

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 2 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14054

研究課題名(和文)正浸透法を用いた尿の濃縮に関する研究

研究課題名(英文)Urine Concentration by Forward Osmosis Process

研究代表者

船水 尚行(Funamizu, Naoyuki)

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：10113622

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：都市への人口集中に伴うサニテーション問題は世界の喫緊の課題である。本研究は、都市の尿を農村で利用する際の障壁である、「尿の輸送コスト」低減を目指し、尿濃縮トイレに用いる正浸透法に関して実験的検討を行った。得られた結果は以下のようである。正浸透により尿を5倍程度に濃縮できることを確認した。正浸透過程で、尿中成分の膜透過が起こることが判明した。膜透過が大きい成分はアンモニア、無機態炭素、小さい成分はリン酸、ナトリウム、塩素、有機体炭素である。溶液中各成分の相互作用を考慮して活量係数を求め、溶液の浸透圧を推算することで、計算浸透圧差と実測膜透過フラックスの間に線形関係を見出すことができた。

研究成果の概要(英文)：The sanitation problem caused by population concentration in cities is an urgent issue of the world. In this research, we aimed at reducing 'transport cost of urine' which is a big barrier of urine use in rural areas, and investigated about the forward osmosis for urine concentration toilet. The results are as follows: 1) It was confirmed that urine can be concentrated to about 5 times by forward osmosis; 2) In the forward osmosis process, it was found that urine components permeate the osmosis membrane. The components with high membrane permeability are ammonia, inorganic carbon, and the small components are phosphate, sodium, chlorine and organic carbon; 3) By calculating the activity coefficient in consideration of the interaction of each component in solution and estimating the osmotic pressure of the solution by using activity coefficient, it was possible to find a linear relationship between the calculated osmotic pressure difference and the measured membrane permeation flux.

研究分野：衛生工学

キーワード：サニテーション 尿の利用 尿の濃縮 正浸透法

1. 研究開始当初の背景

(1)社会的背景 貧困の撲滅を目指したミレニアム開発目標の達成は国際社会が総力をあげて取り組むべき最優先の課題である。とりわけ、「サニテーション」に関する目標の達成が危ぶまれており、ポストMGDsを含め、「サニテーション」問題は世界の緊急な課題となっている。特に都市スラムにおいては、日本型の汲み取り・収集というシステムでは、「住民のサニテーションシステム導入へのインセンティブに乏しく、実現が難しい」と、認識されている。そのための一つの方策として、糞便のコンポスト化と尿の回収+肥料としての利用が検討され、資源回収型でかつ運転コストの低減できるトイレの開発が行われている。申請者らのこれまでの実証研究により、尿の肥料としての利用は、農業サイドにおいて一定の理解が得られるものの、都市スラムから農村域への輸送コストが高いことから、市販の化学肥料と比較して有意性が無いという結果が得られている。尿の輸送コストの低減、すなわち、尿の減量化が必須であると認識されている。

(2)学術的寄与の必要性 申請者は「集めない」、「混ぜない」排水処理を提案し、し尿をコンポスト型トイレでコンポスト化、し尿以外の雑排水処理/再利用するシステムに関する研究を実施した(船水尚行:CREST 研究(H.14 - 19)、基盤研究(S)H21 - H25)。尿の濃縮については外気を用いた水分蒸発法、透析による方法について検討したが、蒸発法は装置規模が過大になること、透析法では電気の使用による運転コストが高いことから、スラムのような人口密度の高い地域には適さないことが判明した。そこで、電気等のエネルギーを使用しない尿濃縮法として、正浸透による濃縮を着想するに至った。

(3)本研究のユニークな点 尿を濃縮することの必要性は前項で述べた。申請者らが実施したインドネシアのバンドン市キャラチンドン地区を対象とした調査検討から、「糞便をコンポスト化し、尿とともに肥料として販売する場合、尿の体積を5分の1に減少させることができると、尿の輸送コストを低減でき、市販の化学肥料よりも、コンポスト・尿を安く販売できる」ことが明らかになっている。一般に、都市スラムにおいて、下水管路のようなパイプを敷設することは経済的に不可能であることから、し尿の輸送コストを低減させることができると、トイレの運転管理費を住民が支出することができるようになり、肥料価値を上乘せることができる。このようにサニテーション設備を低所得層に普及させるには、運転コストを低減した、尿の濃縮法が強く求められている。

