

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5117849号
(P5117849)

(45) 発行日 平成25年1月16日 (2013. 1. 16)

(24) 登録日 平成24年10月26日 (2012. 10. 26)

(51) Int. Cl. F 1
C O 2 F 1/78 (2006.01) C O 2 F 1/78

請求項の数 16 (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2007-517307 (P2007-517307)
 (86) (22) 出願日 平成17年6月28日 (2005. 6. 28)
 (65) 公表番号 特表2008-504111 (P2008-504111A)
 (43) 公表日 平成20年2月14日 (2008. 2. 14)
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2005/053044
 (87) 国際公開番号 W02006/000591
 (87) 国際公開日 平成18年1月5日 (2006. 1. 5)
 審査請求日 平成20年6月30日 (2008. 6. 30)
 (31) 優先権主張番号 04447152.2
 (32) 優先日 平成16年6月28日 (2004. 6. 28)
 (33) 優先権主張国 欧州特許庁 (EP)

前置審査

(73) 特許権者 501163451
 レクティセル エヌ. ヴィー.
 ベルギー国 1400 ブリュッセル,
 オリンピアデンラーン 2
 (73) 特許権者 506427923
 イ. ジェ. ア. エス. ベヴェベア
 ベルギー ベー2970 シルド カタリ
 ナドレーフ 21
 (74) 代理人 100082005
 弁理士 熊倉 禎男
 (74) 代理人 100084663
 弁理士 箱田 篤
 (74) 代理人 100093300
 弁理士 浅井 賢治

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 汚染水の精製方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

第一の濃度の少なくとも一つの難 - 生物分解性又は非 - 生物分解性有機化合物を含む汚染水の精製方法であって、該汚染水を少なくとも一つのオゾン含有ガスと接触させることにより上記有機化合物が酸化される方法において、

第一の処理段階において、汚染水中に存在する前記有機化合物の一部が、前記有機化合物の第一の濃度が第二の濃度に減少する方法で、該汚染水を上記オゾン含有ガスと接触させることにより酸化され、

該第一の処理段階の後に、前記有機化合物の第二の濃度が、第二の濃度の最大で3分の2である第三の濃度まで水性溶液を用いて希釈することにより減少され、

第二の処理段階において、該汚染水に存在する上記有機化合物の残部が、前記第三の有機化合物の濃度が第四の濃度にまで減少する方法で、該希釈された汚染水を上記オゾン含有ガスと接触させることにより酸化され、

該第二の処理段階の後に、上記有機化合物の第四の濃度を、さらなる水性溶液を用いて、該第四の濃度の最大で3分の2である第五の濃度まで希釈することにより減少させ、かつ、

第三の処理段階において、該汚染水に存在する前記有機化合物の残部が、該第五の濃度が第六の濃度にまで減少する方法で、該さらに希釈された汚染水を上記オゾン含有ガスと接触させることにより酸化される、

ことを特徴とする方法。

10

20

【請求項 2】

上記有機化合物の第二の濃度を、該第二の濃度の少なくとも 10 分の 1 である第三の濃度にまで減少させることを特徴とする、請求項 1 に記載する方法。

【請求項 3】

該第一及び第二の処理段階において、該汚染水及び希釈された汚染水を、それぞれ、少なくとも 10 回、上記オゾン含有ガスと接触させることを特徴とする、請求項 1 又は 2 に記載する方法。

【請求項 4】

該第一の処理段階において、汚染水 1 立方メートル当たり少なくとも合計で 10 ノルマル立方メートルのオゾン含有ガスを、該汚染水中に注入することを特徴とする、請求項 1 から 3 のいずれかに記載する方法。

10

【請求項 5】

該第二の処理段階において、該希釈された汚染水 1 立方メートル当たり合計で少なくとも 8 ノルマル立方メートルのオゾン含有ガスを、該希釈された汚染水中に注入することを特徴とする、請求項 1 から 4 のいずれかに記載する方法。

【請求項 6】

該第一及び第二の処理段階の両方において、上記有機化合物が、合計で、少なくとも 20 分、オゾンと反応することを特徴とする、請求項 1 から 5 のいずれかに記載する方法。

