電気分解を利用した糖蜜廃液の脱色処理 —脱色効率に及ぼす電解条件の影響—

長野 晃 弘* 仲 本 千 尋** 鈴木 昌 治**

Decolorization Treatment by Electrolysis of Molasses Wastewater -Effects of Electrolysis Conditions on Decolorization Efficiency-

Akihiro NAGANO*, Chihiro NAKAMOTO**, Masaharu SUZUKI**

* Technical Research Laboratories, Sanki Engineering Co., Ltd., 1742-7, Shimotsuruma, Yamato, Kanagawa 242-0001 Japan

** Tokyo University of Agriculture, 1-1-1, Sakuragaoka, Setagaya, Tokyo, 156-8502, Japan

Abstract

Molasses wastewater has been disposed by ocean dumping because of the dark brown color. However, ocean dumping will be banned near future according to London dumping treaty. Many fermentation and sugar industries using molasses require the suitable decolorization treatment. Electrolysis for decolorization was applied for molasses wastewater, mainly wastewater from alcohol distillery, and high decolorization efficiency more than 99% was obtained. The optimal initial condition of color by dilution was 200,000U without NaCl addition. NaCl addition was effective to raise decolorization efficiency which shows the decolorization by unit electron quantity. The voltage and initial pH did not effect the efficiency. The experiments using wastewater from glutamate processing industry, sugar processing industry and sugar refinery industry also showed the effectiveness of electrolysis for decolorization.

Key Words : electrochemical treatment, decolorization, molasses wastewater

1. はじめに

サトウキビや甜菜から蔗糖が製造されるとき、その製造過程から糖蜜と呼ばれる副産物も生産される。この糖蜜は、糖を高濃度に含む粘稠性の高い茶褐色の液体で、アルコール生産、グルタミン酸生産、パン酵母生産等の発酵原料¹⁾として用いられている。発酵過程では主として糖が利用され、黒褐色の廃液が排出される。このような廃液を総称して糖蜜廃液と呼ぶことにする。

糖蜜廃液は、肥料として一部利用されているが、多くの工場ではこれまで海洋投棄により処分してきた。近年、人間の生産活動によって生じた廃棄物は陸上で処分することを謳ったロンドン条約²⁾により海洋投棄が禁止されることもあり、廃液の新たな処理技術が検討されてきた。メタン発酵処理に代表される生物処理方法によりBODを効率よく処理できることは、数多く報告されている³⁾が、これらの生物処理により廃液の色が除去されることはなく⁴⁾、この廃液を河川や近海に放流することは、景

観を損なうためにほとんど不可能である。

脱色法として凝集処理⁵⁾やオゾン酸化法⁶⁾が検討されている。凝集処理では、薬品の使用量が多いことと凝集沈殿で分離された汚泥が二次廃棄物として大量に発生する問題があった。また、オゾン酸化には大量のオゾンが必要となる等の問題があり実用化には至っていない。

電気分解反応を利用した脱色方法は、電極の性質によって大きく2つに分類される。一つは、鉄やアルミニウムを電極として用いこの金属が水溶液中に溶出したときに生成する金属イオンの凝集性を利用する電解凝集法⁷⁾である。この方法では、凝集して除去された汚泥が二次廃棄物となること、糖蜜廃液中には非常に高濃度の色素や他種類の塩類を含んでいることから凝集性が悪く、実用性に乏しい。もう一つの方法は、白金やチタン等の不溶性の素材を電極に使用した酸化脱色がある⁸⁾。この方法は電極反応による酸化力によって色素が酸化分解され脱色される。溶液の電気伝導率が増加すると、反応

* 三機工業株式会社開発本部 〒242-0001 神奈川県大和市下鶴間 1742-7

** 東京農業大学醸造科学科 〒156-8502 東京都世田谷区桜ヶ丘 1-1-1

速度が高まることから高濃度の塩を含む糖蜜廃液の脱色に適用しやすいことや二次廃棄物が発生しない利点があることから、酸化反応を利用した電解脱色特性について検討することにした。

