

日本人の食事からのミネラル摂取量

—ICP-MSによる実測値と計算値の比較—

越智 隆子, 江口 真澄, 松田 綾子, 渡辺 千春, 張 作文¹⁾,
文 燦 錫¹⁾, 渡辺 孝男²⁾, 池田 正之³⁾, 新保慎一郎

Dietary mineral elements intake of Japanese population: A comparison of the food composition table-based estimates with values obtained by inductively coupled plasma mass spectrometry

Noriko Ochi, Masumi Eguchi, Ayako Matsuda, Chiharu Watanabe,
Zuo-Wen Zhang, Chan-Seok Moon, Takao Watanabe, Masayuki Ikeda and
Shin-ichiro Shimbo

I. はじめに

食品成分中に含まれるミネラルは、三大栄養素に比べその含量はわずかではあるが、生体にとって重要な栄養素であり、その過不足によって身体の生理・代謝に大きな影響を与えることが知られている。我々は日本各地で陰膳食物収集を行い、ミネラル摂取量について報告してきた¹⁻⁷⁾。今回は、四訂日本食品成分表（四訂成分表）⁸⁾を用いて献立表から計算した値と、誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）による食物試料からの実測値との比較を行ったので報告する。

II. 対象及び方法

1. 調査対象

陰膳方式食物収集を行った北海道から沖縄までの7都道府県9地区、20歳代から70歳代までの女性219名を調査対象とした（表1）。

2. 調査方法

1) 陰膳方式食物収集⁹⁾

調査対象各個人が1日（24時間）に摂取したのと全く同じ複製（陰膳）を作ってもらい、その際間食、

ジュース、お茶、飲料水なども全て収集した。食事は普通の食事摂取状態で採取して、正月、誕生日、結婚式などの社会的行事による特別な食事は除外した。

食事採取のための容器は予め十分に洗浄し、酸処理、再蒸留水洗浄を行い、収集する食物成分には全く影響の無いことを確認し使用した。朝食、昼食、夕食、間食、飲料水などを、それぞれ主食、副食、汁物などに分別収集した。

なお、被検者には予め配布しておいた調査用紙に献立及び材料名を記入してもらい、陰膳持参時に記入洩れやその地区特有の食事、食品について補足記入を行った。また、それぞれの調理に使用された調味料の量については、調理方法によって推定値で計算した。別に米、醤油、味噌、飲料水なども収集して食品成分分析及び評価補正の資料とした。

収集した食物は、記入された献立を参照しながら一つ一つの食品ごとにできるだけ丁寧に細かく分別し重量を測定記録した。収集した食物・飲水は一括しすべてを磨砕し、総重量を測定して一部を食品成分分析用として冷凍保存した。

2) 栄養価算定

四訂成分表⁸⁾に基づいたコンピュータープログラムを使用し、食品番号と使用量からミネラル摂取量を算出した。この際、標準成分表に記載の無い食品は市販食品成分表¹⁰⁾などを参考にし、地域特有の

京都女子大学家政学部食物栄養学科

1) 京都大学医学部公衆衛生

2) 宮城教育大学

3) 京都工場保健会

表1 調査対象

都道府県名	地区名	20歳代	30歳代	40歳代	50歳代	60歳代	70歳代	合計
北海道	大樹町		4	5	8	2		19
福島県	喜多方市	1	3	3	8	12	1	28
石川県	金沢市	1	5	10	8			24
群馬県	尾島町		4	16	5			25
愛知県	津具村	1	2	4	12	2	1	21
鹿児島県	奄美大島		10	4	7	2		23
鹿児島県	始良町		1	3	10	11	3	28
鹿児島県	吹上町			4	9	14	1	28
沖縄県	石垣市		4	9	4	4	2	23
9地区		3	32	58	70	48	8	219

