

航空宇宙技術研究所資料

TECHNICAL MEMORANDUM OF NATIONAL AEROSPACE LABORATORY

TM-646

水再生循環システム要素の特性評価

種村利春・大坪孔治・小口美津夫
芦田章・浜野亘男・三谷健司

1992年4月

航空宇宙技術研究所
NATIONAL AEROSPACE LABORATORY

目 次

1. まえがき	1
2. 記 号	2
3. システム構成	2
4. 評価試験法	5
5. 試験結果	20
6. ま と め	30
7. 参考文献	30

水再生循環システム要素の特性評価*

種村利春*¹ 大坪孔治*¹ 小口美津夫*¹
芦田章*² 浜野亘男*² 三谷健司*²

Evaluation for Membrane Components of Water Recycling System*

Toshiharu TANEMURA*¹, Koji OTSUBO*¹, Mitsuo OGUCHI*¹, Akira ASHIDA*²,
Nobuo HAMANO*² and Kenji MITANI*²

ABSTRACT

The water recycling system is a key subsystem of the integrated material recycling system which must be developed to obtain long-term, manned space activity.

This paper presents the results of system study for designing water recycling system in which three kinds of membrane filters are introduced to purify waste water discharged from men, animals and plants. In addition the long duration processing tests utilizing artificial urine waste water conducted to evaluate the appropriateness to adopt these membrane filters.

Keywords: Water Recycling, Membrane Filter, CELSS, Thermopervaporation

1. ま え が き

月面基地や有人火星探査のような地球からの物資の輸送の困難な領域における、長期間にわたる有人活動を実現するためには、外部からの物資補給無しでも長期間運用できる総合的な生命維持システムが必要である。このシステムは当然の事ながら、食糧生産システムを含み、かつ、すべての物質は閉じた系内で再生され、循環されねばならない。このようなシステムはCELSS（閉鎖生態系生命維持システム：Closed Ecological Life Support System 又は制御生態系生命維持システム：Controlled Ecological Life Support System）と呼ばれ、次世代の新技术として世界各国で研究が

進められている¹⁾。ここでは、このCELSSにおける重要な要素技術である水の再生循環システムに関して、宇宙用として各種排水処理を行うのに適したシステム構成について検討した。又、システム検討に際して参考とした市販の各種膜フィルターやシステム構成用として新たに試作した膜式蒸留器が尿成分等を含む廃水の高濃縮を繰り返すような特殊な使い方をした場合、どのような性能変化をおこすのか、長期間使用にはたして耐え得るのか等の問題を明らかにする研究が搭載用装置を開発するためには必要である。このため、システムを設計していくのに必要な技術データの取得及び水再生循環装置の開発及び実証実験等を行う際に考慮すべき事柄を明らかにするために、これらの膜

* 平成4年2月5日受付 (received 5 February 1992)

*¹ 宇宙研究グループ (Space Technology Research Group)

*² 日立製作所 (Hitachi, Ltd.)

フィルターの特性評価試験装置を製作し、実際の尿や生活排水は入手が困難なので、代わりに原排水として人工尿を用いて長期評価試験を行い、各膜要素の特性を調べたので、それらについて報告する。

2. 略号

- F : 流量計 (Flow Meter)
- T : 温度計 (Thermometer)
- P : 圧力計 (Pressure Gage)
- AC : 活性炭 (Active Charcoal)
- PF : 粗フィルター (Pre-Filter)
- RO : 逆浸透膜フィルター (Reverse Osmosis Membrane Filter)
- UF : 限外濾過膜フィルター (Ultra Membrane Filter)
- TPV : 気化透過膜式蒸留器 (Thermoper-vaporation Distiller)
- CELSS : 閉鎖生態系生命維持システム (Closed Ecological Life Support System)

又は、
制御生態系生命維持システム
(Controlled Ecological Life Support System)

3. システム構成

長期間にわたる有人活動を支えるためには、酸素、食糧、水等の物資が必要になる。これらの物資を現在のように地上からの輸送に頼っていたのではその輸送コストは膨大なものとなる。このため、現在国際協力で建設が進められている国際宇宙ステーション FREEDOM では、水及びガスに関しては再生循環方式を用いる事が予定されており、そのための技術開発が米国に於て進められている^{2),3)}。FREEDOM では食糧は地上からの補給に頼る事になっているが、この食糧も生産する完全自給自足システムを CELSS と呼び、そのシステム構成の概念を示すと図3-1のようになる。上段部分が人間を含む人工の生態系であり、下段部分は物質循環のバランスを保持するための物理化学的処理システム群である。この中で水再生処

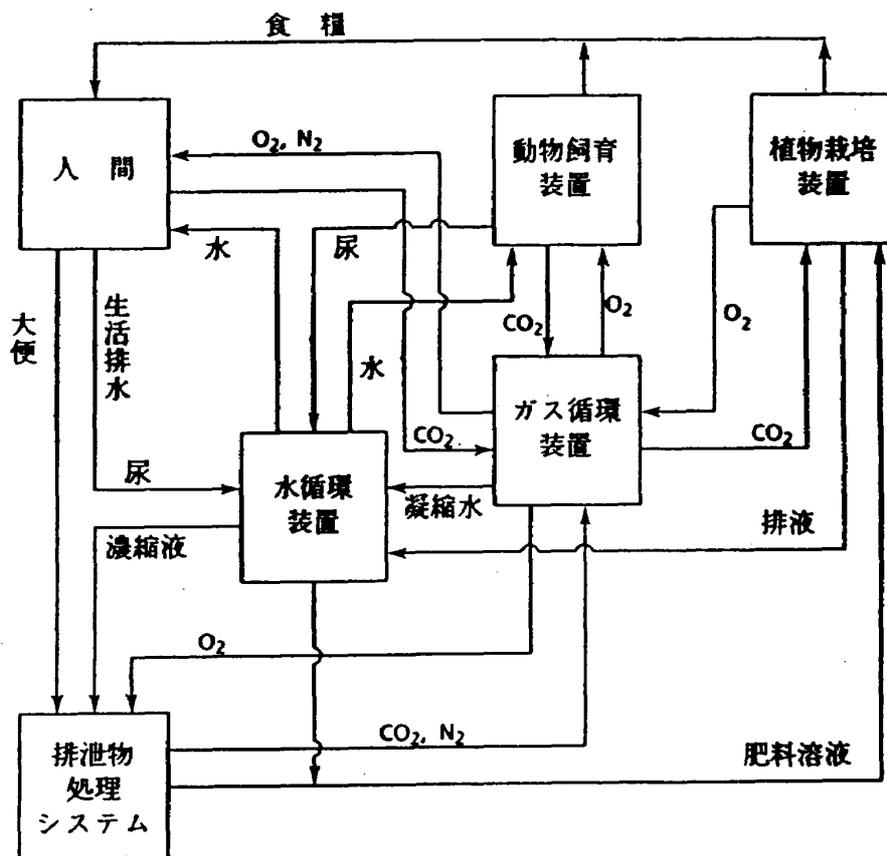


図3-1 CELSS の構成概念

理システムは系内での水の循環と再生機能を分担するもので、水に関連する循環を機能的に表現すると図3-2のようになる。ここで環境制御システムはいわゆる空調システムであり、室内の温度、湿度、ガス成分調整等を行う。動物から放出される汗及び呼気中の蒸気や植物の葉からの蒸散水等は除湿器によって凝縮水として回収され、水処理系へ廻される。各種排水は、水処理システムで処理されるが、最終的に残る高濃縮廃液は排泄廃棄物処理システムへ廻され、そこで他の有機固形物と一緒に処理される。植物系から放出される廃液は古くなった肥料養液と栽培装置の洗浄排水の2種と考えられる。又、人間を中心とする動物系からはキッチン、トイレ、シャワー等からの排水がある。これらの排水はその含有成分が異なるので、別々にその含有成分除去に適した方法で処理した方が効率及び処理部の性能劣化等による寿命低下を避けられるという点でよいが、反面、システムが多重になるため、信頼性、重量、容積等の面で問題が残る。特に宇宙用として考えた場合、重量、容積等の低減化は重要な要求事項であるので、処理方式の選択はこれらの問題を考慮してなされねばならない。

今回の検討では、容積、重量の低減化が最も重要な要求事項であるとの観点から、システムを出来るだけ単純化する方式を選択し、図3-3に示す

ような排水の集中処理方式を考えた。

各種排水は気液混合体で搬送されてくるが、地上と異なり無重力環境では気体は自然に分離しないので、水処理系に入れる前に気液分離器を用いて、気体を除去する事が必要である。尚、キッチンやトイレ等からは液体と一緒に固形物が排出されるが、これは固液分離器によって取り除かれる。各装置から排出された排水はまとめて原排水貯蔵タンクに貯えられ、一定量貯ったら、第1次処理系へ廻される。第1次処理系は中水レベルの水を得る事を目的として構成されており、そのために必要な粗フィルター、限外膜過膜フィルター及び逆浸透膜フィルターの組合せを考えた。一般にこれらの高分子機能膜フィルターは図3-4に示すような過渡能力を有するとされている。

本システムで上記3種のフィルターを用いた目的は、まず粗フィルターによって固液分離器で除去できなかった微細な固形物や、もし、原排水貯蔵タンク内で析出するような結晶成分があればこれを取り除き、次に限外膜過膜フィルターによって分解腐敗しやすいタンパク質や細菌、ウィルス等を除去し、それより後のシステムの無菌化をはかる。逆浸透膜フィルターは海水の淡水化等に用いられており、NaCl等の無機イオンの除去能力が高いとされているので、これによって、NaClを除去し、植物栽培に利用できる用水を造る他、

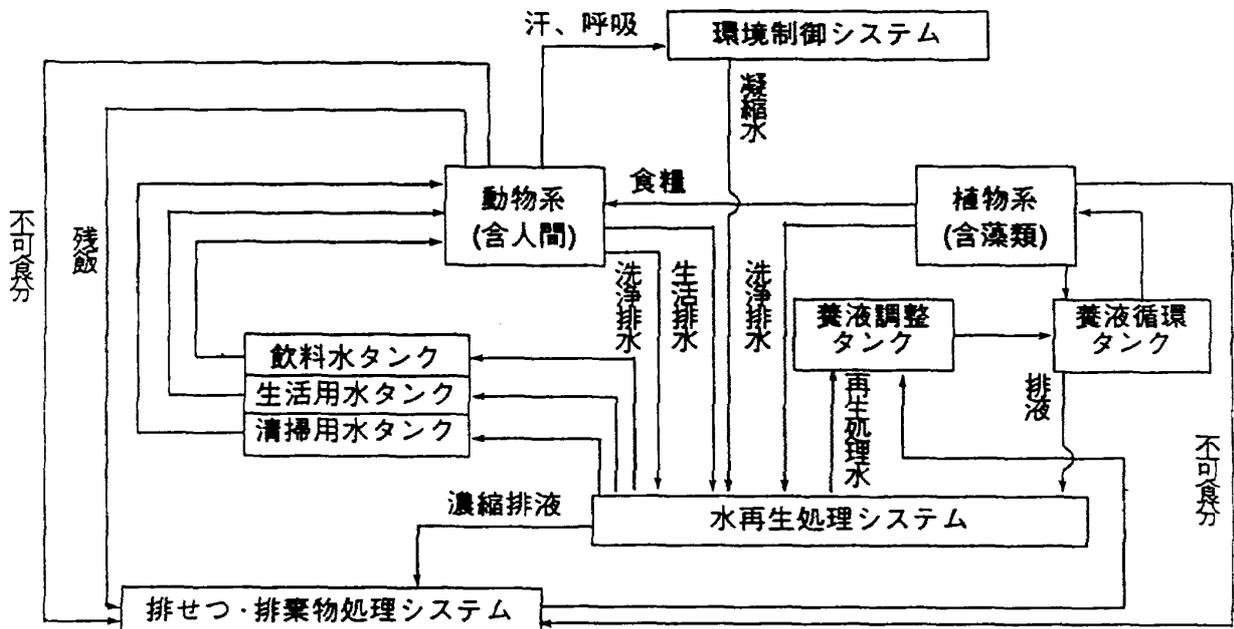


図3-2 CELSSにおける水の循環

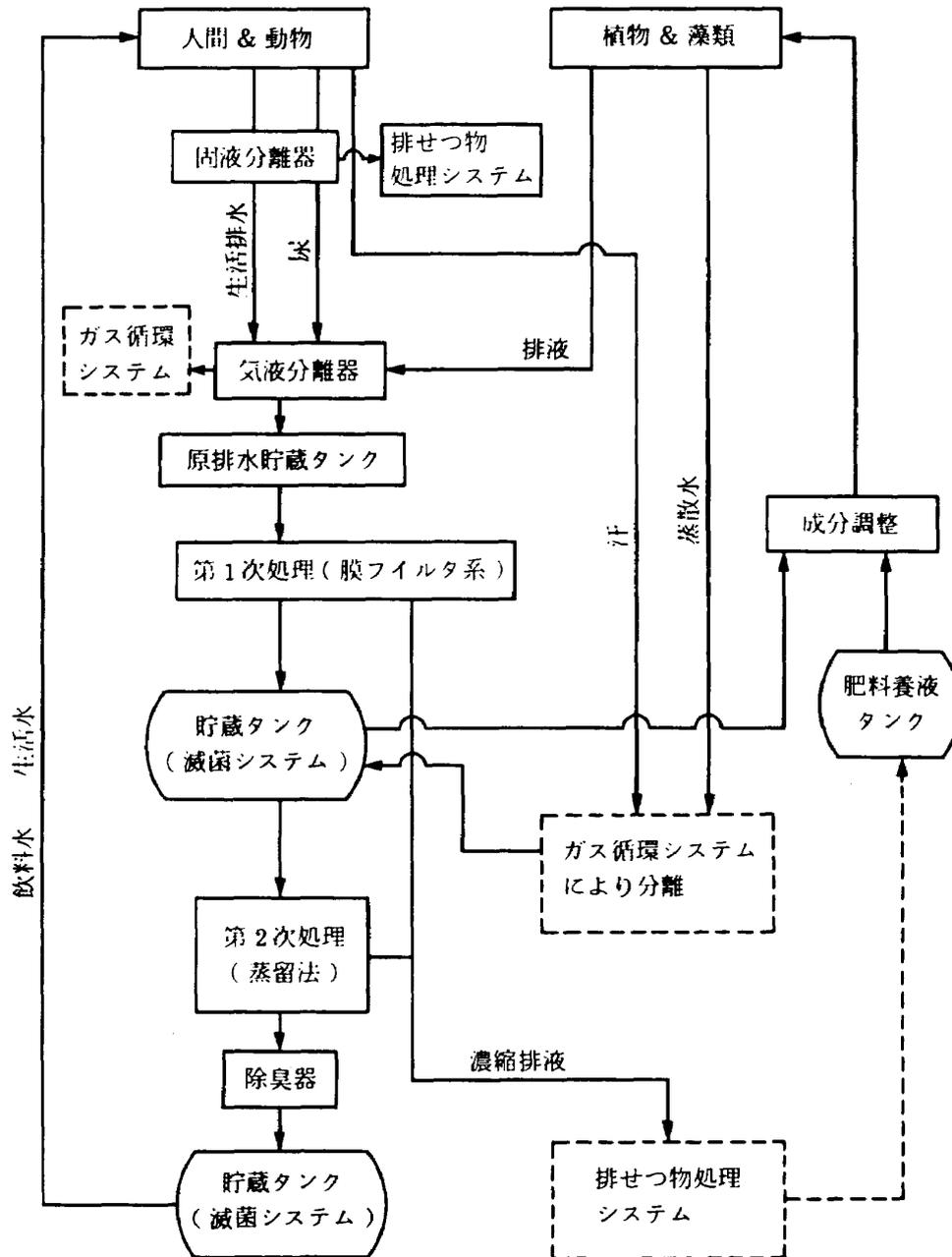


図3-3 宇宙用水再生循環システムの構成

次の高度処理システムへ渡す原水の純度を高めることによって、高度処理システムの長寿命化を図る為もあるが、1次処理水をそのまま飲料水として用いることは、心理的な問題もあり不適當である。そこで、人間の飲料水や特殊な実験用水として更に純度の高い水を得るために、2次処理系として蒸留法を用いるシステム構成を考えた。但し、蒸留法を用いる場合、水よりも沸点の低い例えばアンモニア等は蒸留水中に混入してくるので、その除去が必要である。ここでは活性炭によって、吸着させる方式を用いた。宇宙のような無重量環境下においては液体の表面張力が支配的な力とな