酸化反応を利用した電解脱色は、近年、アゾ色素等の染料排水^{9)~12)}やパルプ廃液¹³⁾に適用し少ないエネルギーで脱色できることが報告されている。しかしながら、糖蜜色素を含む廃液に適用した例は、製糖工場のイオン交換塔の再生排水についての報告¹⁴⁾が一報あるのみで非常に例が少ない。本報告では、糖蜜廃液を電解脱色装置の設計に必要な電氣量を算出できるように、糖蜜を原料としたアルコール蒸留廃液を中心に、電解脱色のパラメータになると思われる初期の色度、塩素イオン濃度、電圧および初期pHと電氣量あたりの除去色度量について調べた。また、その他の糖蜜を利用した産業から発生する着色液についても実験し極めて優れた脱色特性を有することがわかったので報告する。

2. 実験方法

2.1 実験装置

実験装置の概略図を Fig. 1 に示す。実験装置は、水浴中に面積 1.8cm² の白金電極 2 本を電極間距離 55mm で装着した 300ml 容の枝管付き丸底フラスコを設置し、マグネットスターラーで攪拌しながら、直流電源で電流を流す。直流電源では、電圧 E を 5 ~ 30V の間で一定にして電流値を測定した。水浴中の温度は、温度コントローラにより 30℃ に制御した。電極から発生する気泡を速やかに排除できるようにマグネットスターラーで液を攪拌した。

2.2 分析方法およびデータ整理方法

2.2.1 分析方法

適度に希釈した液 220ml を、枝管付きフラスコ内に入れ、電極に一定電圧 E (V) を印荷し直流電流を通じて電気分解した。脱色の状況により適宜サンプリングを行った。1 回のサンプリング量は 8 ml とした。サンプリング時に通電時間 t、廃液量 V、電流値 I、

Fig.1 Experimental Apparatus of Electrolysis for Decolorization

pH、色度 C、COD_{Cr} 濃度 O を測定した。色度は、下水試験方法¹⁵⁾に従った。下水試験方法では、対象が下水であることから分光光度計の波長は 380 ~ 420nm としているが、糖蜜色素を扱った脱色試験で一般に用いられている 475nm の波長を採用した。色度 1,000U の色度標準液 (和光純薬社製) を用いて検量線を作成した。色度の高い試料については吸光度で 0.2 以下になるように希釈して測定した。色度の単位は、Standard Methods for Water and Wastewater¹⁶⁾に従い Unit を用い略して U で表記する。COD_{Cr} 濃度は HACH 社製の吸光光度計による簡易測定法¹⁷⁾にて測定した。その他の分析は JIS-K0102 に従った。

2.2.2 色度量および除去色度量

色度を着色物質の濃度としてではなく量として取り扱う必要があるため、式 1 のように色度量 B を定義した。

$$B = C \cdot V \quad (1)$$

Table 1 Characteristics of Test Solution

	ALC	GLT	CHR	IER	BEA
COD _{Cr} (mg·l ⁻¹)	600,000	310,000	500,000	14,000	600,000
Color (U)	670,000	220,000	270,000	11,000	120,000
pH	5.2	4.0	5.1	7.2	9.2
BOD (mg·l ⁻¹)	200,000	140,000	230,000	6,000	440,000
Total Nitrogen (mg·l ⁻¹)	13,000	31,000	17,000	230	33,000
Total Phosphate (mg·l ⁻¹)	880	260	720	15	420
Total Solids (mg·l ⁻¹)	560,000	400,000	490,000	86,000	800,000
Volatile Solids (mg·l ⁻¹)	400,000	320,000	330,000	13,000	580,000
SO ₄ ²⁻ (mg·l ⁻¹)	15,000	7,600	22,000	3,400	3,400
K (mg·l ⁻¹)	34,000	16,000	41,000	650	58,000
Na (mg·l ⁻¹)	1,000	8,800	16,000	25,000	34,000
Ca (mg·l ⁻¹)	5,100	6,200	29	17	160
Cl ⁻ (mg·l ⁻¹)	30,000	69,000	31,000	37,000	31,000
Fe (mg·l ⁻¹)	480.0	99.0	61.0	0.0	18.0

ALC : Wastewater from molasses alcohol distillery

GLT : Wastewater from glutamate mill

CHR : Wastewater from chromatography process in sugar producing mill

IER : Wastewater from ion exchange process in sugar refinery mill

BEA : Molasses from beat sugar processing mill

B:色度量 (U・I)

C:色度 (U)

V:容積 (I)

