調査・資料

食用タール色素アルミニウムレーキ中の水溶性塩化物および
水溶性硫酸塩の含有量について

(平成 16 年 4 月 26 日受理)

中野 真希^{*1,*2} 古川みづき^{*1,*3} 辻 澄子^{*1,*4,†} 外海 泰秀^{*1,*5}Studies on the Contents of Water-soluble Chlorides and Water-soluble Sulfates in
Food Color Aluminum LakesMaki NAKANO^{*1,*2}, Mizuki FURUKAWA^{*1,*3}, Sumiko TSUJI^{*1,*4,†} and Yasuhide TONOGAI^{*1,*5}(*¹Division of Food Chemistry, Osaka Branch, National Institute of Health Sciences: Closed;*²Present Address: Ikeda Laboratory, AnGes MG Inc.: 1-8-31, Midorigaoka, Ikeda-shi, Osaka 563-8577, Japan; *³Present Address: Tokyo Center, Japan Inspection Association of Food and Food Industry Environment: 2-10-3, Shinkiba, Koto-ku, Tokyo 136-0082, Japan;*⁴Present Address: National Institute of Health Sciences: 1-18-1, Kamiyoga, Setagaya-ku, Tokyo 158-8501, Japan; *⁵Present Address: Test Inspection Center, Osaka Pharmaceutical: 1-3-8, Izumi-cho, Chuo-ku, Osaka 540-0019, Japan; † Corresponding author)

Japan's Specifications and Standards for Food Additives, 7th Edition (JSFA-VII) does not set limits for total contents of water-soluble chlorides and water-soluble sulfates (water-soluble inorganic salts) in food color aluminum lakes (FC-Als). However, the regulatory limit is 2% in JECFA and CFR. We used column switching suppressor-type ion chromatography (CSS-IC) for determination of anions. The total contents of water-soluble inorganic salts in FC-Als (112 qualified samples) were determined using the modified CSS-IC from fiscal year 1998 to fiscal year 2003. Total contents of water-soluble inorganic salts in four samples exceeded 2%. From an international point of view, it is desirable that the total content of water-soluble inorganic salts in FC-Al should again be regulated in Japan.

(Received April 26, 2004)

Key words: 食用色素 food color; 食用色素アルミニウムレーキ food color aluminum lake; 水溶性塩化物 water-soluble chloride; 水溶性硫酸塩 water-soluble sulfate; イオンクロマトグラフィー ion chromatography; カラムスイッチング column switching

緒 言

近年、食用着色料には既存天然添加物である着色料の使用が増えつつあるが、合成着色料の生産も 135 トン [(平成 13 年度 (F.Y. 2001)]¹⁾ と、依然として多く使用されている。合成着色料である 12 種の食用タール色素とそのうちの 8 種の色素のアルミニウムレーキ (FC-Al) の規格基準は食品添加物公定書に定められており、これらには製品検査が義務づけられているため²⁾、この検査に合格した製品のみ販売することができる。

FC-Al とはアルミニウム塩の水溶液にアルカリを作用させ、これに食用タール色素を吸着させてろ過、乾燥、粉碎して得られる色素である³⁾。したがって得られた FC-Al 中には、アルミニウム塩由来の水溶性塩化物および水溶性硫酸塩 (水溶性無機塩) が存在することが多い。この FC-Al 中の水溶性無機塩含有量は、Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Additives (JECFA)⁴⁾ では総量 2% 以下、Code of Federal Regulations (CFR)⁵⁾ では総量 2.0% 以下と規格基準が設定されている。日本では第六版食品添加物公定書 (食添 VI)⁶⁾ で総量 2.0% 以下と設定されていたが、平成 11 年 4 月より施行された食添 VII^{3),7)} においてこの規格は削除された。その理由としては、添加回収実験時、色素の種類によっては FC-Al に添加した硫酸塩の回収率が悪いことなどが挙げられている^{3),8)}。しかし、この規格は食品添加物の品質確保の点から見逃せない項目であることより、再度基準を設定する必要があると考えられる。

† 連絡先

*¹ 国立医薬品食品衛生研究所大阪支所食品試験部: 閉鎖*² 現住所, アンジェス MG 株式会社: 〒563-8577 池田市緑丘 1-8-31*³ 現住所, (財)食品環境検査協会東京事業所: 〒136-0082 東京都江東区新木場 2-10-3*⁴ 現住所, 国立医薬品食品衛生研究所: 〒158-8501 東京都世田谷区上用賀 1-18-1*⁵ 現住所, (社)大阪府薬剤師会試験検査センター: 〒540-0019 大阪市中央区和泉町 1-3-8