るため、加熱面近傍で発生した気泡が液中より外部へ出て行きにくくなる。従って、地上において利用される沸騰蒸発作用を蒸留のために用いる事ができないため、特別の工夫が必要とされる。

現在はガスは通すが液体は通さない特殊な高分子機能膜を利用する方法と回転するドラム内面上に液体を流し、回転による遠心力で液中の気泡に浮力を与えて、液外へ放出させる回転式蒸留法について研究開発を進めている。この回転式蒸留法については別途報告する予定であり、ここでは第2次処理系としては膜式蒸留法について行った実験に関して報告する。

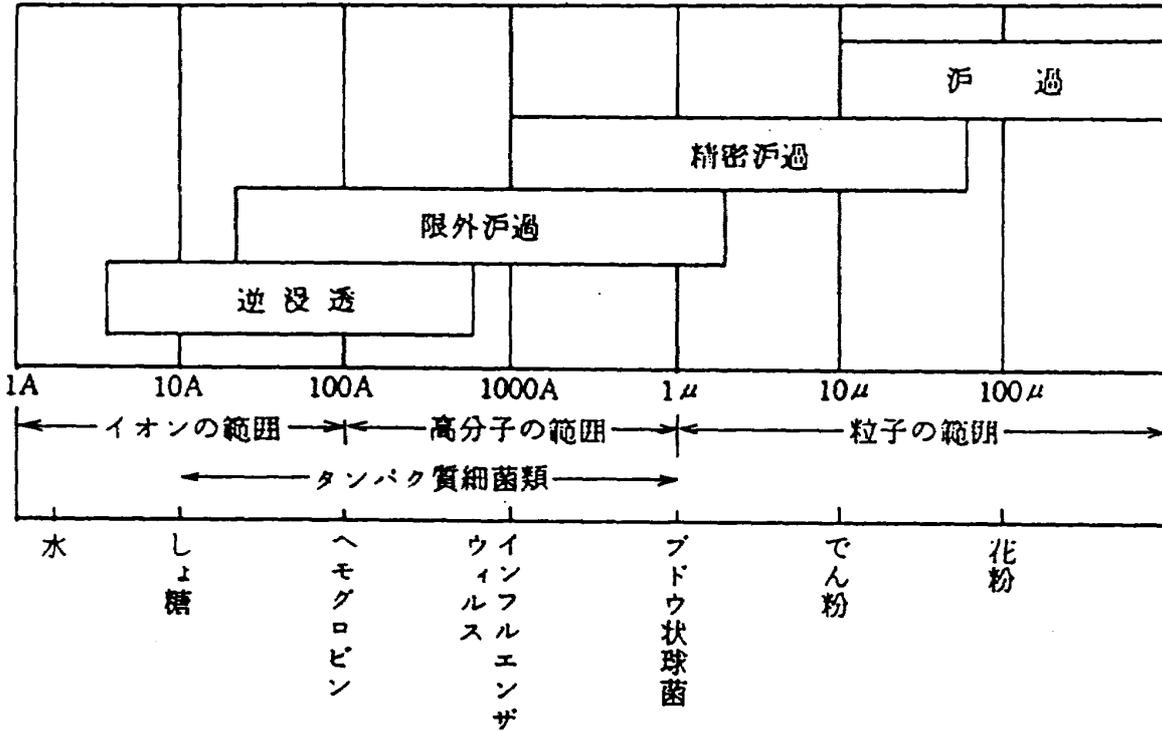


図3-4 高分子機能膜フィルターの能力

4. 評価試験法

4-1 評価試験用システム

前章で述べた処理システム^{4),5)}の構成の妥当性と問題点の把握及び各フィルターの分離特性を調べるために図4-1に示すような地上評価試験システムを製作した。原排水は一度排液タンクに貯蔵され、一定量貯った時点から処理が開始される方式となっている。原排水は送水ポンプ(1)によってプレフィルターに導かれ、固形成分が除去された後、循環水タンク(1)に送られる。循環水タンク(1)に一定量貯るとポンプ(2)が起動し、この固形成分が除去された排水は限外濾過膜フィルター(UF)に送られ処理される。UFを透過しなかった排水は再び循環水タンク(1)に戻され、繰り返しUFに送られる事によって設定された濃縮率に到達する迄循環させられる。設定濃縮率になった時点でポンプ(2)は停止され、濃縮水は濃縮水タンクに送られ貯蔵及び廃棄される。UFを透過した水は循環水タンク(2)に貯められ、やはり一定量貯った時点でポンプ(3)が起動され、逆浸透膜フィルター(RO)に送られる事によって更に高純度処理が行われる。ROを透過しなかった液は循環水タンク(2)に戻さ

れ、UFの時と同様、設定された濃縮率に到達する迄、このループを循環させる。設定濃縮率に到達した時点で、ポンプ(3)は停止され、濃縮液は濃縮水タンクへ送られ貯蔵される。ROを透過した水はかなり高純度水である事が期待されるため、臭気成分及びアンモニアを除去するための活性炭フィルター(AC)を通過させて、純水タンクに貯蔵する事にしている。もしROが製品の公称除去率通りの性能を発揮するものとすれば、植物栽培には有害なNaCl成分がほとんど除去できるので、植物栽培用養液を作ったり、動物ケージ洗浄用水等として使用する場合、この程度の処理水レベルで十分と考えられる。ここ迄の処理系が第1次処理系である。

各ポンプの作動は各タンク内に組み込まれた液面レベル計による検出信号により、リレースイッチが作動する事によって行われる。UFはさほど高圧を必要としないため、ポンプ(2)は一般的な送水ポンプを用いているが、ROは浸透圧に逆らって溶媒である水を高濃度側から低濃度側へ押し出す方法を用いているため、ポンプ(3)は4~5MPaの送水圧能力を有するものが要求される。このため、ピストン型の送水ポンプを用いた。又、各流

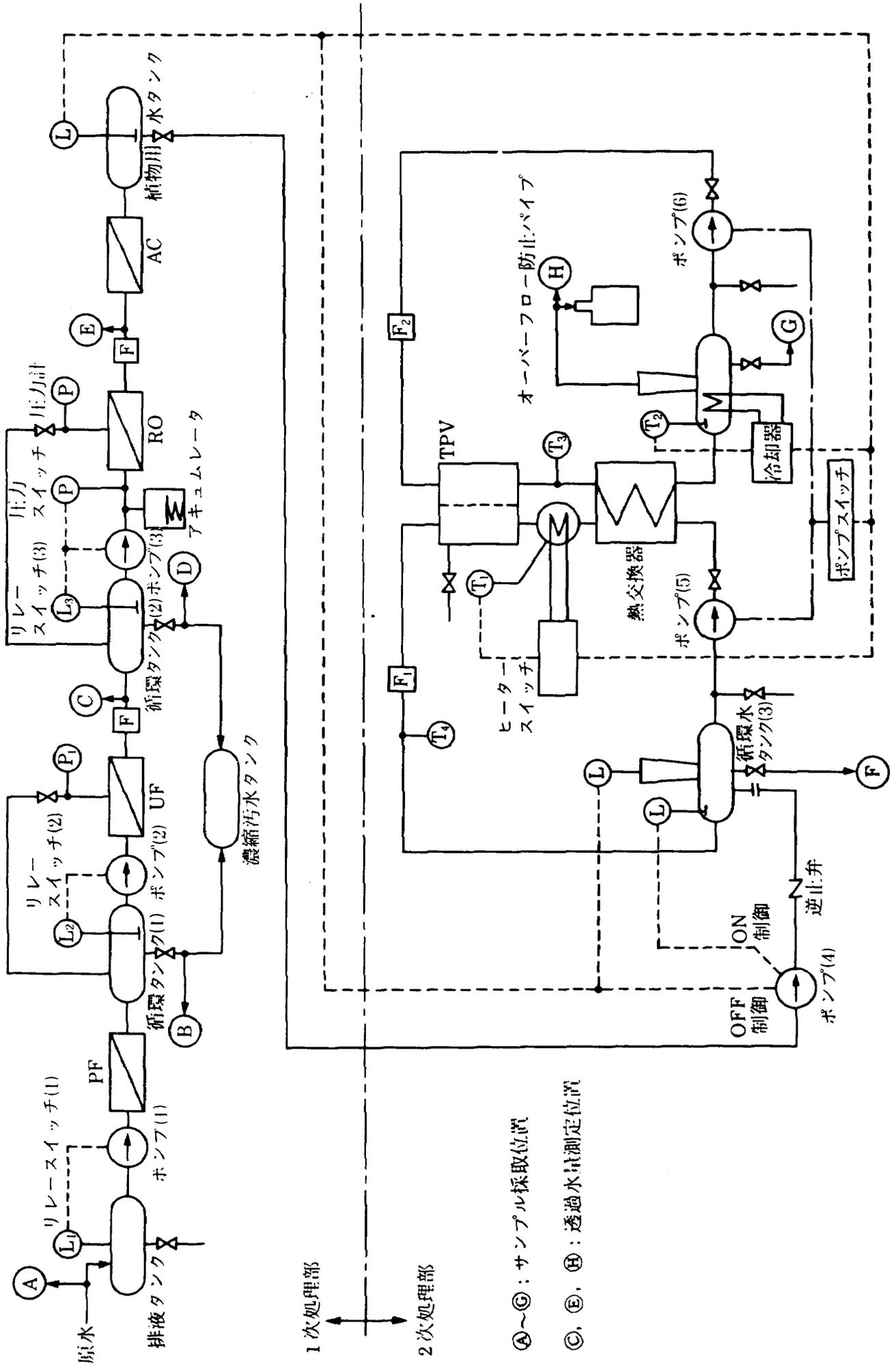


図4-1 実験システムダイアグラム

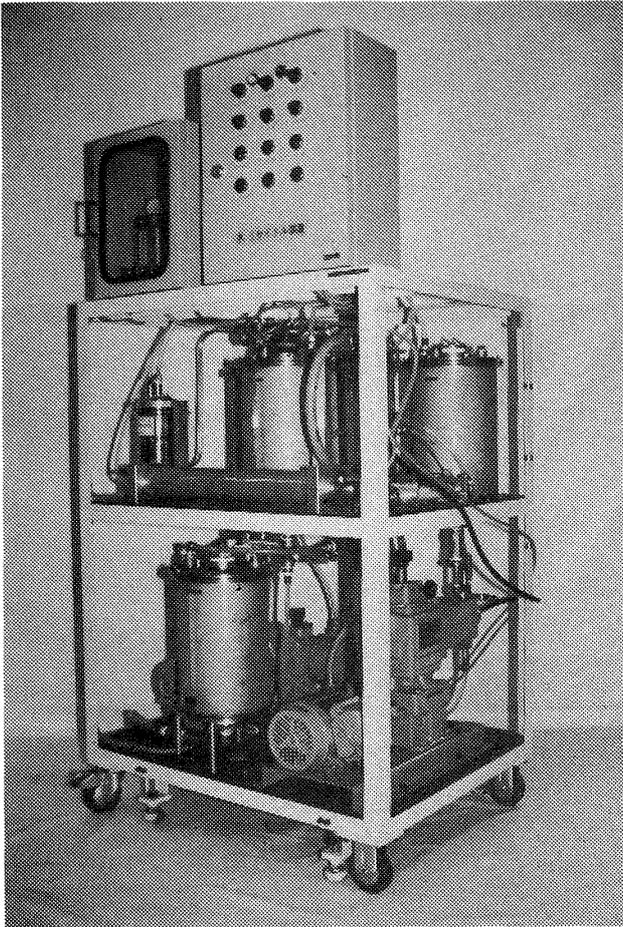


図4-2 第1次処理系実験装置

路に流量計(F)を設置し、流量制御を行った。図4-2はこの第1次処理系の実験装置の外観を示したものである。各構成要素の配置は図4-3に示すようになっている。膜フィルターの性能劣化等に関する長期的な評価実験に対応するために、各貯水用タンクは大きめに作られている。実験装置としてはポンプ(1)が起動されると、各循環水タンクに規定量の溶液が貯るに従って、ポンプ(2)から(3)へ順番に起動され、処理が順番に進められていく。又、ポンプの空運転状態を避けるために、各タンク内の残存溶液がある規定値以下になると、リミットスイッチが働き、ポンプは自動的に停止されるようになっている。ROには高圧送水が必要であり、そのため、ピストン型ポンプを用いたが、これは脈流を発生させ、膜を破損させる恐れがあるため、ポンプとROの間にアキュムレータを置いて、脈流の平滑化をはかった。

他方、飲料水や特殊な宇宙実験等に使用するためには、さらなる高純度水が必要であり、これを得るためには蒸留法を用いなければならない。本研究で用いた蒸留法⁶⁾は気化透過膜式蒸留法と呼

