

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2014 年 1 月 30 日(30.01.2014)

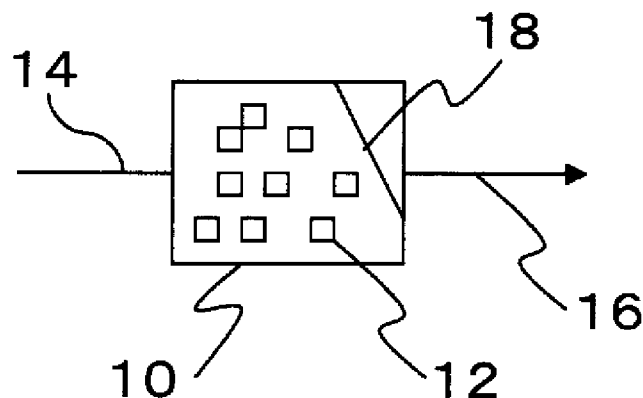


(10) 国際公開番号
WO 2014/017429 A1

- (51) 国際特許分類:
C02F 3/34 (2006.01) *C02F 3/00* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/069776
- (22) 国際出願日: 2013 年 7 月 22 日(22.07.2013)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2012-166093 2012 年 7 月 26 日(26.07.2012) JP
- (71) 出願人: 学校法人 東洋大学(TOYO UNIVERSITY) [JP/JP]; 〒1128606 東京都文京区白山 5 丁目 2 8 番 2 0 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 角野 立夫(SUMINO, Tatsuo); 〒3740193 群馬県邑楽郡板倉町泉野 1-1-1 東洋大学 生命科学部内 Gunma (JP).
- (74) 代理人: 松浦 憲三(MATSUURA, Kenzo); 〒1630223 東京都新宿区西新宿二丁目 6 番 1 号 新宿住友ビル 2 3 階 私書箱第 1 7 6 号 新都心国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR TREATING AMMONIA NITROGEN-CONTAINING WATER AT LOW TEMPERATURE

(54) 発明の名称: アンモニア性窒素含有水の低温処理方法および装置



(57) Abstract: A method and a device are provided with which ammonia nitrogen-containing water can be stably treated even when the water temperature is 15°C or lower. The method includes a nitrification step in which ammonia nitrogen-containing water having an ammonia nitrogen concentration of 1-300 mg/L is brought into contact with a carrier on which nitrifying bacteria have been preferentially propagated to such a degree that the bacteria are detected after 8-week cultivation in an ammonium sulfate solution having a concentration as high as 5,000 mg/L or above, in an aerobic environment at a temperature of 0-15°C to thereby nitrify the ammonia contained in the ammonia nitrogen-containing water.

(57) 要約: 水温が 15°C 以下でも安定的にアンモニア性窒素含有水の処理が行える方法および装置を提供する。アンモニア性窒素濃度が 1~300 mg/L のアンモニア性窒素含有水と、濃度 5000 mg/L 以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で 8 週間培養して検出される硝化菌群が優先繁殖した担体とを、好気性雰囲気下、0°C 以上 15°C 以下で接触させて前記アンモニア性窒素含有水中のアンモニアを硝化する硝化工程、を含む。



WO 2014/017429 A1

明 細 書

発明の名称 : アンモニア性窒素含有水の低温処理方法および装置 技術分野

[0001] 本発明は、アンモニア性窒素を低温で生物学的に硝化する、アンモニア性窒素含有水の処理方法および装置に関するものであり、特に、下水処理、産業廃液処理、湖沼の浄化などの環境浄化や、浄水場および水族館などでの水中アンモニア除去に関する。

背景技術

[0002] 食品工場や化学工場などでは、低濃度から高濃度のアンモニアを含む廃液が排出される。これらの廃液は、水域の富栄養化や溶存酸素の低下などの原因となるため、工場等から排出する前に処理を行う必要がある。

[0003] 一般的に、中～高濃度のアンモニア処理では生物処理が多く行われている。廃水中のアンモニア性窒素を生物学的に処理する場合、通常、活性汚泥法を用いた処理方法が行われる。この方法は、硝化菌によってアンモニアを硝化して硝酸または亜硝酸とし、次いで脱窒菌によって更に窒素ガスへと変換することで、廃水に含まれていた窒素を除去する方法である。

[0004] このような活性汚泥法に用いる硝化菌として、本発明者等はこれまで、濃度 5000 mg/L 以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で 8 週間培養して検出される硝化菌群 (A H 菌群、(Ammonia oxidizing bacteria detected by MPN method using High ammonium media)) (MPN method: most probable number method)、および濃度 100 mg/L の低濃度な硫酸アンモニア溶液中で 8 週間培養して検出される硝化菌群 (A L 菌群、(Ammonia oxidizing bacteria detected by MPN method using Low ammonium media)) を研究し、開示してきた (特許文献 1 および非特許文献 1)。その過程で、A H 菌群は高濃度のアンモニア性窒素含有水 (400 mg/L ~ 500 mg/L 程度) の処理に対して有効であり、A L 菌群は低濃度のアンモニア性窒素含有水 (約 100 mg/L 以下) の処理に対して有効であるとの知見を得た。一

一般的な家庭排水のアンモニア性窒素濃度は20～40mg/L程度の低濃度であるため、そのような排水の処理には低濃度のアンモニア性窒素含有水の処理に適したAL菌群が主に用いられている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特許3252887号

非特許文献

[0006] 非特許文献1：角野立夫、江森弘祥、「包括固定化微生物担体を用いた高度処理技術」、用水と廃水、1997、vol. 39、No. 8、p. 24～29

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 通常、生活排水は地下の下水管を通して廃水処理場に運ばれることから、冬場でも外気に比べて温度が下がりにくい。しかも廃水処理タンクが覆蓋などの断熱加工されている場合が多いことから、廃水の温度は年間を通して大きく変化せず、冬場であっても15℃を下回ることはほとんどなく、10℃を下回るのは非常に稀である。しかし、寒冷地では冬場に廃水温度が15℃を下回り、10℃を下回ることもある。このような場合に、AL菌群を用いた廃水処理では処理能力が大幅に低下する場合があることが判明した。これはAL菌群のアンモニア硝化活性が15℃以下で低下し、10℃を下回るとその活性が著しく低下することに起因するものと考えられている。そして10℃以下では、菌を高濃度に保持しても硝化が進行し難く、硝化がほとんど進行しないことが分かった。したがって、水温が15℃以下でも安定的にアンモニア性窒素含有水の処理が行える方法および装置が求められている。

[0008] 本発明はこのような課題に対処するものであり、通常は高濃度のアンモニア性窒素含有水の処理に用いられるAH菌群を用いて低温で廃水の処理を行うものである。これは、本発明者らが鋭意研究の結果知得した、AH菌群が

低温においてもその処理活性が大幅に低下せずに、安定してアンモニア性窒素含有水の処理を行うことができるとの知見に基づく。

[0009] したがって、本発明の目的は、15℃以下の低温であっても安定してアンモニア性窒素含有水を処理することができる方法を提供することである。

[0010] また、本発明の別の目的は、15℃以下の低温であっても安定してアンモニア性窒素含有水を処理することができる装置を提供することである。

[0011] また、本発明のさらに別の目的は、15℃以下の低温であっても安定してアンモニア性窒素含有水を処理することができるA H菌群を保持した担体を提供することである。

課題を解決するための手段

[0012] 本発明の一態様に係るアンモニア性窒素含有水を処理する方法は、
アンモニア性窒素濃度が1～300mg/Lのアンモニア性窒素含有水と、濃度5000mg/L以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で8週間培養して検出される硝化菌群が優先繁殖した担体とを、好気性雰囲気下、0℃以上15℃以下で接触させて前記アンモニア性窒素含有水中のアンモニアを硝化する硝化工程、
を含む。

