

Sonderdruck aus „die heilkunst“

Heft 11, November 1979, 92. Jahrgang

Österreichische Studiengesellschaft für Antomenergie GmbH, Forschungszentrum Seibersdorf, Institut für Biologie, (Vorstand: Dr. Hans Altmann)

16) Nachweis von Quecksilber aus Silberamalgamfüllungen in Zahnwurzeln

Davoud Karimian Teherani und Thomas Till

1. Problemstellung

In der Praxis der Zahnbehandlung wird bei der Sanierung kariöser Zähne neben Silikat, Zement und Kunststoff nach wie vor Silberamalgam als häufigstes Defektbehebungsmaterial verwendet. Wegen der großen Toxizität des Quecksilbers haben daher verifizierte Nachweise der Löslichkeit und Quecksilberanreicherungen in Zahnwurzeln und Kieferknochen eine ausschlaggebende Bedeutung.

Auf Grund der Untersuchungsergebnisse von *H. Malissa, K. Maly, K. Schubert* und *T. Till* (1, 2, 3, 4, 5) und der großen Bedeutung der sich daraus ergebenden Folgerungen wurde hier der Versuch unternommen, derartige Resultate zu überprüfen und zu reproduzieren.

Als Untersuchungsmaterial wurden Zähne eines 76jährigen Mannes, die auf Grund von parodontalen Kieferknochenabbauerscheinungen extrahiert werden mußten, ausgewählt und nur jene Zähne einer Analyse zugeführt, die vital waren (also weder eine Wurzelbehandlung erhalten hatten, noch durch andere Umstände devitalisiert worden waren). Um die Richtigkeit der Nachweismethodik zu kontrollieren, wurden die zu untersuchenden Proben sowohl mit der atomabsorptionsspektrometrischen als auch mit der Neutronenaktivierungsmethode analysiert.

2. Material und Methode

2.1. Materialgewinnung

Die Zähne wurden nach der Extraktion getrocknet und an der Krone komplett mit Leukoplast abgedeckt, wenn irgend eine Art von Füllungen am Zahn vorhanden war, und sämtliche anamnestisch wichtigen Daten

in einer Tabelle 1 eingetragen. Sodann wurde jede zu untersuchende Wurzel mit einer jeweils neuen Stahlcarboscibe von der Zahnkrone abgetrennt. Durch die vorher vorgenommene Abdeckung war es möglich, eine weitere Kontaminierung durch Füllungsmaterial zu verhindern. Sodann wurden die einzelnen Wurzeln jeweils in einem anderen sterilen Gefäß in einer 10%igen H_2O_2 -Lösung desinfiziert und erhitzt und nach Lufttrocknung auf steriler Gaze steril verpackt. Sämtliche Trennschnitte erfolgt in mindestens 1 — 2 mm Entfernung von der abgedeckten Füllung. Zur Untersuchung standen die Wurzeln von vier Mahlzähnen mit Amalgamfüllungen und die Wurzeln von vier Frontzähnen ohne Amalgamfüllungen zur Verfügung.

Bei den Untersuchungsmaterialien des mit Nr. 5 bezeichneten Mahlzahnes 8 wurde zu jener Untersuchungsprobe für die A.A.S. das Material der Alveolarwand dazugegeben. Dies geschah aus zwei Gründen, einerseits war die Menge des Alveolarwandrestes sehr klein, zweitens lag auf Grund vorhergehender bereits erwähnter Untersuchungen nahe, daß sich die Anreicherungsmenge von Quecksilber im Kieferknochen vermehrt vorfinden läßt; außerdem lag der Alveolarwandrest an jener Stelle des Zahnes, wo sich die größere Menge der Amalgamfüllung befand, und vis-à-vis einer Goldfüllung.

Bei Nr. 4, einem Eckzahn oben, wurde nur der Analyse N.A.A. Material der Alveolarwand beigelegt.

2.2. Neutronenaktivierungsanalyse

Die Zahnproben wurden in flüssigem Stickstoff tiefgefroren, danach in einer Porzellanreibschale zerkleinert und in Quarzampullen (Suprasil) eingewogen. Die Hg-Standards $[HgNO_3]_2$ in verdünnter Salpetersäure