塩化物および硫酸塩の測定方法は、食添 VI⁶⁾ より、それまでの比濁法⁹⁾ からノンサプレッサー方式イオンクロマトグラフィー (NonS-IC) に変更されている。しかし NonS-IC は陰イオン交換カラムに色素が吸着するため、分析終了後定期的にカラムを洗浄するか、市販の前処理用イオンゲルカートリッジを使用し脱色した後で分析を行わなければ連続測定ができなくなる。

一方、山田ら¹⁰⁾ は分析カラムへの色素吸着を防止したカラムスイッチング・サプレッサー型イオンクロマトグラフィー (CSS-IC) を開発した。ところが、山田ら¹⁰⁾ の室温での測定では、しばしば再現性に問題が生じた。そこで、われわれは CSS-IC の種々の条件を再検討し、長期間の連続測定が可能となりカラム本体の寿命も長くなる測定条件を再設定した。改良 CSS-IC を用いて、FC-AI 中の水溶性無機塩含有量の実態調査を行ったので報告する。

実験方法

1. 試料

試料には食添 VII^{3), 7)} 施行前後に製品検査に適合した色素レーキ 112 検体 [平成 10 年度 (F.Y. 1998) 19 検体, 11 年度 (F.Y. 1999) 32 検体, 12 年度 (F.Y. 2000) 12 検体, 13 年度 (F.Y. 2001) 10 検体, 14 年度 (F.Y. 2002) 15 検体, 15 年度 (F.Y. 2003) 24 検体] を用いた。色素の種類は、食用赤色 3 号アルミニウムレーキ (R3Al) 17 検体, 食用赤色 40 号アルミニウムレーキ (R40Al) 7 検体, 食用黄色 4 号アルミニウムレーキ (Y4Al) 29 検体, 食用黄色 5 号アルミニウムレーキ (Y5Al) 24 検体, 食用青色 1 号アルミニウムレーキ (B1Al) 23 検体, 食用青色 2 号アルミニウムレーキ (B2Al) 12 検体であった。食用赤色 2 号アルミニウムレーキおよび食用緑色 3 号アルミニウムレーキは製造されていなかった。

2. 試薬

アセトニトリルは HPLC 用を、0.1 mol/mL テトラブチルアンモニウムヒドロキシド (TBAOH) 液 (溶離液用) は Dionex 社製を用いた。水は蒸留水をさらに Milli-Q (日本ミリポア(株)) によって精製した水を使用した。

その他の試薬は試薬特級を用いた。

3. 装置

IC 装置: Dionex 社製 4500i, サプレッサーはアニオンマイクロメンブランサプレッサー AMMS-MPIC を用いた。カラム恒温槽は GL Science 557 を用い、試料の注入には Dionex 社製オートサンプラー AS-50 を用いた。色素溶出用ポンプに日本分光(株)製 Jasco 880-PU, サプレッサーポンプには FURUE SCIENCE(株)のローラーポンプを用いた。データ処理は Dell Optiplex GX150/Canon LaserShot LPB-1110 に導入した Dionex 社製 Peaknet を用いた。

4. 陰イオンの測定

4.1 標準原液作製方法

食添 VII^{3), 7)} に従って塩化物, 硫酸塩, 臭化物, ヨウ化

物の各陰イオン標準原液 (それぞれ Cl^- , SO_4^{2-} , Br^- , I^- を 1 mL 中に 1,000 μg 含む) をそれぞれ作製した。これらの原液を適宜混合, 希釈して標準液とした。

4.2 試験溶液調製法

食添 VI⁶⁾ に準じた木村らの方法⁸⁾ に従った。すなわち, 試料約 100 mg を精密に量り, 水を 100 mL 加えて振とう機で 5 分間振とうした後定量ろ紙 (No. 5C) にてろ過した液を試験溶液 (試料: 1 mg/mL) とし, CSS-IC により分析を行った。

4.3 IC 条件

分析カラムには Dionex 社製 IonPac NS-1 (4 mm i.d. $\times$ 250 mm), ガードカラムは Dionex 社製 IonPac NG-1 GUARD (4 mm i.d. $\times$ 50 mm) を使用した。陰イオン分析用溶離液は 0.1 mol/L 炭酸ナトリウム 10 mL, 0.1 mol/L TBAOH 液 20 mL, アセトニトリル 140 g に水を加えて 1 kg とした溶液 (流速 1.0 mL/min) を用いた。カラム温度は 45°C, 電気伝導度検出器の検出感度は 30 $\mu\text{S}/\text{cm}$ に設定した。注入量は 50 μL とした。