【請求項 7】

上記有機化合物の第四の濃度を、該第四の濃度の少なくとも 10 分の 1 である第五の濃度まで減少させることを特徴とする、請求項 1 から 6 のいずれかに記載する方法。

20

【請求項 8】

該第三の処理段階において、さらに希釈された汚染水 1 立方メートルに対して、合計で、少なくとも 4 ノルマル立方メートルのオゾン含有ガスが、該さらに希釈された汚染水中に注入されることを特徴とする、請求項 1 から 7 のいずれかに記載する方法。

【請求項 9】

該第三の処理段階において、上記有機化合物が、合計で、少なくとも 40 分オゾンと反応することを特徴とする、請求項 1 から 8 のいずれかに記載する方法。

【請求項 10】

上記オゾン含有ガスが、少なくとも 3 w t % のオゾンを含むことを特徴とする、請求項 1 から 9 のいずれかに記載する方法。

30

【請求項 11】

上記オゾン含有ガスが、少なくとも 8 w t % のオゾンを含むことを特徴とする、請求項 1 から 10 に記載する方法。

【請求項 12】

前記オゾン含有ガスが、少なくとも 80 % の酸素を含む酸素を豊富に含むガスから出発して調製されることを特徴とする、請求項 1 から 11 のいずれかに記載する方法。

【請求項 13】

上記有機化合物が、少なくとも 30 k P a の圧力で酸化されることを特徴とする、請求項 1 から 12 のいずれかに記載する方法。

40

【請求項 14】

さらなる処理段階においてオゾンを用いてさらに精製された水が、上記水性溶液として、及び / 又は所定の処理段階の後の水の希釈に対する上記のさらなる水性溶液として使用されることを特徴とする、請求項 1 から 13 のいずれかに記載する方法。

【請求項 15】

上記汚染水が、燃焼ガスを含むことを特徴とする、請求項 1 から 14 のいずれかに記載する方法。

【請求項 16】

上記汚染水が、水素ガスの酸化を用いたポリウレタンフォームの網目化から得られるガスを含むことを特徴とする、請求項 1 から 15 に記載する方法。

50

【発明の詳細な説明】

【発明の詳細な説明】

【0001】

(I. 解決すべき課題)

有機化学的な汚染物質の組み合わせで負荷された、重度に汚染された工業廃水を、既存の技術を用いて再利用可能な水にまで完全に精製することは実質的に不可能である。この場合における詳細な例は、COD、TOC、MAH、VOC I 及びHCN値の単独又は組み合わせにおいて高い値から非常に高い値を有する廃水である。本発明の目的は、水に対して負荷されるいかなる付加的な塩の添加の必要を伴わない、廃水の完全な精製を可能とする新規な方法を提供することである。

10

【0002】

(II. 該システムの具体的な構成要素)

本明細書で後に述べる該システムにおいて、オゾンは、精製されかつ強力に乾燥された空気(露点<-65)から出発するか、又は80-99wt%の濃度を有する酸素(すなわち酸素を豊富に含むガス)から出発して生成される。以下の記載において、酸素に言及する場合には、該酸素の品質が意味される一方で、空気に言及する場合には、該空気の品質が意味される。

良好で、迅速かつ完全なオゾンとの反応を得るためには、いくつかの特定の構成要素が存在しなければならない。図1は、例示の目的で、これらの構成要素、より詳細には以下の構成要素が存在する可能な配置を示す：

20

【0003】

1. オゾン注入器(1)：

該ガス注入器は、水の流れにおいて、細かい気泡の均一な分散を確実にする。水との最大接触面の結果、該微細に分けられた気泡は、水中に迅速に該ガスを溶解できる。空気又は酸素から得られ、溶解された状態にあるオゾンのみが、水の有害な成分と反応できる。該注入器は、取り付けられたいくつかの分散器の内部に沿って、ガスが充填された輪から構成され、これにより、オゾンを豊富に含むガス混合物が、水の区画の全体に均一に分散される。スプレーヘッドにおける穴のサイズ及び分散器の数は、測定されるべきガスの流速に依存する。該注入器は、結果として通常の管径の区画の狭小化に帰着するような方法において好ましくは製造される。増加した乱流及び狭小化を同時に作り出すことにより、タンクに貯蔵した静水圧における急激な落下が局所的に作り出される。この結果として、該オゾンを豊富に含むガスが吸い込まれ、及び水流と共にすぐに完全に混合される。該注入器は、ポンプ(4)の送出側に沿って配置される。