Nr.	Alter	ppm Hg		untersuchter Zahn oder Zahnrest	Vollzahl	Füllungen				Lagerdauer der Füllg.	Benzolische Depotmaterialien				Anreicherung verschiedener Metalle und anderer Art			
		N.A.A.	A.A.S.			Amalg.	Gold	Edel.	Edem.		Korona	Pulver	Glas	Porz.	a. B.	Queck.	Leg.	Metalle und andere Bemerkungen
1	19	0,2	0,02	1) max. 1/2	-	da				2 Jahre	a							
2	-	0,7	0,05	2) max. 1/2	-	da				2 Jahre	a							
3	-	2,4	1,05	7)	-	da				4 Jahre	m							
4	-	0,07	0,05	8)	-	da				ca. 10 Jahre	10-15							10 - 15 Jahre vorzeitig Demodiert
5	-	2,75	1,50	8) ohne Alv.	-	da				7 Jahre	a							vermischt Quarz und vis-à-vis Gold.
6	-	1,05	0,84	2) ohne Alv.	-					a. B.								
7	-	1,01	0,7	2) *	-						d							
8	-	0,24	0,2	1)	-					a. B.								
9	-	0,34	1,04	1)	-						d							

N.A.A. — Neutronenaktivierungsanalyse
A.A.S. — Atomabsorptionsspektroskopie

Tabelle 1: Hg-Bestimmung in Zahnwurzeln mittels N.A.A. und A.A.S.

(Merck Nr. 991 o) wurden mit einer Hamilton-Spritze in Quarzampullen (Suprasil) pipettiert und tiefgekühlt und danach 24 Stunden in einer Gefriertrocknungsanlage getrocknet.

Die Proben und Standards wurden 48 Stunden lang in einer Eckposition des Cores des ASTRA-Schwimmbecken-Reaktors der SGAE in Seibersdorf bei einem Neutronenfluß von 7×10^{13} n/cm² sec und einer Leistung von 8 MW bestrahlt. Dabei befanden sich alle Proben in einem zylindrischen Aluminiumbehälter, der um seine Achse rotierte. Dadurch wurde gewährleistet, daß der Neutronenfluß über alle Proben im Mittel gleich war.

Die Proben und Standards wurden nach achtwöchiger Abklingzeit sorgfältig gereinigt und danach mit Hilfe eines CANBERRA 4000-Kanal-Gamma-Spektrometers und eines 80 cm³ Ge(Li)-Detektors mit einem Auflösungsvermögen von 1,73 KeV gemessen. Das Radionuklid ²⁰³Hg mit einer Halbwertszeit von 47 Tagen und einer Gamma-Energie von 0,279 MeV wurde durch Vergleich mit den mitaktivierten Standards ausgewertet (6, 8).

2.3. Atomabsorption

Es wurden etwa 0,5 — 1 g der in Punkt 2. genannten Zahnproben in Kjeldahl-Aufschlußkolben eingewogen, 20 ml Veraschungssäure (HCl : HNO₃ = 3 : 1) — Suprapur/Merck — zugesetzt und diese während 6 bis 7 Stunden unter Verwendung eines Rückflußkühlers auf 60 — 70° C erwärmt, bis die nitrosen Gase entwichen waren. Danach wurde die Temperatur gesteigert. Der Aufschluß wurde beendet, sobald die Proben vollkommen farblos waren. Nach dem Erkalten wurden ca. 20 ml Kaliumpermanganatlösung zugesetzt. Für die Messungen wurde das Atomabsorptionsgerät MAS-50 von Hatch & Ott (7) — verwendet. Vor der Messung wurde erneut Kaliumpermanganat zugesetzt, um sämtliches vorhandenes Quecksilber zu Hg²⁺ zu oxidieren. Überschüssiges Kaliumpermanganat wurde durch Zusatz von Hydroxylaminhydrochlorid reduziert. Durch Zusatz von Zinnchlorid (SnCl₂) wurde das zweiwertige Quecksilber (Hg²⁺) zu metallischem Quecksilber (Hg⁰) reduziert. Der so entstandene Quecksilberdampf wurde mittels einer Umlaufpumpe zur Absorptionszelle gebracht und die Absorption bei 253,7 nm gemessen (9).

3. Resultate

Die Resultate der Neutronenaktivierungsuntersuchung wurden in der *Tabelle 1* mit der Bezeichnung N.A.A. eingetragen, diejenigen der Atomabsorptionsanalyse mit der Bezeichnung A.A.S.

Sowohl die Werte der N.A.A., als auch die der A.A.S. zeigen eine Übereinstimmung mit geringen Abweichungen (wie unter 2.2. beschrieben, wurden die Proben nicht homogenisiert, sondern zerkleinert). Nur bei 8 A.A.S. ist der Gehalt an Hg gegenüber der N.A.A. wegen des Alveolarwandzusatzes höher.