色素溶出液には 50% アセトニトリル溶液 (流速 0.5 mL/min), サプレッサー溶液には 25 mmol/L 硫酸 (流速 0.5 mL/min) を用いた。

4.4 水溶性無機塩含有量の計算

陰イオン標準液を用いて作成した検量線から, CSS-IC で測定した試験溶液中の陰イオン濃度を求め, 換算係数により, 試料中のそれぞれの無機塩濃度 (%) を算出した。

結果および考察

1. IC 測定条件

山田ら¹⁰⁾ の室温での測定条件を用いて製品検査のタール色素中の陰イオンを分析した場合, 気温の影響により各陰イオン保持時間 (R_t) が変動し, SO_4^{2-} と I^- のピークの重なりが観測され, しばしば再現性に問題が生じた。そこで改めて分析条件の検討を行うことにした。

食添 VII^{3), 7)} では, 食用タール色素中の塩化物・硫酸塩含量測定だけでなく, 色素により臭化物あるいはヨウ化物の規制もある。したがって, Cl^- , SO_4^{2-} , Br^- および I^- の 4 種の陰イオンを CSS-IC で同時測定可能な統一条件を検討することにした。

山田ら¹⁰⁾ は溶離液に 20% アセトニトリルを用い, 室温で Cl^- , Br^- , I^- , SO_4^{2-} の順に溶出させている。しかし, IC はアセトニトリルの濃度が低いほど感度が上がる。そこで, 規制値の濃度が低い I^- を検出できるように, 感度の良い 11.5% のアセトニトリル濃度での測定条件における温度の影響を検討した。

Fig. 1 に示したように, 30°C では Cl^- , Br^- , SO_4^{2-} , I^- の順に溶出し, 45°C では SO_4^{2-} , I^- のピークが近づいた。 SO_4^{2-} ピークは多少テーリング傾向にあり, I^- ピークは多少リーディング傾向にあった。このことから両者のピークを十分に分離するには, I^- が SO_4^{2-} より速く溶出することが望ましい。そのためには, カラム温度をもっと上げ

る必要があった。しかし、カラム温度と室温との差がありすぎると、冬はカラム恒温槽内で溶離液の温度が十分に上がりきらない可能性があるなど、結果のばらつきの原因となった。

そこで、カラム温度 45°C で再度アセトニトリル濃度を検討した。その結果、Fig. 2 に示したように、いずれの

Fig. 1. Effect of column temperature on retention time (Rt) of four anions

Symbols: ◇, Cl⁻; ■, Br⁻; △, SO₄²⁻; ●, I⁻

Fig. 2. Effect of acetonitrile on Rt of four anions

Symbols: ◇, Cl⁻; ■, Br⁻; △, SO₄²⁻; ●, I⁻
Column temperature is 45°C.

イオンもアセトニトリル濃度が高くなると Rt が小さくなるが、アセトニトリル 12.0% 以上においては I⁻ が SO₄²⁻ より先に溶出する現象が見られた。したがってアセトニトリル濃度は両者の分離の良い 14.0% に設定することとした。

次にカラムスイッチングの模式図を Fig. 3 に示した。

状態 A では試料がガードカラムを通して分析カラムに入る通常のサプレッサー型イオンクロマトグラフィー (S-IC) と同様の状態である。すなわち、カラムスイッチングしなかった場合、陰イオン群および色素がガードカラムおよび分析カラムへと溶出していく。陰イオン群、色素の順に溶出するため、カラムスイッチングのタイミングには、陰イオン群がガードカラムを通過した後、色素がまだガードカラムに吸着されている時間を選択する必要がある。色素はまだ分析カラムに溶出していないが、陰イオン群は分析カラムの中に入った直後にカラムスイッチングを行い (状態 B), ガードカラムの色素を色素溶出液によって洗い出す。陰イオン群は分析カラム中で各イオンピークに分離され、順番に溶出される。そしてガードカラムの洗浄と陰イオン類の溶出が終わった後に再度カラムスイッチングが行われ、ガードカラムが復帰して状態 A に戻り、次回分析に向けて再平衡化が行われる。

色素溶出液と陰イオン溶離液との組成が異なることにより、カラムスイッチング後および再カラムスイッチング後に、ガードカラム中のアセトニトリルの影響によるノイズが生じる。そこで、このカラムスイッチングすることで生じたノイズやベースラインの多少の乱れと各イオン類のピークを分離するため、カラムスイッチング時間を検討し

Fig. 3. Flow route of sample solution with CSS-IC

Eluent I: eluent solution for anion analysis.

