

Centre d'études, d'analyses et de diagnostics en toxicologie de l'environnement

Adresse Postal : B.P. 214 R 5 - 67005 STRASBOURG

Bureau – Laboratoire : Institut Hématologie – Immunologie, Hôpital Civil

Tél. : 03 88 52 00 50 - Fax : 03 90 24 40 07

E-mail : AD.Scientifique@hemato-ulp.u-strasbg.fr

Site : <http://pollutions.free.fr>

LIBÉRATION DU MERCURE PAR LES AMALGAMES DENTAIRES

Contact : Docteur S. Jahanbakht

INTRODUCTION

Les amalgames sont très largement utilisés (75-80 % des cas) pour la restauration dentaire, et plus de 100 millions d'amalgames sont placés chaque année aux Etats-Unis (Lorscheider *et al*, 1995).

Ces dix dernières années, de nombreuses études ont montré que le mercure est constamment relâché sous forme de vapeurs de mercure (Hg^0), qu'il est inhalé puis absorbé dans les tissus de l'organisme, oxydé sous forme de Hg ionique et qu'il se lie finalement aux protéines. Il peut également se dissoudre dans la salive et être libéré sous forme particulaire (Forsell *et al*, 1998). Le taux de mercure relâché dans l'air intra-oral augmente après la mastication et le brossage des dents (Haïkel *et al*, 1995 ; Berdouses *et al*, 1995 ; Jahanbakht *et al*, 1998a).

A l'heure actuelle, il n'existe pas de preuve scientifique quant à la nocivité potentielle des amalgames dentaires pour l'ensemble de la population, même si quelques cas de patients hypersensibles au Hg (essentiellement hypersensibilité de type IV) ont été dénombrés.

Le Conseil Supérieur d'Hygiène Publique de France (mai 1998) et le Conseil National de l'Ordre des chirurgiens dentistes (novembre 1998), (Conso F. *et al*, 1998) ont émis quelques recommandations à l'usage du praticien.

Lors de la Conférence Internationale sur les amalgames dentaires au mercure organisée les 8 et 9 janvier 1999 à Luxembourg-ville, il s'est avéré que si leur toxicité fait toujours débat, la question des amalgames divise les pays de l'Union Européenne : certains continuent de prôner leur utilisation (Royaume-Uni), alors que d'autres recommandent préventivement de restreindre, voire de cesser, leur utilisation (Suède, Luxembourg, Allemagne).

Les moyens mis en œuvre ont pour objectif de quantifier le mercure libéré par les amalgames dentaires par évaporation (Hg^0) ou dissolution et d'évaluer la dose journalière absorbée.

Nous avons étudié l'influence de certains paramètres comme la température, le taux initial de Hg contenu dans les amalgames.

Pour l'étude de l'évaporation du mercure par les amalgames secs, nous avons mis au point un modèle expérimental *in vitro* simulant la cavité buccale. Nous avons étudié la cinétique de libération du mercure pendant 48 heures par les amalgames dentaires (42 à 50 % de Hg) à 37°C ainsi qu'à deux températures extrêmes (20°C et 53°C).

I) MATERIELS ET METHODES

I.1 Etude *in vitro* du relargage de Hg⁰ par les amalgames dentaires

Pour étudier la libération du mercure par évaporation sous forme Hg⁰, nous avons mis au point un dispositif expérimental (Figure 1) qui comprend :

- une cellule de 14,94 cm³ où l'amalgame fraîchement préparé est introduit
- une entrée et une sortie d'air sur la cellule (sortie reliée à l'analyseur de Hg)
- une hélice reliée à un moteur pour avoir une circulation d'air homogène et constante dans la cellule (rotation de l'hélice 270 trs/min)
- un bain thermostaté où la cellule est plongée