30

【0004】

2. ガス接触システム(2)：

該接触システムの目的は、該微細に分けられたガスを水に対して溶解させることを可能とすることである。最終的には、水中に既に存在する溶解したガスは、-通常は空気により、ひいては空気と均衡状態にあることにより-部分的に脱気される。この曝気-脱気工程は非常に多くの物理的パラメーター(塩含量、温度、アルカリ度等)に依存するが、関与するガスの総圧及び分圧にも依存する。実際のところ、少数のこれらパラメーター、すなわち温度、総圧及び分圧に影響を与えて、オゾンの溶解性を増加させることが可能である。

40

該温度は、中間のタンクの使用により制御することができ、該タンクは、処理されるべき流れの容量と相関して、水流を最適値まで冷却することができ、該値はオゾン分子の溶解度因子及び分解と相関しており、及び過度に低い温度で結晶化し得る溶解した成分と相関している。該温度が、オゾンの適切な機能を確実にすることができる程度に低いことがここでの基準であるが、一方で結晶化により生じる沈殿を避けることができるように、十分に高く保持されなければならない。実際には、30より低い温度に保持されることが好ましいが、該方法は、例え効率の減少を伴っても、いかなる問題を伴うことなく、最大で40-45で行える。

50

【 0 0 0 5 】

該システムの総圧は、30及び250 kPaの間、好ましくは50から150 kPaの間で維持される。オゾンガス混合物の分圧は、オゾン発生器においてオゾンが生成される間に調節される。本発明に従う方法において、3及び16 wt %の間のオゾン濃度が、好ましく使用される。

該接触システムは、コンパクトな方法で取り付けられたパイプ（例えば、パイプのコイル）のシステムから成り、該システムは、水流に的確な物理的特徴を与えて、可能性のある最良の方法においてガスを溶解させる。該流れのレイノルズ数は、乱流領域にあり、50,000及び300,000の間の値を有する。

【 0 0 0 6 】

3. 相分離器（3）又は反応容器：

該相分離器は、以下の4つの機能を有する：

a. ガス相の分離。このガス相は、水から放出されたガス（大部分は窒素）、及びもはや溶解性でない添加されたオゾン含有ガスから成る。加えて、反応において形成されたCO₂の一部も発散される。該発散されたガスは、注入器を用いて注入されたオゾン含有ガスの量にほぼ等しい。

b. 相分離器 / 接触システムのシステム全体に関する圧力の調節。

c. 溶解した酸素 / オゾンを機能させること、この場合においては、水が再びオゾン注入器及びガス接触システムに送られる前に、水中の汚染物質と反応させることを可能とするため必要とされる保持時間の創出。

d. 該相分離器は、pH調節機能も有する。生成したCO₂の発散は、水の酸性化を防止する。特にpHが5より低く低下した場合、該方法を妨害するので、酸性化が好ましく避けられる。

【 0 0 0 7 】

4. 循環ポンプ（4）：

循環ポンプは、接触システム及び相分離器における水を循環させるために使用する。該ポンプは、該相分離器から水を抽出し、かつ水を接触システム中に送り込む。該オゾン注入器（1）は、該接触システムの注入口に設置される。該循環ポンプは、好ましくは、非脈動タイプのものであり、及び好ましくは容積移送式ポンプタイプの一つである。

【 0 0 0 8 】

III. 多段階の精製技術の考察

該水は、少なくとも二つの段階において酸素 / オゾンガスを用いて処理されるが、一般には3つの段階で処理される。一般的に仮定されるものとは逆に、本方法は、有機成分を完全に分解し、とりわけ、基本的な分解生成物であるCO₂、H₂O、NO₂及びNO₃を得ることを可能とする。