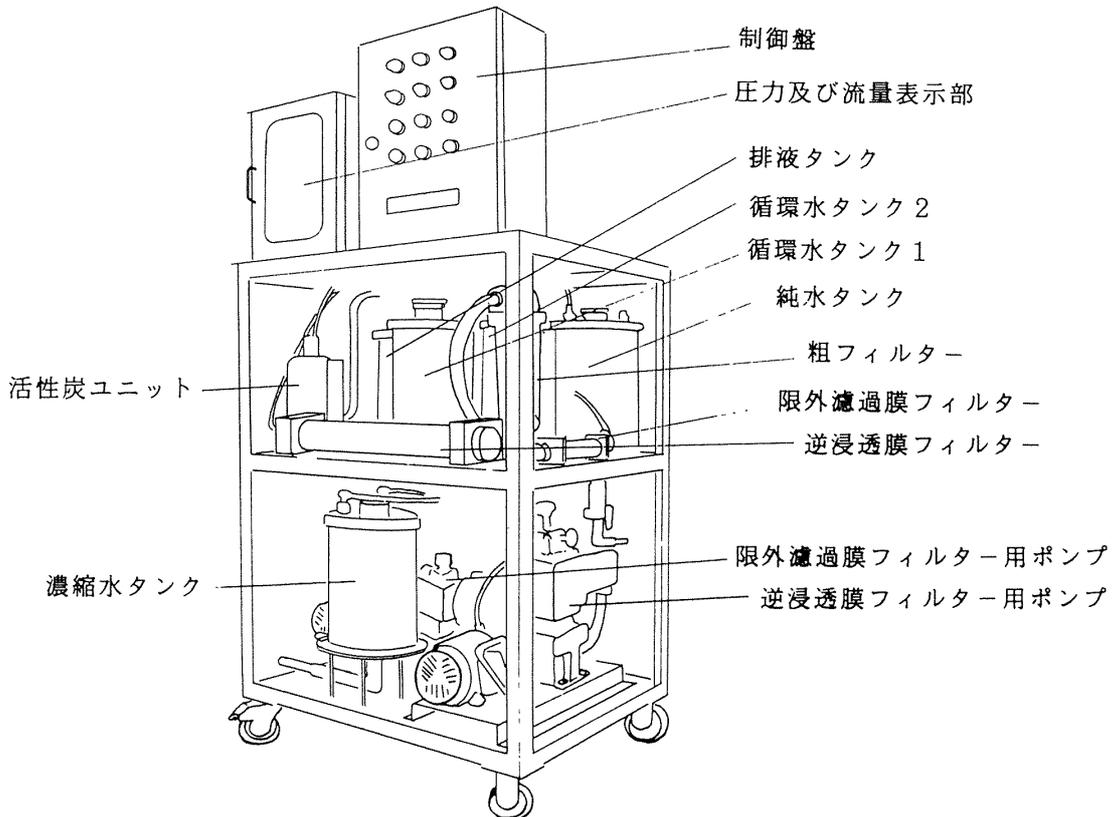


図4-3 水再生循環システム1次処理系要素配置

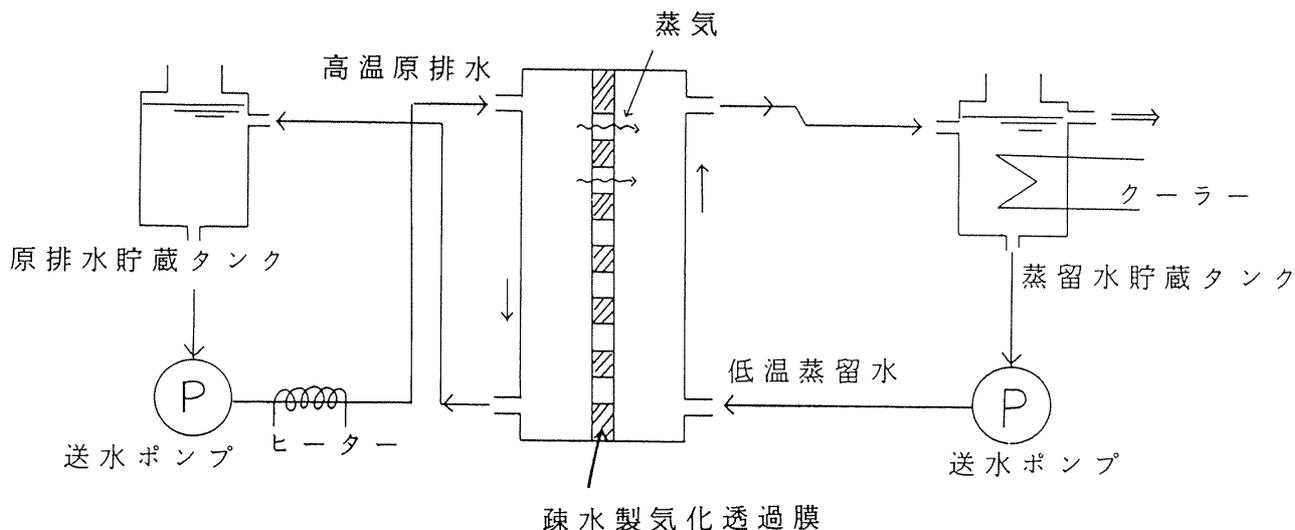
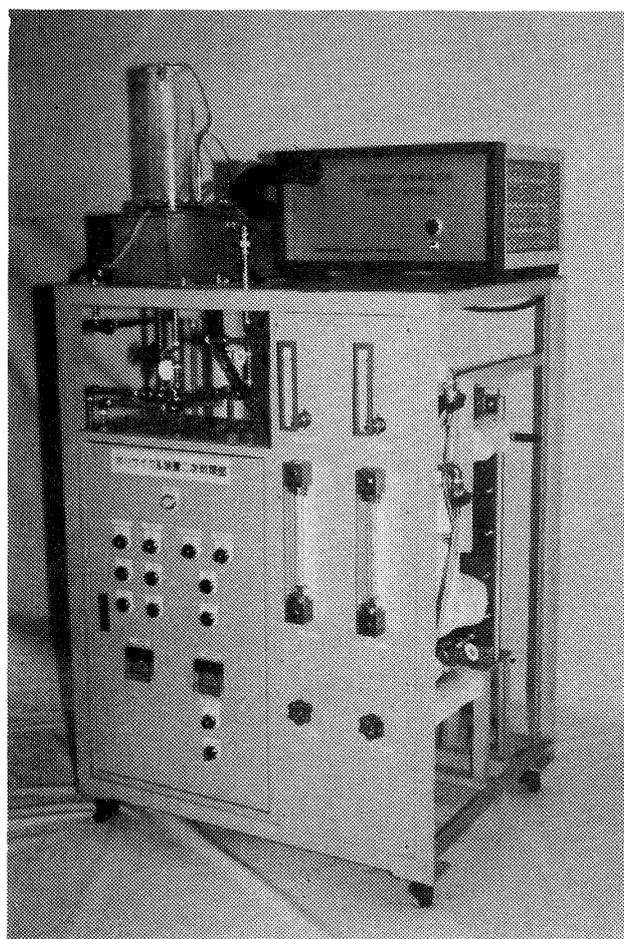


図4-4 気化透過膜式蒸留器の動作

ばれる方法で、これは気体は通すが液体は通さない性質を持つ疎水性の高分子多孔質膜を利用するもので、図4-4にその動作原理を示す。即ち、膜の片側(図の左側)に高温水を流し、膜の右側を低温にしておけば、高温側で発生した蒸気は膜両面の蒸気圧差によって、高温側から低温側へ膜を透過してゆく。この蒸気を集め、凝縮してやれば蒸留水が得られる。膜の右側を低圧にしておけば、圧力差も利用できるため、造水率は高くできるが、宇宙の無重量環境下での使用を考えた場合、地上と異なって自然に気体と液体が分離できないため、気液分離器が必要となり、システム構成が複雑となる。このため、本研究においては蒸留水タンクにあらかじめ一定量の蒸留水を保持しておき、冷却器によって低温にした状態で、システム運転開始と同時に膜の右側に流してやる方法を用いた。こうすれば膜を透過してきた水蒸気はこの低温水にふれて凝縮し、そのまま液中に溶け込むので気液分離の必要が無いという利点がある。図4-1の下段部分はこの気化透過膜式蒸留器の地上実験システムを示したものである。

第1次処理部実験装置内の純水タンクよりパイプを繋いで必要量をポンプ(4)で循環水タンク(3)に送り、処理に必要な量が貯ると液面レベル計でこれを検出し、ポンプを停止させる。又、循環水タンク(3)の水量がある残量制限値迄減少すると、液面レベル計によってこれを検出し、ポンプ(4)を動

図4-5 気化透過膜式蒸留実験装置
(第2次処理系)

かし純水タンクより補給する。ポンプ(4)は純水タンクの液面レベル計と結合されており、純水タンクの水位がある設定値迄下がるとリミットスイッチが作動し、ポンプ(4)は停止させられる。この動

作信号は循環水タンク(3)にセットされている液面レベル計からの作動信号操作よりも優位にセットされているので、純水タンクからの送水がこない時にはポンプ(4)は停止させられる。この方法によ

ってポンプ(4)の空運転事態の発生を防いでいる。循環水タンクの水位がある設定レベルを越えた時点で、制御盤上に運転可能のランプが点灯されるようになっているので、ここで、ポンプ(5)及びポ

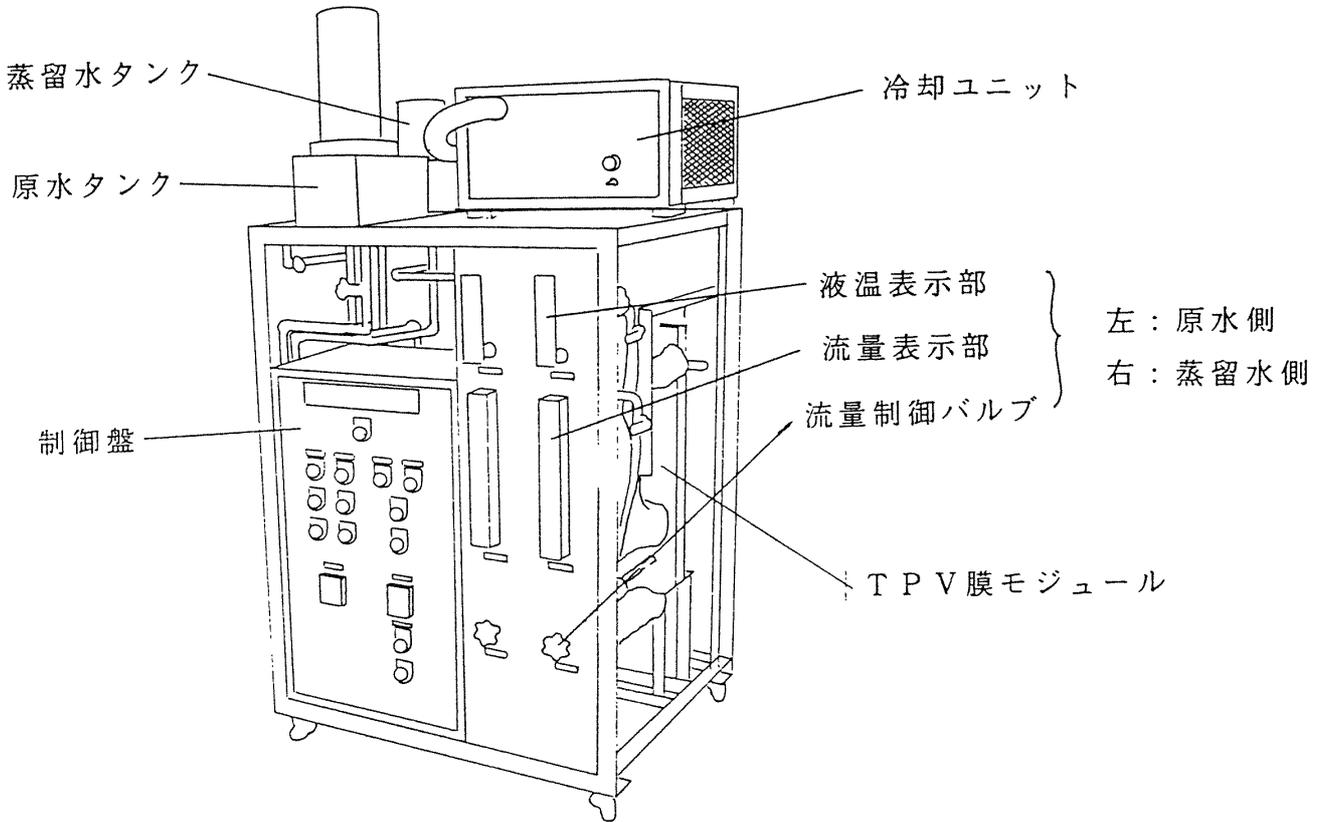


図4-6 水再生循環システム2次処理系要素配置

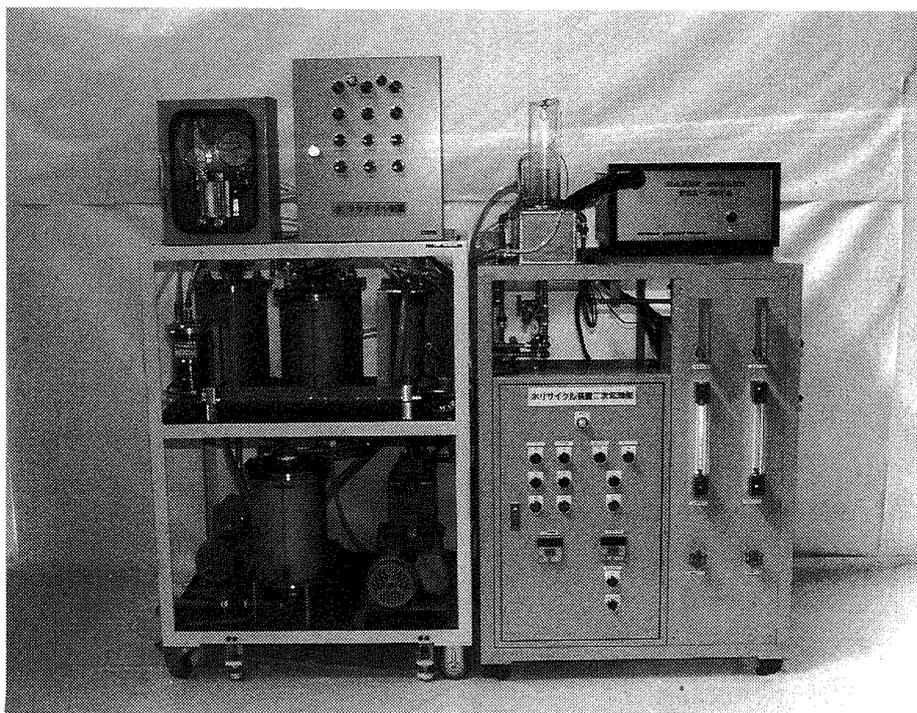


図4-7 システム全体試験

ンプ(6)を起動させる事によって蒸留器が運転状態に入る。処理すべき水が供給される限り、このループを循環して蒸留は続けられ、濃縮が続けられていく。純水タンク内の貯蔵水が無くなると、これを液面レベル計が検出し、ポンプ(4)を停止させる。次に循環水タンク(4)の水位が最低設定レベルになった時点で液面検出信号によりポンプ(5)、(6)が停止する。又、このポンプ(5)へ行く停止信号は同時にヒータ及びクーラにも伝えられ、これらのスイッチも同時に OFF となり、実験は停止される方式となっている。図4-5はこの気化透過膜式蒸留実験装置の外観を示したものであり、その各要素配置は図4-6の如くなっている。第1次処理系、第2次処理系それぞれの特性評価試験を実施する場合にはこれらは独立に用いられるが、連続した処理実験を行う場合には図4-7に示すように、併設し、送水パイプ及び電気信号線を接続する事によって、原排水から最終の蒸留迄の評価実験を連続して行う事ができる。

4-2 評価に用いた各フィルターの仕様

実験装置及び膜フィルターの仕様は処理すべき排水量に対応して設計されなければならない。人間が生活していくために使用する水の量に対応した排水、動植物飼育栽培装置から出てくる排水量等についてはいろいろ推定が試みられている。宇宙での生活という制限下では人間の場合、20~25l位が予想されているが、動植物の場合には気中に放出される水分及び時々行われるケージの洗浄排水等を除けば、日々の排出量はさほど多くない。

ガス循環システムから回収される人間の呼吸や発汗、植物からの蒸散等による水蒸気の凝縮水は基本的には蒸留水であり、かなり純度は高いことが予想されるので、第1次処理系を通す必要はないと考え、今回の評価実験の対象からはずした。本研究では尿等の高濃度排水の処理に対し、各種膜フィルターを使用した場合の特性を把握し、もって水処理システムのこのような構成の妥当性及び問題点を評価する事を実験の目的としている。処理量の多少は本質的な問題ではない。実験のやりやすさの観点から処理量をできるだけ少なくし

た方がよいが、あまり少ないと定量的関係が損なわれる。このような問題を検討して、装置設計の目安は逆浸透膜フィルターの平均造水能力を3.7l/hとし、これに対応した能力という事で限外透過膜フィルター及びポンプ等の仕様を決めた。

(1) 限外透過膜フィルター

限外透過膜フィルターとして商品化されているものには高分子多孔質膜が用いられている。処理量は膜面積に比例するので、小型化をはかるため、膜製造技術の進歩ともあいまって、現在ではほとんどの物が中空糸(キャピラリー)状に成形され、それらをたばねて用いる方式となっている。この中空糸膜は内圧型であり、その内面は緻密なスキン層でおおわれており、その外面は多孔質膜となっている。図4-8に示すように膜内部に排水を流すと、多孔質膜の孔径よりも小さな物質のみが膜の外側へ透過していき、大きな物質のみが残される事によって透過される仕組みとなっている。市販の多くの限外透過膜フィルターについてその特性を調査したが、公称除去率等の性能面ではあまり大きな違いはみられなかったので、本実験では小型化の改造が可能で、かつ、高温水による滅菌