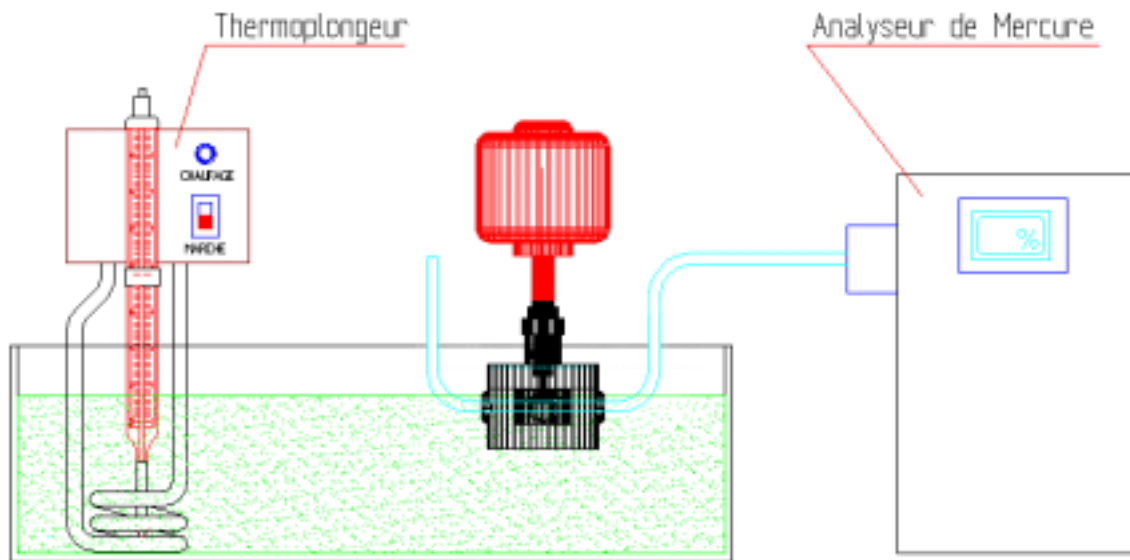


Figure 1 : Dispositif expérimental

L'amalgame est préparé dans un moule de 172,05 mm², afin d'avoir une surface homogène et égale pour toutes les préparations, et est introduit dans la cellule simulant la cavité buccale. La pompe de l'analyseur aspire de façon permanente l'air à l'intérieur de la cellule au-dessus de l'amalgame avec un débit de 0,75 L/min. L'air de la cellule est aspiré et poussé ensuite vers l'analyseur de mercure basé sur la spectrométrie d'absorption atomique en vapeur froide avec une limite de détection de 2,3 ng/m³.

Analyseur du mercure

Les analyses ont été effectuées à l'aide d'un appareil breveté. Son principe est basé sur la méthode d'absorption atomique sans flamme. Le mercure est réduit par l'étain (SnCl₂) sous forme de vapeurs métalliques (Hg⁰) et poussé par un gaz vecteur dans une cellule en quartz.

L'étalonnage de l'appareil est effectué à l'aide des solutions selon les normes AFNOR et vérifié par les solutions *titresol* commercialisées par Merck. Les analyses ont été conduites dans le respect des BPL (Bonne Pratique de Laboratoire).

Nous avons étudié la cinétique de libération du mercure par différents amalgames de type H.C.S.C. (amalgame à haute teneur en cuivre) avec une composition de poudre et des taux de Hg différents, pendant 48 heures à $37^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$ ainsi qu'à deux températures extrêmes ($20^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$ et $53^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$). Ces températures extrêmes correspondent à la température de l'air intra-oral après consommation de boissons ou d'aliments froids ou chauds. Les 4 premières heures nous avons effectué 30 mesures par heure, puis les 4 suivantes, 15 mesures par heure, puis à partir de la 8^{ème} heure, 2 mesures par heure. Chaque expérience a été répétée 3 fois ($n=3$).

Plusieurs types d'amalgames ont été étudiés. Les différentes compositions des amalgames étudiés sont réunies dans le tableau suivant (Tableau I).

