研究ノート

食品中のニッケル含有量と1日の摂取量

石松 成子

九州女子大学家政学部

Nickel Contents in Various Japanese Foodstuffs and Estimation of Daily Intake

Shigeko ISHIMATSU

Faculty of Home Economics, Kyushu Women's University, Kitakyushu 807

Nippon Eiyō Shokuryō Gakkaishi (*J. Jpn. Soc. Nutr. Food Sci.*) 41, 227~233 (1988)

On the basis of the results of a dietary investigation carried out in the Kitakyushu district in 1985, the nickel content of food was measured for representative daily diets taken by 6 adult males and females over the course of 3 consecutive days. The food specimens were subjected to flameless atomic absorption analysis after wet-ashing with an H_2SO_4 and HNO_3 acid mixture and daily nickel intake was estimated from the analytical values. The nickel content of rice was $22 \pm 19 \mu\text{g}/100 \text{ g}$, showing differences among specimens. The nickel content was less than $10.0 \mu\text{g}/100 \text{ g}$ for the majority of foods, but higher amounts were detected in soybean, miso, soy, rice, spinach and cabbage. As a whole, vegetable foods showed higher nickel contents than animal foods. Nickel intake per day per capita was $280 \pm 90 \mu\text{g}$ for males and $190 \pm 40 \mu\text{g}$ for females. Rice, vegetable food other than rice, and animal food accounted for about 30, 65 and 5% of the daily nickel intake, respectively.

(Received August 31, 1987)

微量元素については、近年栄養学および中毒学的な面からもその重要性が注目されるようになり、日本人の日常食品中の含有量や摂取量の報告も多くみられるようになったが、まだ多くのデータの蓄積が必要と考えられる。これらの微量元素のうちニッケルは、産業の場や動物実験において発がん性や中毒学的観点から重視され、多くの報告が行われてきたが、反面、栄養学的には生体

にとっては必須元素であることも知られている¹⁾。

ニッケルは労働環境のみならず、大気・土壌・動植物に広く分布しているため日常生活においても経口および経気道性の侵入が考えられる。そこで著者らは経気道からの吸収蓄積についての知見を得る目的でラットを用いて、各種ニッケル化合物の吸入暴露実験を行い肺内沈着についての研究を行っている。本実験においては日常食事からの経口的なニッケル摂取量を知る目的でよく使用される食品中のニッケル含有量とこれらを用いて調理した料理中のニッケル量を測定し日本人の1日に摂取する量の推定を行った。

方 法

1. 試 料

1985年6月北九州市在住の40歳代男・女を対象に実際に喫食した3日間の食事内容を記録させる調査を実施した。この調査表に記入された食品摂取量から、調査者全員の摂取栄養素量を算出した。それにもとづき栄養素摂取量が「第三次改訂日本人栄養所要量」²⁾に示されている同年代の栄養所要量に近似した男3名、女3名計6名を選んだ。そして調査日3日間の料理を分析対象の日常食とした。選択した男・女対象者の食品群別摂取量は、1984年の国民栄養調査成績³⁾とほぼ類似の傾向を示した。対象者6名の3日間の料理数は、めし・みそ汁・香物などの重複料理を除くと全部で56種類であった。これらの料理に用いられた食品材料を同一市内で購入し、調査当日の使用量に従って料理を再現して分析試料とした。また料理に用いた食材料中のニッケル含有量を知るためおもな使用食品39種とさらに主食である精白米(以下米)を九州各県と山口県から71種収集して分析試料とした。

2. 標準試料

試料測定の正確さと精度確認のために NBS Rice Flour SRM 1568 を標準試料として用いた。

3. 試薬および装置

ニッケル測定用標準液は、和光純薬工業(株)製原子吸光分析用標準液を使用した。その他湿式灰化処理などに用いた硫酸・硝酸はすべて和光純薬工業(株)製精密分析用を用いた。試料の混合粉碎には家庭用ミキサー、ナショナル MX-720G 型を使用し、水分測定には kett 赤外線水分計 Type F-1 を用いた。ニッケルの測定には、日立ゼーマン原子吸光度計 170-70 型を用いてフ列ムレス法によった。