尿の濃縮は、水分を蒸発させる(蒸発法)、透析法により尿中電解質を濃縮する(透析法)、逆浸透により尿中水分を除く(逆浸透

法)が検討されてきた。蒸発法は蒸発潜熱、透析法ではイオンを駆動させる電力、逆浸透法で圧力をかけるための電力が必要となる。

そこで、正浸透(浸透圧により水分を移動させる方法)を用いることを着想した。正浸透は海水淡水化のような海水から淡水を得るための仕組みとして用いられてきた。すなわち、海水より高浸透圧を有する溶液(ドロー溶液)に海水中の水分を浸透圧差で移動させ、ドロー溶液から水を分離することで淡水を得る仕組みである。今回は水を得ることを目的とせず、尿の濃縮に本正浸透法を用いようとしている点に斬新さを有している。

2. 研究の目的

正浸透法による尿濃縮過程の反応工学的解析(尿の処理量、濃縮倍率と必要膜面積の関係をモデル化)を行い、尿濃縮装置の設計法を確立する。

3. 研究の方法

(1)尿の濃縮実験 図1に実験に用いた実験装置を示す。実験装置は、供給溶液(濃縮される尿)と駆動溶液(浸透圧の高い溶液で、原理的には供給溶液から駆動溶液に水が移動し、供給溶液が濃縮される)をそれぞれポンプで循環させる仕組みとなっている。実験に用いた浸透膜はセルロース・トリアセテートの膜(Hydration Technology Innovations社製)を用いた。この膜は、正浸透に関する検討に世界的に広く用いられているものである。実験では、駆動溶液の質量を経時的に測定し、その質量変化から、正浸透による膜単位面積・単位時間あたりの水分の移動量(膜透過フラックスと呼ぶ)を測定した。また、同時に供給溶液、駆動溶液中のカリウムイオン、ナトリウムイオン、塩素イオン、アンモニア、無機炭素(炭酸、重炭酸)、有機炭素濃度の経時変化を測定した。

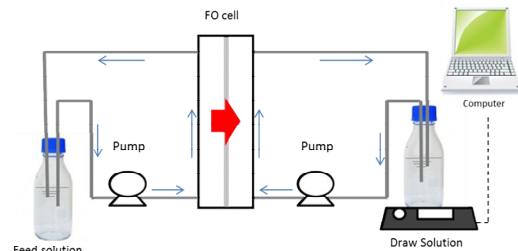


図1 実験装置(Niekema et al.より引用)

実験に用いた尿は人工尿(詳しい組成はNiekema et al.を参照)と15名(女性5名、男性5名)の成人から提供いただいた尿を混合したものを用いた。駆動溶液には塩化ナトリウム溶液を用いた。なお、尿中の尿素は便器内や貯蔵過程で加水分解を受けることが知られているので、本実験では、ウレアーゼ(尿素の加水分解酵

素)を添加し、尿素を加水分解したものをを用いた。人工尿を用いた実験では、駆動溶液の塩化ナトリウム溶液濃度を2Mから5Mの4種類を用いて実験を行った。実際の尿を用いた実験では4M、5Mの塩化ナトリウム溶液を駆動溶液として用いた。尿を用いた実験において、溶質が膜を透過して拡散していることが判明したため、溶質の透過に関する機構の解明をめざし、供給溶液に脱イオン水、駆動溶液に塩化アンモニウム溶液(0.85M・pH5.6と1.4M・pH9.4の2種類)を用いた実験も実施した。

駆動溶液や人工尿の浸透圧を凝固点降下を測定することにより求めた。そして、高濃度溶液であるため、溶質の相互作用を考慮して、それぞれの成分の活量係数を推算し、浸透圧を推算した結果との照合を行った。

4. 研究成果

(1)正浸透による尿の濃縮の可能性 図2に膜透過フラックスの経時変化を示す。膜透過フラックスは濃縮の進行とともに減少し、最終的には水の移動が生じなくなる。図3には、初期の駆動溶液濃度と尿の濃縮倍率の関係をしめす。図3の結果より、初期塩化ナトリウム溶液濃度が5Mの場合に尿を5倍程度濃縮できることが示された。これまでの本研究実施担当者の検討によれば、インドネシアのある地域において、都市から農村に尿を肥料として輸送する場合、輸送コストの観点から5倍程度の濃縮により、現状の化学肥料と同程度のコストとなることが知られており、本実験によって、正浸透法による尿濃縮の可能性が実証された。濃縮尿中の各成分濃度から、尿の濃縮を評価した結果を図4に示す。リン酸やカリウムイオンは図3に示した尿全質量基準の濃縮倍率とほぼ同程度に濃縮されているが、アンモニアは最大でも2.5倍程度の濃縮に留まっていることが判明した。このことは、尿中のアンモニアが膜を透過して、駆動溶液側に拡散していることを示唆している。また、尿中の成分によって膜透過+拡散の程度が異なっていることを示している。