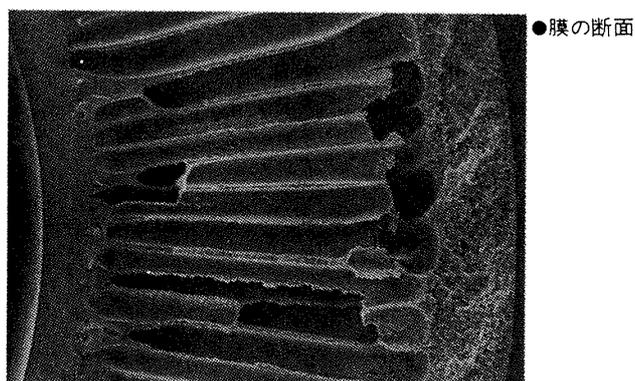
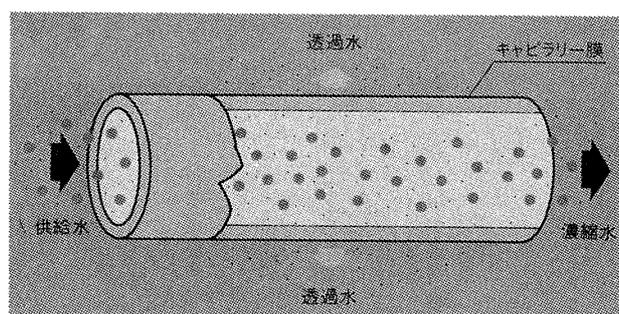


図4-8 中空糸(キャピラリー)膜の構造

洗浄ができる 95°C の高温でも使用可能という特徴を持つ日東電工製のキャピラリータイプの NTU-3050-C3R をモデルケースとして選んだ。これは限外ろ過膜をモジュール化したもので、以後は限外ろ過モジュールと呼ぶが、この基本的な仕様を示せば表4-1のようになる。UF モジュールに要求される透過水量は RO モジュールの循環水量によって決まる。これは後で述べるが、最大で 37 l/h である。上記 UF モデルの場合、市販品の膜面積は 6.3m² である。又、その透過水量は最適使用条件である圧力 100kPa の時、270 l/m²・h であるので、その比によって、必要な膜面積は 0.14m² となる。しかし、膜の性能低下等の問題を考慮して、安全率を 10 倍位とり、有効膜面積として、1.4m² を改造の目標値とした。このモジュールの外観等は図4-9、10のようになっている。

(2) 逆浸透膜フィルター

本膜フィルターは工業界においては高純水の製造又は希薄成分の濃縮等のために使用されており、膜の種類も使用目的に応じて多種多様である。本

実験では無機イオンの除去率が非常に高く、かつ、比較的有機物除去性能も良さそうであり、又、本実験用としての改造にも対応できるという点を考慮して、同じく日東電工製の NTR-7199 という製品をモデルケースとして選んだ。本フィルター系列の各種成分に対する公称除去率を表4-2に示す。このフィルターは高圧に耐えるため、平膜状のものを巻いた状態にして使用する方法であり、その作動原理を示すと図4-11のようになる。実験用として用いたフィルターの仕様は表4-3のようになっている。この仕様の内、膜面積については UF フィルターの時と同じようにして、3.7 l/h の透過水量を得る値を算出すると約 0.2m² となる。そこで、安全率を同じく 10 倍程度見積って、2.0m² を改造の目標値とした。図4-12に本フィルターの外形を、図4-13にこれを収納するベッセルの構造を示した。

(3) 膜式蒸留器

ミクロンオーダーの細孔を持つ疎水性多孔質膜は液体状の物は通過できないが、水蒸気は透過し

表4-1 実験用限外ろ過膜モジュールの仕様

限外ろ過モジュール	仕様	中空糸サイズ 内/外径 (mmφ)	0.55/1.0
		有効面積 (m ²)	1.4
		モジュール径 (mmφ)	89
		モジュール長 (mm)	266
使用条件	供給水圧力 (KPa)	110~600	
	上限温度 (°C)	40	
能力	pH 範囲	2~12	
	透過水量 (l/h)	37	
主要材料	公称分画分子量 (PEG)	20,000	
	中空糸フィルタ	合成高分子 (ポリスルホン系)	
ポンプ	接着剤	エポキシ樹脂	
	仕様	循環液流量 (l/hr)	74
		最小吐出圧力 (KPa)	220
		消費電力 (W)	6

表4-2 逆浸透膜フィルターの除去率の比較

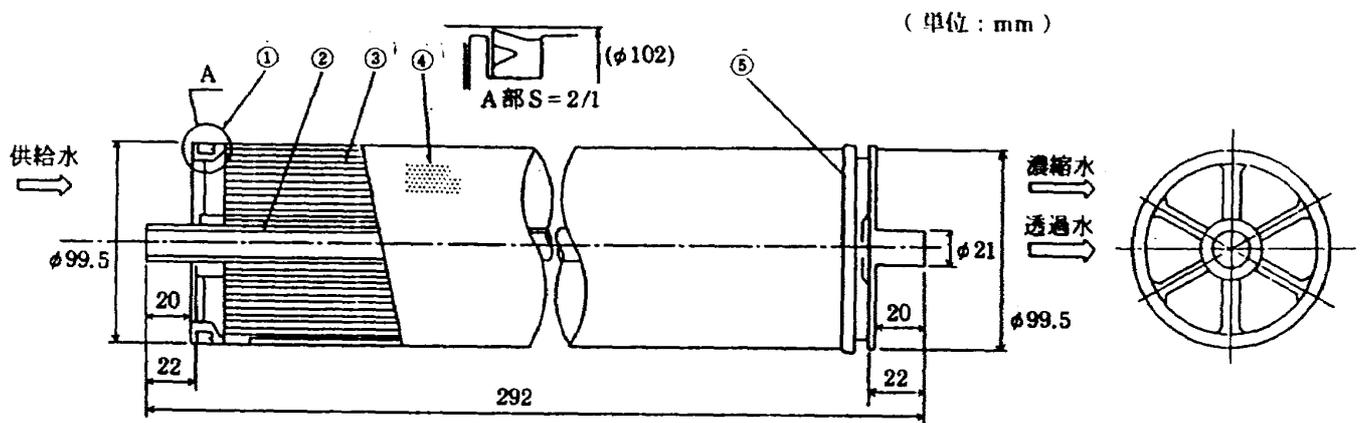
成分	要素名	除去率		
		NTR-7199	NTR-7197	NTR-7250
有機成分	尿素	64	52	11
	クレアチニン			
	尿酸	89	85	77
	各種有機	40-99.6	34-97	9-92
	ビタミン アミノ酸 タンパク質			
無機成分	Ca ²⁺	99.9	99.5	90
	Mg ²⁺	99.9	99.7-99.9	90-99
	Na ⁺	99.3-99.9	98.0-99.9	47-99
	K ⁺	99.2-99.9	97.0-99.8	54-98
	NH ₄ ⁺	97.3-99.7	95.0-98.5	30-95
	NO ₃ ⁻	97.3-99.9	95.0-98.0	39-94
	HCO ₃ ⁻	99.5	98.0	92
	PO ₄ ³⁻	99.4	98.5	
	SO ₄ ²⁻	99.7-99.9	98.5-99.9	95-99
	Cl ⁻	98.5-99.9	95.0-99.8	30-94
	Cu	99.9	99.8-99.9	93-99
	B	75-90	57-87	
試験条件	圧力 (MPa)	4.2	3.0	2.0
	濃度 (%)	0.5	0.3	0.2

ていくという性質があり、この性質を利用して蒸留を行う方式のもので、気化透過膜式蒸留器と呼ばれている。蒸気の透過量は膜両面の蒸気圧の差に比例するので、この差を大きくしてやれば蒸留能力は大きくなる。このための方法としては、排水側を高温にし、凝縮側を低温低圧にしてやる事が必要である。今回特性評価試験用に試作したものはテフロン系の平膜タイプを利用したもので、その構造は図4-14に示すように小型化を図るた

め、多層化している。膜と膜の間には膜の保護と流水路空間の確保及び流れを乱流化し、蒸発作用を高める為に、厚さ1.0mmの弾力性のあるメッシュ状のスペーサーを挿入している。強度の面からは、膜厚を大きくしたいが、そうすると膜内部で温度勾配が生じ、膜両面の蒸気圧差が小さくなるため、造水能力が低下するという問題が生じる。気化透過法には一般に10~500μmの厚さを持つ膜が使用可能である。本実験では疎水性多孔質膜の

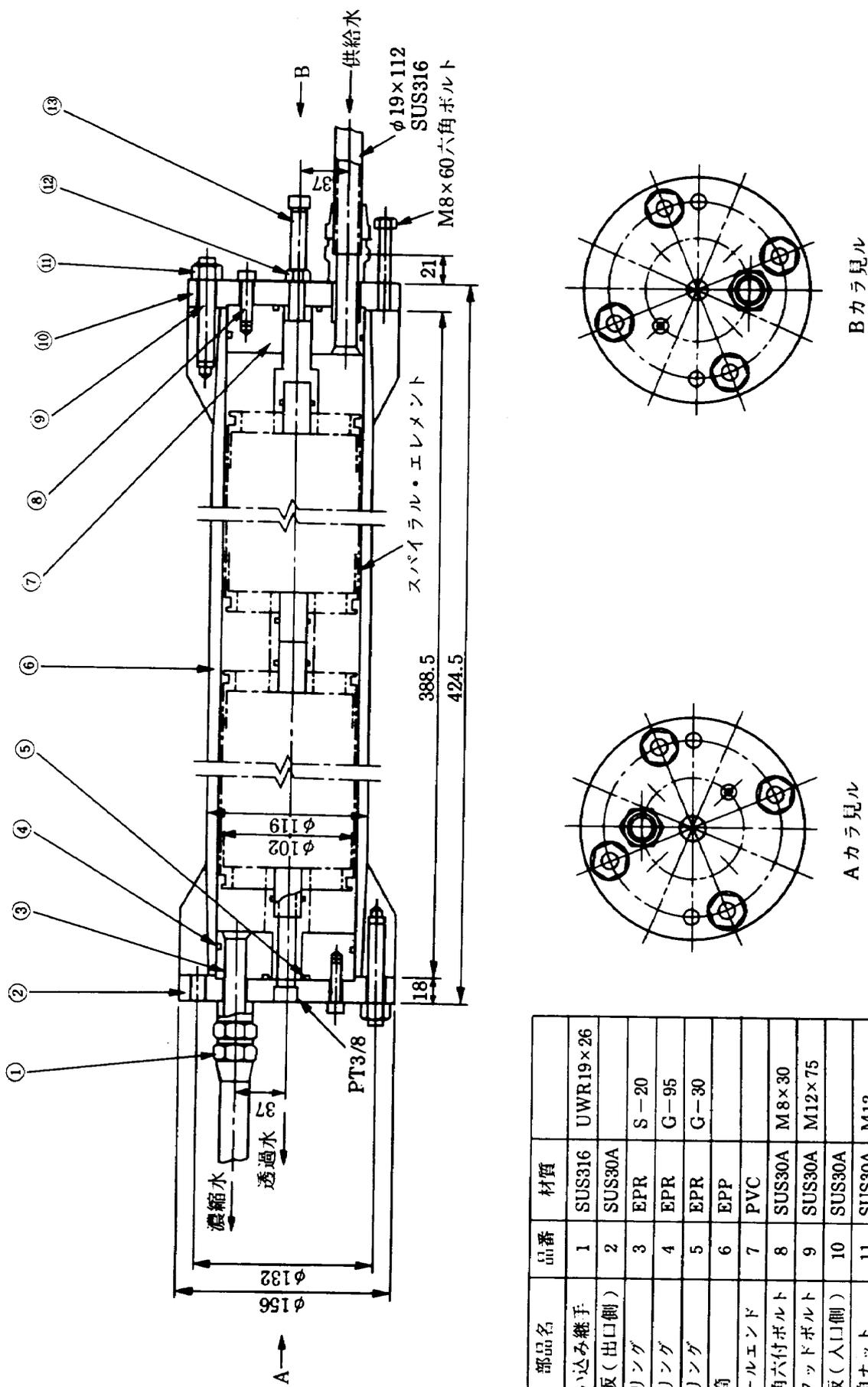
表 4-4 気化透過膜式蒸留器

項目	仕様
材質	疎水性多孔膜（テフロン膜）
膜厚	0.05 mm
有効面積	0.87 m ²
1枚の面積	0.05 m ² (0.1 m × 0.5 m)
外形寸法	0.6 m × 0.15 m
原水側温度	90 ~ 95 °C
蒸留水側温度	15 ~ 20 °C
原水側流速	3 l/hr
蒸留水側流速	3 l/hr



品番	部材料	材質
1	U パ ッ キ ン	エチレンプロピレンゴム (EPR)
2	集 水 管	FRP
3	膜	合成高分子系複合膜
	透過水流路材	ポリエステル+樹脂
	原水流路材	ポリプロピレン
	接 着 材	エポキシ系
4	F R P シ ェ ル	エポキシ樹脂+ガラス繊維
5	アンチテレスコープ	変成ポリフェニレオキシド (ノリル731J)

図 4-12 逆浸透膜モジュールの外形



個数	部品名	品番	材質
2	くい込み継手	1	SUS316
1	端板 (出口側)	2	UWR19×26
2	オリング	3	SUS30A
2	オリング	4	EPR
2	オリング	5	S-20
1	外筒	6	EPR
2	シールエンド	7	G-95
8	六角六付ボルト	8	G-30
16	スタッドボルト	9	EPP
1	端板 (入口側)	10	PVC
16	六角ナット	11	SUS30A
1	六角ナット	12	SUS30A
1	六角六付ボルト	13	M8×30
			SUS30A
			M12×75
			M12
			M12
			M12×80

図 4-13 逆浸透膜モジュール用ベッセルの構造

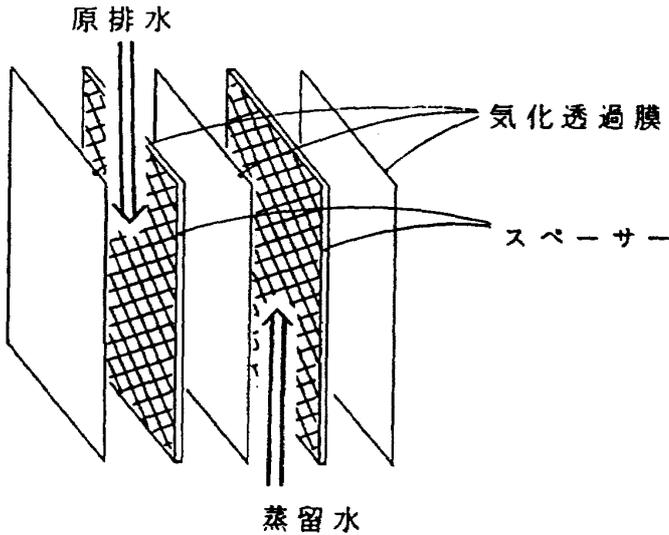


図4-14 気化透過膜の多層化

中では強度の面及び使用温度の面で優れているテフロン膜を選択し、厚さは $50\mu\text{m}$ の物を用いた。表4-4にこの蒸留器の仕様の概要を示す。

4-3 試験計画

4-3-1 目的及び測定項目

宇宙における閉鎖環境下での有人活動によって生じる排水の処理に対して、前述の図3-3に示す様な処理系の構成を考えた。この処理系構成の妥当性を評価するために、選択された限外透過膜フィルター、逆浸透膜フィルター及び気化透過膜式蒸留器の各主要要素が、尿を含むような排水の繰り返し高濃縮処理に使用された場合の公称透過特性値の変動及びその要素の使用可能期間推定等のデータを得ることを目的とした評価実験を行った。即ち、前述3種の要素について、その特性変化に対応する透過水量及び分離能力の長期使用による特性変動の測定を行った。