サンプリングにより液量が増加するので除去色度量 Q を 2 式によって補正した。

$$Q_i = \sum_{k=1}^i (C_k - C_{k-1}) V_{K-1} \quad (2)$$

i: i 回目のサンプリング時のデータ

2.3 供試糖蜜廃液

下記の糖蜜色素を含む廃液や工程液を入手し実験に用いた。それぞれの分析値を Table 1 に示す。

2.3.1 アルコール蒸留廃液 (ALC)

糖蜜を原料として工業用アルコールを製造している工場の廃液を用いた。廃液は、アルコール発酵液をアルコール蒸発後、濃縮液として排出される。

2.3.2 グルタミン酸ソーダ製造廃液 (GLT)

希釈した糖蜜にビタミン、アンモニア、ミネラルを添加しグルタミン酸生産菌を接種し発酵させた液から、増殖した菌体を除去、濃縮後晶析によりグルタミン酸を生産する。晶析等の工程でグルタミン酸が回収されたあとの高濃度の廃液である。

2.3.3 精糖工場のイオン交換塔再生排水 (IER)

多くの製精糖工場では、製糖工場で得た粗糖を輸入し、さらに炭酸放充やマグネシア吸着後、晶析法によって精白する。排出される着色液をイオン交換で除去するが、それを塩化ナトリウムで再生した液である。

2.3.4 蔗糖製造のクロマト廃液 (CHR)

サトウキビから粗糖を生産する製糖工場では、粗糖を精製していく過程で廃糖蜜を排出するのが一般的であるが、この廃糖蜜中に含まれる糖をクロマト法によって回収する工程を有するプロセスがある。そのクロマト法から排出する廃液である。

2.3.5 ビート糖製造過程の精液 (BEA)

ビート糖から粗糖を生産する工程で同様に生成する廃糖蜜である。

3. 実験結果および考察

3.1 アルコール蒸留廃液の電解脱色

3.1.1 希釈の必要性と電解脱色への影響

アルコール蒸留廃液を蒸留水で希釈し、塩化ナトリウム等の電解質を加えずに電圧 20V および 30V で電解脱色を行った。各希釈液の色度の時間変化を Fig.2 に示す。希釈すると電流が小さくなり脱色に時間を要することになることから、どの液も脱色するまでに 100 時間程度を要している。色度 400,000U の実験では、ほとんど脱色しなかった。200,000U から 13,000U では無色透明近くまで脱色した。例えば色度 130,000U では、脱色後の色度は 12 になり、脱色率にすると 99.98% になる。色度を 13,000U まで希釈すると同じ 116 時間の脱色で脱色率は 98% に、さらに 1,200 まで希釈すると、さらに脱色率は 48% にとどまった。

電気量 q と除去色度量 Q を計算しプロットした結果を Fig.3 に示す。色度 13,000U ~ 200,000U の条件では、電気量に比例して脱色することがわかる。直線部分の勾配 dQ/dq は、 $23 \sim 170 U \cdot I \cdot kC^{-1}$ と計算される。この勾配 dQ/dq は、電気量 1kC で除去できる色度量

Fig.2 Time course of color on the decolorization of ALC diluted with distilled water

Fig.3 Relationship between electricity quantity and removed color quantity on each dilution rate

Fig.4 Effect of initial color by dilution with distilled water on decolorization efficiency

を表すことから、 $\eta = dQ/dq$ と表記し脱色効率とよぶことにする。初発色度と η の関係を Fig.4 に示す。初発色度が高くなるのに従って、 η は大きくなるが、400,000U では、脱色がほとんど起こらないため、0とした。このように希釈倍率を比較的小さくし高濃度で処理することにより脱色効率を高めることができる。

脱色率と CODcr 除去率の関係を Fig.5 に示す。色度 130,000U と 13,000U の場合は、CODcr 除去率が約 60% のとき脱色率は 98% に達した。色度 130,000U のデータから色度除去後も電解処理を継続すると CODcr の除去率は、さらに高まり 99.4% に達した。電解処理は、色素だけではなく有機物の分解にも非常に有効であることがわかる。色度 1,200U の場合は、CODcr 除去率とほぼ同等に色度が除去されている。

CODcr 除去率と脱色率が比例しない原因として、廃液中のすべての有機物が着色に関与していないことがあげられる。メタン発酵によりアルコール蒸留廃液を処理した例では、CODcr 濃度を 50~60% も除去しても色度はほとんど変わらないという報告⁴⁾がある。省エネルギーで脱色するためには、有機物を完全酸化しないで色素を選択的に参加して脱色することが有効である。