[0013] また、本発明の別の態様に係るアンモニア性窒素含有水を処理する方法は、
、

アンモニア性窒素濃度が100～1000mg/Lのアンモニア性窒素含有水と微生物保持担体とを接触させて、濃度5000mg/L以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で8週間培養して検出される硝化菌群を優先培養する培養工程と、

前記培養された硝化菌群と、アンモニア性窒素濃度が1～300mg/Lのアンモニア性窒素含有水とを、好気性雰囲気下、0℃以上15℃以下で接触させて前記アンモニア性窒素含有水中のアンモニアを硝化する硝化工程とを含む。

[0014] また、本発明の別の態様に係るアンモニア性窒素含有水の処理装置は、

硝化槽と、

前記硝化槽にアンモニア性窒素濃度が $1 \sim 300 \text{ mg/L}$ のアンモニア性窒素含有水を導入する導入部と、

前記硝化槽から処理した前記アンモニア性窒素含有水を排出する排出部とを備え、

前記硝化槽の中に濃度 5000 mg/L 以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で8週間培養して検出される硝化菌群が優先繁殖した担体が含まれており、

前記硝化槽では 0°C 以上 15°C 以下で、アンモニア性窒素含有水を処理する。

[0015] また、本発明の別の態様に係るアンモニア性窒素含有水の処理装置は、濃度 5000 mg/L 以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で8週間培養して検出される硝化菌群を培養する培養槽と、

前記培養槽にアンモニア性窒素濃度が $100 \sim 1000 \text{ mg/L}$ のアンモニア性窒素含有水を導入する第1の導入部と、

前記培養槽から培養された前記硝化菌群を放出する放出部と

前記放出部に接続された硝化槽と、

前記硝化槽にアンモニア性窒素濃度が $1 \sim 300 \text{ mg/L}$ のアンモニア性窒素含有水を導入する第2の導入部と、

前記硝化槽から処理した前記アンモニア性窒素含有水を排出する排出部とを備え、

前記培養槽から前記硝化槽に、前記放出部を介して、培養した前記硝化菌群を供給し、

前記硝化槽では 0°C 以上 15°C 以下で、アンモニア性窒素含有水を処理する。

[0016] さらに本発明の別の態様に係るアンモニア性窒素含有水処理用の細菌保持担体は、

担体と、

前記担体に優先繁殖した硝化菌群であって、濃度 5 0 0 0 m g / L 以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で 8 週間培養して検出される硝化菌群とを含み、

0℃以上 1 5℃以下で 1 ～ 3 0 0 m g / L のアンモニア性窒素含有水进行处理する細菌保持担体である。

発明の効果

[0017] 本発明によれば、1 5℃以下の低水温で安定したアンモニア処理ができ、常時安定した良好な処理水を得ることができるアンモニア性窒素含有水の処理方法及び装置を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0018] [図1]本発明による硝化槽の模式図である。

[図2] A H 菌群培養槽を備える、本発明によるアンモニア性窒素含有水処理用装置を示す図である。

[図3]硝化槽が 2 つ以上連結された、本発明によるアンモニア性窒素含有水処理用装置を示す図である。

[図4]本発明による多段処理型の応用例を示す図である。

[図5]本発明による A H 菌群添加型の処理フローの応用例を示す図である。

[図6]硝化速度に及ぼす水温の影響を示す図である。

[図7]本発明による処理特性の経日変化を示す図である。

[図8]本発明による負荷と硝化速度の関係を示す図である。

[図9]従来法による処理特性の経日変化を示す図である。

[図10]従来法による負荷と硝化速度の関係を示す図である。

発明を実施するための形態

[0019] 以下、本発明の実施の形態について、詳細に説明する。

[0020] <定義>

本明細書において、「A H 菌群」とは、濃度 5 0 0 0 m g / L 以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で 8 週間培養して検出される硝化菌群のことをいい、「A L 菌群」とは、濃度 1 0 0 m g / L の低濃度な硫酸アンモニア溶液

中で8週間培養して検出される硝化菌群のことを言う。したがって、このような条件で検出される菌であれば良く、特定の菌に限定されるものではない。A H菌群の具体的な例としては、ニトロソモナス（*Nitrosomonas*）属に属するものと考えられているが、分類学上定かではない。A H菌群からある単一の細菌を単離して用いることもできるが、A H菌群として複数種の細菌が共存している方が活性の安定性の面から好ましい。

なお、本発明において、「濃度5000mg/L以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で8週間培養して検出される」とは、濃度5000mg/L以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で少なくとも8週間培養すればA H菌としての硝化菌が生じ、検出できるとの意味であり、8週間丁度の培養期間を意味するものではない。

また、硫酸アンモニア溶液の上限濃度は規定しなかったが、硝化菌が培養可能な濃度限界が上限となる。

[0021] 本明細書において、「硝化」とは、アンモニアから硝酸または亜硝酸を生ずることを言う。

[0022] 本明細書において、「微生物保持担体」とは、活性汚泥等を固定させた担体のことを言う。なお「微生物保持担体」には、包括固定化微生物担体も含まれる。

[0023] 本明細書において、「濃度5000mg/L以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で8週間培養して検出される硝化菌群が優先繁殖した担体」とは、担体に保持される細菌の個体数に関して、A H菌群がA L菌群よりも多い担体のことを言う。A H菌群の数はA L菌群の数の2倍以上であるのが好ましく、10倍以上であるのがより好ましく、100倍以上であるのが更に好ましく、1000倍以上であるのが最も好ましい。また、本明細書中では「A H菌群優占の担体」も、同義に用いられる。

[0024] 本明細書において、「中～高濃度処理用硝化槽」と「A H菌群培養槽」は同義に用いられる。これは、中～高濃度処理用硝化槽が中～高濃度アンモニア性窒素含有水を処理する槽として働くと同時に、該槽内でA H菌群が培養

されるからである。

[0025] <活性汚泥>

本発明に用いられるA H菌群は、一般的な活性汚泥や湖沼底泥などから馴養できる。したがって、A H菌群を得るためには何ら特別な手法または原料を必要とするものではなく、当業界において公知のいかなる方法を用いて調製しても良い。

[0026] 例えば、本発明に用いられるA H菌群はゲランガム培地 (R. Takahashi, et al.: "Pure isolation of a new chemoautotrophic ammonia-oxidizing bacterium on gellan gum plate", J. Fermentation and Bioengineering, vol. 74, No. 1, pp. 52-54 (1992)参照) で純粋分離したものを用いることができる。また下水処理場の活性汚泥を固定化しアンモニア性窒素濃度100～1000mg/L含有する無機廃水で培養することにより、集積培養が可能である。

[0027] <担体>

菌を担体に保持させるには、(i) 付着固定化、(ii) 包括固定などの方法が用いることができる。(i) では球状や筒状などの担体、ひも状材料、ゲル状担体、不織布状材料など凹凸が多い材料が細菌の付着に好ましく、このような担体を用いるとアンモニア性窒素の除去率が向上する。(ii) では菌と固定化材料(モノマ、プレポリマ)を混合し、重合しゲルの内部に菌を包括固定化する。モノマー材料としてはアクリルアミド、メチレンビスアクリルアミド、トリアクリルフォルマルなど好ましい。プレポリマ材料としてはポリエチレングリコールジアクリレートやポリエチレングリコールメタアクリレートが好ましく、その誘導体も用いることができる。形状は球状、方形状および筒状などの包括担体、ひも状包括担体、不織布状など凹凸が多い包括担体が接触効率の面で好ましく、アンモニア性窒素の除去率が向上する。

[0028] <アンモニア性窒素含有水>

本発明によって処理するアンモニア性窒素含有水は、生活排水、し尿、お

よび工場排水などの廃水、ならびに家庭用水槽および水族館における水槽の水が挙げられるが、これらに限定されるものではない。また、アンモニア性窒素が含まれていれば、上水であっても本発明による方法または装置によって処理することができる。