【 0 0 0 9 】

第一の段階：

第一の段階（精製プラントの第一の区画1、2、3、4において行われる）において、該廃水（5）は、酸素又は空気に基づいたオゾンの高い用量を用いて1時間処理される。該水は、オゾン / 水接触システム（2）において適度に乱れた流れを創出し、かつ5から15秒の保持時間が存在するような方法で、ポンプ（4）を用いて再循環される。ポンプの下流で、オゾンは3から16 wt %、好ましくは6から16 wt %の濃度において、継続的に測定される。オゾンを豊富に含むガス混合物が溶解した後、該水は相分離器（3）に流れ、ここでこの段階において反応したオゾンが該水相から分離され、かつオゾン及び酸素で飽和した水が、循環が再開する前に、100から200秒の反応時間を受ける。

1時間当たり20から40回の回復割合が適用される。

該ガス / 水の割合は、10から25（ノルマルm³ガス / m³水）である。

接触システム及び相分離器における圧力は、30から250 kPa、好ましくは50から150 kPaである。

【 0 0 1 0 】

第二の段階：

第一の段階における処理の後、該水は、純水（水道水）、精製された水（6）又は異なる由来の廃水（7）（好ましくは、より容易に分解可能な有機物質を含むもの）を用いて2から4倍に希釈され、及び該全容量は、第一の段階におけるものと同じ方法で処理される（しかし、このときは、精製プラントの第二の区画1'、2'、3'、4'においてである）。

この段階で使用されるオゾン含有ガスは、好ましくは酸素から出発して生成される。該オゾン濃度は、6及び16wt%の間で変化する。適用される圧力は、30から150kPaを含む。

1時間当たり20から40回の回復割合が適用される。

10

該ガス/水の割合は、8から20（ノルマル m^3 ガス/ m^3 水）である。

【0011】

第三の段階：

第二の段階における処理の後に、該難 - 生物分解性又は非 - 生物分解性の有機化合物又は化合物群の濃度が、まだ検出限界より低くなっていない及び/又は望まれる値よりも低くなっていない場合、該水は再度、純水（水道水）、精製した水（6）又は異なる由来の廃水（8）（好ましくは、より容易に分解可能な有機物質を含むもの）を用いて2から4倍に希釈される。得られた廃水の全容積は、オゾン及び酸素の用量を用いて、2時間処理される（この場合、精製プラントの第三の区画1''、2''、3''、4''においてである）。

20

この段階で使用されるオゾンは、好ましくは酸素から出発して生成される。

該水は、ポンプ（4''）を用いて、適度に乱れた流れをガス/水接触システム（2''）において作り出し、及び4から12秒の保持時間が存在するような方法において再循環される。該種々のガスの流れは、該ポンプの送出側に添加される。

該オゾン/酸素ガスが溶解した後、該水は、相分離器（3''）に流れ、ここで反応したガスが水相から分離され、及び該オゾン及び酸素により飽和した水は、再度循環が始まる前に、200から500秒の反応時間を受ける。

【0012】

該接触システム及び相分離器における圧力は、30から150kPa、好ましくは50から150kPaである。該適用されるオゾン含有ガスは、好ましくは6から16wt%のオゾン濃度を有する。

30

1時間当たり6から12回の回復割合が適用される。

該ガス/水割合は、4から10（ノルマル m^3 ガス/ m^3 水）である。

該三つの段階の上記典型的な説明において、1及び2時間のオゾン処理が、それぞれ特定される。予想される効果を得るため、廃水の特定のタイプ及び特定の精製プラントに対して、種々の処理において適用されるべき最小の処理持続時間を決定するには、試験が実際には必要とされるであろうことが明らかである。そのため、本発明は、例として与えられた上記パラメーターに限定されない。