4-3-2 試験方法

(1) 試験時間

目標としては500時間を設定した。これは水再生処理装置稼働時間を1日に5～6時間位と仮定した時に物資の補給サイクルとされている3ヶ月間に相当するものである。試験はタンク容量の関係で1日に17時間を目標とし、その間の設定された時刻にデータの測定を行った。

(2) 試験用排水

3カ月にわたる長期試験を行うには、1日の排水量を25lとすると、約2,300lの試験用水が必要となる。本試験では排水の中でも処理の難しい尿を本実験の対象とした。ただし、実験条件を揃える意味からも自然尿でなく、成分的にそれに近い人工尿を作り、これを用いた。人間の平均的な自然尿の成分と人工尿の成分組成をそれぞれ表4-5⁷⁾、表4-6に示した。人工尿では微量成分及び混合しても沈殿してしまう成分は除いてある。

(3) 濃縮率の設定

水再生処理システムのみで考えた場合、排水からの水の回収率が高い程効率のよいシステムと言えるが、この回収率を上げるという事は高濃縮を行うことを意味し、これはフィルターの目詰まり等の性能劣化を早めるという結果を招く。従って、システムの運用性を考えた場合、濃縮率はフィルター交換サイクルとの兼ね合いで設定する必要がある。なお、回収率と濃縮率の関係は基本的には同じ事を意味している。透過水即ち、製造水に注目すればどの程度原排水から水が回収できたかという点で回収率となり、他方、原水側に注目すれば、水が抜き取られてどの程度まで濃縮されたかという観点から濃縮率という表現になる。この濃縮率設定の一つの目安として人工尿及び自然尿について蒸発によって結晶が析出する濃度測定をピーカを用いて行った。その結果は表4-7に示すようになった。

この結果から、尿そのものについては60%以上の濃縮率は無理である事がわかった。しかし、一般に尿は洗浄水と共に排出され、現在の一般家庭では5倍以上の洗浄水が使われている。宇宙ではもっと厳しい使用条件になると思われるので、本実験では2倍の希釈率として原排水を作成し、80%程度の濃縮率を目標として試験を行った。

(4) 試験法

運転開始後 t 時間後の水の回収率 $V_{RR}(t)$ はそれ迄の製造水量を $V_p(t)$ 、原水タンク内残量も含むシステムとしての残水量を $V_s(t)$ とすれば、次式によって与えられる。

表4-5 人間の平均的尿成分

		尿 (1170g, 96.3% は水)				
		g	N	C	H	O
有機成分	尿素	24.30	11.34	4.87	1.62	6.47
	クレアチニン	1.45	0.54	0.62	0.09	0.20
	アンモニア	0.60	0.49	-	0.11	-
	尿酸	0.55	0.18	0.20	0.01	0.16
	馬尿酸	0.51	0.04	0.31	0.02	0.14
	インヂカン	0.01	+	+	+	+
	アラントイン	0.005	+	+	+	+
	グルコース	0.70	-	0.28	0.05	0.37
	28.2g オキシ酸	0.05	-	0.02	+	0.02
	ショウ酸	0.015	-	+	+	0.01
	アセトン	0.01	-	+	+	+
無機成分	NaCl	食塩				9.3
	H ₃ PO ₄	リン酸分				1.9
	SO ₄ ²⁻	硫酸分				1.8
	K ⁺	カリウム				1.5
	Ca ²⁺	カルシウム				0.2
	Mg ²⁺	マグネシウム				0.2
	14.9g Fe ²⁺	鉄				0.005
計						43.1g

$$V_{RR}(t) = \frac{V_P(t)}{V_P(t) + V_S(t)} \times 100$$

分母の $V_P(t) + V_S(t)$ は処理すべき原排水量であり、 $V_{RR}(t)$ が80%なので、この方式に対応する製造水量 $V_P(t)$ が得られた時点で1サイクルの試験が終了する事になる。このサイクルは貯水用のタンク容量から、初期計算上は17時間と設定した。しかし、各膜フィルターはこの1サイクルの処理時間の経過に従って、濃縮による浸透圧上昇等のため、造水能力が低下していくので、設定された濃縮率に到達する時間が延びていく事が予想される。これへの対応策として、試験が夜間に及ぶときは、原水側のタンクに取り付けられている液面検出計を用いて、80%の濃縮レベルに対応する残水量に到達したところで、ポンプ等へ停止信号を出すようリミットスイッチを作動させるようにした。測定項目は、透過水量及び各膜の透過水の含有成分

等である。

1サイクルの試験終了後、1次処理系はすべての残水を棄て、イオン交換水で約15分洗浄してから、次回の試験が開始される。2次処理系については処理される原水側のみから残水を棄て、蒸留水を用いて15分間洗浄する。蒸留水側は純度が高いため試験中洗浄は行わない。1次処理系については試験100時間毎に大洗浄を行った。即ち、まず、RO膜モジュールについてはケースの蓋をはずし傾けたまま約10分間放置し内部の液を出し切った。この間RO系については配管は取り外し、循環水タンク(2)は上部の蓋を取り外し、各々水道水でブラシ、スポンジたわし等を使用して洗い流した後、RO膜モジュールを組み立て試験装置全体を接続した。

排液タンク及び循環水タンク(1)についてもタンク下の配管に設けられている外部放出バルブを解

表 4-6 人工尿調整成分表

No.	成分名	投入量(g/l)	備考
1	クレアチニン	1.239	
2	グルコース	0.598	
3	尿素	207.69	
4	尿酸	0.100	実際の尿では0.470
5	NaCl	7.949	
6	(NH ₄) ₂ HPO ₄	1.879	
7	CaSO ₄	0.581	
8	MgSO ₄	0.856	
9	K ₂ SO ₄	0.803	
10	K ₃ PO ₄	0.592	
11	KOH	0.856	

表 4-7 加熱による蒸発試験結果

試験-1 (人工尿) 容量: 110cc

残量 (cc)	濃縮率 (%)	色	沈殿物	備考
100	0	透明	無し	臭気無し
57	47	白濁する	:	やや臭気有り
40	60	:	発生(白色)	底面に薄く

試験-2 (人工尿) 容量: 200cc (リン酸&アンモニアを除く)

残量 (cc)	濃縮率 (%)	色	沈殿物	備考
200	0	無色透明	無し	臭気無し
100	50	:	:	やや臭気有り
60	70	:	:	:
50	75	:	:	:
40	80	:	:	:
30	85	:	:	:
20	90	:	発生	底面に微量の白色物

試験-3 (自然尿: 午前採取) 容量: 100cc

残量 (cc)	濃縮率 (%)	色	沈殿物	備考
100	0	薄黄色	無し	強い臭気あり
50	50	薄紅茶色	:	:
40	60	:	:	:
30	70	紅茶色	発生	底面に微量の白色物

*: 加熱による有機物分解の為に臭気が強い

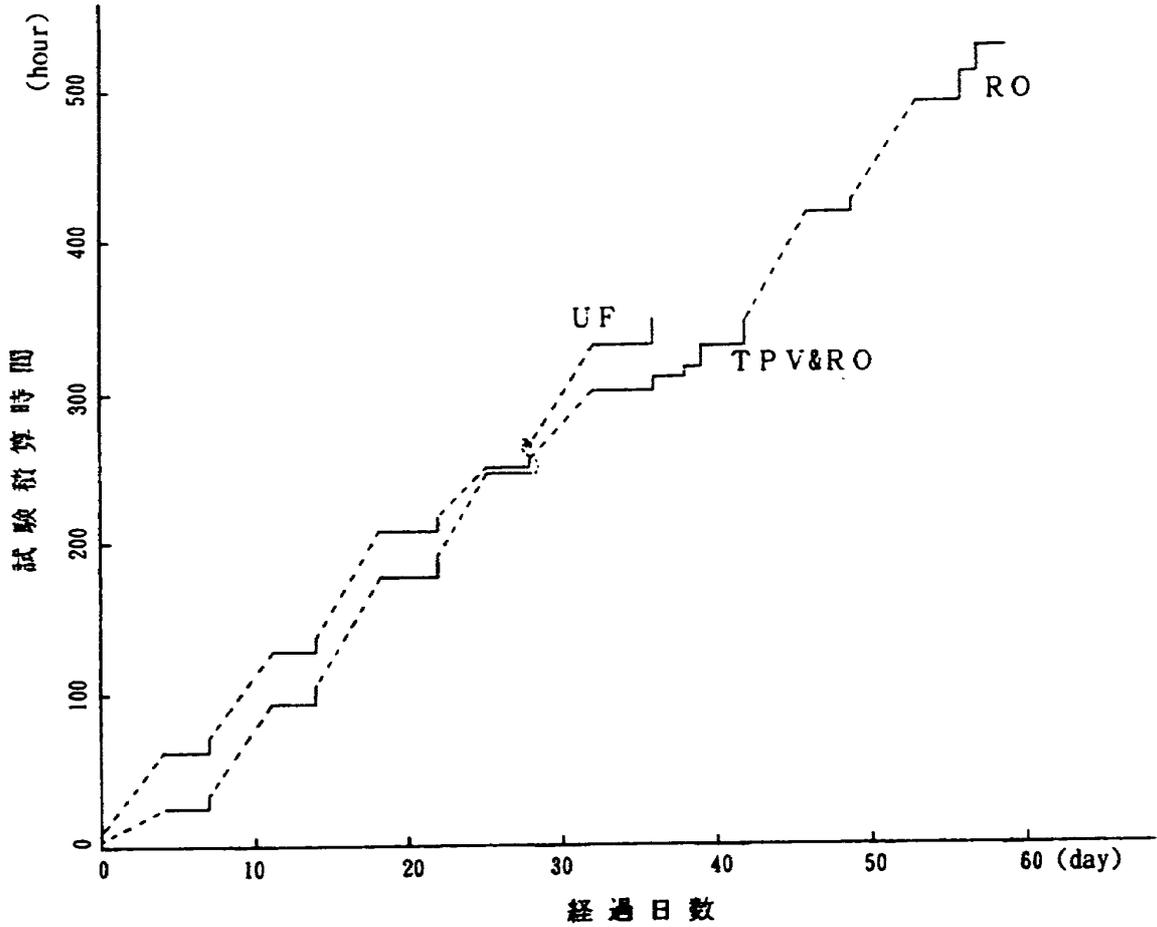


図5-1 評価試験のタイムヒストリー

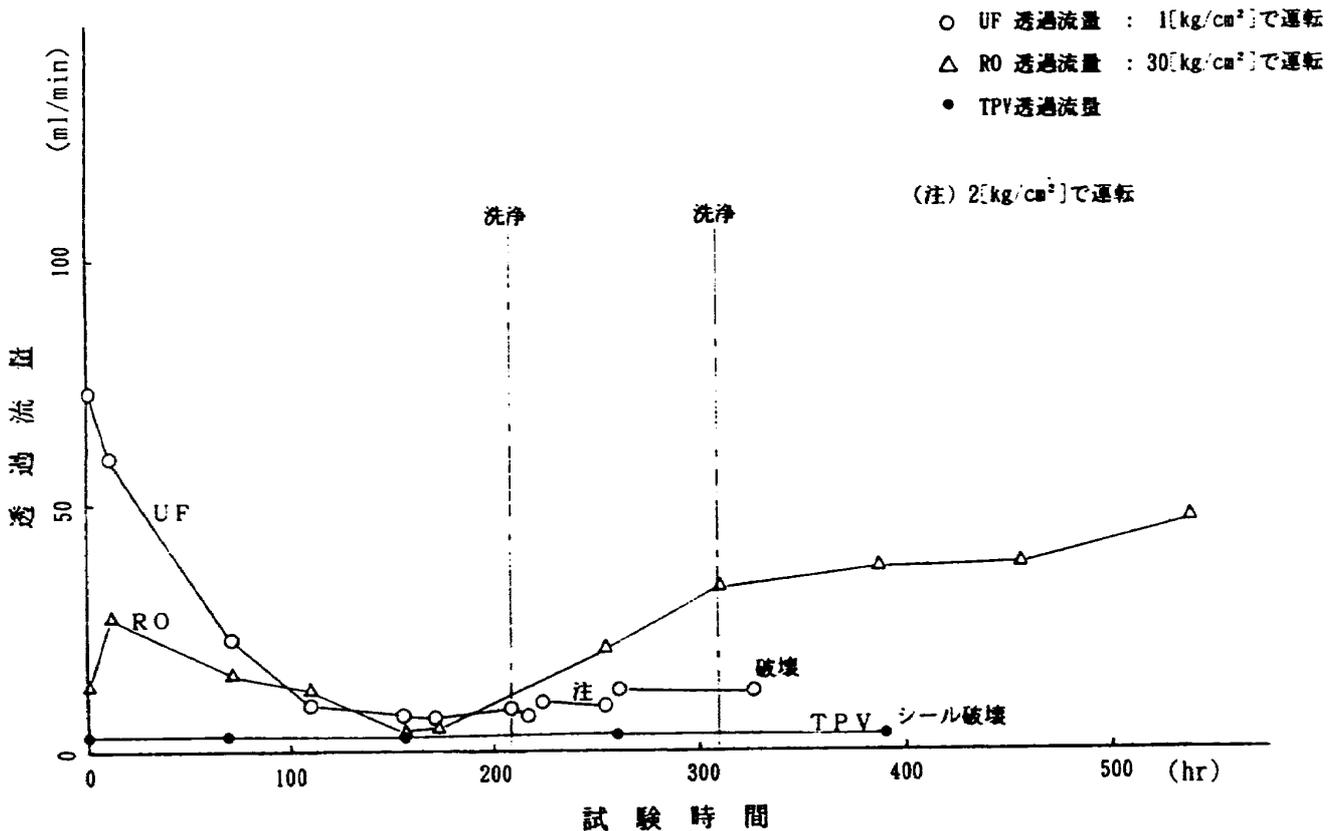


図5-2 各要素の透過水量の変化

た。実験条件はNTR-7199用の新しい平幕を使用し、圧力は5MPaで行ったものである。その結果を示すと表5-2のようになった。ほとんどの成分に対して、その除去率は50%以下という結果に

なっている。原因は容易に決められないが、メーカーの除去率に対する公称値は一般に単一成分のみが比較的低濃度(0.5~1%)含まれている原水に対するものであり、我々が行った実験のように多成

表5-1 各要素の分離特性

No.	成分	濃 度 (ppm)									備考	
		原水	UF前	UF後	UF除去率 (%)	RO前	RO後	RO除去率 (%)	TPV前	TPV後		TPV除去率 (%)
1	クレアチニン	548	535	533	0.4	960	253	73.6	0	0	100.0	
2	グルコース	300	260	260	0.0	300	50	83.3	0	0	—	
3	尿素	10,290	9,861	9,861	0.0	10,719	9,004	16.0	7,718	0	100.0	
4	アンモニア	294	284	282	0.7	809	290	64.2	3,090	2,300	25.6	
5	Na	1,632	1,609	1,609	0.0	3,219	828	74.3	1,563	0	100.0	
6	Cl	3,049	3,014	3,014	0.0	5,672	1,808	64.1	3,474	0	100.0	
7	PO ₄	779	779	773	0.8	1,138	239	79.0	322	0	100.0	
8	SO ₄	832	821	800	2.6	2,050	326	84.1	705	0	100.0	
9	K	536	524	524	0.0	1,048	278	73.5	516	0	100.0	
10	Ca	99	107	106	0.9	134	17	87.3	0	0	—	
11	Mg	92	89	89	0.0	144	27	81.3	0	0	—	