[0029] 本発明による方法および装置で処理するアンモニア性窒素含有水のアンモニア性窒素濃度は、 $1 \sim 1000 \text{ mg/L}$ の範囲であるのが好ましい。具体的には、図1に示す単槽式の硝化槽を用いる態様においては、アンモニア性窒素濃度は、 $1 \sim 300 \text{ mg/L}$ の範囲が好ましく、 $1 \sim 100 \text{ mg/L}$ であるのが処理効率の観点からより好ましい。図2に示すA H菌群培養槽においては、 $100 \sim 1000 \text{ mg/L}$ の範囲であるのが好ましく、 $200 \sim 500 \text{ mg/L}$ の範囲であるのが処理効率の観点からより好ましい。図3に示す多段処理においては、 $50 \sim 500 \text{ mg/L}$ の範囲であるのが好ましく、 $100 \sim 300 \text{ mg/L}$ の範囲であるのが処理効率の観点からより好ましい。

[0030] 本発明による方法および装置で処理するアンモニア性窒素含有水の温度は、 0°C 以上 15°C 以下が好ましく、従来の方法よりも特に優れた処理活性を示す点で 0°C 以上 10°C 以下がより好ましく、更に一段優れた処理活性を示す点を考慮して 0°C 以上 5°C 以下で用いるのが更に好ましい。すなわち、従来の方法によるアンモニア性窒素含有水の硝化処理は、 10°C 以下ではほとんど進行しないが、本発明による方法および装置によれば、 10°C 以下、さらには 5°C 以下であっても安定的に硝化処理を行うことができる。なお、方法および装置で処理する水温の下限値は特に設定しないが、本発明が水処理に関するものである以上、水の凝固点である 0°C 付近が下限となることが理解される。

[0031] 以下に、本発明による方法および装置の具体的な態様について図を参照しつつ説明するが、本発明はこれらの態様に限定されるものではない。

[0032] <硝化処理>

本発明によるアンモニア性窒素含有水の硝化処理方法および装置を、図1

を用いて説明する。硝化槽 10 内に A H 菌群が保持された担体 12 が含まれており、アンモニア性窒素含有水導入部 14 からアンモニア性窒素含有水を導入することで、アンモニア性窒素含有水と該担体が接触し、担体に保持された A H 菌群がアンモニアを硝化して亜硝酸または硝酸を生じる。アンモニア性窒素含有水は硝化槽に一定時間滞留した後に、担体分離網 18 を通って処理水流出部 16 から処理水として流出する。流出した処理水は、次いで、脱窒槽（図示せず）に送られて処理水中の硝酸および亜硝酸が窒素ガスに変換されて除去される。

[0033] ここで、硝化槽は担体および廃水を一定時間保持できればどのようなものでもよく、硝化槽の材質および容積などは特に限定されるものではない。硝化槽内に含まれる担体の充填率は、1%～60%が好ましく、5%～20%がより好ましく、8%～15%であることが処理効率の点で最も好ましい。また、アンモニア性窒素含有水が硝化槽に滞留する時間は、処理すべき水のアンモニア性窒素含有量にもよるが、概ね0.3～24時間であるのが好ましく、0.5～12時間であるのがより好ましく、1～3時間であるのが、処理効率の面で最も好ましい。硝化槽での $\text{NH}_4\text{-N}$ 負荷も処理すべき水のアンモニア性窒素含有量にもよるが、概ね $0.01\sim 1\text{ kg-N/m}^3\cdot\text{d}$ であるのが好ましく、 $0.1\sim 0.5\text{ kg-N/m}^3\cdot\text{d}$ であるのがより好ましく、 $0.2\sim 0.3\text{ kg-N/m}^3\cdot\text{d}$ であるのが、A H 菌群の処理速度が向上するため最も好ましい。

[0034] このような方法および装置によれば、寒冷地での廃水処理や、水族館などの低温水槽でのアンモニア除去が安定して行える。更に、一般的に廃水よりも温度の低い上水にアンモニアが混入している場合も、アンモニアの除去を効果的に行うことができる。また、寒冷地以外であっても、排水処理施設の断熱加工を施す必要性が低減するため、処理装置をよりコンパクト、かつ低コストに製造することができる。これらの利点は、以下に記載する本発明の他の態様においても得られるものである。

[0035] <A H 菌群培養槽から A H 菌群を供給する運転>

下水処理場では汚泥脱水後の脱離液が中～高濃度アンモニアを含有している。そこでこの脱離液を用いてA H菌群を培養する装置を具備したフローが図2である。このような構成にすると、下水処理場で少量発生する中～高濃度アンモニアを含有した脱離液を処理しつつ、そこで培養されたA H菌群を硝化槽に供給することができる。その結果、硝化槽内で低濃度アンモニアを含む廃水の処理効率が上がるため、好ましい。A H菌群の培養に用いる微生物保持担体として、未馴養の担体を用いることが費用面から好ましい。また、図2のような構成にすることで、中～高濃度処理用硝化槽（培養槽）から硝化槽にA H菌群が順次供給されるため、硝化槽は従来の活性汚泥法、例えば浮遊型活性汚泥法、を用いた槽であってもよい。なお、硝化槽内には、A H菌群を保持させた担体が含まれていてもよい。硝化槽内にA H菌群を保持させた担体を含む態様は、より大量の廃水を、高速、かつ、安定的に処理することができる点で好ましい。

[0036] ここで、図2の構成を詳しく説明する。A H菌培養槽20内には微生物を保持させた担体12が含まれており、ここに中～高濃度アンモニア性窒素含有水導入部24から中～高濃度のアンモニア性窒素を含む廃水（100～1000mg/L）が導入されて担体と接触し、担体にA H菌群が優先的に培養される。A H菌群の培養が進行すると、増殖したA H菌群の一部が担体から漏れ出すようになり、A H菌群放出部22を介して硝化槽100に供給される。槽の構成にもよるが、硝化槽に供給された菌は、硝化槽内に平均して数日～1ヶ月程度滞留する。この硝化槽100において、供給されたA H菌群は、図1の場合と同様にアンモニア性窒素含有水導入部14から導入されたアンモニア性窒素含有水と接触し、アンモニアを硝化して亜硝酸または硝酸を生じる。次いで、図1の場合と同様に、処理水流出部16から流出した処理水は、脱窒槽（図示せず）に送られて処理水中の硝酸および亜硝酸が窒素ガスに変換されて除去される。

[0037] <多段処理>

本発明によるアンモニア性窒素含有水の多段処理を、図3を用いて説明す

る。この構成は、中濃度廃水において多段処理に構成することでA H菌群を保持しやすい環境を整え、低水温での処理能力を高めた例である。硝化槽が複数連なっているため、より高濃度のアンモニア性窒素を含む廃水を一度に処理することができる。図中28、30、32はそれぞれ第1硝化槽、第2硝化槽、第3硝化槽であり多段処理することにより各槽での濃度勾配ができ、第1硝化槽が最も $\text{NH}_4\text{-N}$ の濃度が高く、第2硝化槽、第3硝化槽の順で $\text{NH}_4\text{-N}$ の濃度が低くなる。A H菌群の増殖は雰囲気中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度に依存し、濃度が高いほどA H菌群の増殖に適しているため、A H菌群は第1硝化槽で増殖しやすくなる。そして、第1硝化槽で増殖したA H菌群が第2硝化槽や第3硝化槽に供給されることとなる。これにより3段処理全体での処理性能が低温でも維持され、温度耐性が向上する。

[0038] アンモニア性窒素含有水の処理手順は、図1の場合とほぼ同様であり、中濃度アンモニア性窒素含有水導入部26から第1硝化槽28に導入された中濃度アンモニア性窒素含有水が、第1硝化槽28中で担体12に保持されたA H菌群と接触し、担体に保持されたA H菌群が該水中のアンモニアの一部を硝化して亜硝酸または硝酸を生じる。アンモニア性窒素含有水は第1硝化槽28に一定時間滞留した後に第2硝化槽30に導入される。ここで第1硝化槽の場合と同様に水中のアンモニアの消化が進行し、一定時間滞留した後にアンモニア性窒素含有水は第2硝化槽30から流出し、第3硝化槽32に移る。ここでも同様に硝化処理が行われ、最終的に第3硝化槽から流出した処理水は、次いで、脱窒槽（図示せず）に送られて処理水中の硝酸および亜硝酸が窒素ガスに変換されて除去される。