Tableau I : Caractéristiques des amalgames utilisés

Amalgames	Types	Composition des amalgames	
		Alliage %	Mercure %
A	Non γ_2	50	50
B	Non γ_2	52,17	47,13
C	Non γ_2	57,14	42,86
D	Non γ_2	58	42
E	Non γ_2	51,17	49,83

II) RESULTATS

II.1 Etude de l'influence de la température sur la cinétique de libération de Hg

Les amalgames utilisés se présentent sous forme de capsules prédosées ($2,5131 \pm 0,279$ g) scellées aux ultrasons comprenant la poudre et un coussinet de mercure autoactivable par vibration. Les amalgames utilisés sont constitués de 42 à 50 % de mercure, de 51 à 69 % d'argent, 17,9 à 29 % d'étain et de 11,8 à 20 % de cuivre. Au moment de la vibration à l'aide d'un amalgamateur (temps variable de 5 à 8 secondes), la capsule est activée en mettant en contact alliage et mercure.

La cinétique de libération du mercure est similaire pour les différents amalgames. Le temps $t=0$ correspond au moment du lancement de la trituration et les mesures de la quantité de mercure (Hg^0) libérée par l'amalgame commencent après une minute. Les résultats obtenus sont reproductibles. La quantité de Hg est corrélée à la température qui traverse la cellule.

La Figure 2 illustre un exemple (amalgame D) à 20°C , 37°C et 53°C .

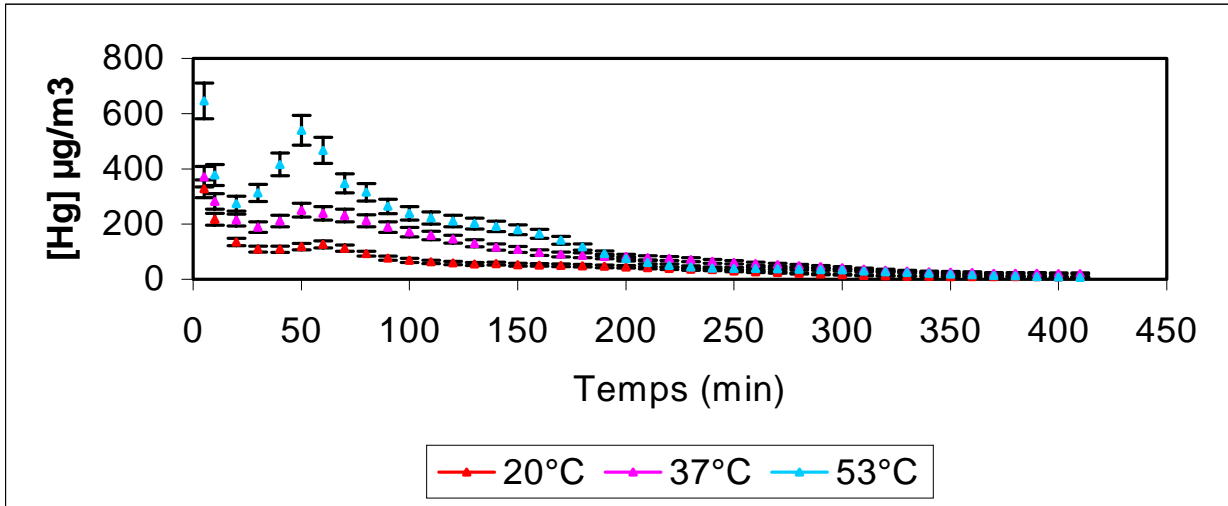


Figure 2 : Libération des vapeurs de Hg par l'amalgame D à 20°C, 37° et 53°C (n=3)

II.2 Etude de l'influence du taux initial de Hg contenu dans les différents amalgames

Pour la suite, nous avons exprimé la quantité de mercure libérée en µg par cm² d'amalgame en déterminant la formule suivante :

$$\chi = (v / S) \int_0^t [Hg] dt$$

avec : v (débit) : en L/s ou m³/s
 [Hg] : en ng/L ou µg/m³
 t : le temps en s
 S : surface de l'amalgame en cm²
 χ : en ng/cm² ou µg/cm²

La quantité $\int_0^t [Hg] dt$ représente l'air sous la courbe obtenue lors de l'étude de la cinétique de libération du mercure, entre le temps t=0 et le temps t.