【0013】

IV. 比較試験：

40

1. 試験設備

試験を行うため、図1において示される精製プラントの第一の部分1、2、3、4に対応する試験設備を製造した。特定の処理段階の後、オゾンを用いて精製された水を希釈するために、いくらかの水が除かれ、かつ希釈水で置き換えられた。該希釈された廃水は、続いて同じ精製設備において、再度オゾンを用いて処理された。

オゾン注入器： 150g/h（純粋な酸素に基づいて、オゾン濃度11.9%）；
ガス/水割合： 約10 ノルマル m^3 ガス/ m^3 水。

ガス接触システム： 8mの長さ及び25mmの直径を有する水ホースにより形成された。

水容積パイプシステム： 4リットル

50

保持時間：6 秒

作動圧力：60 から 70 kPa

相分離器：90 リットルの水容積容器

保持時間：135 秒

動作圧力：60 から 70 kPa

循環ポンプ：35 から 40 リットル / 分の出力

【0014】

2. 試験の実施

試験順序：

1. 試験設備の容器(3)を、90 リットルの処理すべき廃水の代表的な試料を用いて充填する。 10

2. オゾン発生器を始動し、及び循環ポンプ(4)を始動する。

3. 1 時間後、該オゾン発生器を停止し、該循環ポンプ(4)を停止し、及び30 リットルを容器(3)に残すような方法において、60 リットルを排水する。

4. 60 リットルの量の望ましい水(水道水又は他の軽度に汚染された廃水)を、試験設備の容器(3)に添加し、第一の段階において処理された水を希釈する。

5. 該オゾン発生器を始動し、及び該循環ポンプ(4)を始動する。

6. 1 時間後、オゾン発生器を停止し、循環ポンプ(4)を停止し、及び60 リットルを再度容器(3)から排水する。

7. 60 リットルの量の望ましい希釈水(水道水又は他の軽度に汚染された廃水)を、試験設備の容器(3)に添加する。 20

8. 該オゾン発生器を始動し、及び該循環ポンプ(4)を始動する。

9. 2 時間後、試験を停止する。

【0015】

3. 試験結果

処理されるべき原廃水のいくつかの特性値：

- COD：1,100 から 1,800 mg/l

- HCN：75 から 85 mg/l

- ベンゼン：約 2,000 µg/l

廃水は、水素ガスの酸化を用いたポリウレタンフォームの網目化 (reticulation) の間に生成した燃焼ガスを捕捉した水である。該廃水は、大量の難分解性の有機化合物、例えばベンゼン (2,650 µg/l)、トルエン (338 µg/l)、エチルベンゼン (8 µg/l)、パラ-キシレン及びメタ-キシレン (4.7 µg/l)、スチレン (143 µg/l) 並びに o-キシレン (4 µg/l) (MAH) を含んでいた。本発明に従った方法を用いて、特に上記試験手順の使用により、これら全ての難分解性有機化合物の含量が、0.5 µg/l の検出限界より低くなるまで減少できたことが、試験から明らかとなった。塩化ビニル、ジクロロメタン、トランス 1,2-ジクロロエチレン、1,1-ジクロロエタン、シス 1,2-ジクロロエチレン、トリクロロメタン、1,1,1-トリクロロエタン、テトラクロロメタン、トリクロロエチレン、1,1,2-トリクロロエタン、テトラクロロエチレン、クロロベンゼン、1,3-ジクロロベンゼン、1,4-ジクロロベンゼン及び 1,2-ジクロロベンゼン (VOC1) を含む地下水を用いたさらなる試験は、これら化合物の含量が、0.5 µg/l の検出限界よりも低くなるまで減少させることもできることを示した。以下に、ポリウレタンフォームの網目化 (reticulation) から得られた廃水の処理後の、COD 値及び HCN 値の測定から得られた結果の、より詳細な考察が存在するであろう。 30 40