4. 分析方法

試料の分解・分析方法は衛生試験法⁴⁾に準じた。すな

わち調理済みの料理は、各料理別に重量測定を行い、ミキサーで均一化して得られた各試料は 10 g を、別に米および各食品はその種類に応じて 5~10 g をそれぞれ同一試料から 3 検体キエルダールフラスコに入れ、硫酸 0.5 ml、硝酸 30 ml で湿式灰化した。完全に灰化するまで適時硝酸を追加したが、試料により分解に要する時間や硝酸の追加量は異なり一定量にはならなかった。灰化試料は 0.1 N 硝酸で一定量として検液とし、各試料とも 3 検体の測定値の平均を試料の実測値とした。また試料の粉碎に用いたミキサーのステンレス刃の酸によるニッケル溶出の有無を検するため、料理に用いた醸造酢(穀物酢) 200 ml を同ミキサーで 10 分間攪拌後その酢液中のニッケル量を測定した。測定は検量線法により検量線にはニッケル濃度 0~0.05 $\mu\text{g/ml}$ 溶液を調整した。

結 果

1. 添加回収試験

測定に用いる料理の混合粉碎試料 10 g にニッケル 0.1, 0.3, 0.5 μg を加えて硫酸 0.5 ml、硝酸 30 ml を用いて灰化した。なお硝酸は適時追加して試料が完全に灰化後、灰化試料を 0.1 N 硝酸で 10 ml とし測定試料とした。測定結果より回収率を求めると 0.1 μg 80.0%, 0.3 μg 79.4%, 0.5 μg 80.3% であった。これは試料の処理に用いる灰化法の影響と思われる。つぎに 0.1, 0.3, 0.5 μg のニッケル標準液を同一条件で灰化しその回収率を求めた結果は 0.1 μg 80.0%, 0.3 μg 79.6%, 0.5 μg 80.8% で前述の試料に同量のニッケル標準液を加えた結果とほぼ同一であった。したがって試料測定時には同一条件で灰化した標準液を用いた。なおこの条件で標準試料 NBS Rice Flour SRM 1568 を試料と同様に灰化して検討した。その結果は保証値の範囲内にあり、同一試料 10 回くり返し測定の結果は変動係数 10% 以内であった。

2. 食品中のニッケル含有量

1) 精白米のニッケル含有量 日常使用する食品のうち、日本人の摂取エネルギーの約 50~60% を占める⁹⁾ 米のニッケル含有量を測定した。収集した県名と試料数は、福岡 20, 佐賀 2, 長崎 6, 熊本 4, 大分 5, 宮崎 11, 鹿児島 4, 沖縄 3, 山口 16 の合計 71 種である。測定結果は Fig. 1 に示すとおりで米中ニッケルの分布は対数正規分布を示した。したがって、米 100 g 中のニッケル量は算術平均 21.6 μg 、幾何平均 14.2 μg であった。

2) 食品中のニッケル含有量 試料調整時に使用したミキサーのステンレス製刃からの酸によるニッケルの溶出の状態を検するため、料理に用いた醸造酢(穀物酢) 200 ml を入れ 10 分間攪拌しその酢液中に溶出するニ

Fig. 1. Nickel distribution in well-milled rice.

ケル量を測定したが、ニッケルの溶出は認められなかった。また試料調整時の平均攪拌時間は 5~6 分であることや、酢を用いる料理の少なかったことなどから、ステンレス刃からのニッケルの混入は考慮しなかった。