On obtient les résultats suivants (Figure 3) à 37°C pour les différents amalgames étudiés :

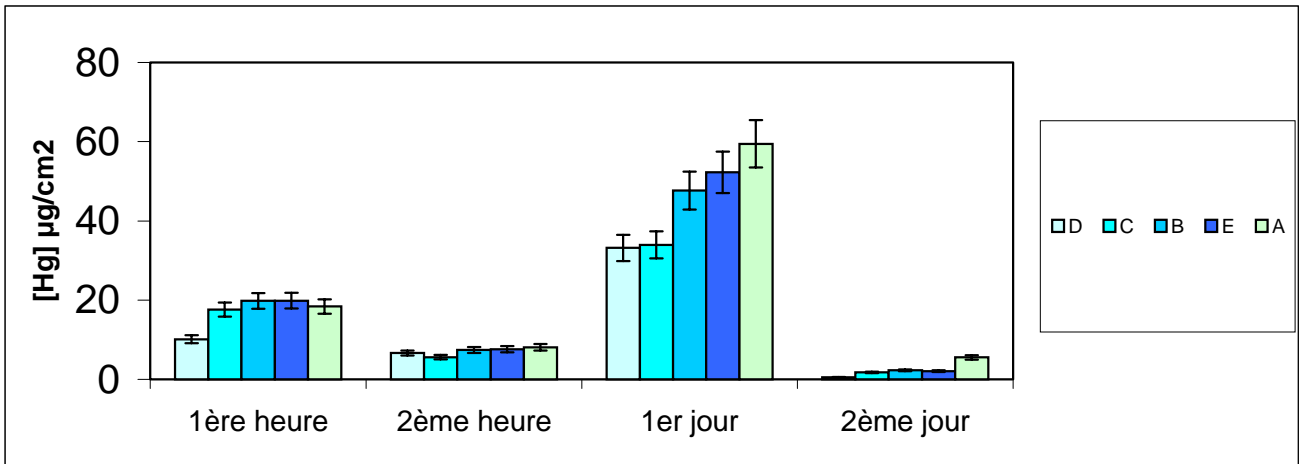


Figure 3 : Quantité moyenne de mercure libérée à 37°C en µg/cm² par les différents amalgames (n=3)

On constate que la quantité de mercure libérée est élevée la première heure mais qu'elle diminue dès la deuxième heure. Par exemple, l'amalgame D libère $19,87 \pm 1,41 \mu\text{g de Hg/cm}^2$ d'amalgame la première heure mais dès la deuxième heure il ne libère plus que $7,60 \pm 0,94 \mu\text{g de Hg/cm}^2$.

Les résultats montrent que la quantité de mercure libérée est élevée le premier jour puis qu'elle diminue considérablement. Par exemple, pour l'amalgame D la quantité libérée le premier jour est de $33,18 \pm 1,31 \mu\text{g de Hg/cm}^2$ et le deuxième jour elle n'est plus que de $0,52 \pm 0,17 \mu\text{g de Hg/cm}^2$.

On constate également que la quantité de mercure libérée dépend du taux initial de Hg contenu dans les différents amalgames. Par exemple, l'amalgame D avec 42% de Hg libère $33,18 \pm 1,31 \mu\text{g de Hg/cm}^2$ le premier jour alors que l'amalgame A avec 50% de Hg libère $59,46 \pm 6,98 \mu\text{g de Hg/cm}^2$.

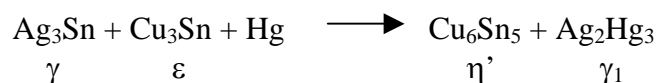
On remarque également que la quantité libérée dépend probablement aussi de la composition ou de la morphologie de la poudre. En effet, d'après les résultats obtenus au bout d'une heure on constate que la quantité de Hg libérée par A (50% de Hg) qui contient le plus de Hg est inférieure à celle de D (49,83% de Hg) et de B (47,13% de Hg).