女性のみ
表中の数値は人数

表2 分析条件

		ナトリウム	カリウム	リン	カルシウム
分析法	質量範囲 (m/s)	5-210			
	総測定時間 (s)	20			
	予備噴霧時間 (s)	20			
	洗浄時間 (s)	30			
	繰り返し回数 (回)	3			
定量情報	定量法	検量線法 (内標準添加法)			
	ブランク減算	しない			
イオン導入条件	RF パワー (KW)	1	1	1.5	1.5
	ネブライザガス流量 (l/min)	0.95	0.95	0.80	0.80
	プラズマガス流量 (l/min)	16	16	16	16
	補助ガス流量 (l/min)	1	1	1	1
	トーチ位置深さ (mm)	9	9	9	9
イオン別分析条件	質量数	23	39	31	44
	感度	低	低	低	低
	積分時間 (s)	2	2	2	2
	内標準イオン名	Co (59)	Co (59)	Co (59)	Co (59)
検量線条件	次数 (次)	1	1	1	1
	濃度単位	ppm	ppm	ppm	ppm
	回収率	104.4%	97.2%	103.2%	94.3%
パラメーター	試薬ブランク値	0 ppm	0 ppm	0 ppm	0 ppm

表3 検量線標準溶液

	ナトリウム	カリウム	リン	カルシウム	コバルト
標準溶液 1	0	0	0	0	5
標準溶液 2	1	0.5	0.5	0.3	5
標準溶液 3	2	1	1	0.6	5

表中の数値は ppm, ただしコバルトは ppb

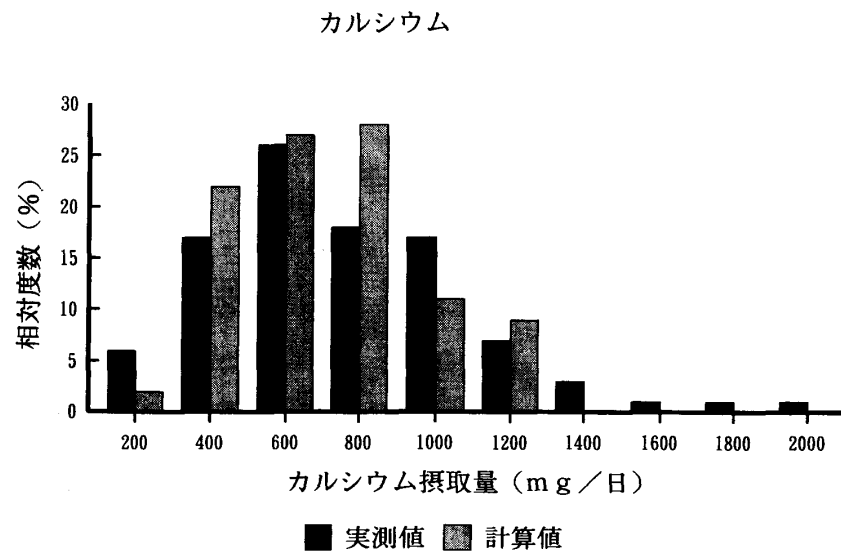
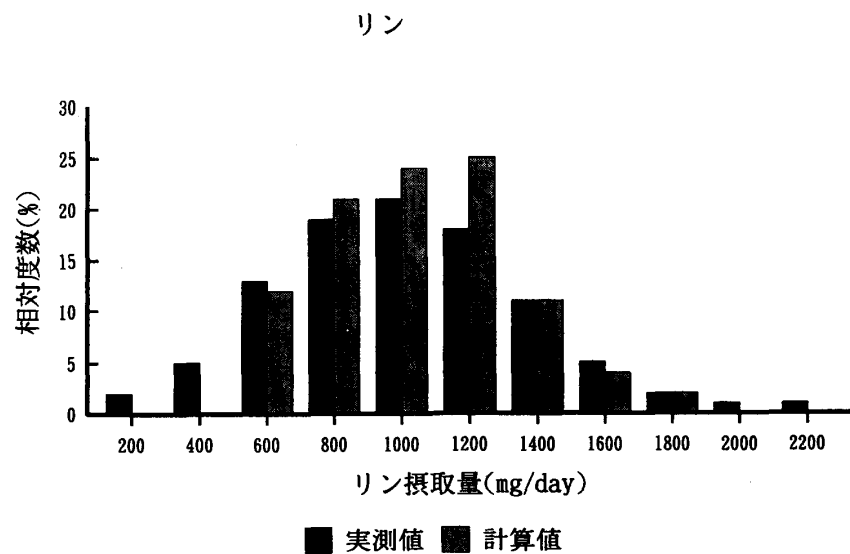
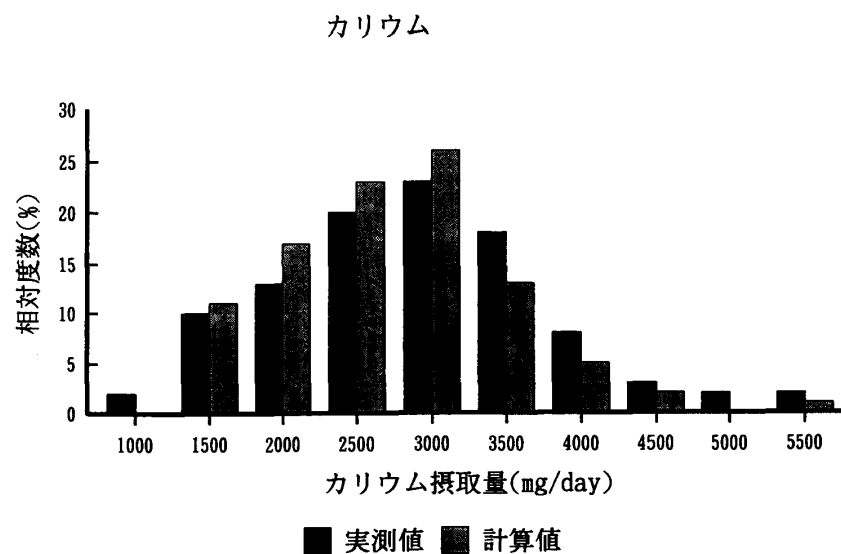
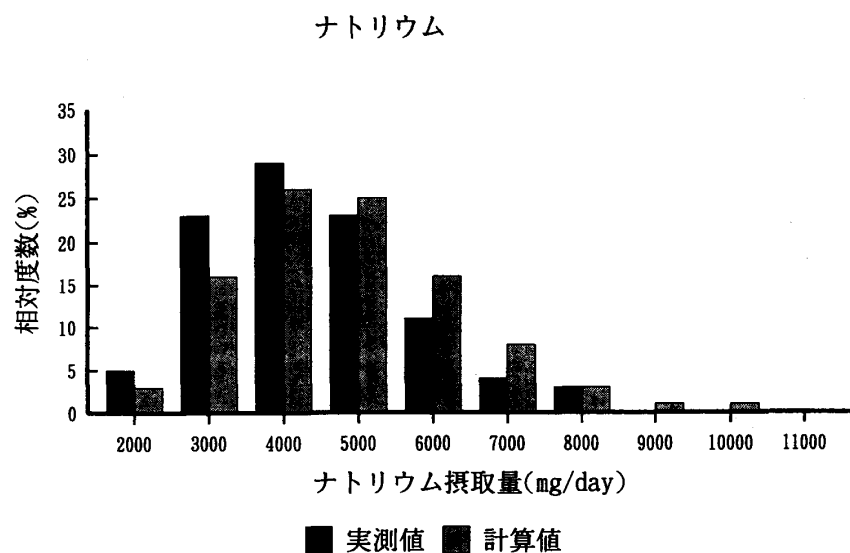