[0039] 各硝化槽は容量、形状および材質が異なっても良く、各槽で処理するアンモニア性窒素含有水の $\text{NH}_4\text{-N}$ の濃度および処理量に応じて、滞留時間や担体の充填量がそれぞれ異なっても良い。また、処理するアンモニア性窒素含有水の性質に応じて、硝化槽の数を調節することもできる。

[0040] <本発明の応用例>

本発明の応用例として、図4および図5のフローを示す。図4は本法での

脱窒装置を具備したもの、図5は循環変法の硝化槽に本法のAH菌群優先担体を投入するか又はAH菌群を投入する装置を具備したものである。

実施例

[0041] 次に、本発明を実施例により更に詳細に説明するが、本発明が実施例により限定されるものではない。

[0042] <包括固定化微生物担体の作製>

下水処理場の活性汚泥（群馬県T市終末処理場より入手）15部、ポリエチレングリコールジメタクリレート（「ライトエステル14EG（品番）」、共栄社化学株式会社製）15部、NNN' N' テトラメチルエチレンジアミン（「206-04006（品番）」、和光純薬工業株式会社製）0.5部、および水69.25部を混合して懸濁液とし、そこに過硫酸カリウム（「162-04235（品番）」、和光純薬工業株式会社製）0.25部を加えると重合が始まり、ゲル化した。得られたゲルを3mm角のペレット状に切断して以下の例において使用した。

[0043] 実施例1

<AH菌群優占の担体の作製>

上記ペレット状に切断した包括固定化微生物担体を、下記表1に示す無機合成廃水（ $\text{NH}_4\text{-N}$ ：400mg/L）で馴養した。馴養は、図1に示す1.4Lの容積の硝化槽中で、負荷0.5kg-N/m³・dで2ヶ月行った。上記条件で2ヶ月馴養したものをAH菌群優占の担体として用いた。

[表1]

表1 無機合成廃水組成（ $\text{NH}_4\text{-N}$ ：400mg/L）

薬品名	組成（g/L）
NH_4Cl	1.528
NaHCO_3	2.343
$\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$	0.231

[0044] 比較例1

<AL菌群優占の担体の作製>

上記無機合成廃水を水道水で10倍に希釈して用いた（ $\text{NH}_4\text{-N}$ ：40m

g/L) 以外は、A H 菌群優占の担体の場合と同様にして負荷 0.5 kg-N/m³・d で馴養して作製し、A L 菌群優占の担体として用いた。

[0045] <A H 菌群と A L 菌群の菌数の測定>

(前処理)

得られた A H 菌群優占の担体 (実施例 1) と A L 菌群優占の担体 (比較例 1) において、A H 菌群と A L 菌群がそれぞれどれだけ含まれているのかを以下の方法で計測した。

[0046] まず、前処理として担体の破碎及び細菌の分散を行った。9 mL 滅菌水に一定量の担体を採取し、破碎と分散を行った。破碎にはホモジナイザ (ホモジナイザ P A 型、池本理化工業株式会社製) を用い、分散には超音波処理装置 (U S 3 0 0 型、日本精機株式会社製) を用いた。前処理条件を表 2 に示す。

[表2]

表 2 細菌数測定の前処理条件

	ホモジナイズ処理	超音波処理
条件	10,000 rpm、10分	300W、400μA、1分

[0047] (硝化細菌数の計測)

前処理を終え、細菌が分散した液を用いて A H 菌群および A L 菌群の数を最確値法に準じて計測した。まず、表 3 に示す A H 菌群と A L 菌群の菌数計測用培地を調製し、除菌濾過した後、約 50 mg の C a C O₃ を入れて乾熱滅菌した複数の試験管に 9 mL ずつ無菌分注した。次いで、測定用培地を入れたものとは別の試験管を用意し、そこに殺菌した水を 9 mL 入れ、さらに上記の前処理した液を原液として 1 mL 加えることによって 10 倍に希釈した。この 10 倍に希釈した液を 1 mL 抜き取り、別の 9 mL の殺菌した水に加えることにより、原液を基準として 100 倍に希釈した希釈液を得た。この操作を繰り返し、10¹⁰ 倍まで希釈した希釈液を調製した。ここで、各希釈倍率の希釈液を 1 mL ずつ、5 本の計測用培地に接種した。したがって、1 つの試料について合計 50 本の試験管に接種した。接種した試験管を 2～3 本の無接種の試験管と共に 30℃ で 8 週間培養した。

[表3]

表3 AH菌群とAL菌群の菌数計測用培地

成分	濃度 (mg / L)	
	L 培地	H 培地
K_2HPO_4	200	200
$MgSO_4 \cdot 7H_2O$	50	50
$CaCl_2 \cdot 2H_2O$	20	20
$FeSO_4 \cdot 7H_2O$	1	1
$(NH_4)_2SO_4$	100	5,000

[0048] 培養後、Griess-Ilosvary 試薬（調製法：土壤微生物研究会編、「土壤微生物実験法」、養賢堂、p. 195、（昭和50年）参照）を1～2滴各試験官に滴下し、亜硝酸の蓄積の有無を判定した。赤または褐色の発色はAH菌群またはAL菌群の成育による亜硝酸の蓄積を意味する。2～3分後に未発色の試験管に微量の亜鉛粉末を加えて、新たに赤色が発色してくるか否かを、試験管を静置したまま観察する。亜鉛粉末添加後の発色は、一旦生成された亜硝酸が共存した亜硝酸酸化細菌によって硝酸まで酸化されていたことを意味する。亜鉛粉末無添加と添加で発色した試験管数を各希釈段階毎に記録した。

[0049] AH菌群優占の担体については、H培地において、三次希釈水から5本、四次希釈水から5本、五次希釈水から4本、六次希釈水から2本、七次希釈水から0本であったため、（5、5、4、2、0）と記録した。この値から $P_1 = 5$ 、 $P_2 = 4$ 、 $P_3 = 2$ とし、最確値表から最確値を得た後、これに P_2 の希釈倍数をかけて、原液1mL当たりの生菌数を算出した。L培地においては、一次希釈水から5本、二次希釈水から3本、三次希釈水から2本、四次希釈水から0本、五次希釈水から0本であったため、（5、3、2、0、0）と記録し、同様に原液1mL当たりの生菌数を算出した。

[0050] AL菌群優占の担体についても同様にし、原液1mL当たりの生菌数を算出した。結果を表4に示す。

[表4]

表4 AH菌群とAL菌群の菌数計測結果

	AH菌群優占担体 (実施例1)	AL菌群優占担体 (比較例1)
AH菌群数 (cells/mL)	9.14×10^8	2.15×10^4
AL菌群数 (cells/mL)	6.23×10^5	6.68×10^8

[0051] 上記表から、実施例1および比較例1の担体が、それぞれAH菌群優占の担体とAL菌群優占の担体であることが分かる。図1に示す1.4Lの容積の硝化槽中、負荷 $0.5 \text{ kg-N/m}^3 \cdot \text{d}$ で2ヶ月間馴養した後に、連続運転での水質の収支から各担体の硝化速度を計測したところ、それぞれ $0.45 \text{ kg-N/m}^3 \cdot \text{d}$ と $0.46 \text{ kg-N/m}^3 \cdot \text{d}$ であり、ほぼ同等であった。なお、原水および処理水の水質としては、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ を測定した。 $\text{NH}_4\text{-N}$ はインドフェノール青比色法(JIS-K0102、ここで、JISは日本工業規格(Japanese Industrial Standards)の略)に準じ、 $\text{NO}_3\text{-N}$ と $\text{NO}_2\text{-N}$ はイオンクロマトアナライザー(「ICS-1600(品番)」、ダイオネックス社製)で分析した。また、処理水は浮遊物質が若干混在しているため、処理水の分析に際してはあらかじめ $0.45 \mu\text{m}$ フィルター(「DISMIC-25cs(品番)」、アドバンテック株式会社製)でろ過した。