Aus den Untersuchungen geht hervor, daß sich durch beide Arten der Analysen in den Zahnwurzeln sämtlicher Zähne Quecksilber nachweisen läßt. In der Anamnese gab es keine Anhaltspunkte dafür, daß der Patient zu irgend einer Zeit seines Lebens einer erhöhten Quecksilberexposition ausgesetzt war. Eine signifikant erhöhte Anreicherung war an jenem Mahlzahn 8 feststellbar, der in Okklusion mit einem Goldinlay stand, insbesondere jene Probe, die Kieferknochenbeigabe enthielt.

Die übrigen Werte der Hg-Anreicherung an amalgamgefüllten lebenden Mahlzähnen scheinen sich nach der Dauer der Liegezeit der Amalgamfüllungen zu richten und stimmen bei beiden Arten der Analyse annähernd überein.

Die gefundenen Werte an den Frontzähnen (nicht amalgamgefüllt) sind wahrscheinlich dadurch erklärbar, daß sich noch viele andere Zähne mit Amalgamfüllungen mit längerer Liegedauer im Mund befanden, die ebenfalls Quecksilber abgegeben haben und somit auch von entfernt stehenden Zähnen eine Möglichkeit einer Anreicherung gegeben war. Diese Werte durch eine Anreicherungsmöglichkeit aus der Nahrung erklären zu wollen, scheint auf Grund vieler vorangegangener Analysen von nicht amalgamgefüllten Zähnen nicht zutreffend zu sein, da der Patient in seiner Nahrung ständig quecksilberhaltige Nahrungsmittel (Fische, Pilze etc.) gemieden hat und auch keiner anderen erhöhten Quecksilberexposition ausgesetzt war.

Aus Quecksilber und Methylquecksilberbestimmungen von Fischen aus der Donau geht hervor, daß 40% der Fischproben eine Hg-Konzentration von $< 0,2$ ppm, 50% von $0,21 - 0,5$ ppm und 10% von $0,51$ bis $1,03$ ppm haben. Der Methylquecksilbergehalt lag zwischen $2 - 72\%$ des Gesamtquecksilbers (9).

Somit konnte festgestellt werden, daß sich Quecksilber aus Amalgamfüllungen tatsächlich herauslöst und sowohl in Zahnwurzeln als auch in Kieferknochen anreichert, und zwar nicht nur örtlich am gefüllten Zahn, sondern auch (mit ziemlicher Sicherheit) entfernt davon an anderen Zahnwurzeln. Außerdem bestätigen die Resultate die Richtigkeit

des Verdachtes, daß sich das gelöste Hg hauptsächlich entlang des Desmodonts an der Zahnwurzel und in den Kieferknochen anlagert.

Da der Lysevorgang des Quecksilbers in kleinsten Mengen und ganz langsam erfolgt, sind die Werte der Anreicherung sowohl von der individuellen Verträglichkeit (das heißt Abbaufähigkeit) als auch von einer Galvanoelementbildung und von bakteriellen Gegebenheiten im Mund des Patienten abhängig (von Eßgewohnheiten und Hygiene).

Anorganische wie auch organische Quecksilberverbindungen werden durch Mikroorganismen oder chemische Methylgruppendonatoren in das besonders gefährliche Methylquecksilber überführt (14, 15, 16, 17).

Außerdem ist die bei Silberamalgam verwendete Metallmischung von Quecksilber, Silber, Zink, Zinn und Kupfer, an sich schon inhomogen und stellt bereits ein Galvanoelement dar. Laut *Haberscher Regel* entfalten kleine Konzentrationen eines Giftes über einen langen Zeitraum die gleiche Wirkung, wie hohe Konzentrationen über kurze Zeit (10). Allerdings gibt es diesbezüglich auch Ausnahmen. Nach *W. Ostwald* (11, 12) zeigen verschiedene Metalle noch in Verdünnung von 10^{-6} bis 10^{-10} deutliche katalytische Wirkungen. Auch *Krumholz et al.* (13) beschreibt derartige.

Mit den Resultaten dieser Untersuchungen ist die Bestätigung erbracht, daß sich Quecksilber aus Amalgamfüllungen tatsächlich in Zahnwurzeln und Kieferknochen anreichert, und außerdem unter Beweis gestellt, daß die Meßmethoden und Aussagen der Arbeiten von *Till et al.* (1, 2, 4, 5) richtig waren.

Es ist daher nicht einzusehen, daß wir in einem Stadium, wo die Menschen einer starken Umweltbelastung ausgesetzt sind, die Gefahr einer zusätzlichen unnötigen Belastungsnoxe für unseren Körper auch weiterhin leichtfertig nicht berücksichtigen.