Eluent II: eluent solution for desorption of colors.

Before the first determination, columns were allowed to equilibrate with eluent I. The first sample solution of food color was injected and columns were switched from condition A to B at 6.5 min after injection. Then, anions were eluted with eluent I and detected. On the other hand, the food color absorbed on the guard column was desorbed by eluent II. The column was again switched from condition B to A at 15 min for the equilibration of its guard column with eluent I. At 26 min after the first injection, the next sample solution was injected.

Fig. 4. Chromatogram of standard anion solutions by CSS-IC

Concentration of each anion (Cl^- , Br^- , SO_4^{2-} , I^-): $10 \mu\text{g/mL}$.

た。その結果、カラムスイッチング開始から 6.5 分、ガードカラム復帰時間 15.0 分、データ取り込み停止時間 26.0 分において有効にピークとノイズが分離し、かつ上記のタイミングを満たしていた。

これらの条件設定を行った結果、4 種の陰イオンピークは分離・感度とも良く、良好に測定することができた。

以上により決定した条件下での標準液（各イオン濃度： $10 \mu\text{g/mL}$ ）ピークを Fig. 4 に示した。

2. FC-AI 中の水溶性無機塩

前述で改良した SSC-IC を用いて FC-AI 中の水溶性無機塩の回収試験を行った。Table 1 に示したように、木村ら⁸⁾と同様、B1AI 中の硫酸塩の回収率は低かった。さらに、今回の実験で用いた検体では B1AI だけでなく、B2AI の回収率も低く、使用された原料のアルミニウム塩の差異が影響しているかもしれない。木村ら⁸⁾はリン酸ナトリウム緩衝液を用いて FC-AI 中の水溶性無機塩を抽出することにより、硫酸塩を測定することを推奨している。しかし、木村ら⁸⁾の方法は使用したリン酸ナトリウム緩衝

液中の Na^+ と FC-AI 中に配位していた SO_4^{2-} とが反応して新たに試験溶液中に硫酸塩を生成させている可能性があることが考えられる。

一方、FC-AI は先に述べたように、アルミニウム塩の水溶液にアルカリを作用させ、食用タール色素を吸着させて製造³⁾する関係上、水洗浄がなされていないと水溶性塩化物または水溶性硫酸塩が存在する可能性がある。このような品質規格の面から、JECFA⁴⁾および CFR⁵⁾ともこれら水溶性無機塩の総量規制があり、食添 VI⁶⁾でも総量規制があった。そこで、品質規格の面から、水溶性無機塩の総量規制の重要性が考えられることから、製品検査適合 FC-AI 中の水溶性無機塩の含有量実態調査を行った。

まず、食添 VI⁶⁾の規制下であった F.Y. 1998 の結果を Table 2 に示した。

これらはすべて製品検査適合検体であったので、食添 VI⁶⁾の限度 2.0% 以下であった。

Table 1. Recoveries of Water-soluble Chlorides and Water-soluble Sulfates Spiked in Food Color Aluminum Lakes

	NaCl	Na_2SO_4
	Recovery (%) ^{a)}	Recovery (%) ^{a)}
R3AI	99.2 ± 1.6	87.1 ± 2.9
R40AI	105.9 ± 4.9	61.2 ± 4.4
Y4AI	104.0 ± 4.9	85.9 ± 6.1
Y5AI	103.9 ± 5.4	79.9 ± 3.9
B1AI	110.3 ± 6.7	12.4 ± 1.3
B2AI	129.1 ± 8.1	5.1 ± 0.2

NaCl (2.0%) and Na_2SO_4 (1.0%) were spiked into Food Color Aluminum Lakes, respectively.

The test solutions prepared according to JSFA-VI⁶⁾ were determined by CSS-IC.

^{a)} The values are the average and standard deviation of 3 trials.