図1 実測値, 計算値度数分布

食物などは、それらの材料、調理方法などから可能な限りの近似食品をもって補正し算出した。

3. ICP-質量分析法による測定

1) 測定対象元素：ナトリウム (Na), カリウム (K), リン (P), カルシウム (Ca) の4元素を測定対象元素とした。

2) 装置及び器具：ICP 質量分析装置：セイコー電子工業㈱製 SPQ9000型
オートサンプラー：セイコー電子工業㈱製 AT-400型を用いた。

測定器具：テフロン製試験管, メスフラスコ及びオートサンプラー用テフロン製容器等の器具類は、すべて予め硝酸による酸処理の後、一次洗浄（再蒸留水）、二次洗浄（純水）を行った。

3) 純水：使用した水は予め分析を行い、各元素の測定に影響がないことを確認した。測定用試験溶液の調整には純水（18.3 MΩ 以上）を用いた。

4) 分析用試薬：分析に使用した試薬は、すべて有害金属測定用試薬（和光純薬）を用いた。各元素の標準溶液及び内標準溶液は原子吸光測定用試薬（1000 ppm）（和光純薬）を使用した。

5) 分析試料作製：分析用食物試料は湿式灰化^{11,12)} による。食事検体6.0 g を秤量、テフロン製試験管に分取し濃硝酸5.0 ml, 過塩素酸2.0 ml, 硫酸0.2 ml を加えて一晩放置し、次いで大型ホットプレート上で160~180℃で適宜硝酸を加え約2日間加熱した。検体が約0.3 ml の清澄な溶液となったところで湿式灰化を完了した。放冷後に塩酸0.1 ml, 純水を加え液量を10 ml に調整した。

6) 測定用試料溶液の調整：各元素測定には、灰化溶液を測定する目的元素ごとに下記のごとく希釈し、ICP 測定用試料溶液に調整した。

(1) ナトリウム, カリウム；灰化溶液10μl をオートサンプラー用20 ml テフロン製容器に取り、内標準溶液にコバルト（1 ppm）100μl, 純水19.89 ml

を加えて計20 ml としてよく混合し、2000倍に希釈した。

(2) カルシウム, リン；灰化溶液10μl を取り、内標準溶液にコバルト（1 ppm）50μl, 純水9.94 ml を加え計10 ml, 1000倍に希釈した。

7) 分析条件：分析条件を表2に示した。

8) 検量線標準溶液：分析用標準溶液1, 分析用標準溶液2及び分析用標準溶液3を作成し、3点検量線法を用いた。それぞれの標準溶液の濃度を表3に示した。

4. 推計学的評価

成績の評価は、Student の対応のないt-検定、多重比較検定、分散分析による。

III. 成績

1. 実測値と計算値の度数分布（図1）

1人1日当り各元素摂取量の度数分布は実測値、計算値ともに正規分布を示した。

ナトリウム摂取量は実測値は最高値11038 mg, 最低値955 mg, 計算値は最高値9673 mg, 最低値886 mg であった。

カリウム摂取量は実測値は最高値5733 mg, 最低値792 mg, 計算値は最高値5469 mg, 最低値1025 mg であった。

リン摂取量は実測値は最高値2286 mg, 最低値75 mg, 計算値は最高値1787 mg, 最低値349 mg であった。

カルシウム摂取量は実測値は最高値2689 mg, 最低値71 mg, 計算値は最高値1317 mg, 最低値133 mg であった。

2. 食事からのミネラル摂取量（表4）

1人1日当りの食事からの摂取量について、実測値と計算値を比較した。

ナトリウム摂取量は実測値3946±1473.8 mg, 計

表4 ミネラル摂取量の平均値、最高値、最低値及び実測値と計算値の比率

	実測値			計算値			比率 (%)
	AM±SD	最高値	最低値	AM±SD	最高値	最低値	AM±SD
ナトリウム	3946±1473.8	11038	955	4393±1590.6**	9673	886	95±34.3
カリウム	2634± 926.9	5733	792	2514± 804.3	5469	1025	106±23.5
リン	923± 382.2	2286	75	939± 279.7	1787	349	99±31.9
カルシウム	669± 382.9*	2689	71	608± 246.6	1317	133	110±45.0