3. 1. 2 塩化ナトリウム濃度の影響

電解脱色において有効な電解質の一つに塩化ナトリウムがある。塩化ナトリウム水溶液を電気分解すると陽極から生成した塩素が水酸基と反応し次亜塩素酸が生成する。この次亜塩素酸が色素を酸化して脱色することが大きく寄与するものと考えられている¹⁰⁾。そこで、廃液中の塩素イオン濃度の影響が少ない色度 1,000 のレベルまで廃液を希釈し、塩化ナトリウムを 0.5% から 10% の濃度で添加して電解脱色した。印荷電圧は 5V とした。塩化ナトリウムを添加したものは、電流値が大きくなり、脱色に必要な時間も非常に短くなった。

塩素イオン濃度と脱色効率について整理したものが、Fig.6 である。色度 1,000U まで希釈したものは塩化ナトリウムを添加しない場合には (1) の項でも述べたとおり非常に脱色効率が悪かったが、塩化ナ

Fig.5 Relationship between CODcr and color on the electrolysis decolorization

○ color=130000, I=0.65A
□ color=13000, I=0.10A
△ color=1200, E=0.02A

Fig.6 Effect of Cl^- ion for decolorization efficiency

○ NaCl added ● No addition

Fig.7 Relationship between CODcr and color removal efficiency

● NaCl 0.5%, I=0.03A ■ NaCl 1%, I=0.05A ▲ NaCl 5%, I=0.13A

トリウムを添加することで2オーダも脱色効率が改善できることがわかった。また、色度 130,000U と色度 200,000U のものは塩素イオン濃度が高いにもかかわらず、希釈した液に塩化ナトリウムを加えたものに比べて非常に脱色効率が小さいこともわかった。

塩化ナトリウム 10% の条件で得た脱色効率 1,300 は塩素を添加しない実験で最も高かった 200,000U に希釈した場合の 170 に比べて 7.5 倍にあたる。海水の塩素イオン濃度は $19\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ であるから、海水による希釈は脱色効率を 800 程度まで高めることができると予測され非常に有効な手段であると考えられる。また、初発色度 130,000U、200,000U の高濃度側のデータを除いて塩素濃度と脱色効率の関係は Fig.6 に示す直線で近似できる。その直線を式で表すと式 3 になる。式 3 より、電解条件における塩素イオン濃度がわかれば電解槽の設計が可能になるものと考えられる。

$$\eta = 180[\text{Cl}^{-}]^{0.5} \quad (3)$$

[Cl⁻]: 塩素イオン濃度 ($\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$)

塩化ナトリウムを添加した場合の脱色率と COD_{Cr} 除去率の関係を Fig.7 に示す。COD_{Cr} 除去率 15% で、脱色率が 90% 以上に達しており、Fig.3 に示した塩素を添加しない場合の COD_{Cr} 除去率 60% と比べて 4 分の 1 の COD_{Cr} 除去率で脱色がほぼ完了している。塩化ナトリウムの添加が脱色効率を高める一要因として色素の酸化に選択的に電気が作用したものと推察できる。

このように塩化ナトリウムの添加は脱色に非常に有効であるが有機塩素化合物の生成等のおそれが懸念されるため、処理水の安全性については実用化に先がけて検討を要するものと考えられる。

3. 1. 3 電圧の影響

電気分解に必要な最低電圧は、電解質によっても異なるが、塩化ナトリウムでは 2.2V である¹⁸⁾。これ以上の電圧をかけると、エネルギーが熱に変化し無駄に消費することになる。しかしながら、2.2V では電流値が小さくなり多大な電極面積を要する。水酸化ナトリウムを製造する食塩の電気分解では、方式により 2.7V から 4.2V 程度の電圧を用いている¹⁸⁾。

色度 1,000U に希釈したアルコール蒸留廃液に塩化ナトリウムを 0.5W/V% になるよう調製したときの電圧と電流の関係を Fig.8 に示す。電圧 2.5V から電流が流れはじめ 3V を越えると著しく増加し、5V 以上では電圧に比例して電流が増加する。

この希釈廃液を電圧 5V、10V、15V、20V で電解脱色した結果より求めた電圧と脱色効率 η の関係を Fig.9 に示す。電圧により脱色効率をそれほど大きく変化することはなく、電圧が低い方がわずかに脱色効率があがる傾向が見られた。電圧は省エネルギーの効果に直接かわる重要な要素となるが、ここでは、5V の電圧があれば処理できることを確認した。