[0052] <各温度における硝化速度の測定>

実施例2

実施例1で作製した担体(AH菌群優占担体)を用いて、温度別硝化速度を測定した。評価は、図1に示す1.4Lの容積の硝化槽を用いて回分処理を行い硝化速度を求めた。原水は表1の無機合成廃水を10倍に希釈した $\text{NH}_4\text{-N } 40 \text{ mg/L}$ を用いた。なお、硝化槽内での担体の充填量は8%とした。

[0053] 上記条件の下、温度を5、10、15および20℃と変化させて測定した結果を表5、および図6に示す。

[0054] 比較例2

比較例 1 で作製した担体（A L 菌優占の担体）を用いた以外は実施例 2 と同様に、温度別硝化速度を測定した。結果を表 5、および図 6 に示す。この結果から、A H 菌群優占の担体は A L 菌群優占の担体より低温耐性があることが分かる。特に、10℃以下の水温において、A H 菌群優占の担体は A L 菌群優占の担体に比べて顕著に高い硝化速度を得ることができることが分かる。

[表5]

表 5 回分試験で得られた硝化速度

	A H 菌優占担体の硝化速度 (mg-N/h・L) (実施例 2)	A L 菌優占担体の硝化速度 (mg-N/h・L) (比較例 2)
5℃	10.3	0.05
10℃	17.5	1.42
15℃	26.4	24.1
20℃	30.5	27.4

[0055] <長期低水温測定>

実施例 3

実施例 1 で作製した担体（A H 菌群優占担体）を用いて、5℃で長期処理運転を行った。この処理には、図 1 の構成の硝化槽に合成無機廃水（NH₄-N 濃度：48～66 mg/L）を用いた。

処理運転の条件を以下に示す。

硝化槽容積 1.4 L

滞留時間 6～12 時間

包括担体充填率 8%

NH₄-N 負荷 0.07～0.24 kg-N/m³・d

運転期間 100 日

実施例 3 についての結果を図 7 および 8 に示す。

[0056] 比較例 3

比較例 1 で作製した担体（A L 菌優占の担体）を用いた以外は実施例 3 と同様に、5℃で長期処理運転を行った。比較例 3 についての結果を図 9 および 10 に示す。硝化能力の経日変化および容積負荷に対する硝化速度の

いずれにおいても、本発明によるA H菌群優占担体が低水温で処理性能が優れていることが明らかである。

[0057] <A H菌群培養槽からA H菌群を供給する運転>

実施例4

図2のフローの装置を用いた。活性汚泥を用いて作製した未馴養の包括固定化微生物担体（活性汚泥固定化担体）を、中～高濃度アンモニア性窒素含有水（汚泥脱水後の脱離液）を用いた中～高濃度処理用硝化槽（培養槽）20に投入し、そこに中～高濃度アンモニアを含有する脱離液を流入させ、中～高濃度処理用硝化槽（培養槽）20内の担体内部でA H菌群を馴養培養した。A H菌群の一部は担体からリークし、硝化槽100に投入される。硝化槽100には活性汚泥が懸濁している。硝化槽100にアンモニア性窒素含有水導入部14から低濃度アンモニア性窒素含有水を流入させ、硝化処理を行った。

[0058] 各種水質と装置の仕様を以下に示す。

各種アンモニア性窒素含有水の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度

汚泥脱水後の脱離液 350～410 mg/L

アンモニア性窒素含有水導入部14に導入される廃水 32～40 mg/L

硝化槽100の仕様

硝化槽容積 10 L

滞留時間 4 時間

MLSS濃度 4,000 mg/L

$\text{NH}_4\text{-N}$ 負荷 0.25～0.32 kg-N/m³・d

中～高濃度処理用硝化槽（培養槽）20の仕様

中～高濃度処理用硝化槽（培養槽）容積 0.5 L

滞留時間 12 時間

包括担体充填率 20%

$\text{NH}_4\text{-N}$ 負荷 0.7～0.8 kg-N/m³・d

[0059] 使用した担体は先に示した未馴養の包括固定化微生物担体（活性汚泥固定

化担体)を用いた。固定化した活性汚泥としてはT下水処理場の活性汚泥を用いた。培養槽の担体にA H菌群が増殖し、担体からA H菌群がリークし、硝化槽に供給されることにより低水温で硝化が促進される。小規模の本発明による装置で冬場に運転したところ、水温が10～13℃であり、硝化槽100の処理水中のアンモニア性窒素濃度は $\text{NH}_4 - \text{N}$: 1 mg / L以下であった。

[0060] 比較例4

中～高濃度処理用硝化槽(培養槽)20を具備しない従来法(浮遊型活性汚泥法)を用いた以外は実施例4と同様にして、 $\text{NH}_4 - \text{N}$ 32～40 mg / Lを滞留時間4時間、MLSS濃度4000 mg / Lで処理したところ、水温10～13℃で、処理水中にアンモニア性窒素が多く残留し、硝化槽から排出された処理水のアンモニア性窒素濃度は $\text{NH}_4 - \text{N}$: 9～35 mg / Lであった。したがって、本発明による方法および装置での効果は明らかである。

[0061] <多段処理>

実施例5

図3に示す多段処理で処理を行った。

水質と装置の仕様を以下に示す。

廃水中 $\text{NH}_4 - \text{N}$ 濃度 170～220 mg / L

各硝化槽28、30、32の仕様

各槽の容積 2 L

各槽の滞留時間 4 時間

包括担体充填率 20%

[0062] 先に示した未馴養の包括固定化微生物担体(活性汚泥固定化担体)を用いて処理を行った。固定化した活性汚泥としてはT下水処理場の活性汚泥を用いた。本発明による装置で冬場に運転したところ、水温が8～13℃であり、処理水処理水中のアンモニア性窒素濃度は $\text{NH}_4 - \text{N}$: 1 mg / L以下であった。したがって、本発明による方法および装置での効果が明らかである。

符号の説明

- [0063] 1 0 硝化槽
- 1 2 担体
- 1 4 アンモニア性窒素含有水導入部
- 1 6 処理水流出部
- 1 8 担体分離網
- 1 9 硝化液循環ライン
- 2 0 中～高濃度処理用硝化槽（A H菌群培養槽）
- 2 2 A H菌群放出部
- 2 4 中～高濃度アンモニア性窒素含有水導入部
- 2 6 中濃度アンモニア性窒素含有水導入部
- 2 8 第1硝化槽
- 3 0 第2硝化槽
- 3 2 第3硝化槽
- 1 0 0 従来の硝化槽
- 1 2 0 従来の担体
- 1 3 0 従来の担体
- 2 0 0 脱窒槽
- 3 1 0 脱窒菌付着充填材
- 5 0 0 有機物供給槽

請求の範囲

- [請求項1] アンモニア性窒素含有水进行处理する方法であって、
 アンモニア性窒素濃度が1～300mg/Lのアンモニア性窒素含有水と、濃度5000mg/L以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で8週間培養して検出される硝化菌群が優先繁殖した担体とを、好気性雰囲気下、0℃以上15℃以下で接触させて前記アンモニア性窒素含有水中のアンモニアを硝化する硝化工程、
 を含む方法。
- [請求項2] アンモニア性窒素含有水进行处理する方法であって、
 アンモニア性窒素濃度が100～1000mg/Lのアンモニア性窒素含有水と微生物保持担体とを接触させて、濃度5000mg/L以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で8週間培養して検出される硝化菌群を優先培養する培養工程と、
 前記培養された硝化菌群と、アンモニア性窒素濃度が1～300mg/Lのアンモニア性窒素含有水とを、好気性雰囲気下、0℃以上15℃以下で接触させて前記アンモニア性窒素含有水中のアンモニアを硝化する硝化工程と
 を含む方法。
- [請求項3] 前記微生物保持担体が、未馴養の微生物保持担体である、請求項2に記載の方法。
- [請求項4] 前記硝化工程に用いられる前記アンモニア性窒素含有水中のアンモニア性窒素濃度が1～100mg/Lである、請求項1～3のいずれか一項に記載の方法。
- [請求項5] 前記硝化工程において、前記アンモニア性窒素含有水と前記担体とを0℃以上10℃以下で接触させる、請求項1～4のいずれか一項に記載の方法。
- [請求項6] 1つ以上の追加の硝化工程をさらに含んでなる、請求項1～5のいずれか一項に記載の方法。