AM±SD: 平均値±標準偏差 表中の数値は mg/日
実測値と計算値間に有意差あり ** p<0.01 * p<0.05

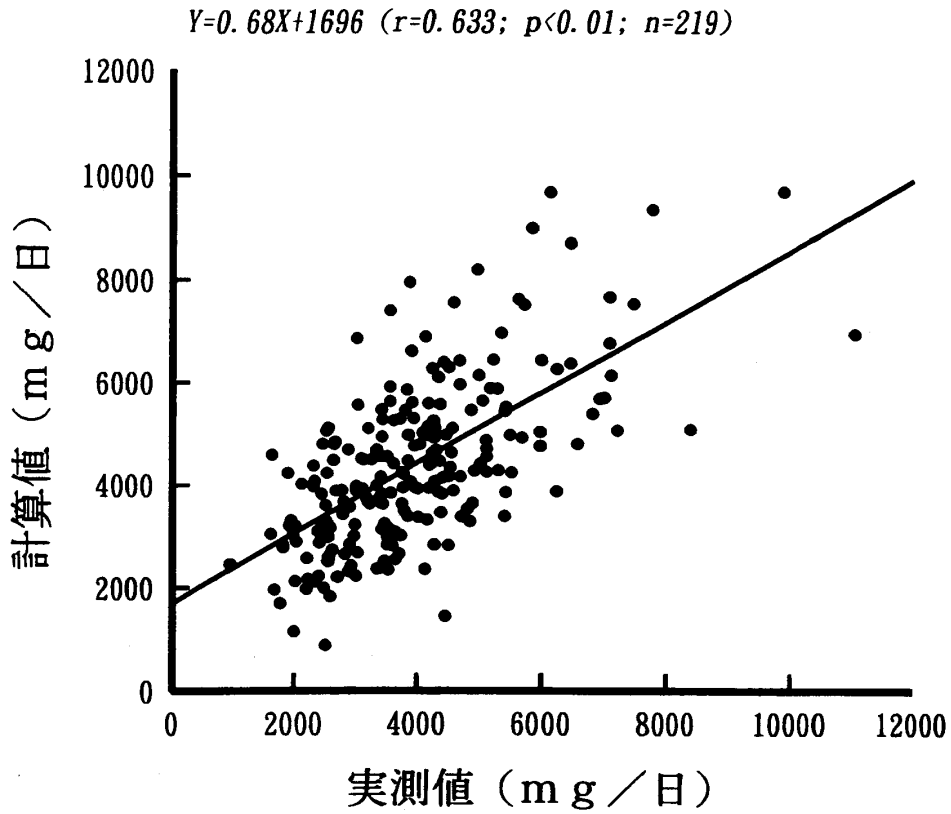


図2 ナトリウム摂取量の実測値と計算値の相関

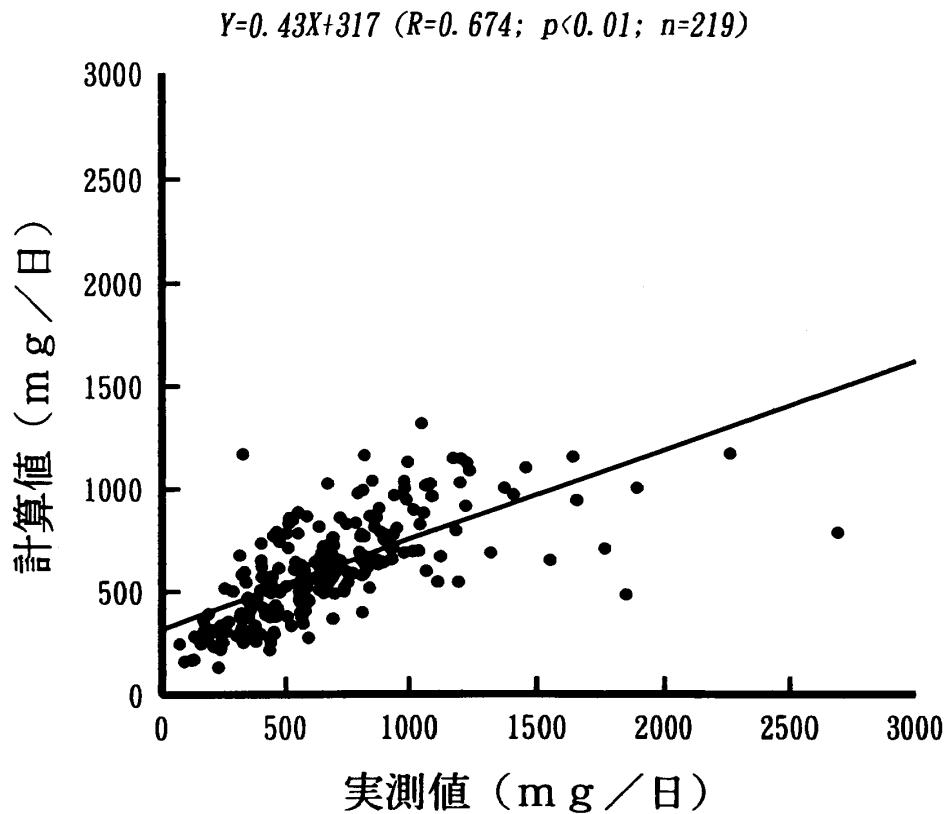


図3 カルシウム摂取量の実測値と計算値の相関

表5 実測値と計算値との相関

	実測値		計算値		回帰直線 Y=aX+b		相関係数	
	AM±SD	AM±SD	AM±SD	AM±SD	a	b	r	p
ナトリウム	3946±1473.8	4393±1590.6**	0.68	1696	0.633	++		
カリウム	2634±926.9	2514±804.3	0.66	772	0.762	++		
リン	923±382.2	939±279.7	0.48	495	0.657	++		
カルシウム	669±382.9*	608±246.6	0.43	317	0.674	++		