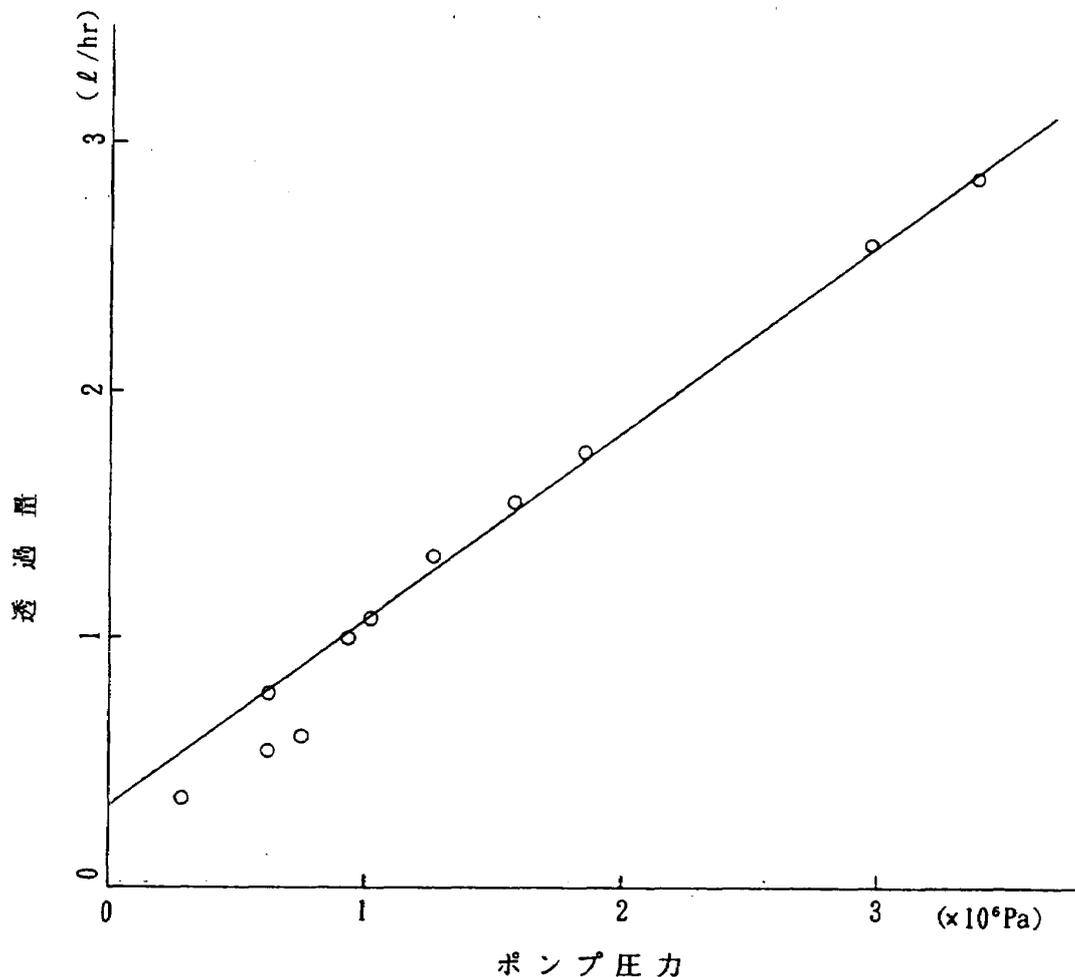


図5-3 逆浸透膜フィルターの透過量特性

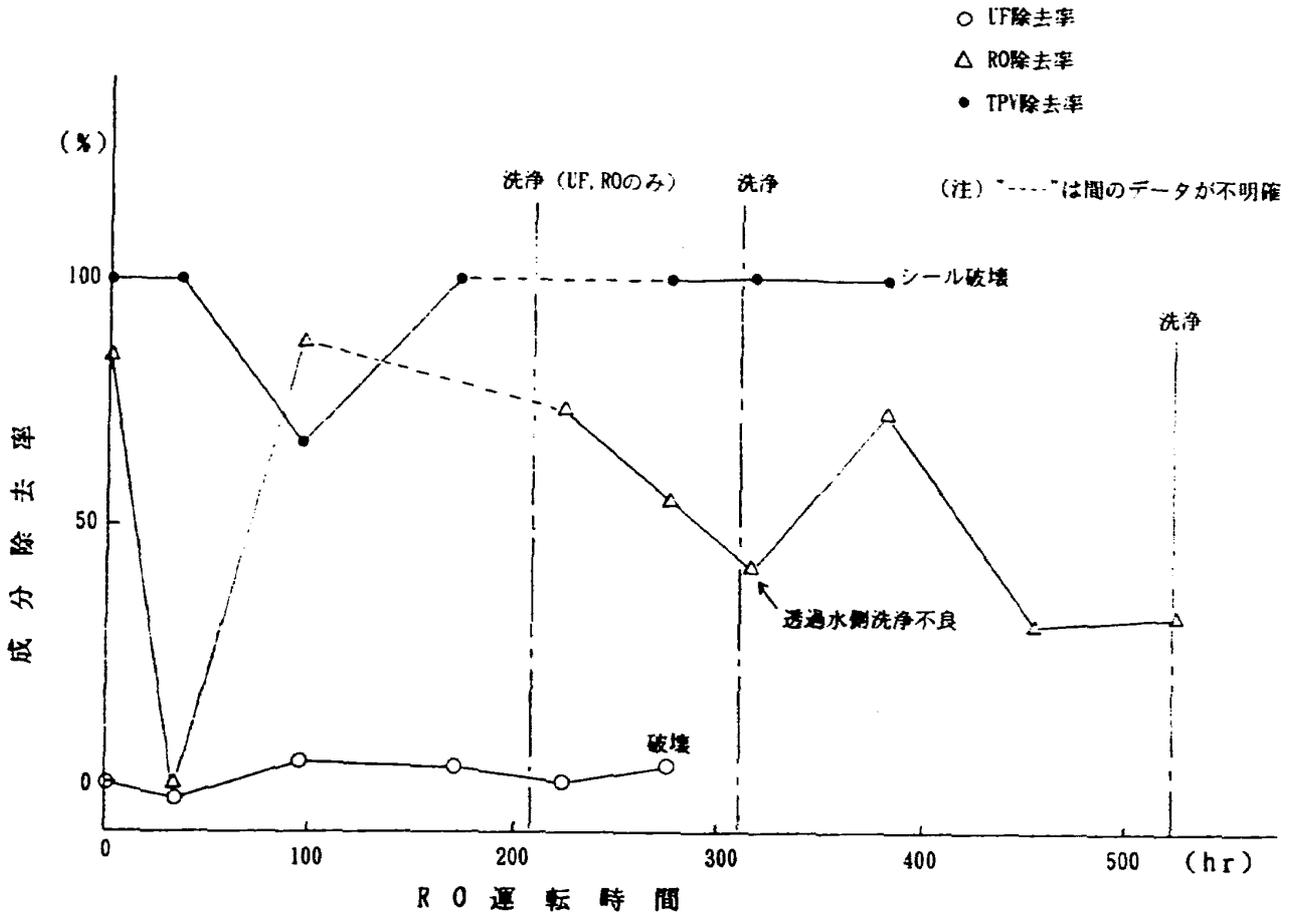


図5-4 透過特性 (1/11) : クレアチニン

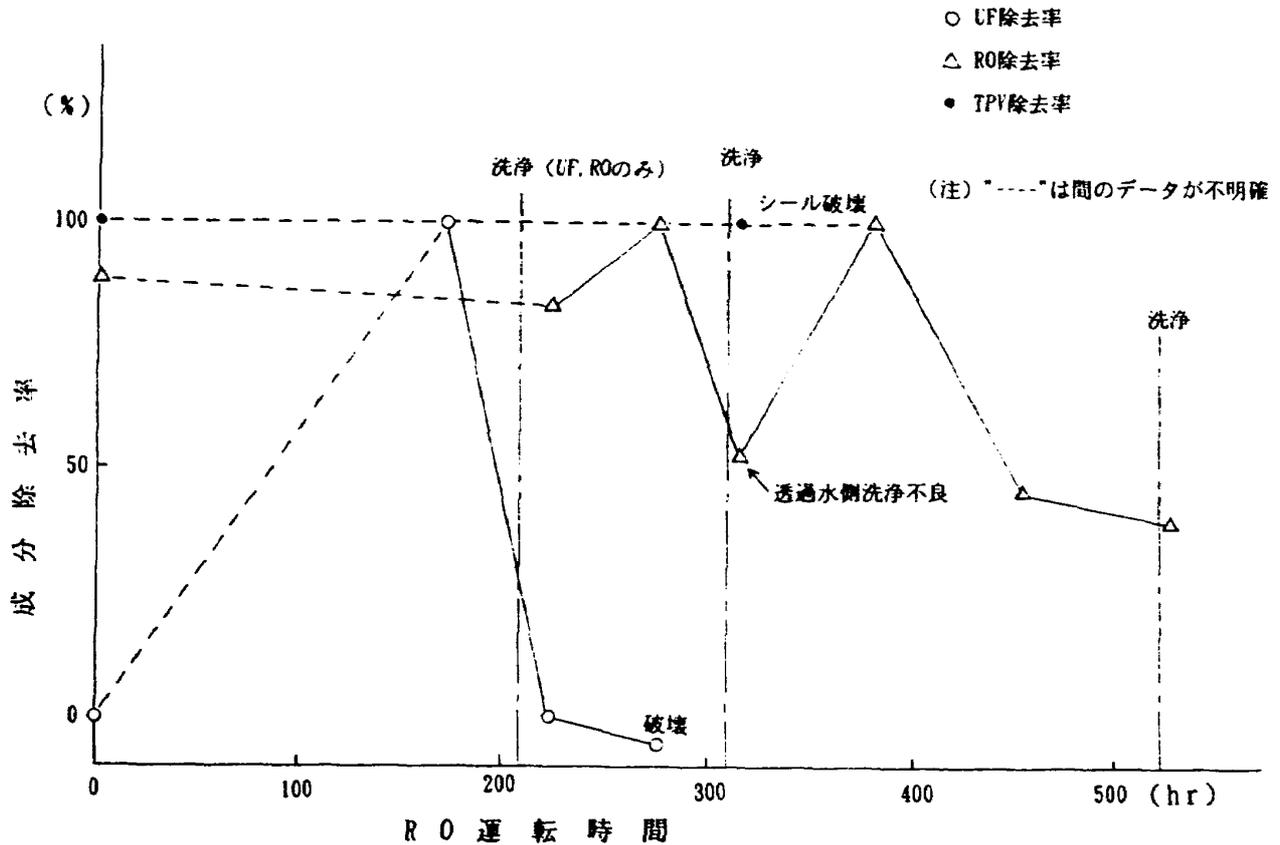


図5-5 透過特性 (2/11) : グルコース

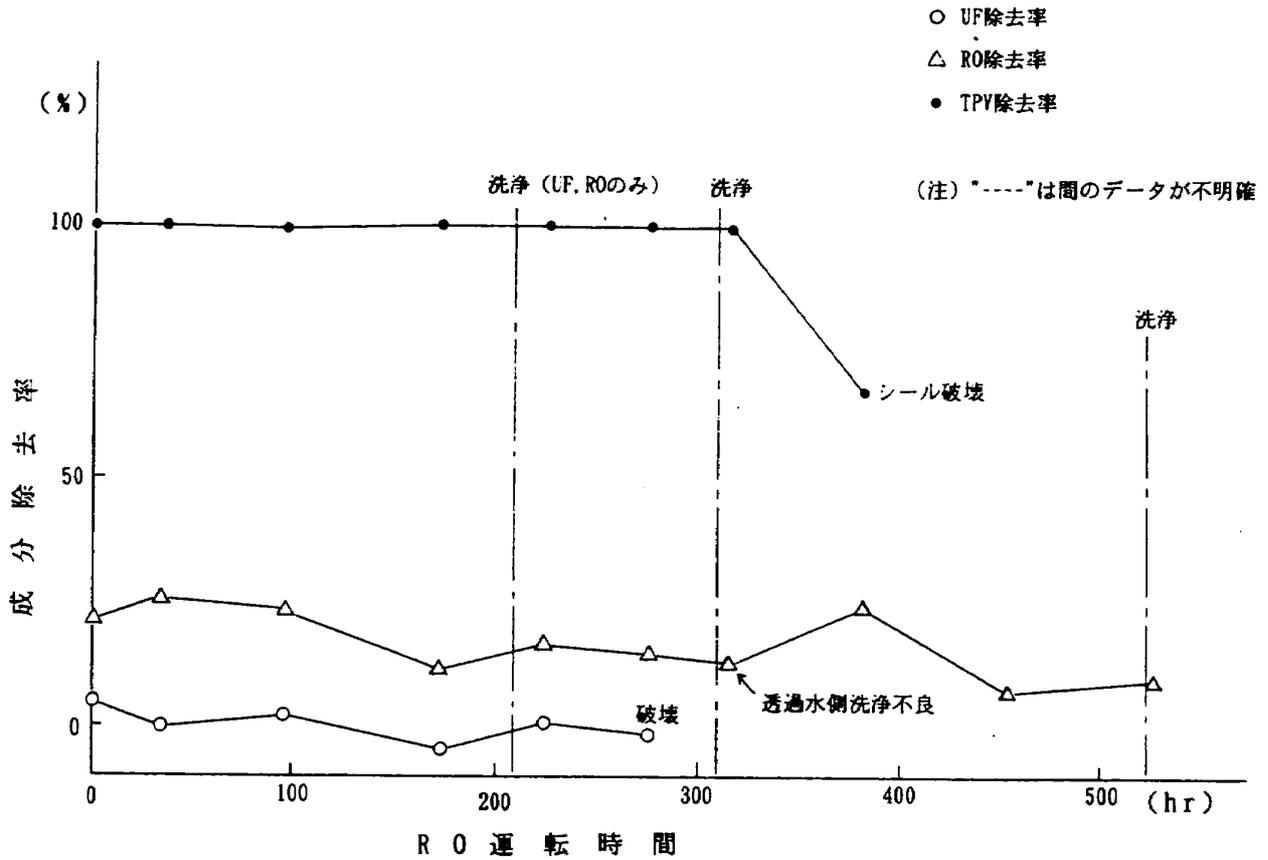


図5-6 透過特性 (3/11) : 尿素

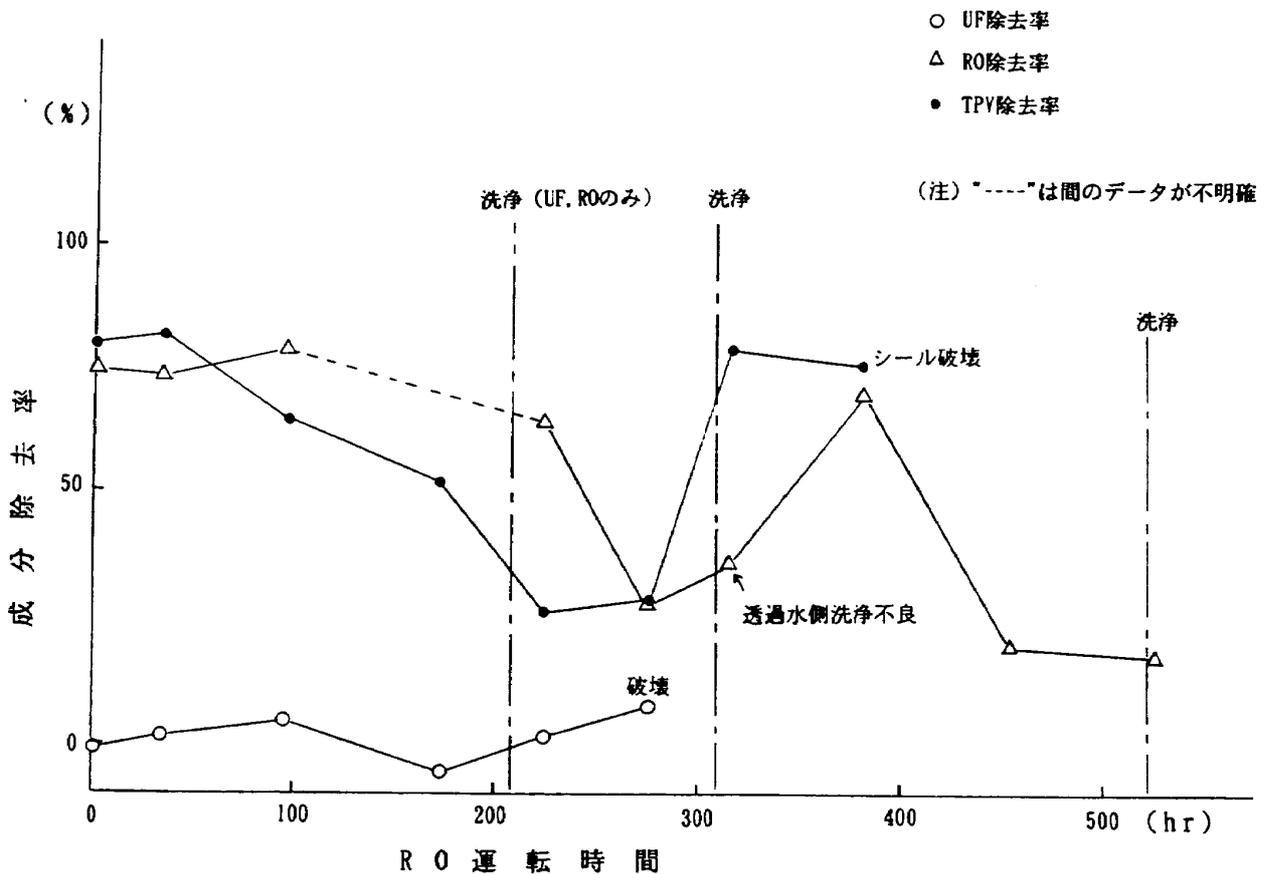


図5-7 透過特性 (4/11) : アンモニア

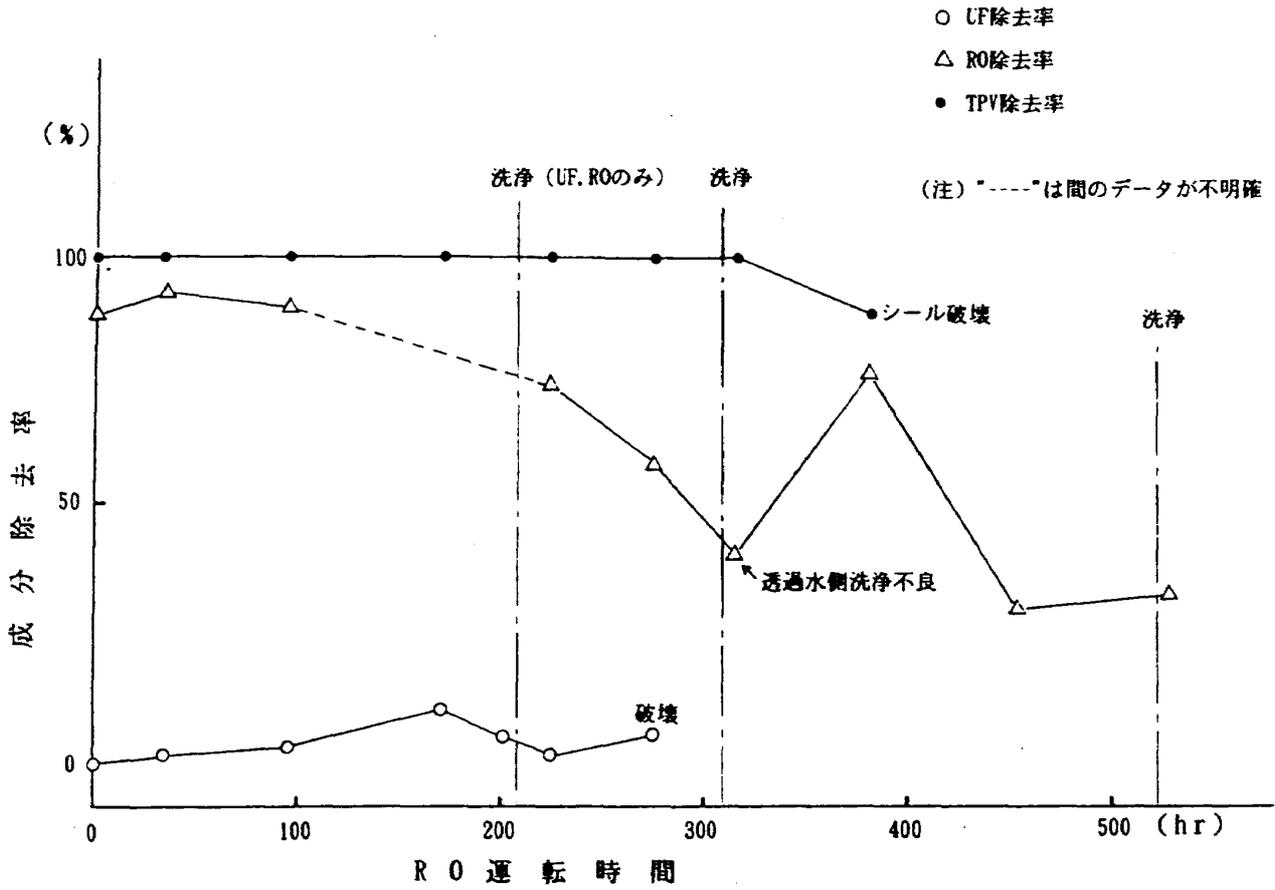


図5-8 透過特性 (5/11) : Na

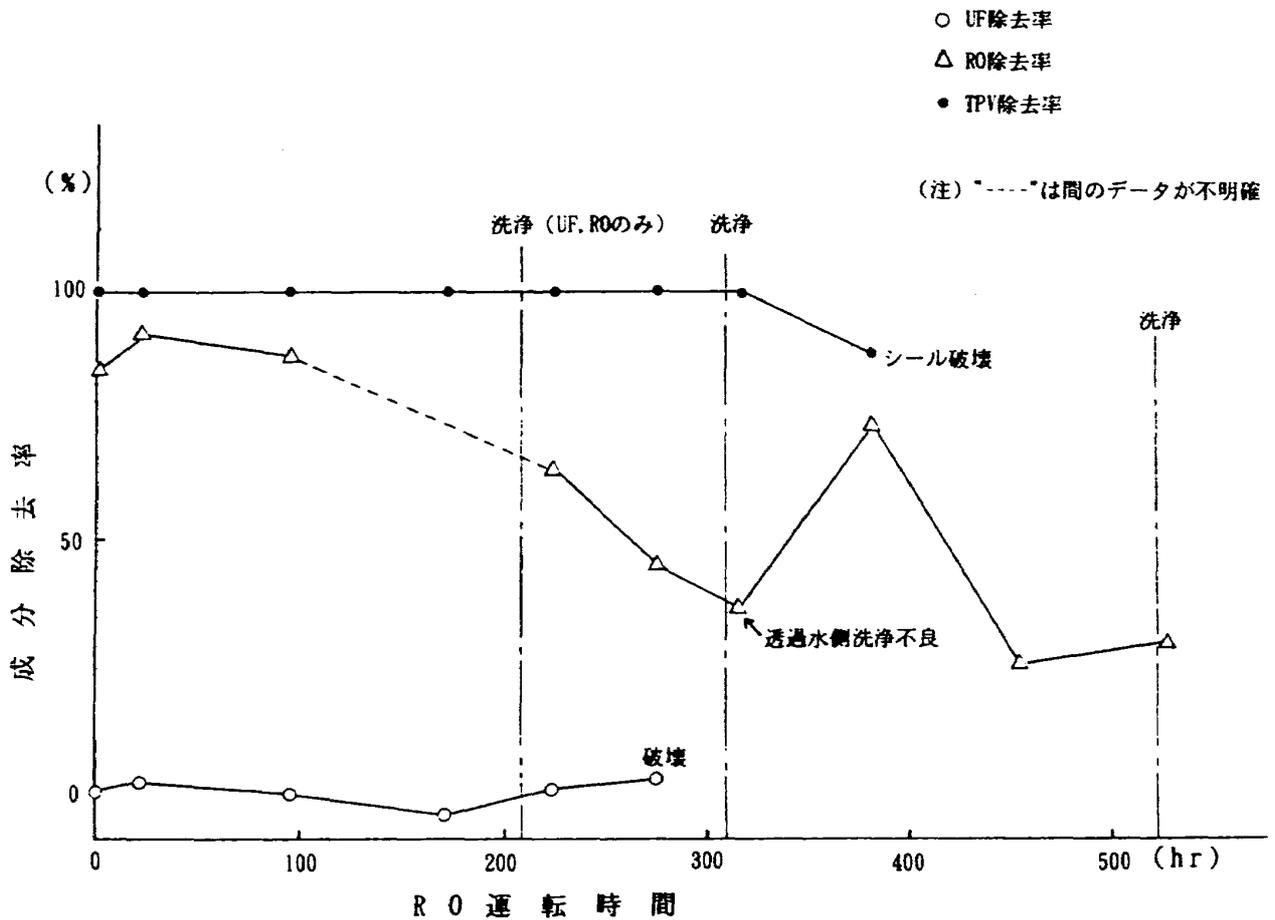


図5-9 透過特性 (6/11) : Cl

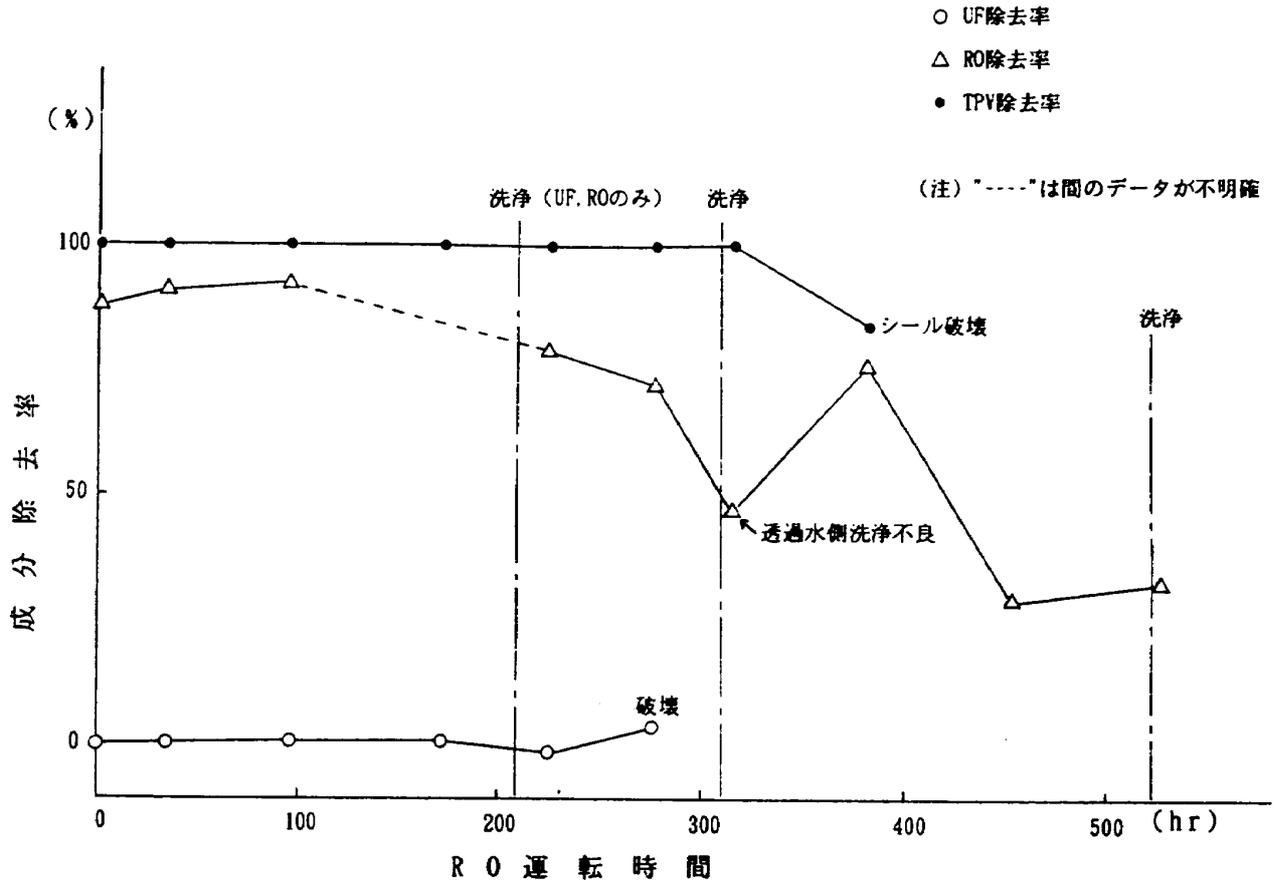


図5-10 透過特性 (7/11) : PO₄

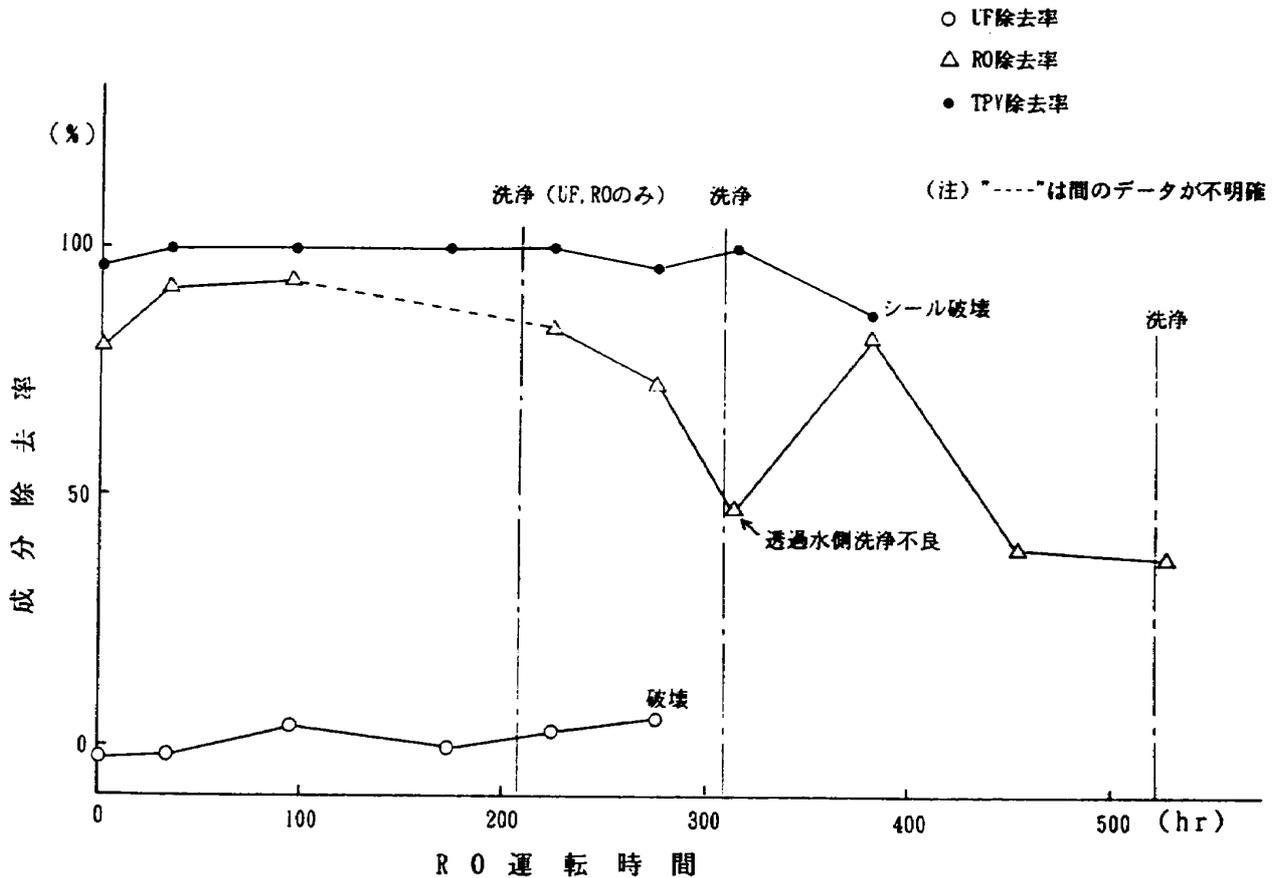


図5-11 透過特性 (8/11) : SO₄

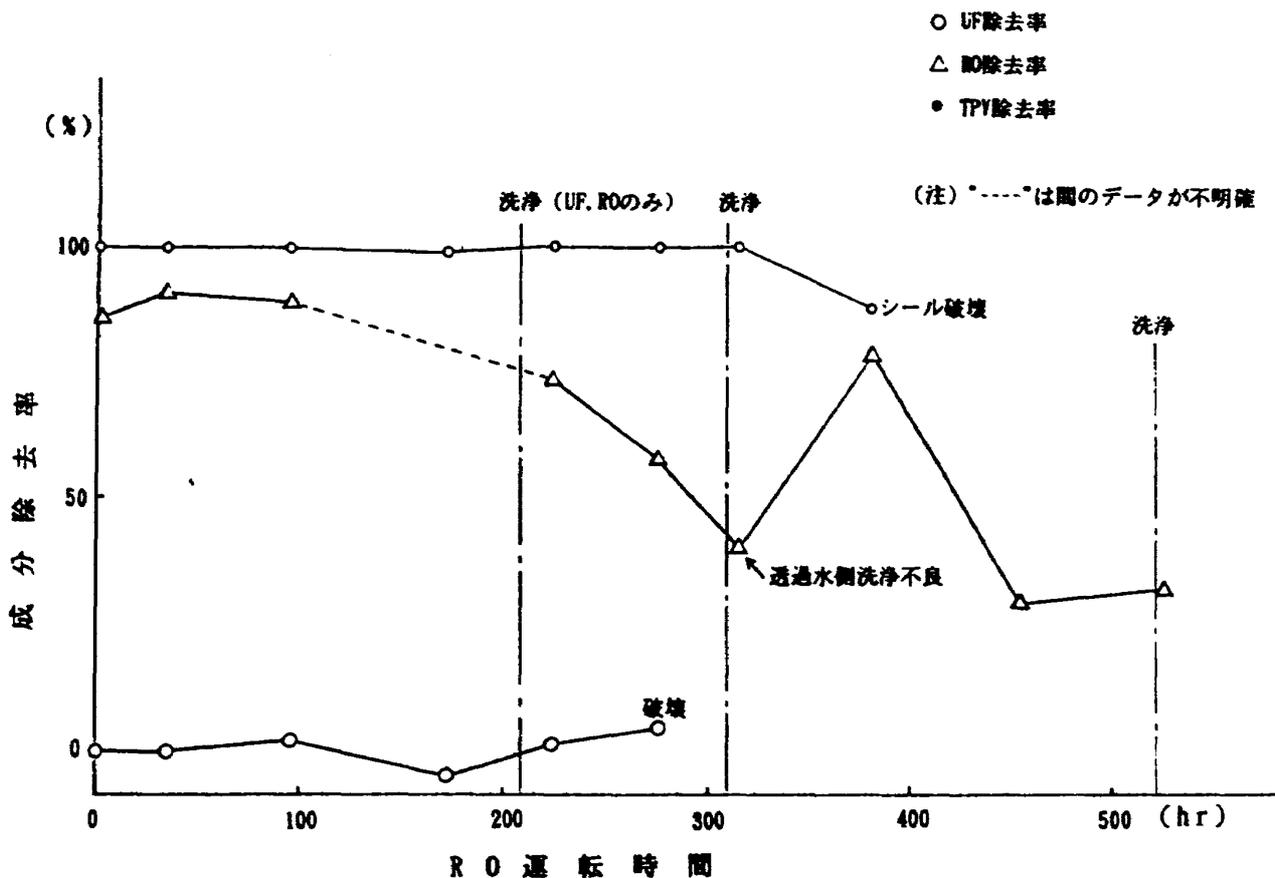


図5-12 透過特性 (9/11) : K

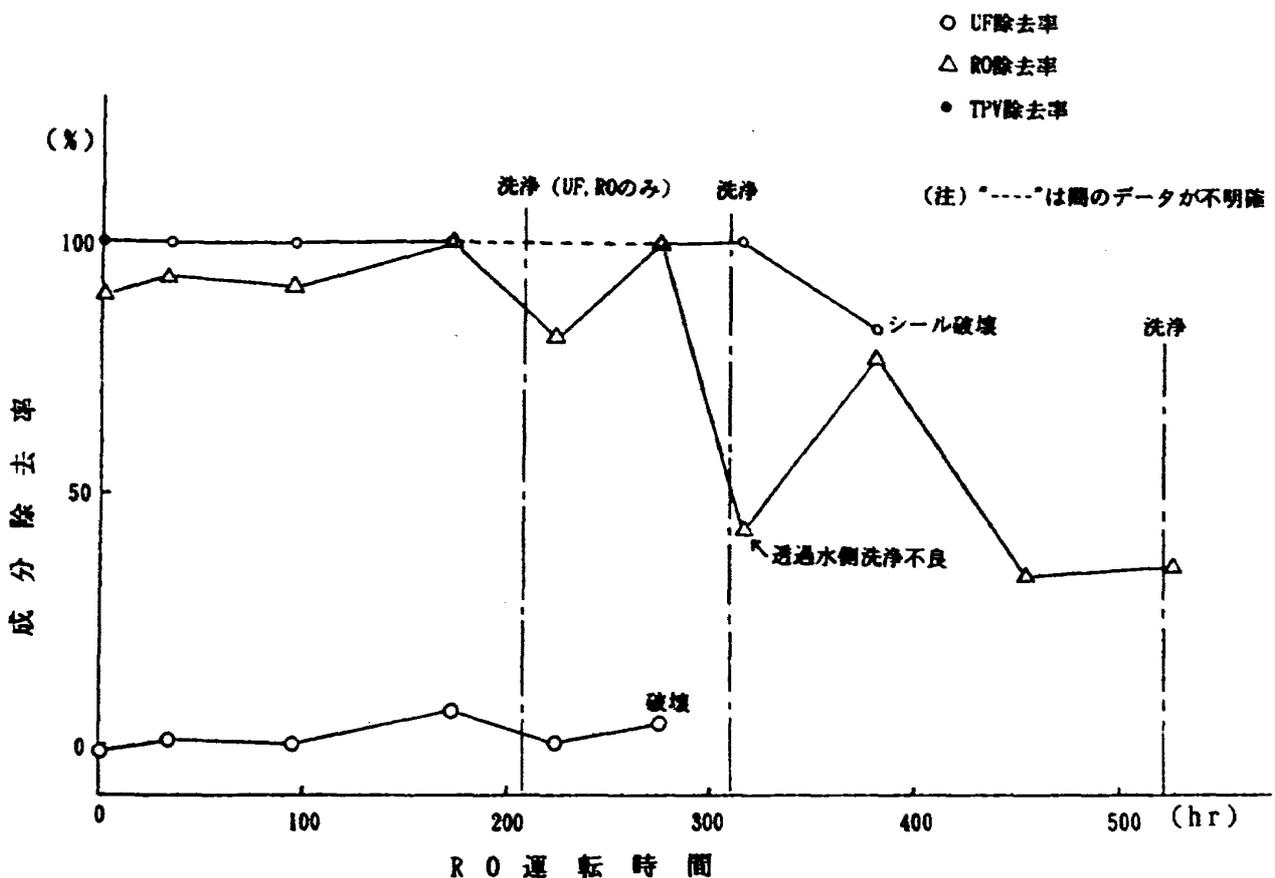


図5-13 透過特性 (11/11) : Mg

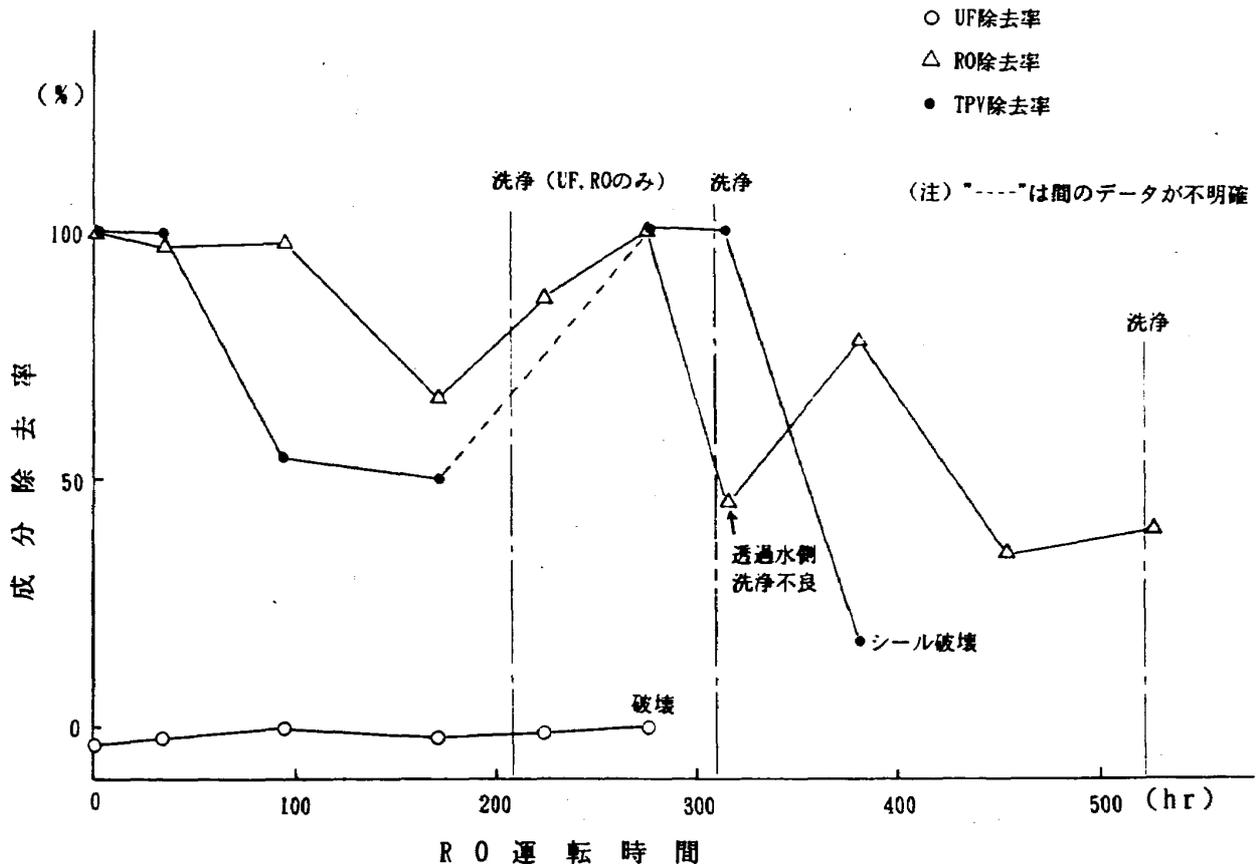


図5-14 透過特性 (10/11) : Ca