[請求項7]

アンモニア性窒素含有水の処理装置であって、
硝化槽と、

前記硝化槽にアンモニア性窒素濃度が1～300mg/Lのアンモニア性窒素含有水を導入する導入部と、

前記硝化槽から処理した前記アンモニア性窒素含有水を排出する排出部と

を備え、

前記硝化槽の中に濃度 5 0 0 0 m g / L 以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で 8 週間培養して検出される硝化菌群が優先繁殖した担体が含まれてなる、

前記硝化槽では0℃以上15℃以下で、アンモニア性窒素含有水を処理する、処理装置。

[請求項8]

アンモニア性窒素含有水の処理装置であって、

濃度 5 0 0 0 m g / L 以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で 8 週間培養して検出される硝化菌群を培養する培養槽と、

前記培養槽にアンモニア性窒素濃度が100～1000mg/Lのアンモニア性窒素含有水を導入する第1の導入部と、

前記培養槽から培養された前記硝化菌群を放出する放出部と

前記放出部に接続された硝化槽と、

前記硝化槽にアンモニア性窒素濃度が1～300mg/Lのアンモニア性窒素含有水を導入する第2の導入部と、

前記硝化槽から処理した前記アンモニア性窒素含有水を排出する排出部と

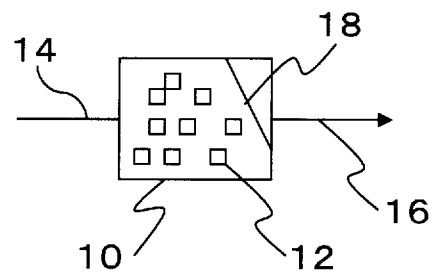
を備え、

前記培養槽から前記硝化槽に、前記放出部を介して、培養した前記硝化菌群を供給し、

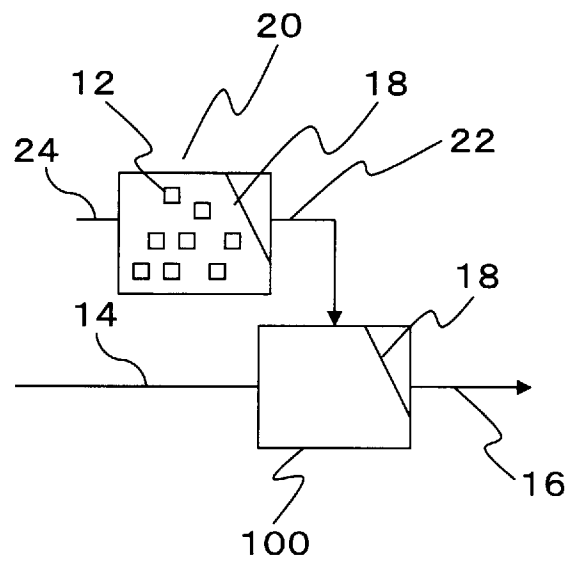
前記硝化槽では0℃以上15℃以下で、アンモニア性窒素含有水を処理する、処理装置。

- [請求項9] 前記培養槽に微生物保持担体が含まれている、請求項7に記載の装置。
- [請求項10] 前記硝化槽に、さらに1つ以上の追加の硝化槽が連結されてなる、請求項7～9のいずれか一項に記載の装置。
- [請求項11] 担体と、
前記担体に優先繁殖した硝化菌群であって、濃度5000mg/L以上の高濃度な硫酸アンモニア溶液中で8週間培養して検出される硝化菌群と
を含み、
0℃以上15℃以下で1～300mg/Lのアンモニア性窒素含有水を処理する細菌保持担体。

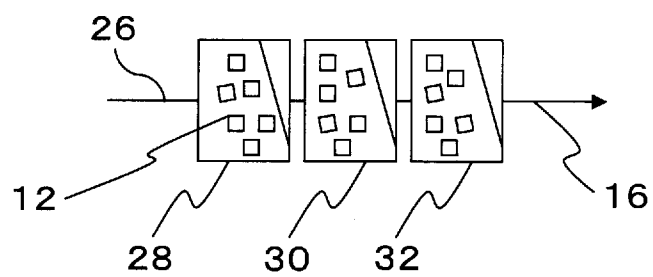
[図1]



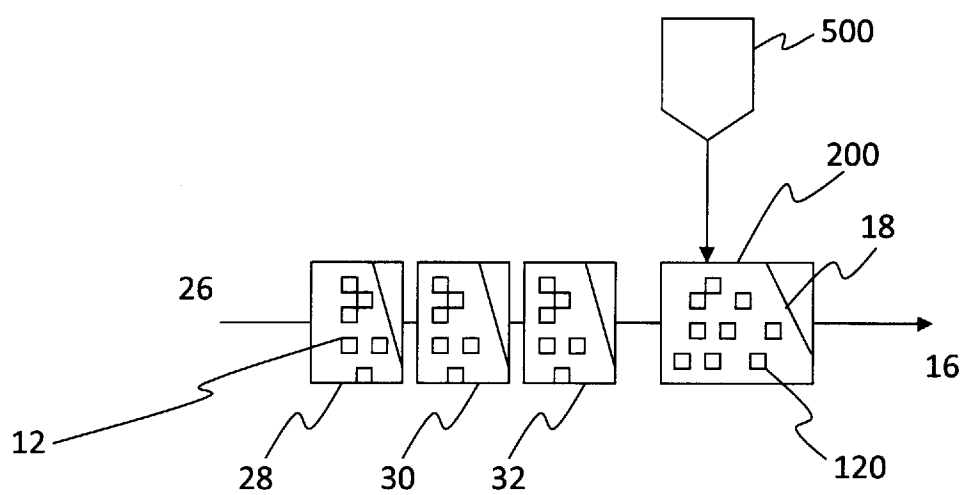
[図2]



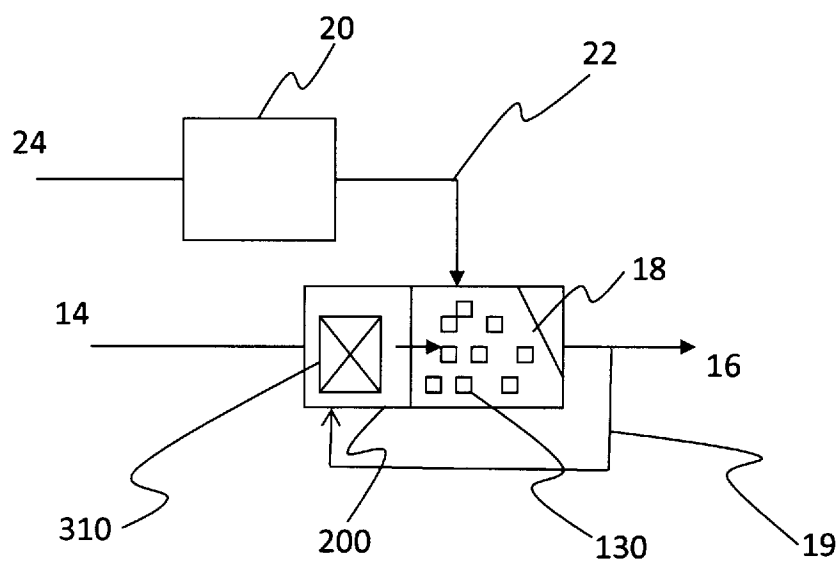
[図3]