料理の原材料として用いた食品 39 品目の生鮮食品中のニッケル含有量 ($\mu\text{g}/100\text{g}$) を Table 1 に示す。分析した食品中ニッケル含有量の多いものは、生大豆 263 で、また大豆を加工した調味料であるみそでは 214, しょうゆでは 153 であった。これらの食品も同一試料を 3 検体分解し測定に用いたが測定値にばらつきがみられた。これは完全に分解するまでに長時間を要した酸の追加量が多く検体間で灰化時の条件が異なることにより変動が生じたものと思われる。このように分解しにくい食品は灰化時に注意し、また検体数を増すなどの配慮が必要であると思われた。その他の食品では、米 20, ほうれん草 16, キャベツ 14, あさり貝 25, かまぼこ 16, ぎょうざ 15 などであった。緑茶葉に多いという報告もあるが¹⁰⁾ 浸出液中の濃度は 0.05 ppm と比較的低値であった。

3. 日常料理中のニッケル含有量

分析した料理の一品分量当たりのニッケル含有量を、男 Table 2, 女 Table 3 に示す。ニッケル含有量の多い料理は、男 (No 3) 夕食の「じゃがいもの煮物」59 μg 、同じく「野菜と肉の煮物」58 μg 、つづいて男 (No 1) 夕食の「いかの照り焼き」58 μg であった。毎朝食に用いる「みそ汁」には 50 μg 、米飯は 20~22 μg であった。比較的ニッケル含有量の少ない料理は、肉・魚の揚げ物や牛乳を用いた料理、みそ汁以外の汁物や果物であった。

Table 1. Nickel content in foodstuffs.*

($\mu\text{g}/100\text{ g}$)

Food groups	Foodstuffs	Mean	SD**
Cereals	Well-milled rice	19.7	1.2
	Bread	5.2	0.7
	"Udon" (raw)	2.3	0.2
Potatoes	Sweet potato	7.9	2.8
	White potato	9.0	3.0
Sugars	Sugar	1.1	0.5
Confectioneries	"Yokan"	5.8	0.3
Oil and fats	Vegetable oil	4.3	0.6
Pulses	Soybean (whole dry)	235.5	5.4
	Red kidney bean (cooked)	63.0	1.8
	"Tofu" (soybean curd)	14.6	5.2
	"Miso"	214.0	59.7
Fruits	Tangerine	7.7	0.2
	Apple	4.7	1.2
Vegetables	Carrot	4.0	0.7
	Spinach	16.3	5.4
	Cabbage	13.8	0.4
	Edible Burdock	8.7	2.4
	Japanese white radish	5.0	0.6
	Onion	6.0	1.5
Fungi	"Shiitake" (raw)	3.9	1.6
Seaweed	"Wakame" (raw)	6.3	2.3
Fish and shellfish	Flatfish	3.5	1.3
	Mackerel	4.3	2.6
	"Kamaboko" (fish paste)	16.1	3.0
	Short-necked clam	24.7	5.3
Meats	Beef	5.6	2.2
	Pork	4.7	2.0
	Chicken	4.7	2.5
	Chicken liver	4.3	0.9
Eggs	Chicken egg	3.7	1.3
Milk and products	Milk (fresh)	1.4	0.2
	Cheese	2.2	0.8
Prepared foods	"Chinese dumplings"	14.9	2.5
Seasonings and beverages	Soysauce	153.0	51.0
	Soda-pop	1.4	0.5
	"Sake" (first class)	1.6	0.1
	Green tea (infusion)	5.2	0.9
	Black tea (infusion)	2.7	0.3

* The contents are represented as the amounts (μg) in 100 g of fresh foodstuffs.** Mean $\pm$ S.D. for 3 samples.

Table 2. Nickel intake from meals of individual subjects (Male).