分系で高濃度の場合には複合的效果が発生して、除去率が低下してしまうのではないかとと思われるが、この現象についてはまだ理論的な説明はなされていない。又、この除去率の分析に対しては、サンプル採集時の条件すなわち、濃度の程度、試料の採取から分析器にかけるまでの日数、装置の洗浄状態等によって、混入した細菌等の影響等により、特にアンモニア及び有機物のデータがかなり変動する事がわかった。TPVについては予想通り、アンモニアを除いてはほぼ100%の除去率が得られた。アンモニアは水よりも沸点が低いため、蒸留する場合、かならず透過水側に混入してしまうので、システム構成においては、蒸留器にかける前段階でこのアンモニア成分の除去を行うか、又は、pH調整を行って、アンモニアをイオン化し、気化するのを防ぐ等の対策を講じることが必要である。RO及びTPVのアンモニア除去率の分析値がほぼ同じ傾向を示しているのは、ROの透過水中に含まれるアンモニアがTPVの蒸留水中にそのまま気化して行った為と考えられる。

ROの各成分に対する除去率が300時間にかけて

大きく低下してきているのは透過水側の洗浄が充分ではなかったためである。このため、第2回の洗浄後、再度洗浄を行ったところ、除去率の回復がみられた。しかし、また、すぐに低下していくのは膜の分離能力が低下してきているものと思われる。除去率測定結果の内、クレアチニンの約30時間後の除去率がほぼ0に落ちているのは分析ミスと思われる。これを除けばROの各成分に対する除去率はだいたい80%位から30%付近へと徐々に低下していく傾向が読み取れる。Ca, Mgは濃縮されて濃度が高くなってくると、リン酸イオンと結合して沈殿する。濃縮後、タンク底面にみられる沈殿物を分析した結果、 $MgKPO_4 \cdot 6H_2O$, $Mg(PO_4)_2 \cdot 4H_2O$, $MgKPO_4 \cdot 6H_2O$ 及び $CaHPO_4 \cdot 2H_2O$ 等の結晶が検出された。人工尿に対する予備実験結果でもリン酸を除くと90%の濃縮率にしても結晶の析出が見られなかったところから、RO膜の寿命延長をはかるためにはリン酸成分をイオン交換膜等を用いてあらかじめ除去しておくのも一つの方法かと思われる。

この他、本実験を実施するにあたって、計画段

表 5-2 人工尿に対する逆浸透膜フィルターの分離特性

	透過水 (ppm)	原水 (ppm)	除去率 (%)