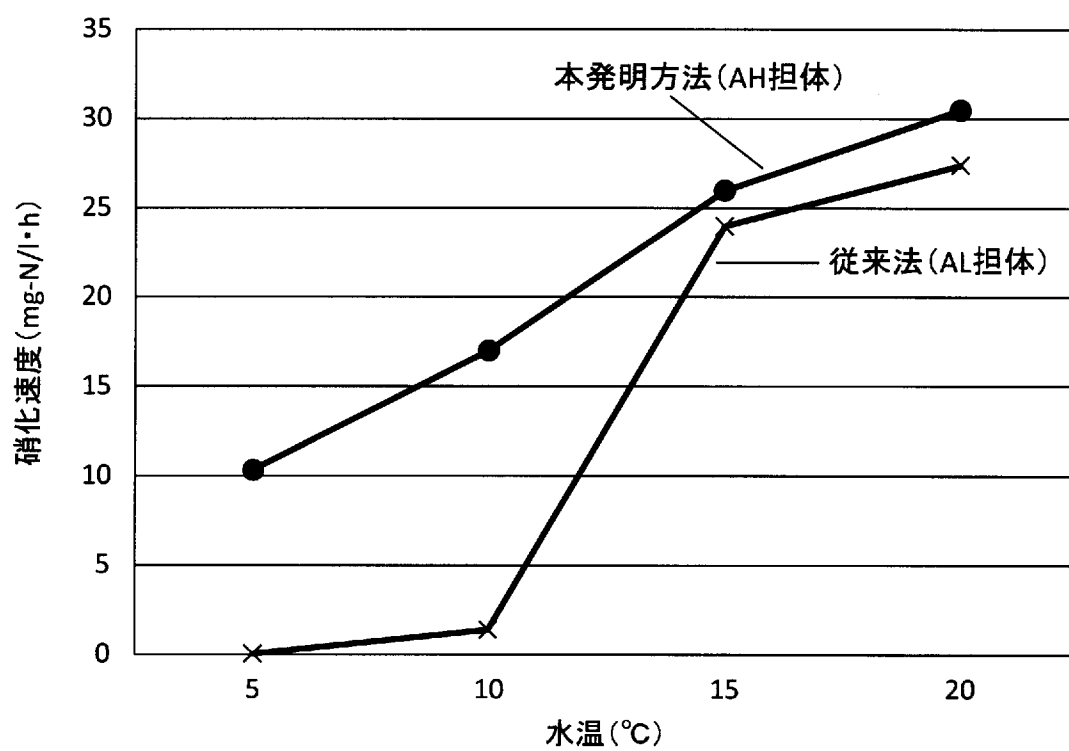
[図4]



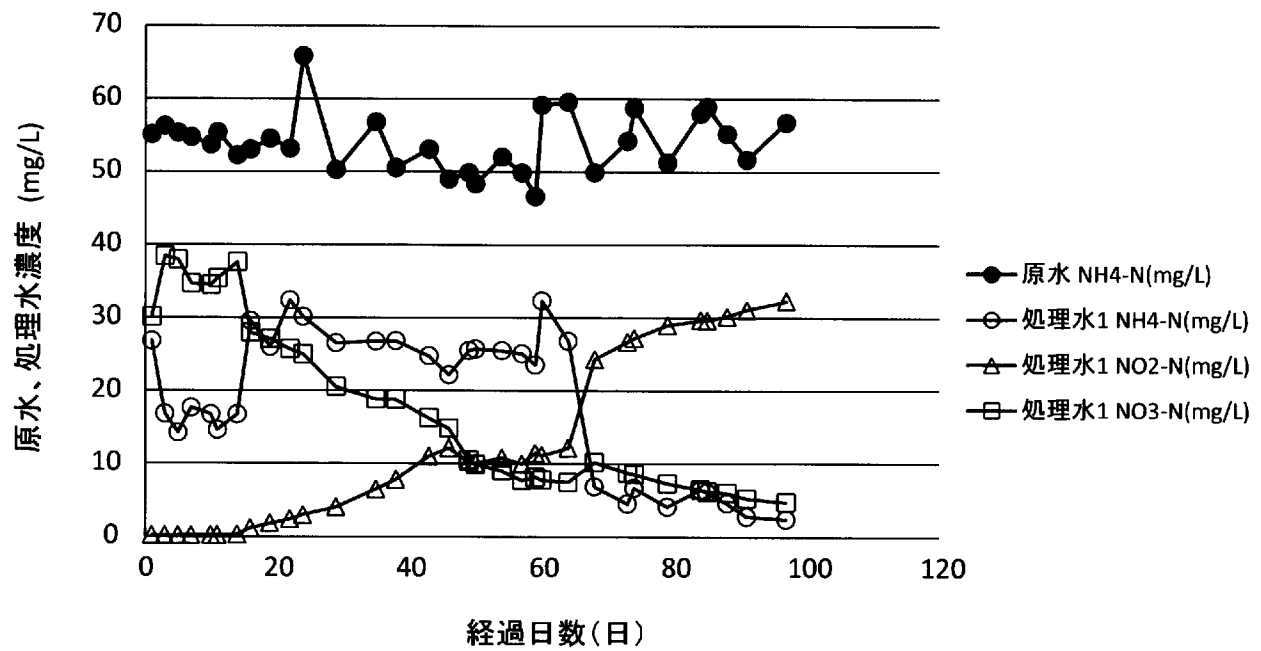
[図5]



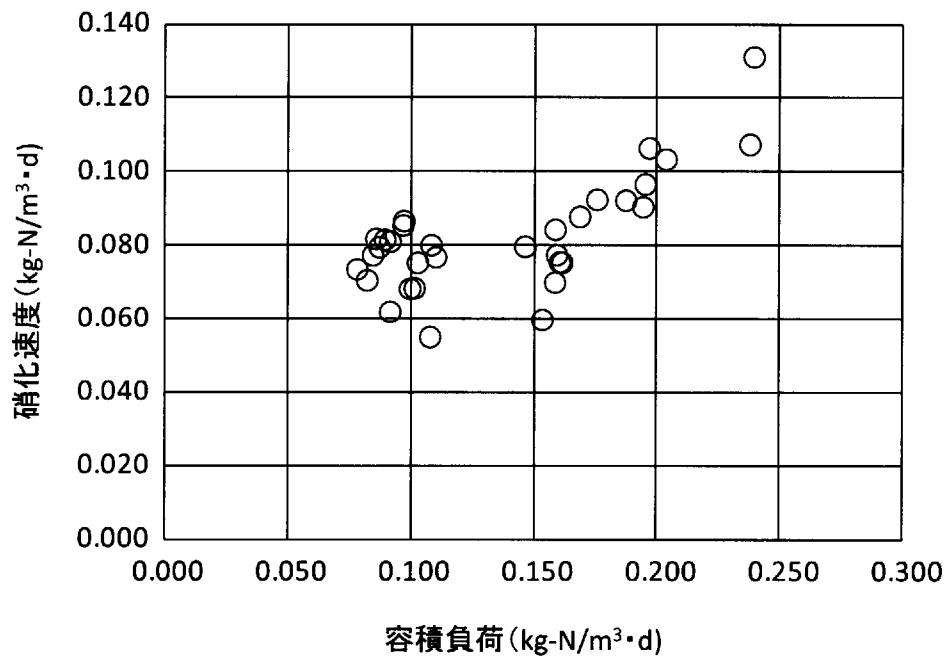
[図6]