III) DISCUSSION

Nos résultats montrent que l'émission du mercure est influencée par la température ; ceci peut s'expliquer par l'augmentation de la volatilité du Hg avec la température. Par exemple, la quantité de Hg libérée après 24 heures est de $15,55 \pm 0,82 \mu\text{g de Hg/cm}^2$ à 20°C , de $33,18 \pm 1,31 \mu\text{g de Hg/cm}^2$ à 37°C et de $39,87 \pm 3,22 \mu\text{g de Hg/cm}^2$ à 53°C .

Nous avons remarqué que la quantité de Hg libérée dépend du taux initial de Hg dans les amalgames mais aussi de la composition de la poudre.

Les amalgames libèrent le plus de mercure pendant la première heure ($17,16 \pm 3,62 \mu\text{g de Hg/cm}^2$ à 37°C), ce qui correspond à la prise de l'amalgame, puis cette quantité diminue considérablement dès la deuxième heure ($7,08 \pm 0,88 \mu\text{g de Hg/cm}^2$ à 37°C). La diminution de la quantité libérée correspond à la formation de différentes phases, plus particulièrement à la formation de la phase γ_1 (Mahler *et al*, 1994; Marek, 1997) lors de la prise de l'amalgame selon la réaction suivante :



Ferracane et al (Ferracane *et al*, 1992) ont étudié quatre amalgames différents à trois températures, durant les quatre premières heures, et ont constaté qu'à 37°C les amalgames émettent environ $2,5 \text{ pg/mm}^2/\text{s}$ après 60 minutes. Pour comparaison, nos résultats pour cette température après 60 minutes sont de $2 \pm 0,88 \text{ pg/mm}^2/\text{s}$ (1,85-2,09). Okabe et al (Okabe *et al*, 1994) ont trouvé une concentration variant de 0 à $3 \text{ pg/mm}^2/\text{s}$ après 60 minutes de préparation de l'amalgame à une température de $36,5^\circ\text{C}$.

A partir de la libération du Hg dans l'air, nous pouvons donc évaluer la quantité de mercure absorbé.

Si nous supposons que l'inhalation de l'air se fait uniquement par la bouche, alors 50% du Hg intra-oral est transporté dans les poumons par inspiration et l'autre moitié est rejetée dans l'air par expiration. D'autre part, il a été supposé que 80% des vapeurs de Hg transportées vers les poumons sont absorbées (Halbach, 1995). Ainsi, la quantité maximale de Hg libérée par les amalgames pouvant être absorbée par les poumons est de 40% ($0,50 \times 0,80$). La quantité de Hg libérée par les amalgames au 2^{ème} jour à une température de 37°C était d'environ 3,7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'amalgame. La dose maximale journalière de Hg absorbée est donc de l'ordre de 1,5 $\mu\text{g}/\text{jour}$.

Dans le cas où 40% uniquement des inhalations se font par la bouche, cette dose journalière est de 0,5 $\mu\text{g}/\text{jour}$. Halbach (Halbach, 1995) a estimé cette valeur à 3,4 $\mu\text{g}/\text{jour}$.

Nous constatons donc que la quantité de mercure absorbée dépend de la façon dont respire la personne, ce qui rend difficile une évaluation systématique.

Snapp et al. (Snapp *et al*, 1989) ont déterminé la dose journalière absorbée à partir des amalgames en comparant la concentration sanguine du Hg avant et après le retrait des amalgames. Cette dose pour 14 surfaces d'amalgames était de 1,3 $\mu\text{g}/\text{jour}$. Olsson et al (Olsson *et al*, 1992) ont estimé cette valeur à 1,3 $\mu\text{g}/\text{jour}$ (0,3-2,2 $\mu\text{g}/\text{jour}$) après les mesures de l'air intra-oral.