AM±SD: 平均値±標準偏差 mg/日

実測値と計算値間に有意差あり ** p<0.01 * p<0.05

相関係数の有意性 ++ p<0.01 + p<0.05

算値4393±1590.6 mg, 実測値は計算値に比べ低値であった。

カリウム摂取量は実測値2634±926.9 mg, 計算値2514±804.3 mg で両者の間に差は見られなかった。

リン摂取量は実測値923±382.2 mg, 計算値939±279.7 mg で両者の間に差は見られなかった。

カルシウム摂取量は実測値669±382.9 mg, 計算値608±246.6 mg で実測値は計算値より高値であった。

3. 実測値の計算値に対する比率

ナトリウム95%, カリウム106%, リン99%, カルシウム110%であった。

4. 実測値と計算値との相関 (図 2, 3, 表 5)

4元素とも実測値と計算値の間に正相関がみられた。

IV. 考察

食事からのミネラル摂取量の過不足は、身体の生理調節に大きく影響し疾病の原因となる。ナトリウムの過剰摂取による高血圧症、カルシウム摂取不足による骨粗鬆症、鉄不足による低色素性貧血などはよく知られた疾患であり、厚生省はこれらの疾患予防に必要所要量を定め¹³⁾、毎年の国民栄養調査を施行して注意を喚起している¹⁴⁾。ミネラル摂取量の計算には四訂日本食品標準成分表(四訂成分表)⁸⁾と、日本無機質成分表(無機質成分表)¹⁵⁾が実用に供されているが、これら表計算による摂取量は推定値であるため、実際に摂取した量は直接食事検体から測定する必要がある。しかし、計算の迅速性や測定の煩雑などから表計算値がほとんどの評価に用いられている。表計算値が測定値に限りなく近似であることが、表計算値の信頼性維持に望ましいことであり、

われわれはこれらの検討を幾つかの方法による測定値と比較してきた^{2,5,7)}。今回は誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)によるナトリウム、カリウム、リン、カルシウムの4元素の測定値について比較した成績を報告する。

北海道から九州・沖縄までの女性219名を対象に、陰膳方式で収集した1日食事検体のナトリウム、カリウム、カルシウム、リンの4元素について、ICP-MSによる測定を行い、四訂成分表⁸⁾を用い献立表から得た計算値との比較を行った。

食事中の1人1日当りのナトリウム摂取量は、実測値、計算値とも正規分布を示し、その平均値は実測値3946 mg/日、計算値4393 mg/日で両者の間にはr=0.633の正の相関が見られた。誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-AES)を用い232例を対象とした比較成績は、実測値平均3931 mg/日、r=0.508で今回の成績は近似したものであった⁷⁾。相関係数値からみて、計算値のナトリウム量を変動させる要因には、料理形態による喪失、調味料の推定量などによる影響が考えられるが、ほぼ満足できる関係であった。実測値は計算値の95%で有意に低値であり、ICP-MSによるナトリウム回収率は104.4%で満足すべき成績であったことから、今回の調査対象者のナトリウム摂取量は、厚生省の定める目標摂取量3900 mg/日(食塩換算量10 g/日)¹³⁾に近い値と評価出来る。調査地区別の比較では9地区中4地区で実測値の方が計算値より低値であった。また、年齢階層別では60歳代で実測値が計算値より低値を示したが、他の年齢階層では有意差は認めないものの実測値が低値であった。

食事中の1人1日当りのカリウム摂取量は、実測値、計算値ともに正規分布を示し、その平均値は実測値2634 mg/日、計算値2514 mg/日で、両者の間

には $r=0.762$ の正の相関が見られた。実測値は計算値の106%であったが有意ではなかった。ICP-AESによる測定では測定試料中のナトリウムの干渉を受けるが⁷⁾、ICP-MSではその懸念はなく、測定値は信頼に足りるものであった。実測値も計算値もカリウム目標摂取量である成人の最小必要量1,020 mg/日(65 kg)⁷⁾を充足していた。地区別、年齢階層別にも実測値と計算値との比較で差は見られなかった。一般に、食物中のカリウムは調理操作や加工過程で失われ、原材料より低値となることが多いと考えられている。しかし、今回の実測値と計算値の間に差は見られず、成分表による計算値を支持する結果であった。