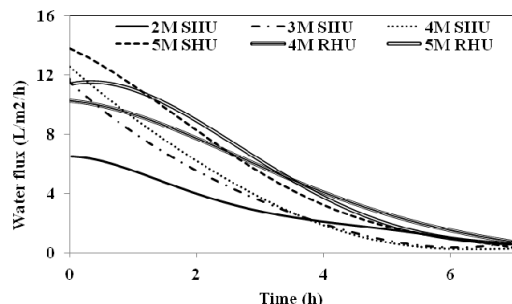


図2 膜透過フラックスの経時変化(SHU:人工尿,RHU:実際の尿,Niekema et al.より引用)

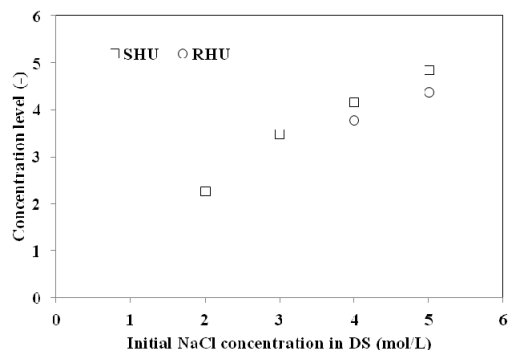


図3 初期駆動溶液濃度と濃縮倍率(SHU:人工尿,RHU:実際の尿,Niekema et al.より引用)

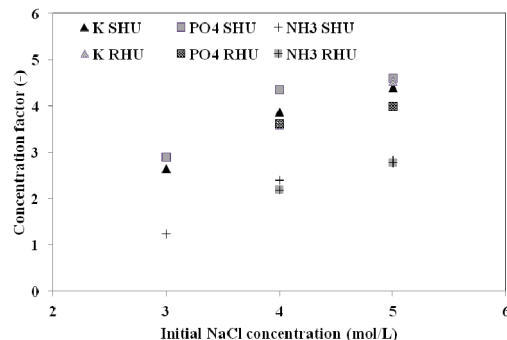


図4 初期駆動溶液濃度と尿中各成分の濃縮倍率(SHU:人工尿,RHU:実際の尿,Niekema et al.より引用)

(2)尿の濃縮過程における溶質の拡散 前項で述べたように、尿中の成分ごとに膜透過+拡散に違いがあるとの新しい知見を得た。このことを確認するために、供給溶液、駆動溶液中の各成分濃度の経時変化を測定し、それぞれの溶液中の総量の経時変化をもとめた。結果の例を図5(リン酸)、図6(アンモニア)に示す。これらの図において、RHUは実際の尿を用いた実験、SHUは人工尿を用いた場合をしめす。また、FSは供給溶液、DSは駆動溶液、Balanceは二つの溶液中の総量を示す。図5のリン酸についての結果は、駆動溶液中のリン酸の量がわずかに増加しているものの、リン酸は供給溶液中に存在していることがわかる。このように、膜を透過しない成分として、ナトリウム、塩素が確認された。一方、図6に示すアンモニアについては、供給溶液中の存在量が減少し、駆動溶液に移動していることが確認された。このアンモニアの移動について、水中では分子状のアンモニアとイオン状のアンモニアが共存していることから、どちらの形のアンモニアが膜透過し易いか検討するために、pH5.6とpH9.4の二つの溶液を用意し、これらの溶液を駆動溶液、脱イオン水を供給溶液とする実験を行った。この場合のアンモニアの存在量の経時変化を図7(pH5.6の場合)、図8(pH9.4の場合)に示す。