3. 1. 4 初期 pH の影響

アルコール蒸留廃液の pH は、5.2 であるが、脱色反応が pH の影響を受けるかどうかを調べるために、色度 1,000U、塩化ナトリウム 0.5W/V% に調製した液に硫酸および水酸化ナトリウムを加え、初期の pH を 3, 7, 9, 11 に設定して電圧 5V で電解脱色を行った。

pH の時間変化を Fig.10 に示す。電解脱色が進むにつれて、pH は中性域にシフトしてくることがわかる。

Fig.8 Relationship between voltage and current on electrolysis for decolorization of ALC (color 1,000U with 0.5% NaCl)

Fig.9 Effect of voltage on decolorization efficiency

Fig.10 Time course of pH on electrolysis for decolorization under different initial pHs

● pH=3, I=0.14A ○ pH=5, I=0.13A
 ■ pH=7, I=0.13A □ pH=9, I=0.13A
 ▲ pH=11, I=0.13A

Fig.11 Effect of initial pH on decolorization efficiency (color=1,000U, E=5V, NaCl 5%)

生成した二酸化炭素が溶解することによるものと考ええる。

Fig.11 に初期 pH と脱色効率の関係を示す。初発 pH を調整しても脱色効率はほとんど変わらない。pH 調整のために硫酸や水酸化ナトリウムといった電解質を加えるため、電流値が増加し脱色時間は短くできるが、脱色効率への大きな影響はない。白金等の電極は低 pH において有機酸による腐食があることが知られており¹⁸⁾、高い pH で操作することには電極の腐食を防ぐ効果があると考えられるが、pH の調整は薬品の使用量を増大させ経済的ではない。

3.2 その他の糖蜜関連液の電解脱色

アルコール蒸留廃液以外にも糖蜜由来の色素を含む多くの廃液がある。そのいくつかの廃液を入手し、電圧 30V で電解脱色を行った。電気量 q と除去色度量 Q の関係を Fig.12 に示す。色度を概ね 1,000U に蒸留水で希釈調整して実験を行った。GLT と IER には、塩化ナトリウムを添加せず、CHR と BEA には 0.5W/V% の塩化ナトリウムを添加している。どの液も 90% を越える高い脱色率を得ることができることがわかった。脱色効率についても 100~400 で ALC とそれほど大きく異なる結果を得ている。脱色効率を比較すると、IER が最も脱色しやすく、BEA が脱色しづらいという結果を得た。BEA は、色度に比べて CODcr が小さく色素と色素以外の有機物の割合が脱色効率に関連していることが考えられる。

次に CODcr 除去率と脱色率の関係を Fig.13 に示す。塩素イオン濃度の低い GLT では CODcr 除去率が 20% 以上になってから脱色率が 80% を越えている。それに比べて CHR、IER、BEA の 3 つは CODcr 除去率が 15% で 90% を越える脱色率が得られた。低い CODcr 除去率で高い脱色率が得られる現象は、ALC を対象液として低色度で塩素イオン濃度が高い条件の実験結果と符合する。色度 10,000U 以下の低レベルの色度まで希釈し $3.0\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$ 以上の塩素イオン濃度があると、糖蜜色素が選択的に脱色できるものと考えられる。

4. まとめ

アルコール蒸留廃液を中心にした糖蜜色素を含む液に対し電解脱色の適用実験を行い、次のようなことがわかった。

- (1) 電解脱色は糖蜜廃液に非常に有効で高度に脱色された処理液を得ることができた。
- (2) 電解質無添加の場合には、色度 200,000U 程度の低希釈倍率で処理することが有効であった。
- (3) 塩化ナトリウムの添加は脱色効率を大きく向上させた。
- (4) 塩化ナトリウム添加時には、電圧 5V~20V の範囲で、脱色効率は大きく変わらなかった。
- (5) 電解脱色では pH が中性にシフトし、初期の pH 調整は脱色効率にほとんど寄与しなかった。

謝 辞

本実験を行うにあたり、新エネルギー産業技術総合開発機構アルコール事業部はじめ、糖蜜色素を含む液を提供いただいた皆様に謝意を表します。

(原稿受付 1998 年 11 月 9 日)

