上の問題点として、今後、なお長期に亘る経過観察が肝要のように思われる。

先に述べたように、歯牙含有水銀量のヒストグラムから、水銀は、歯牙における必須微量元素ではなく、汚染金属と考えられる。青木(1974)⁸⁾は、メチル水銀が歯牙に沈着し得ることを実験的に証明している。また、メチル水銀やエチル水銀など有機水銀が、自然界で無機化される一方、無機水銀は、自然界でメチル化されることも、すでに実証されている(徳臣ら：1973)⁹⁾。

古くより、無機水銀中毒症は、職業病として知られてきており、最近では、公害汚染としての有機水銀中毒症もまた、世の耳目を集めている。このような時期に際し国内3地区より無作為に蒐集した歯牙検体について、含有水銀量を検出定量し得たことは、甚だ意義深いものと思われる。

ちなみに、無作為蒐集歯牙・176検体中、含有水銀量を検出し得なかった歯牙は4検体で、うち2検体は北九州市地区、他の2検体は諸塚地区で蒐集されたものである。また、健常歯牙で、含有水銀量が $0.208 \mu\text{g/g}$ にもおよんでいた1検体は、北海道大夕張地区のものであった。

歯牙の含有Cd量も、水銀の場合と同じく、国内3地域で、無作為に蒐集された歯牙・70検体について、分析定量されている。その平均含有Cd量は $0.5045 (\pm 0.0346) \mu\text{g/g}$ であり、健常歯牙・25検体における平均含有Cd量は $0.5201 (\pm 0.0520) \mu\text{g/g}$ であった。

一般に、Cdの原子吸光分析法による定量には、有機溶媒に抽出する方法が、用いられている。この方法を用い、歯牙の含有Cd量を測定した報告で、金子(1972)¹⁰⁾は平均 $0.20 \mu\text{g/g}$ (対数平均値常数変換 $0.12 \mu\text{g/g}$)であったと述べ、大塩(1973)⁷⁾は、 $0.6 \sim 1.4 \mu\text{g/g}$ の間に分布頻度が高かったことを示説している。大塩の報告

は、乳歯を対象とした値ではあるが、試料量と検出量の基礎的な検討に際し、永久歯と乳歯が同一線上に、直線的にプロットされることを図示しており(山本・大塩：1973)¹¹⁾永久歯の含有Cd量も、乳歯とほぼ同様な値を示すものと考えられる。

著者の方法で、定量した歯牙の平均含有Cd量は、 $0.5 \mu\text{g/g}$ 前後であり、金子、大塩の報告量のほぼ中間の値である。

次に、著者が作製した、無作為蒐集歯牙・70検体の含有Cd量頻度分布ヒストグラム(図21)では、歯牙におけるCdの非必須性を論議することは出来ない。大塩の示したヒストグラムでも、わずかに non-essential の傾向を示したにとどまる。

しかし、古くより、歯牙におけるCd黄色環が知られており、イタイイタイ病発生地域で歯牙Cd量が有意に増加していた報告(岩倉：1972)¹²⁾もみられ、Cdも非必須の汚染金属として理解されている現状のようである。

確かに、歯牙硬組織は、一旦、形成されると、他の人体組織に比べて、著しく安定性であり、発生期の体液イオン組成をある程度反映して記録する特性を有している(Brudevold, et al. : 1963)⁶⁾。また最近、青木(1974)⁸⁾は、歯牙発生過程の組織細胞では、かなり容易にメチル水銀が取込まれることを実験的に報告している。

従って、現段階における歯牙含有水銀量を知ること、今後の水銀汚染に関する疫学的な調査を行なうに当り、極めて貴重な資料となる。ここに、著者の方法によ

Fig. 21

り定量可能となった歯牙含有水銀量を、ことに意義深いものとして報告する次第である。

なお、歯牙含有のCd量についても、検討結果を記述したが、頻度分布ヒストグラムからは、汚染金属とは断定出来ない一面もあり、また、当然、汚染が予想された群馬県安中地区の住民歯牙でも含有Cd量は高値を示さなかったという報告(金子・1972)¹⁰⁾もみられる。

さらに、田辺(1968)¹⁴⁾は、Cd50ppm飲料水で飼育中のラット歯牙では、2.03ppmを検出し得たが、投与中止1カ月後には、0.23ppmにすぎなかったことを報告している。

従って、口腔内自浄作用なども考慮して、岩倉(1972)¹²⁾のいうように、エナメル質と象牙質とに分離し、その含有量を対比検討するなど、歯牙の含有Cd量についても、今後の検討をまたねばならない問題も数多いようである。