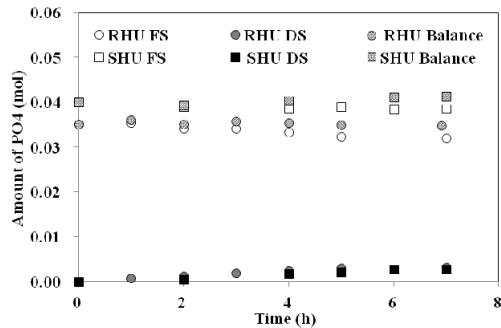


図5 リン酸の供給溶液，駆動溶液中存在量の経時変化 (Niekema et al.より引用)

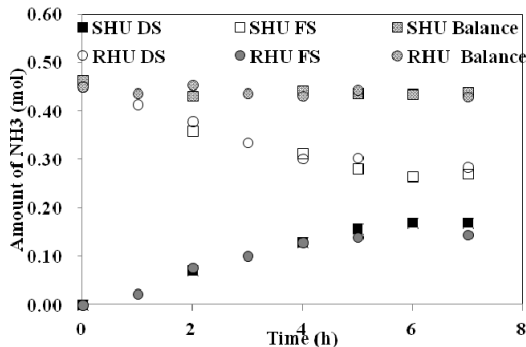


図6 アンモニアの供給溶液，駆動溶液中存在量の経時変化 (Niekema et al.より引用)

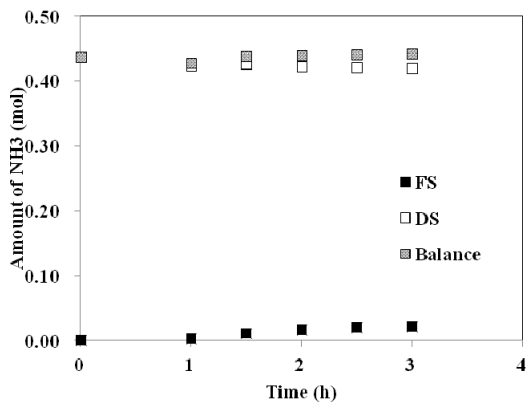


図7 アンモニアの供給溶液，駆動溶液中存在量の経時変化(水+塩化アンモニウム系, pH5.6, Niekema et al.より引用)

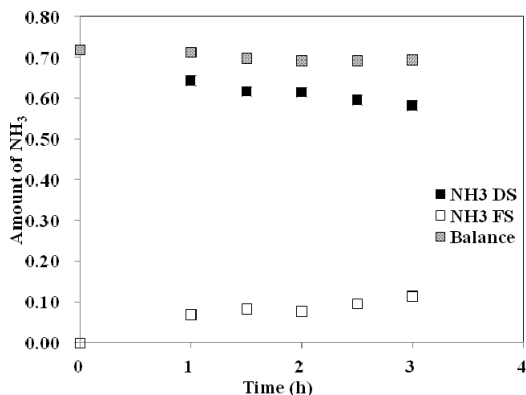


図8 アンモニアの供給溶液，駆動溶液中存在量の経時変化(水+塩化アンモニウム系, pH9.46, Niekema et al.より引用)

図の結果より，pH が高い場合ほど，膜透過が進むことが明らかとなった。このことは，分子状のアンモニアの膜における拡散係数がイオン状よりも大きいことを示している。溶質の拡散について，すべての実験結果を整理すると，低い拡散性を示すのはナトリウム，塩素，リン酸，有機体炭素，高い拡散性を示すものには，アンモニアと無機炭素(炭酸や重炭酸)が確認された。また，カリウムイオンは中程度の拡散性を示した。

(3)膜透過フラックスの推算 正浸透過程を反応工学的に解析する，すなわち，尿の処理量，濃縮倍率と必要膜面積の関係をモデル化するために必要な，膜透過フラックスの推算法を開発した。膜透過フラックスは駆動溶液と供給溶液の浸透圧の差と膜透過係数の積として推算される。このうち，膜透過係数は膜の素材等によって決まるものであることから，推算では浸透圧差を計算できるかが課題となる。まず，供給溶液，駆動溶液とも理想溶液とみなし，これらの溶液の各成分濃度から推算した浸透圧の値を用いて，浸透圧差を計算し，実測の膜透過フラックスとの関係をプロットした結果を図9に示す。図の結果より，浸透圧差がマイナスと計算される場合があり，理想溶液の過程が成立しないことが確認された。そこで，溶液中の各成分の存在形態とその相互作用を考慮して，濃度ではなく，各成分の活量係数(または化学ポテンシャル)を求めて溶液の浸透圧を推算した。その推算結果と実測の膜透過フラックスの関係を整理した結果を図10に示す。図より，推測した浸透圧差と実測の膜透過フラックスはほぼ線形の関係を示しており，今回開発した浸透圧差推算法の妥当性が示された。