【0016】

以下の仕様を用いた合計 6 の試験が行われた：

- 試験 1：pH の管理なし、弱い循環ポンプ (ダイアフラムポンプ)、廃水の処理を 4 時間持続し、及び現行のオゾン発生器を用いたオゾンの継続的な添加を含む。

- 試験 2：pH の管理なし、良好な循環ポンプ、廃水の処理を 8 時間持続し、及び現行の 50

オゾン発生器を用いたオゾンの継続的な添加を含む。

- 試験 3 : pH を NaOH の添加により管理し (指針点 pH 7 から 8)、廃水の処理をそれぞれ 7 時間及び 8 時間持続し、及び現行のオゾン発生器を用いたオゾンの継続的な添加を含む。

- 試験 4 : 試験は、上記試験手順に従って行われ、段階 4 において 42 mg / l の COD (軽度の窒素及びリン汚染) を有する 60 リットルの廃水、及び段階 7 において 60 リットルの水道水の添加を伴う。

- 試験 5 : 試験は、上記試験手順に従って行われ、段階 4 において 127 mg / l の COD (塩素処理された生成物、例えば塩化ビニル) を有する 60 リットルの廃水、及び段階 7 において 60 リットルの水道水の添加を伴う。

- 試験 6 : 試験は、上記試験手順に従って行われ、段階 4 において 60 リットルの水道水、及び段階 7 において 60 リットルの水道水の添加を伴う。

【 0017 】

COD 及び HCN に関する試験結果が、各種試験に対する以下のものとして与えられる。

パーセンテージは、初期の値と比較した減少量を示し、逆算により得られる希釈効果を伴う。

例 : 試験手順における段階 9 の後の精製された水の COD 値は、11 mg / l であるが、99 mg / l に逆算される (2 回 3 倍希釈されており、従って全体で 9 倍希釈されている)。初期の COD は、例えば 1,183 mg / l であったため、これにより COD は 100 % から 9.29 % に低下する。

【 0018 】

表 1 : COD 値の変遷

【表 1】

試験	1	2	3	4	5	6
攪拌	弱い (ダイヤフラム)	良好	良好	良好	良好	良好
pH 制御	なし	なし	NaOH			
本発明に従ったシステム	-	-	-	+	+	+
水道水				段階 7	段階 7	段階 4 及び 7
汚染された地下水					段階 4: COD 127 mg/l	
容易に分解できる化合物を有する廃水				段階 4 COD 42 mg/l		
0	100.00%	100.00%	100.00%	100.00%	100.00%	100.00%
1	95.50%	80.80%	71.50%	66.27%	65.42%	53.51%
2	85.90%	72.30%	56.20%	32.46%	37.33%	35.12%
3	81.50%	67.50%	48.40%	19.78%	17.86%	28.60%
4	83.50%	55.40%	34.90%	8.37%	7.56%	6.02%
5		43.00%	20.90%			
6		29.06%	15.12%			
7		21.06%	10.00%			
8		19.09%	7.30%			

【 0 0 1 9 】

表 2 : H C N 値の変遷

10

20

30

40

【表 2】

試験	1	2	3	4	5	6
攪拌	弱い (ダイヤ フラム)	良好	良好	良好	良好	良好
pH 制御	なし	なし	NaOH			
本発明に従 ったシステ ム	-	-	-	+	+	+
水道水				段階 7	段階 7	段階 4 及び 7
汚染された 地下水					段階 4: COD 127 mg/l	
廃水				段階 4 COD 42 mg/l		
0	100.00%	100.00%	100.00%	100.00%	100.00%	100.00%
1	68.70%	7.20%		13.75%	15.36%	31.43%
2	37.90%	5.60%	5.30%	3.87%	4.71%	10.37%
3	40.50%	4.30%	3.70%	0.55%	0.58%	0.50%
4	34.50%	3.10%	2.80%	0.55%	0.42%	0.57%
5		3.60%	1.90%			
6			1.50%			
7			1.30%			
8		3.60%				

10

20

【0020】

30

表 1 及び 2 に示す結果は、図 2 及び 3 においてもそれぞれ示されている。その結果は、より良好な結果が、本発明に従った方法を用いて得ることができること、及び pH の調整は全く必要ないことを示し、これにより該水の余分な塩負荷は全く起こらない。本発明に従う方法のさらなる利点は、容易に分解できる化合物で汚染された廃水も、本方法により同時に精製できることである。