Male				
Subject No.		Meals	Intake	
			Food (g)	Ni (μ g)
1	Breakfast	Cooked rice	230	19.7
		"Miso" soup	200	40.9
		Dried laver	1	0.1
		Fried peppered vegetables	55	8.2
		Fried egg with vegetables	75	4.5
		Fruit (apple)	80	4.7
	Lunch	Bread	150	7.8
		Corn soup with parsley	200	4.1
		Spaghetti salad	110	6.8
		Hamburger steak	120	6.4
	Supper	Cooked rice	250	21.7
		Clear soup	170	2.5
		Fried squid with soysauce	190	57.9
		"Natto" (fermented beans)	50	6.8
		Boiled vegetables with soysauce and sugar	190	37.8
		Fruit (tangerine)	75	4.7
2	Breakfast	Cooked rice	230	19.7
		"Miso" soup	200	50.6
		Dried laver	1	0.1
		"Natto" (fermented beans)	40	7.0
		Fried egg with ham	110	5.8
		Fried fish	80	8.0
	Lunch	"Chowmein"	260	32.4
		Chinese soup	190	1.6
		Strawberries and milk	125	6.6
	Supper	Cooked rice	250	21.7
		Boiled vegetables	280	31.1
		Boiled "Shiitake" and "Konnyaku"	100	23.7
		Roast taropatoes	65	5.6
3	Breakfast	Cooked rice	230	19.7
		"Miso" soup	240	50.4
		Cooked burdock with soysauce	135	32.1
		Vegetables salad	100	28.6
	Lunch	Cooked rice	230	19.7
		Boiled bean curd	220	21.7
		Croquettes	180	54.6
		Fruit (melon)	160	12.4
	Supper	Cooked rice	250	21.7
		Clear soup with egg	200	6.7
		Boiled vegetables and meat	360	58.1
		Cooked potatoes with soysauce	240	59.4

Table 3. Nickel intake from meals of individual subjects (Female).

Female				
Subject No.	Meals		Intake	
			Food (g)	Ni (μ g)
1	Breakfast	Toast	100	5.2
		Milk	140	2.0
		Vegetable Salad	85	7.8
		Fruit (peaches)	120	9.0
	Lunch	"Oyakodomburi" (bowl of rice with chicken and egg)	250	49.1
		Vegetables soaked in vinegar	55	2.8
		Cooked red kidney beans	30	9.7
		Japanese pickles ("tsukemono") with soysauce	20	4.8
	Supper	Cooked rice	250	21.7
		Clear soup with soybean curd	160	14.0
		Fried fish	70	2.3
		Boiled potatoes	50	4.5
		Fried peppered vegetables	50	3.2
		Vegetables and seaweed soaked in vinegar	35	12.6
2	Breakfast	Cooked rice	230	19.7
		"Miso" soup	180	49.6
		Fried egg (sunny side up)	50	1.8
		Japanese pickles ("tsukemono") with soysauce	20	4.8
		Banana juice	190	5.1
	Lunch	"Chowmein"	255	31.5
		Soup with chicken and spinach	140	4.6
		Vegetables and seaweed soaked in vinegar	50	3.1
		Fruit (strawberries)	80	6.2
	Supper	Cooked rice	270	22.7
		Clear soup with chicken	180	12.2
		Fried fish and vegetables	220	31.2
		Vegetables soaked in soysauce	50	8.2
3	Breakfast	Cooked rice	230	19.7
		"Miso" soup	170	48.8
		Vegetable salad	80	6.5
		"Tamagoyaki" (baked scrambled eggs)	55	1.8
		Fruit (apple)	120	7.4
	Lunch	Cooked rice	230	19.7
		Clear soup	140	9.6
		Broiled chicken with soysauce and sugar	230	33.5
		Spinach soaked in soysauce	45	11.1
		Milk	140	2.0
	Supper	Cooked rice	250	21.7
		Vegetables and "Shiitake" soup	150	8.9
		Boiled fish with soysauce and sugar	80	11.4
		Vegetables soaked in vinegar	80	20.4

Table 4. Daily nickel intake of the subject.