Table 2. Contents of Water-soluble Chlorides and Water-soluble Sulfates in Food Color Aluminum Lakes That Passed the JSFA-VI Specification in Fiscal Year 1998

Color lakes	Makers	No. of Sample	NaCl (%)			Na ₂ SO ₄ (%)			Total (%)			
			Minimum – Maximun			Minimum – Maximun			Minimum – Maximun			Average
R3AI	A	3	0.16	–	0.33	0.13	–	0.47	0.42	–	0.63	0.53
	B	1	0.11			0.15			0.26			0.26
	C	1	0.16			0.24			0.40			0.40
Y4AI	A	3	0.02	–	0.04	1.24	–	1.61	1.27	–	1.63	1.42
	B	1	0.02			1.75			1.77			1.77
Y5AI	A	5	0.09	–	0.24	0.48	–	0.85	0.59	–	1.09	0.84
	B	1	0.07			0.30			0.37			0.37
B1AI	A	2	0.76	–	1.61	N.D. ^{a)}			0.76	–	1.61	1.19
B2AI	A	1	1.13			0.04			1.17			1.17
	D	1	1.26			0.03			1.29			1.29

^{a)} N.D. < 0.03%

Specification of water-soluble chloride and water-soluble sulfate in food color aluminum lake in fiscal years 1998, according to JSFA-VI⁶⁾: Total content of water-soluble chloride and water-soluble sulfate in food color aluminum lake is not more than 2.0%.

Table 3. Contents of Water-soluble Chlorides and Water-soluble Sulfates in Food Color Aluminum Lakes Passed the JSFA-VII Specification in Fiscal Years 1999–2003

Color lakes	Makers	Number of sample	NaCl (%)			Na ₂ SO ₄ (%)			Total (%)			
			Minimum – Maximun			Minimum – Maximun			Minimum – Maximun			Average
R3Al	A	9	0.07	–	0.37	0.06	–	0.32	0.14	–	0.69	0.35
	B	1	0.30			0.21			0.51			0.51
	C	1	0.28			0.21			0.49			0.49
	E	1	0.25			0.12			0.37			0.37
R40Al	A	5	0.06	–	0.56	N.D. ^{a)}			0.06	–	0.56	0.43
	D	2	1.40			N.D.	–	0.20	1.40	–	1.60	1.50
Y4Al	A	14	N.D.	–	0.08	0.43	–	1.16	0.51	–	1.23	1.02
	B	4	N.D.			1.06	–	1.33	1.06	–	1.33	1.14
	C	1	0.14			N.D.			0.14			0.14
	D	2	4.31	–	7.73	N.D.			4.31	–	7.73	6.02
	E	4	0.09	–	1.36	N.D.	–	0.07	0.16	–	1.36	0.94
Y5Al	A	13	N.D.	–	0.21	0.38	–	1.08	0.44	–	1.12	0.78
	B	2	0.65	–	0.86	0.36	–	0.81	0.48	–	0.81	0.65
	D	1	5.08			N.D.			5.08			5.08
	E	2	0.22	–	0.34	N.D.	–	0.04	0.26	–	0.34	0.30
B1Al	A	14	0.20	–	1.90	N.D.	–	0.03	0.20	–	1.90	1.08
	B	3	0.65	–	0.86	H.D.			0.65	–	0.86	0.78
	C	2	0.75	–	0.85	N.D.			0.75	–	0.85	0.80
	E	2	0.82	–	0.97	N.D.	–	0.16	0.82	–	1.13	0.98
B2Al	A	7	0.30	–	1.15	N.D.	–	0.20	0.49	–	1.17	0.96
	B	1	0.85			N.D.			0.85			0.85
	D	2	0.77	–	9.29	N.D.			0.77	–	9.29	3.79

^{a)} N.D.<0.03%

Specification of water-soluble chloride and water-soluble sulfate in food color aluminum lake in fiscal years 1998–2003, according to JSFA-VII^{3), 7)}; not specified.

Specification of JSFA-VI⁶⁾: See footnote in Table 2.

Table 4. Total Contents of Water-soluble Chlorides and Water-soluble Sulfates in Food Color Aluminum Lakes out of Specification of JSFA-VI

Fiscal year	Color name	Maker	NaCl (%)	Na ₂ SO ₄ (%)	Total (%)
1999	Y4Al	D	4.29±0.09 ^{a)}	N.D. ^{b)}	4.29
	Y5Al	D	5.02±0.13	N.D.	5.02
2000	B2Al	D	9.20±0.15	N.D.	9.20
	Y4Al	D	7.70±0.10	N.D.	7.70

^{a)} The values are the average and standard deviation of 3 trials.

^{b)} N.D.<0.03%

Specification of JSFA-VI⁶⁾: See footnote in Table 2.