4. Zusammenfassung

Aus den auf zwei Arten durchgeführten Quecksilberanalysen geht eindeutig hervor, daß sich das aus Amalgamfüllungen herausgelöste Quecksilber tatsächlich in Zahnwurzeln und Kieferknochen anlagert und speichert und dort nachweisen läßt. Das Hg sickert wahrscheinlich entlang des Zahnes durch das Desmodont in die Zahnwurzel und in den Kieferknochen ein, und zwar nicht nur örtlich an einen amalgamgefüllten Zahn, sondern auch über den Speichel an davon entfernt stehenden Zahnwurzeln. Die Höhe der Anreicherungsgrade hängt von der Liege-

dauer der Füllung, der Galvanoelementbildung und bakteriellen Gegebenheiten, beziehungsweise den Nahrungsgewohnheiten und der Hygiene des Menschen und seinen individuellen Eigenschaften ab. Die Untersuchungsergebnisse bestätigen hiermit die Richtigkeit früher gemachter Aussagen (Till et al., 1, 2, 4, 5).

Es besteht daher kein Grund dafür, die Möglichkeit einer zusätzlichen Anreicherung von Quecksilber in unserem ohnehin schon überlasteten Organismus auch weiterhin leichtfertig zu bagatellisieren.

Literaturverzeichnis

1. Till, T., Schubert, K.: Bericht über Spurenanalysen an menschlichen Zähnen. ZWR. H. 2, 66 — 68 (1977).
2. Till, T., Maly, K.: Quecksilber in Zahnwurzeln und Kieferknochen. ZWR. H. 6, 288 — 290 (1978).
3. Malissa, H., Maly, K., Till, T.: Zur Bestimmung von Quecksilber in Zahnwurzeln und Kieferknochen. Z. a. Chemie, Springer-Verlag, 239, 141 — 144 (1978).
4. Till, T., Maly, K.: Zum Nachweis der Lyse von Hg aus Silberamalgam von Zahnfüllungen. Der Praktische Arzt, Sept. (1978).
5. Till, T.: Quecksilber aus Amalgamfüllungen und Munddysbakterie, als Ursache parodontaler Abbauerscheinungen. ZWR. Nr. 22, Nov. (1978).
6. Haller, W. A., Filby, R. H., Pacitelli, L. A., Cooper, J. R.: Modern trends in activation analysis. Natnl. Bureau of Standards, Special Publication 312, Vol. 1, 1977. Washington, DC (1969).
7. Hatch, W. R., Ott, W. L.: Determination of submicrogram quantities of mercury by atomic absorption spectrometry. Analyt. Chem. 40, 2085-7 (1968).
8. Rancitelli, L. A., Cooper, J. A., Perkins, R. W.: Modern trends in activation analysis. Natnl. Bureau of Standards, Spezial Publication 312, Vol. 1, 101. Washington, DC. (1969).
9. Teherani, D. K., Stehlik, G., Hinteregger, J.: Bestimmung von Schwermetallen in Fischen aus Oberösterreichischen Gewässern — Teil 1: Quecksilber und Methylquecksilber. Environ. Pollut. 18, 11 — 29 (1979).

10. *Henschler, D.*: Wichtige Gifte und Vergiftungen, Pharmakologie und Toxikologie. B. 1. 572 — 600, Wissenschaftsverlag (1977).
11. *Ostwald, W.*: Physikalisch-chemische Grundfragen der Homöopathie. Med. Biolog. Schriftenreihe H. 3, Verlag Madaus, Radeburg (1927).
12. *Ostwald, W.*: Die Welt der vernachlässigten Dimensionen. 11. Aufl. Verlag Theodor Stenkopff, Dresden und Leipzig, S. 72 (1937).
13. *Krumholz, H., Watzler*: Microchem. Acta S. 80 (1937).
14. *Jensen, S., Jernelöv, A.*: Biological methylation of mercury in aquatic organisms. Nature 223, 753 (1969).
15. *Wood, J. M., Kennedy, F. S., Rosen, C. G.*: Synthesis of methylmercury compounds by extracts of methanogenic bacterium. Nature 220, 173 (1968).
16. *Bertilsson L., Neujahr, H. Y.*: Methylation of mercury compounds by methylcobalamin. Biochemistry 10, 2805 (1971).
17. *Landner, L.*: Biochemical model for the biological methylation of mercury suggested from methylation studies *in vivo* with *Neurospora crassa*. Nature 230, 452 (1971).

Anschriften der Verfasser:

Dr. Davoud Karimian Teherani,
 Österreichische Studiengesellschaft für Atomenergie Ges. m.b.H.,
 A-1082 Wien, Lenaugasse 10,
 Institut f. Biologie, Forschungszentrum Seibersdorf

Professor Dr. Thomas Till,
 wissenschaftlicher Mitarbeiter, Institut für path. Anatomie, Wien,
 A-1010 Wien, Riemergasse 14