		Male			Female		
		Intake of food (g)	Moisture (%)	Intake of Ni (μ g)	Intake of food (g)	Moisture (%)	Intake of Ni (μ g)
1	Breakfast	641	77	86	445	65	24
	Lunch	580	74	25	355	74	66
	Supper	925	72	131	615	73	58
	Total	2,146		242	1,415		148
2	Breakfast	661	63	91	670	73	81
	Lunch	575	70	41	525	68	45
	Supper	695	78	82	720	76	74
	Total	1,931		214	1,915		200
3	Breakfast	705	74	131	655	78	84
	Lunch	790	73	108	785	80	76
	Supper	1,050	76	146	560	79	62
	Total	2,545		385	2,000		222
Daily intake		2,207		280	1,777		190
S.D.		312		92	316		38

4. ニッケル 1 日摂取量の推定

男女おのおの 3 名の毎食の料理を分析して得た数値をもとに、朝・昼・夕の 3 食別のニッケル摂取量および 1 日の摂取量を求めた結果を Table 4 に示す。

1 日の食事摂取量は湿重量で、男 $2,207 \pm 312$ g、女 $1,777 \pm 316$ g で水分含量は 63~80% であった。ニッケル摂取量は朝・昼・夕の 3 食間に差がみられたがこれは食品材料の相違や摂取量の違いによると思われる。

食事からの 1 人 1 日ニッケル摂取量は、男 280 ± 92 μ g、女 190 ± 38 μ g で最高 385 μ g、最低 148 μ g であった。また食品の摂取量に基づき各食品のニッケル 1 日摂取量の寄与率を求めると、主食である米から約 30%、米以外の植物性食品から約 65%、動物性食品から約 5% で植物性食品からの比率が高かった。

考 察

各種食品中のニッケル含有量については最近いくつかの報告が見られるが⁵⁾⁻⁹⁾ 1 人 1 日当たりのニッケル摂取量に関する報告はさほど多くない⁵⁾¹⁰⁾¹¹⁾。本実験に用いた食品中ニッケル含有量の高かったものは、各食品 100 g 当たり、大豆 236 μ g、みそ 214 μ g、しょうゆ 153 μ g であった。Ellen⁶⁾ はオランダのうずら豆 330~610 μ g、グリーンピース 220~350 μ g で豆類にニッケル含量の多いことを報告しており、Flyvholm¹⁰⁾ もデンマークの大豆で同様の結果を得ている。寺岡ら⁵⁾ は日本産（岡山）

の大豆で 220 μ g、納豆は 170 μ g と報告しているがみそやしょうゆの報告はない。日本人のニッケル 1 日摂取量を推定する場合、調味料としてのみそやしょうゆは必需食品であることからこれら調味料の使用量については無視することはできないと思われる。

この他ニッケル含有量の多い食品として、カカオ豆、チョコレート、アーモンド、ひまわりの種実などが報告されている⁷⁾⁹⁾。

九州各県と山口県から収集した 71 種の米中のニッケル含有量は、100 g 当たり算術平均で 22 μ g、幾何平均 14 μ g で収集する場所により差がみられたが、これは土壌で生育する植物のニッケル含有量は生育場所や土質によって異なるものと思われる¹²⁾¹³⁾。寺岡ら⁵⁾は精白米 16 μ g、玄米 21 μ g という値を報告している。動物性食品は一般に植物性食品に比較して貝類と魚加工品を除いて含有量は低値であったが、類似の結果は Flyvholm¹⁰⁾ によっても報告されている。日常供される料理中のニッケル含有量は野菜やいもをしょうゆで煮こんだ料理、みそ汁に多いがこれは野菜の量と大豆を用いた調味料の使用の有無に関係があることが推察される。

調理器具として用いられるステンレス製品からの混入については、Ellen⁶⁾ はステンレス製のコーヒー沸し器で入れたものは、プラスチック製やガラス製に比べてニッケル含有量が高いと報告している。また Flyvholm¹⁰⁾ もステンレス製の調理器具では食品の pH や接触する時

間に影響するとのべている。本実験では混合粉碎の時間も短時間であり酸度も低いため器具の影響は考慮しなかったが、ステンレス製調理器具の普及にともなって今後は留意しなければならない場合もあると思われる。