(4)成果のまとめ 本研究で得られた成果を整理すると次のようになる：

尿の正浸透による濃縮実験を行い，5 倍程度の濃縮が可能なが示された。

尿の正浸透による濃縮過程で，尿中成分の一部の膜透過が起こることが判明した。膜透過が大きい成分はアンモニア，無機炭素(炭酸や重炭酸)，ほとんど透過しない成分はリン酸，ナトリウム，塩素，有機体炭素である。

アンモニアについては，分子状のアンモニアの透過性が高い。

尿の濃縮においては，尿(供給溶液)，駆動溶液とも理想溶液としての扱いを行うことが難しいことが明らかとなった。

溶液中の各成分の相互作用を考慮して，各成分の活量係数を求め，溶液の浸透圧を推算することで，推測浸透圧差と実測膜透過フラックスの間に線形関係を見出すことができた。

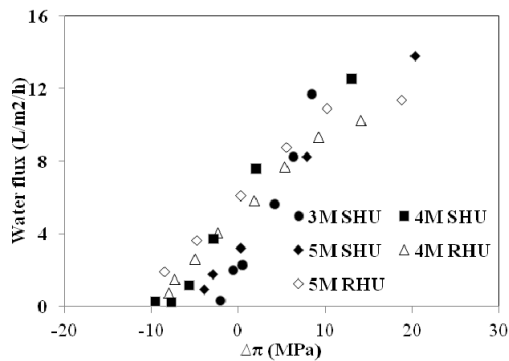


図9 理想溶液を仮定した場合の浸透圧差と膜透過フラックスの関係(Niekema et al.より引用)

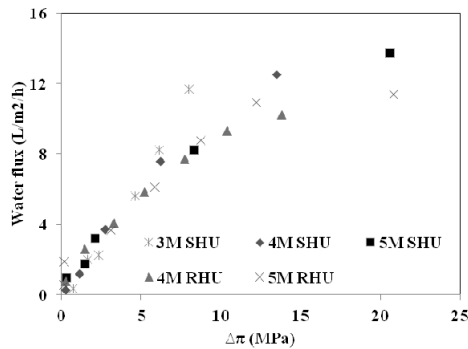


図10 活量係数を考慮した膜透過フラックス推算(Niekema et al.より引用)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計1件)

B. C.W. Nikiema, R. Ito, Guizani Mokhtar, N. Funamizu, Estimation of water flux and solute movement during the concentration process of hydrolysed urine by forward osmosis, Journal of Water and Environment Technology, 査読有, (accepted)

[学会発表](計3件)

B.C.W. Nikiema, R. Ito, G. Mokhtar, N. Funamizu, Hydrolysed urine concentration by forward osmosis: numerical modeling of water flux and nutrient concentration, the 13th IWA Specialized Conference on Small Water and Wastewater Systems (SWWS) & the 5th IWA Specialized Conference on Resources-Oriented Sanitation (ROS), Athene, Greece (2016)

T. Maeda, B. Nikiema, C. Wind-Yam, G. Mokhtar, R. Ito, N. Funamizu, Urine concentration by forward osmosis process, the 13th IWA Specialized Conference on Small Water and Wastewater Systems (SWWS) & the 5th IWA Specialized Conference on Resources-Oriented Sanitation (ROS), Athene, Greece

(2016)

B.C.W. Nikiema, R. Ito, G. Mokhtar, N. Funamizu, Prediction of water recovery during urine concentration by Forward Osmosis, the 13th IWA Leading Edge Conference on water and wastewater technologies, 13-16, June, Jerez de la Frontera, Spain (2016)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

船水 尚行(FUNAMIZU Naoyuki)
北海道大学・工学研究院・教授
研究者番号：10113622

(2) 研究分担者

伊藤 竜生(ITO Ryusei)
北海道大学・工学研究院・助教
研究者番号：70374577

(3) 研究協力者

Guizani Mokhtal
北海道大学・工学研究院・助教
Benedicte C.W. Nikiema
北海道大学・工学院・博士課程学生