食事中的1人1日当りのリン摂取量は、実測値、計算値ともに正規分布を示し、その平均値は実測値923 mg/日、計算値939 mg/日で、両者の間には $r=0.850$ の正の相関が見られた。実測値は計算値の99%であったが有意差は見られなかった。地区別、年齢階層別の実測値と計算値の比較でも差はなかった。

食事中的1人1日当りのカルシウム摂取量は、実測値、計算値ともに正規分布を示し、その平均値は実測値669 mg/日、計算値608 mg/日で両者の間には $r=0.674$ の正の相関が見られた。相関図で見られるように、計算値より実測値が異常高値を示した例を除外すれば、係数がさらに改善されることが予想される。両値の数値上の関係を別にすれば、実測値がより高値であることは歓迎すべき成績で、実測値は計算値の110%と有意に高値であった。地区別、年齢階層別の比較では明確な差は見られなかった。カルシウム所要量は、成人女性600 mg/日と設定されているが、国民栄養調査によるカルシウム摂取量は、昭和45年以降550 mg/日前後でほぼ横ばい状態である^{6,13,14)}。本成績では実測値、計算値ともに所要量を満たしていたが、しかし実測値と計算値の所要量充足人数割合は実測値50%、計算値49%で、カルシウムの吸収効率からみて、なお摂取量を増すことに心すべきであろう。カルシウムの吸収に関与するリンとの比を見ると、実測値1.6、計算値1.7で指針の範囲内¹³⁾であった。

ICP-MSによる食物中のミネラルその他微量元素の測定は最近緒についたばかりである^{16,17,18)}。今回、219名を対象に陰膳方式食物収集を行った試料をもとに、ナトリウム、カリウム、リン、カルシウムの測定を行い、その成績を示すことができた。ICP-AESはプラズマ中の原子の発光を利用するのに対

して、ICP-MSはプラズマ中元素イオンを質量分析し、その特徴は①多元素を同時分析する、②超高感度である、③同位体比の測定ができるの3点である。検出対象元素によっては共存物質による干渉、検量線作成や内部標準の使用などの問題点もあるが、優れた分析機器として食事中的ミネラル解析の更なる成果が期待できる。

V. まとめ

陰膳方式食物収集を行った9地区の女性219名を対象に、食事中的ナトリウム、カリウム、リン、カルシウムの4元素について、誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)による測定を行い、四訂日本食品標準成分表による計算値との比較を行った。

食事中的1人1日当りのナトリウム摂取量は実測値 3946 ± 1473.8 mg、計算値 4393 ± 1590.6 mgで、実測値は計算値の95%であった。カリウム摂取量は実測値 2634 ± 926.9 mg、計算値 2514 ± 804.3 mgで、実測値は計算値の106%であった。リン摂取量は実測値 923 ± 382.2 mg、計算値 939 ± 279.7 mgで、実測値は計算値の99%であった。カルシウム摂取量は実測値 669 ± 382.9 mg、計算値 608 ± 246.6 mgで、実測値は計算値の110%であった。

実測平均値からみたナトリウム摂取量は計算値に比べ低値であり、逆にカルシウム摂取量は計算値より高値であった。ともに厚生省の定める必要所要量を充足する値であった。カリウム、リンの2元素には差は見られなかった。

文 献

- 1) S. Shimbo, Y. Imai, M. Yasumoto, K. Yamamoto, S. Kawamura, K. Kimura, T. Watanabe, R. Sato, O. Iwami, M. Ikeda: Quantitative identification of sodium chloride sources in Japanese diet by 24-hour total food duplicate analysis. *J Epidemiol*, 3: 77-82, 1993.
- 2) 富永直美, 今井美子, 保元美保子, 池田康子, 猪口尚子, 後藤智美, 横田美菜子, 文燦錫, 渡辺孝男, 池田正之, 新保慎一郎: 食事からの鉄摂取量について—計算値と実測値の比較—京都女子大学食物学会誌49: 35-43, 1994.
- 3) 斉藤崇子, 清水彩子, 甫喜本早由, 嶋崎久美, 今井美子, 張作文, 文燦錫, 渡辺孝男, 池田正之, 新保慎一郎: 日本人の食塩摂取量. 京都女子大食物学会誌50: 20-27, 1995.