Nous avons comparé nos résultats avec des études *in vivo* réalisées par d'autres équipes (Figure 4). Ces valeurs sont comprises entre 1 et 10 $\mu\text{g}/\text{jour}$ et le nombre d'amalgames des sujets étudiés est de 10 à 20 amalgames. Nos valeurs sont exprimées en $\mu\text{g}/\text{jour}/\text{cm}^2$. 1 cm^2 est équivalent à environ 2 ou 3 amalgames. Nos résultats sont donc en accord avec d'autres valeurs.

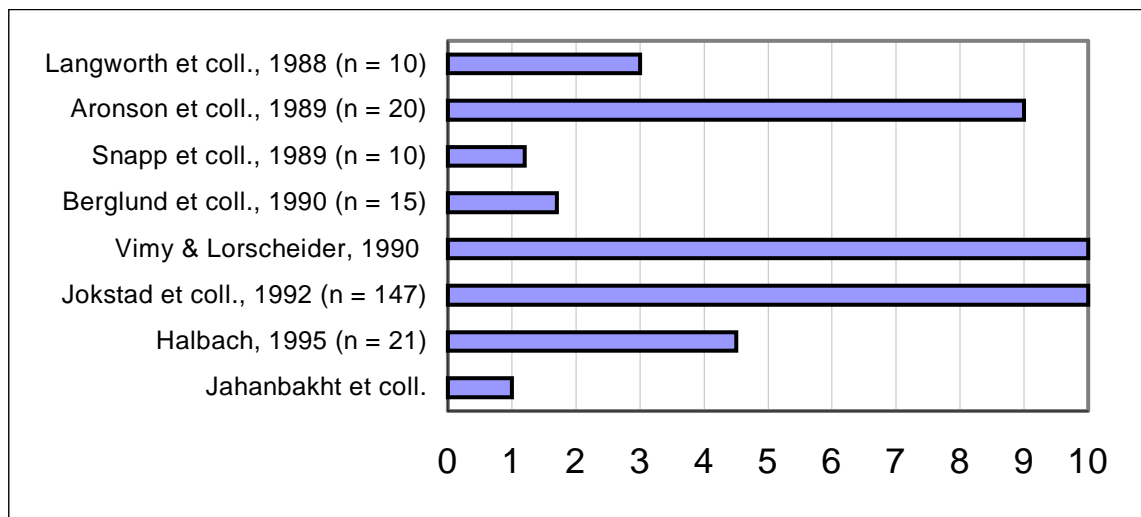


Figure 4 : Comparaison

BREVETS

1- Appareil de dosage du mercure contenu dans un échantillon d'air, ou d'eau, ou autre.
Brevet (1991) 25.07.1991, n° publication : 2.679.656(A1), n° d'enregistrement : 91 09630, Int Cl. : G01 N21/33, 33/18 ; BOPI 93/04 G01 N, 79.

2- Appareil de dosage du mercure dans l'air.
Brevet (1992) 26.05.1992, n° publication : 2.691.804(A1), n° d'enregistrement : 92 06595, Int Cl. : G01 N21/33, 21/05 ; G01 D BOPI 93/40, 18.

3- Appareil analyseur de mercure
Brevet (1998) 2.01.1998, n° publication : C65 B1 EUR

BIBLIOGRAPHIE

Arenholt-Bindslev D., 1998, Environmental aspects of dental filling materials, *Eur J Oral Sci*, 106, 713-720

Berglund A., & Molin M., 1997, Mercury levels in plasma and urine after removal of all amalgam restorations : The effect of using rubber dams, *Dent Mater*, 13, 297-304

Berdouses E., Vaidyanathan T.K., Dastane A., Weisel C., Houpt M., & Shey Z. J., 1995, Mercury release from dental amalgams : an *in vitro* study under controlled chewing and brushing in an artificial mouth, *Dent Res*, 74 (5), 1185-1193

Bratel J., Haraldson T., Meding B., Yontchev E., Öhman S-C., & Ottoson J-O., 1997, Potential side effects of dental amalgam restorations, *Eur J Oral Sci*, 105, 234-243