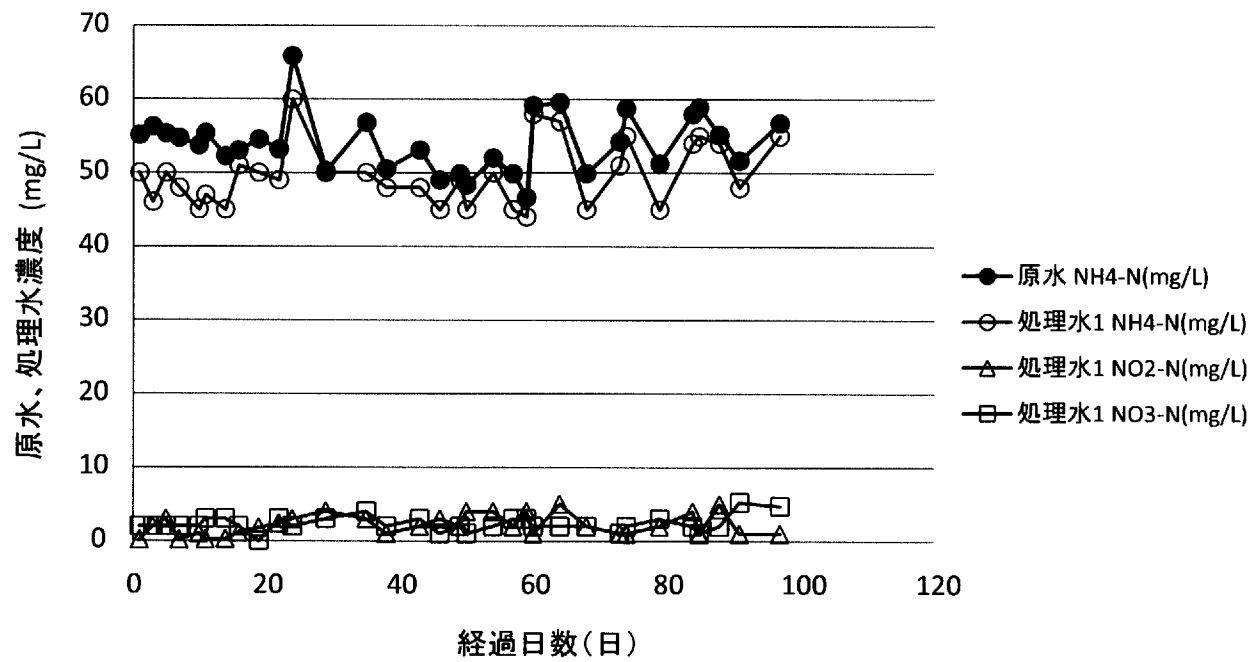
[図7]



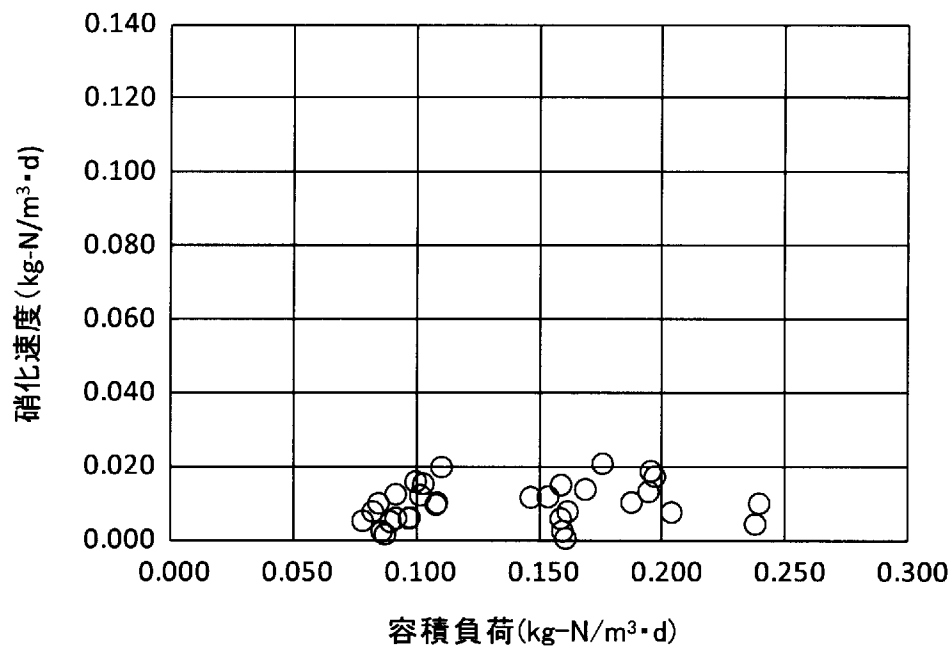
[図8]



[図9]



[図10]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/069776

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C02F3/34(2006.01)i, C02F3/00(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C02F3/34, C02F3/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 3252887 B2 (Hitachi Plant Engineering & Construction Co., Ltd.), 04 February 2002 (04.02.2002), claims; paragraphs [0047], [0050]; fig. 6, 7 & JP 9-47788 A & US 5849180 A & US 5876603 A & US 5997736 A & US 6033569 A & EP 761607 A1 & DE 69616216 D & CA 2181481 A	1-3, 6-11 4, 5
A	JP 09-075984 A (Hitachi Plant Engineering & Construction Co., Ltd.), 25 March 1997 (25.03.1997), entire text; all drawings & US 5849180 A & US 5876603 A & US 5997736 A & US 6033569 A & EP 761607 A1 & DE 69616216 D & CA 2181481 A	1-11

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
26 September, 2013 (26.09.13)

Date of mailing of the international search report
08 October, 2013 (08.10.13)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/069776

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 09-047787 A (Hitachi Plant Engineering & Construction Co., Ltd.), 18 February 1997 (18.02.1997), entire text; all drawings & US 5849180 A & US 5876603 A & US 5997736 A & US 6033569 A & EP 761607 A1 & DE 69616216 D & CA 2181481 A	1-11
A	JP 2000-061494 A (Hitachi Plant Engineering & Construction Co., Ltd.), 29 February 2000 (29.02.2000), entire text; all drawings (Family: none)	1-11
A	JP 2004-305816 A (Hitachi Plant Engineering & Construction Co., Ltd.), 04 November 2004 (04.11.2004), entire text; all drawings & CN 1533989 A & CN 101074135 A	1-11
A	JP 05-169090 A (Meidensha Corp.), 09 July 1993 (09.07.1993), entire text; all drawings (Family: none)	1-11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/069776

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Novelty of the invention of claim 1 is denied, and accordingly, the invention of claim 1 does not have a special technical feature.
Consequently, the present application is lack in unity of invention.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C02F3/34(2006.01)i, C02F3/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C02F3/34, C02F3/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 3 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X A	JP 3252887 B2（日立プラント建設株式会社）2002.02.04, 特許請求の範囲, 【0047】, 【0050】, 第6, 7図 & JP 9-47788 A & US 5849180 A & US 5876603 A & US 5997736 A & US 6033569 A & EP 761607 A1 & DE 69616216 D & CA 2181481 A	1-3, 6-11 4, 5
A	JP 09-075984 A（日立プラント建設株式会社）1997.03.25, 全文, 全図 & US 5849180 A & US 5876603 A & US 5997736 A & US 6033569 A & EP 761607 A1 & DE 69616216 D & CA 2181481 A	1-11

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

2 6 . 0 9 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

0 8 . 1 0 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

伊藤 紀史

4 D

3 5 4 5

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 2 1

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 09-047787 A (日立プラント建設株式会社) 1997. 02. 18, 全文, 全図 & US 5849180 A & US 5876603 A & US 5997736 A & US 6033569 A & EP 761607 A1 & DE 69616216 D & CA 2181481 A	1-11
A	JP 2000-061494 A (日立プラント建設株式会社) 2000. 02. 29, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-11
A	JP 2004-305816 A (日立プラント建設株式会社) 2004. 11. 04, 全文, 全図 & CN 1533989 A & CN 101074135 A	1-11
A	JP 05-169090 A (株式会社明電舎) 1993. 07. 09, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-11

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

請求項1に係る発明の新規性が否定され、請求項1に係る発明は特別な技術的特徴を有しない。よって、発明の単一性が欠如している。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- ☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。