(原稿受理 1999 年 1 月 22 日)

Fig.12 Relationship between electricity quantity and removed color quantity on electrolysis for decolorization of each molasses solution

- GLT color=1,150U, $[\text{Cl}^-]=0.42\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, $I=0.11\text{A}$
- CHR color=580U, $[\text{Cl}^-]=3.0\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, $I=0.53\text{A}$
- ▲ IER color=1,300U, $[\text{Cl}^-]=3.6\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, $I=0.65\text{A}$
- BEA color=1,200U, $[\text{Cl}^-]=3.0\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, $I=0.52\text{A}$

Fig.13 Relationship between COD and color on the electrolysis for decolorization of each molasses solution

- GLT color=1,150U, $[\text{Cl}^-]=0.42\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, $I=0.11\text{A}$
- CHR color=580U, $[\text{Cl}^-]=3.0\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, $I=0.53\text{A}$
- ▲ IER color=1,300U, $[\text{Cl}^-]=3.6\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, $I=0.65\text{A}$
- BEA color=1,200U, $[\text{Cl}^-]=3.0\text{g}\cdot\text{l}^{-1}$, $I=0.52\text{A}$

参 考 文 献

- 1) 通商産業省基礎産業局アルコール課監修(1997)3.1.1 アルコールの製造原料、179-189、技報堂出版
- 2) ロンドン海洋投棄条約 277-284、地球環境条約集(1992)、中央法規
- 3) Sanchez Riera, F., Cordoba, P., Sineriz, F.(1985) Use of the UASB reactor for the anaerobic treatment of stillage from sugar cane molasses, *Biotech. and Bioeng.*, 27, 1710-1716
- 4) 小林浩志、戸田浩之、長野晃弘、有川悦朗(1991)メンブレンバイオリアクターによる糖蜜アルコール発酵廃液の嫌気性処理、第27回衛生工学研究討論会講演集 43-45
- 5) 太宰宙朗、吉田豊、小川誠、小野英男(1963)糖蜜アルコール廃液の凝集沈殿法による脱色について、発酵協会誌、21、432-435
- 6) 市川廣保、平良直秀、和田慎二、辰巳憲司(1996)糖蜜廃液のオゾン酸化と生物処理の併用による処理、水環境学会誌、19、1004-1008

- 7) Zhu, Y., Zhang, Y., Lin, J., Lin, M. (1991) The study of the electrolysis coagulation process using insoluble anodes for treatment of printing and dyeing wastewater, *Water Treat.*, **6**, 2, 227-236
- 8) Ding, Z., Min, C. W., Hui, W. Q. (1987) A study on the use of bipolar-particles-electrodes in decolorization of dyeing effluents and its principle, *Wat. Sci. Tech.*, **19**, 391-400
- 9) Saito, A., Mitsuzawa, S., (1884) Treatment of Dye Waste by Electrolysis Using Porous Sheet Diaphragm, *Proceedings of the Faculty of Science, Tokai University*, **19**, 83-90
- 10) 東義昭、植田直隆 (1991) 電解法による染色排水の脱色について、奈良県工業試験場研究報告, **17**, 11-14
- 11) 波多野泰弘、他 (1996) 染色排水の電解処理、大阪府立産業技術総合研究所報告, **9**, 144-149
- 12) 平良直秀、他 (1997) 固体高分子電解質を用いた電解法による染料含有着色水の脱色処理、水環境学会誌 **21**, 47-50
- 13) Beaudry, E. G., Caro, R. F. (1996) Electrolysis of weak black liquor and bleach effluent, *TAPPI Proceedings*, 263-267
- 14) 堅正五郎、富松孝生 (1977) イオン交換樹脂再生排水の電気処理について、製糖技術研究会誌 **27**, 95-101
- 15) 建設省都市局下水道部・厚生省生活衛生局水道環境部監修, (1997)、色度 2. 透過光測定法、95-96、下水試験方法上巻、日本下水道協会
- 16) APHA-AWWA-WPCF edited (1975) Color, 64-66, Standard Methods for the examination of Water and Wastewater, 14th edition, American Public Health Assc.
- 17) Gobbs, C. R., (1987) Introduction to Chemical Oxygen Demand, In *Technical Information Series, Booklet No. 8*, Hach Company
- 18) 笛木和夫編 (1985) 電気分解とその工業, 259-293 電気化学便覧第 4 版、丸善