Conso F., Descotes J., Hartmann P., Panighi M., & Rivière P., 1998, Commission d'enquête sur l'amalgame, Conseil National de l'Ordre des chirurgiens-dentistes, 17 p

Ekstrand J., Björkman L., Edlund C., & Sandborgh-Englund G., 1998, Toxicological aspects on the release and systemic uptake of mercury from dental amalgam, *Eur J Oral Sci*, 106, 678-686,

Ferracane J.L., Hanawat T. & Okabe T., 1992 Effectiveness of Oxide Films in Reducing Mercury from Amalgams, *J Dent Res*, 71(5), 1151-1155.

Forsell M., Larsson B., Ljungqvist A., Carlmark B., & Johansson O., 1998, Mercury content in amalgam tattoos of human oral mucosa and its relation to local tissue reactions, *Eur J Oral Sci*, 106, 582-587

Haïkel Y., Livardjani F., Allemann C., Jaeger A., Lugnier A. & Meurman J.H., 1995, Effect of placing, removing and polishing of amalgam restoration on 24-h urinary mercury concentration, *J. Mat. Sci. Med.*, 6, 557-560

Halbach S., 1995, Combined Estimation of Mercury Species Released from Amalga, *J Dent Res*, 74(4), 1103-1109.

Halbach S., Kremers L., Willruth H., Mehl A., Welzl A., Wack F.X., Hickel R., & Greim H., 1997, Compartmental transfer of mercury released from amalgam, *Human & Exp Toxicol*, 16, 667-672

Jahanbakht S., Livardjani F., Flesch F., Haïkel Y., & Jaeger A., 1998a, Vapeur du mercure Emises par les Amalgames dentaires, 42^{ème} Congrès International de Médecine Légale et de Médecine Social de Langue Française, Lille, 9-11 septembre

Jahanbakht S., Livardjani F., A. Schlegel, Haïkel Y., Jaeger A., & Lugnier A., 1998b, In vitro study of mercury vapor release from dental amalgams, Congrès International de la Toxicologie ICT Paris 98, 5-9 Juillet paris.

Kingman A., Albertini T., & Brown L.J., 1998, Mercury concentrations in urine and whole blood associated with amalgam exposure in a US military population, *J Dent Res*, 77 (3), 461-471

Lorscheider F.L., Vimy M.J. & Summers A.O., 1995, Mercury exposure from silver tooth fillings : emerging evidence questions a traditional dental paradigm, *FASEB J.*, 9, 504-508

Lorscheider F.L., Vimy M.J., Summers A.O., & Zwiers H., 1995, The dental amalgam mercury controversy – inorganic mercury and the CNS ; genetic linkage of mercury and antibiotic resistances in intestinal bacteria, *Toxicology*, 97, 19-22

Mahler D.B., Adey J.D., & Fleming M.A., 1994, Hg emission from dental amalgam as related to the amount of Sn in the Ag-Hg (γ_1) phase, *J Dent Res*, 73 (10), 1663-1668

Marek M., 1997, Dissolution of mercury vapor in simulated oral environments, *Dent Mater*, 13, 312-315

Marek M., 1997, The effect of tin in the Ag-Hg phase of dental amalgam on dissolution of mercury, *Dent Mater*, 13, 353-359

Okabe T., Yamashita T., Nakajima H., Berglund A., Zhao L., Guo I., & Ferracane J.L., 1994, Reduced Mercury Vapor Release from Dental Amalgams prepared with Binary Hg-In Liquid Alloys, *J Dent Res*, 73(11), 1711-1716.

Sandborgh-Englund G., Elinder C.G., Langworth S., Schütz A., & Ekstrand J., 1998, Mercury in biological fluids after amalgam removal, *J Dent Res*, 77 (4), 615-624

Snapp K.R., Boyer D.B., Peterson L.C., & Svarne C.W., 1989, The contribution of dental amalgam to mercury in the blood, *J Dent Res*, 68, 780,785