一方、水溶性無機塩の総量規制がなくなった食添 VII^{3), 7)} の規制下である F.Y. 1999～F.Y. 2003 の結果を Table 3 に示した。

FC-Al 中の水溶性無機塩の総量規格が削除されたため、製品検査適合検体であるにもかかわらず、平均値が 2.0% を超えたのは Y4Al, Y5Al および B2Al の 3 種類であり、いずれも D 社の検体であった。それらの詳細を Table 4 に示した。

F.Y. 1999 と F.Y. 2000 の 2 検体ずつであり、硫酸塩は検出されなかったが、塩化物はいずれの検体とも食添 VI

の限度規格値の倍以上含有していた。これらは使用したアルミニウム塩原料中に多量の塩化アルミニウムが含有されていて、生成した FC-Al 中に多量の NaCl が生成したものと考えられる。特に、F.Y. 2000 の B2Al は 9.2% であり、限度規格の 4.5 倍にも及ぶ塩化物を含んでおり、製造後の水洗浄が不十分であったと考えられる。

このように、品質保証上好ましくない上、国際的にも品質規格として FC-Al 中の水溶性無機塩の総量規制が行われていることから、食 VIII 改正にあたっては、FC-Al 試験法に水溶性塩化物および水溶性硫酸塩の総量限度規格を再考すべきであることが望まれる。

ま と め

CSS-IC による陰イオンの測定条件を再設定した。本法を用いて FC-Al への水溶性無機塩の添加回収試験を行った結果、B1Al および B2Al からの SO₄²⁻ の低回収率が確認された。しかし、品質管理上 FC-Al 中の水溶性無機塩の総量規制は必要と考えられるので、F.Y. 1998～F.Y. 2003 中の合格 FC-Al 中の水溶性無機塩の実態調査を行った。112 検体の FC-Al 中 4 検体の水溶性無機塩総量が 2% を超えていた。国際的見地から、FC-Al 中の水溶性塩化物および水溶性硫酸塩含有量の総量規制を再考する必要があると考える。

文 献

- 1) Tsuji, S., Umino, Y., Nakamura, Y., Tonogai, Y., Estimated production by the official inspection of tar color (including aluminum lakes) in fiscal year 2001. Kokuritsu Iyakuhiin Shokuhin Eisei Kenkyusho Hokoku (Bulletin of National Institute of Health Sciences), **120**, 101-106 (2002).
- 2) 法律 233 号 (1947), “食品衛生法”, 昭和 22 年 12 月 14 日
および法律 55 号 (2003), “食品衛生法一部改正”, 平成 15
年 5 月 30 日.
- 3) Suzuki, I. *et al.* eds., “Shokuhin Tenkabutsu Koteisho
Kaisetsusho, 7th Ed.”, Tokyo, Hirokawa Shoten, 1999,
P. B-91-112, D-661-793. (ISBN 4-567-01852-4)
- 4) Joint FAO/WHO Expert Committee on Food Addi-
tives, “Compendium of food additive specification”.
Vol. 2, Annex 2, Rome, FAO, 1992, p. 1.
- 5) Code of federal regulations “Food and Drug, Title 21”,
Rev. April 1, 2002 Ed., National Archives and Records
Administration, p. 444 (2002).
- 6) The Japanese Specifications and Standards for Food
Additives, 6 th Ed., Japanese Version, Ministry of
Health and Welfare, Japan, p. 34-38, 308-333 (1992).
- 7) Japan's Specifications and Standards for Food Addi-
tives, 7 th Ed., Japanese Version, Ministry of Health
and Welfare, Japan, p. 25-34, 294-315 (1999).
- 8) Kimura, M., Umemoto, M., Tsuji, S., Shibata, T., Yama-
da, M., Kato, Y., Inoue, T., Nakamura, M., Ito, Y., Stud-
ies on the determination of water-soluble chloride and
water-soluble sulfate in Food Blue No. 1 aluminum
lake. Shokuhin Eiseigaku Zasshi (J. Food Hyg. Soc.
Japan), **36**, 717-724 (1995).
- 9) The Japanese Specifications and Standards for Food
Additives, 5th Ed., Japanese Version, Ministry of
Health and Welfare, Japan, p. 26-27 (1986).
- 10) Yamada, M., Miyata, M., Nakamura, M., Shibata, T.,
Ito, Y., Determination of chlorides, sulfates, bromides
and iodides in food coal-tar dyes by ion chromatogra-
phy. Shokuhin Eiseigaku Zasshi (J. Food Hyg. Soc.
Japan), **32**, 548-552 (1991).