異なる由来の廃水が精製でき、特に土壌浄化用地に由来する廃水も、精製できることが、本発明から明らかであろう。

【図面の簡単な説明】

【0021】

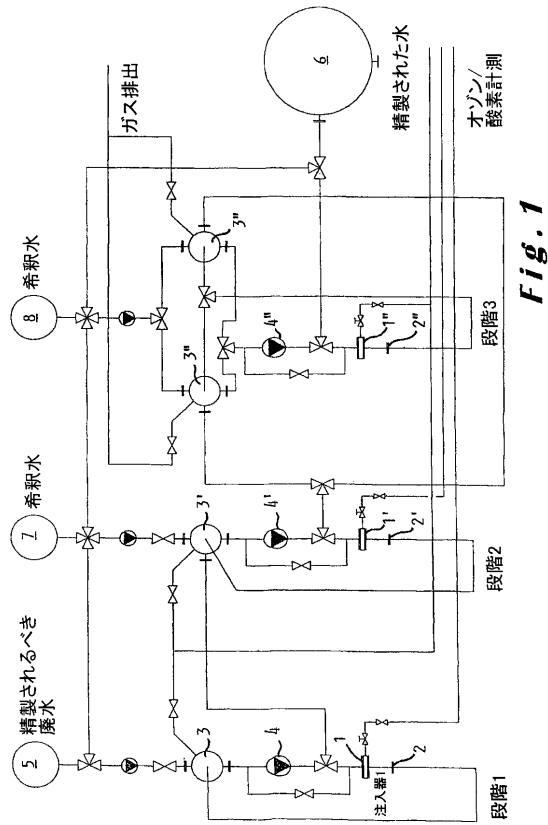
【図 1】例示の目的で示される構成要素の可能な配置

40

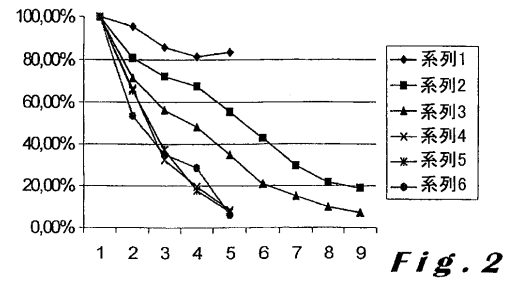
【図 2】COD 値の変遷

【図 3】HCN 値の変遷

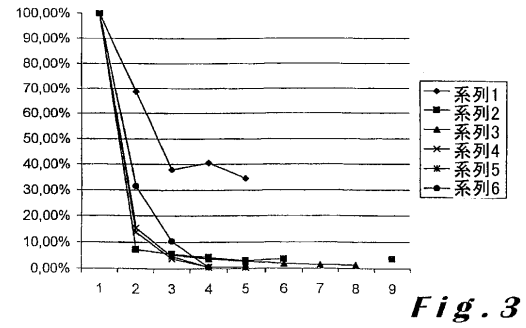
【図 1】



【図 2】



【図 3】



フロントページの続き

(72)発明者 ネイ アレン

ベルギー ベー 9 2 3 0 ウェートレン ダムストラート 2 レクティセル内

(72)発明者 ウーテル リューク

ベルギー ベー 2 9 7 0 シルド カタリナドレーフ 2 1 イ . ジェ . ア . エス . ベヴェベア
内

審査官 富永 正史

(56)参考文献 特開平 0 6 - 1 2 6 2 8 8 (J P , A)

特開昭 5 5 - 0 5 9 8 9 7 (J P , A)

特開 2 0 0 3 - 3 0 0 0 3 6 (J P , A)

特開 2 0 0 0 - 3 0 1 1 7 5 (J P , A)

特開昭 5 1 - 0 0 5 8 6 6 (J P , A)

特開昭 5 1 - 1 2 0 0 5 2 (J P , A)

特開 2 0 0 0 - 1 1 7 2 7 2 (J P , A)

特開 2 0 0 4 - 0 6 6 1 9 3 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

C02F 1/70-1/78