ちなみに、今回の検討結果では、歯牙組織別にみた場合、含有水銀量およびCd量とも、エナメル質に多い傾向がみられた。

また、無作為に蒐集された歯牙を対象とした、今回の定量結果では、平均含有水銀量、Cd量とも、齲蝕について十分の配慮を行ない解析すると、性差・年齢差・地域差などはみられず、また、乳歯と永久歯、前歯と臼歯など歯種による差も有意は認められなかった。

反面、齲蝕における平均含有水銀量の増加は、口腔内における水銀汚染(沈着)を示唆したものかと考えられる。今後とも長期にわたって、齲蝕の含有水銀量の推移は検討さるべきである。

F. 結 語

原子吸光分析法を用い、歯牙の含有水銀量およびカドミウム量を測定した。水銀量の定量には還元気化方式を採用し、カドミウム量の定量にはD₂ランプを用い内部干渉を除外補正した。

北海道大夕張地区・北九州市地区・宮崎県諸塚地区で、無作為に蒐集された歯牙を検体として、分析定量された含有水銀量およびカドミウム量は次の通りである。

1. 健常歯牙・57検体の平均含有水銀量は0.055(±0.006)μg/gであった。

2. 健常乳歯・8検体および健常永久歯・49検体の平均含有水銀量は、それぞれ、0.057(±0.008)μg/g, 0.055(±0.010)μg/gで、両者間の差に有意はみられなかった。

3. 齲蝕の平均含有水銀量を、齲蝕の程度別に検討したところ、C₂群(6検体)は0.081(±0.024)μg/g, C₃

群(34検体)は0.069(±0.010)μg/g, C₄群(66検体)は0.075(±0.008)μg/gで、ことにC₄群の値は、健常歯牙の平均含有水銀量に比べて、有意の高値を示した。

4. 含有水銀量が0.4μg/g以上の9検体は、いずれも、アマルガム充填などの治療歯牙であった。

5. 従って、無作為蒐集歯牙を対象検体とし、その含有水銀量を対比検討する際には、齲蝕および治療歯牙について格別の配慮が肝要である。

健常歯牙のみを対象検体とした場合には、性別・年齢別・歯種別および地域別の差には有意はみられなかった。

6. 健常歯牙・25検体の平均含有カドミウム量は、0.52(±0.05)μg/gであった。

7. 歯牙組織別にみた場合、エナメル質で、平均含有水銀量およびカドミウム量は、ともに、象牙質よりも多い傾向がみられた。

以上の定量結果を報告し、環境汚染の立場から、若干の考察を加えた。ことに歯牙含有水銀量に関しては、従来、報告がなく、意義深い知見である。

(稿を終るにあたり、終始御懇篤な御指導と御校閲を賜った恩師、九州歯科大学第2口腔外科学教室池尻茂教授、九州歯科大学外科学教室草場威稜夫教授に心から感謝の意を表します。また本研究に御協力を頂いた教室員一同に感謝致します。)

引 用 文 献

1) 長谷川敬彦・新関満・伊知地令子・他：炎なし原子吸光分析による水銀計の試作と有機水銀、無機水銀の定量、環研年報 XXIII:167—173, 1972.

2) 長谷川敬彦・伊知地令子・新関満：環境気中水銀の補集と測定、環研年報 XXIV:201—204, 1972.

3) 菅野三郎：重金属(原子吸光光度法)、日本臨床31:1955—1965, 1973.

4) 鈴木正己・武内次夫・田村正平・他：原子吸光分析の実際、南江堂、1973.

5) 日立製作所版：原子吸光光度計測定解説、1973.

6) Schütte, K. H.: The biology of the trace elements, Their role in nutrition, Crosby Lockwood & Son Ltd, London, 1964. (大塩英雄⁷⁾より引用)

7) 大塩英雄：乳歯中のカドミウム、亜鉛および鉛の含有量について、東京および富山地区における歯種別含有量の比較、口腔衛生会誌 23:208—222, 1973.

8) Aoki, T.: Distribution of Hg-Methylmercuric Chloride in tissue cells in the field of oral

cavity during the process of dental development and its change in time course. J. Kyushu Dent. Soc. 28: 401—420, 1974.

9) 徳臣晴比古・山村定光：水銀，日本臨床 31: 1489—1494, 1973.

10) 金子芳洋：歯の微量金属に関する研究，口腔衛生会誌 22: 79—97, 1972.

11) 山本十糸子，大塩英雄：原子吸光分析法による歯質中のカドミウム，亜鉛および鉛の定量法について，口

腔衛生会誌 23: 192—207, 1973.

12) 岩倉政城：Cadmium 汚染地区における歯質中 Cadmium について，口腔衛生会誌 22: 1—9, 1972.

13) Brudevold, F., et al.: A study of zinc in human teeth, Arch. Oral Biol. 8: 135—144, 1963.

14) 田辺釧：慢性カドミウム中毒の実験的研究—特にラッテにおける Cd 体内蓄積について—，金大十全医学誌 76: 181—197, 1968.