- 4) S. Shimbo, A. Hayase, M. Murakami, I. Hatai, K. Higashikawa, C.-S. Moon, Z.-W. Zhang, T. Watanabe, H. Iguchi, M. Ikeda: Use of a food composition database to estimate daily dietary intake of nutrient or trace elements in Japan, with reference to its limitation. *Food Addit Contam* 13: 775-786, 1996.
- 5) 瀬亜希子, 村上美香, 畑井郁乃, 東川佳絵, 張作文, 文燦錫, 渡辺孝男, 池田正之, 新保慎一郎: 無機質成分表を利用した食事中無機質摂取量の検討. *京都女子大食物学会誌* 51: 23-32, 1996.
- 6) S. Shimbo, Y. Imai, N. Tominaga, T. Gotoh, M. Yokota, N. Inoguchi, Y. Ikeda, T. Watanabe, C.-S. Moon, M. Ikeda: Insufficient calcium and iron intakes among general female population in Japan, with special reference to inter-regional differences. *J Trace Elements Med Biol* 10: 133-138, 1996.
- 7) C.-S. Moon, Z.-W. Zhang, S. Shimbo, S. Hokimoto, K. Shimazaki, T. Saito, A. Shimizu, Y. Imai, T. Watanabe, M. Ikeda: A comparison of the food composition table-based estimates of dietary element intake with the values obtained by inductively coupled plasma atomic emission spectrometry: An experience in a Japanese population. *J Trace Elements Med Biol* 10: 237-244, 1996.
- 8) 科学技術庁資源調査会 (編): 四訂日本食品標準成分表 大蔵省印刷局, 1982.
- 9) K. J. Acheson, I. T. Campbell, O. G. Edholm, D. S. Miller, M. J. Stock: The measurement of food and energy intake in man—An evaluation of some techniques. *Am J Clin Nutr* 33: 1147-1154, 1980.
- 10) 香川芳子監修: 改訂7版 会社別・製品別市販食品成分表 女子栄養大学出版社, 1995.
- 11) T. Watanabe, A. Koizumi, H. Fujita, A. Fujimoto, A. Ishimori, M. Ikeda: Effect of aging and smoking on the cadmium levels in the blood of inhabitants in non-polluted areas. *Tohoku J Exp Med* 138: 443-444, 1982.
- 12) 保元美保子, 今井美子, 岩見億丈, 渡辺孝男, 池田正之, 新保慎一郎: 食事からのカドミウムおよび鉛摂取量第1編原子吸光法による食事中カドミウムおよび鉛摂取量. *京都女子大食物学会誌* 48: 1-7, 1993.
- 13) 厚生省保健医療局健康増進栄養課監修: 第五次改訂 日本人の栄養所要量 第一出版, 1994.
- 14) 厚生省保健医療局健康増進栄養課監修: 平成8年版 国民栄養の現状 (平成6年国民栄養調査成績 第一出版, 1996.
- 15) 科学技術庁資源調査会編集: 日本食品無機質成分表 大蔵省印刷局, 1991.
- 16) H. Muto, T. Abe, Y. Takizawa, K. Kawabata, K. Yamaguchi, K. Saitoh: Simultaneous multielemental analysis of daily food samples by inductively coupled plasma mass spectrometry. *Sci Total Environ* 144: 231-239, 1994.
- 17) K. Shiraishi, J.F. Mcinroy, Y. Igarashi: Simultaneous multielement analysis of diet samples by inductively coupled plasma mass spectrometry and inductively coupled plasma atomic emission spectrometry. *J Nutr Sci Vitaminol* 36: 81-86, 1990.
- 18) Z.-W. Zhang, S. Shimbo, N. Ochi, M. Eguchi, T. Watanabe, C.-S. Moon, M. Ikeda: Detaminations of lead and cadmium in food and blood by inductively coupled plasma mass spectrometry: comparison with graphite furnace atomic absorption spectrometry. *Sci Total Environ* 1997. (in press)