ニッケルの1日摂取量は、男・女6名3日間のうち最低摂取量の日は150 μg 最高は390 μg であり、成人男女平均で235 μg であった。このような摂取量の変動は料理の内容や使用食品の相違によるものと思われる。既報例としてはデンマーク人の推定量は150 μg ¹⁰⁾ わが国では岡山近郊の各種食品中のニッケル分析値からの計算値で190 μg ⁹⁾ また札幌、京都、水戸で収集した陰膳法による食事分析より得られた220 μg ¹¹⁾ があり、試料間の差や地域差もみられたと報告されている。著者の九州各県と山口県の米中ニッケル含有量の分析結果でも地域による差が認められたが、この差については米の生育土壌によるものか環境汚染も一因として考慮する必要があるかなどについては調査を要する。今後地域別または経時的に調査してデータの蓄積により正確な摂取量が把握できるようになることが望まれる。

要 約

1985年北九州地区の食事調査の結果から成人男女6名の3日間の日常食を分析試料としてニッケル含有量を測定した。また料理の原材料となった食品39品目とさらに米は九州各県・山口県各地から71種収集して測定した。この分析値から1日のニッケル摂取量を推定した。得られた結果はつぎのとおりである。

1) 主食である米中のニッケル含有量の分布は対数正規分布を示し、算術平均22 $\mu\text{g}/100\text{g}$ 、幾何平均14 $\mu\text{g}/100\text{g}$ で試料間に差がみられた。

2) 大多数の食品中のニッケル含有量は10.0 $\mu\text{g}/100\text{g}$ 以下であったが、ある種の食品たとえば大豆・しょうゆ・米・ほうれん草・キャベツはニッケル含有量が高かった。全体的に植物性食品が動物性食品よりニッケルの含有が高値であった。

3) 1人1日当たりのニッケル摂取量は、男280 $\pm$ 90

μg 、女190 $\pm$ 40 μg であった。

4) 1日に摂取するニッケル量のうち、主食である米からの摂取が30%、米以外の植物性食品から65%、動物性食品から5%の割合であった。

本研究を遂行するにあたりご指導いただき、また本稿をご校閲くださいました産業医科大学衛生学教室 児玉泰教授、また種々ご教示くださいました同教室 松野康二講師に深く感謝いたします。

文 献

- 1) 長橋 捷, 和田 攻訳: 環境汚染物質の生体への影響3 ニッケル, 77 (1977), 東京化学同人 (東京)
- 2) 厚生省保健医療局健康増進栄養課: 第三次改訂日本人の栄養所要量, 8 (1984), 第一出版 (東京)
- 3) 厚生省保健医療局健康増進栄養課: 昭和61年度版国民栄養の現状, 33 (1986), 第一出版 (東京)
- 4) 日本薬学会: 衛生試験法注解, 290 (1980), 金原出版 (東京)
- 5) 寺岡久之, 森井ふじ, 小林 純: 栄養誌, 34, 221 (1981)
- 6) Ellen, G., Van den Bosch-Tibbesma, G. and Douma, F.F.: *Z. Lebensm. Unters. Forsch.*, 166, 145 (1978)
- 7) Andersen, A. and Hansen, H.N.: *Z. Lebensm. Unters. Forsch.*, 179, 399 (1984)
- 8) Ocker, H.D., Brüggemann, J., Bergthaller, W. and Putz, B.: *Z. Lebensm. Unters. Forsch.*, 179, 322 (1984)
- 9) Knezevic, G.: *Dtsch. Lebensm. Rundsch.*, 81, 362 (1985)
- 10) Flyvholm, M.A., Nielsen, D. and Andersen, A.: *Z. Lebensm. Unters. Forsch.*, 179, 427 (1984)
- 11) 白石久二雄, 河村日佐男, 大内昌子, 田中義一郎: 栄養誌, 39, 209 (1986)
- 12) Furr, A.K., Parkinson, T.F., Elfving, D.C., Bache, C.A., Gutenmann, W.H., Doss, G.J. and Lisk, D.J.: *J. Agric. Food Chem.*, 29, 156 (1981)
- 13) Aung, L.H., Hubbard, J.B. and Flick, G.J.: *J. Agric. Food Chem.*, 31, 1259 (1983)

(1987年8月31日受理)