Na	1466	2913	50.3
K	382	696	40.5
Ca	119	228	52.0
Mg	72	135	53.3
Cl	2317	5013	46.2
HCO ₃	139	366	38.0
SO ₄	805	1791	44.9
PO ₄	575	1380	41.7
NH ₄	273	526	51.9

階で予想しなかったような現象発生の原因等について分析した結果の内、主要なものについていくつか次に述べる。

(1) 透過水量保持率について

(i) 透過水量の減少率がかなり大きかった。その原因は排水の高濃縮をはかったため、膜面の汚れ方が激しいだけでなく、尿素等の有機物も含まれていたため、夜間等の実験停止中に細菌が繁殖し、膜面上にコロニーを作る事によって膜面の有効面積を減少させたものと思われる。又、高濃縮にしたため、流路内にも Ca, Mg 化合物等の結晶が析出し、流量不安定化の原因を作ったものと思われる。

(ii) 流量測定は50時間毎に行う予定であったが、ROの圧力変動が大きく、一日の処理時間が不定となったため、定期性が損なわれた。これはポンプ圧力がある規定値以上になると安全対策上安全スイッチが働き、ポンプが停止するようになっていたため、夜間等に試験途中でポンプが停止する事があったためである。試験終了後の原因調査では、当所の電源電圧にゆっくりしたゆらぎがあり、このためピストンポンプのストロークに変動が発生し、圧力変動が発生していた事がわかった。又、このピストン型ポンプはかなり強い脈流を発生させるので、これが膜に悪影響を与えたものと思われる。この脈流を平滑化するためにバッファタンクをもうけたが、その効果はあまり十分ではなかった。今後の試験には脈流の小さいポンプの採用と、

電源の安定化対策を講じる事が必要である。

(2) 除去率について

(i) 膜フィルター使用の目的は溶液中の不要成分除去であり、その性能変化は交換サイクル即ち、寿命との関係で重要な問題である。本試験では第3章で述べたように初めに一定の原排水を用意し、それを処理してゆき、濃縮率が設定値に到達した時点で1回の実験が終わり、そのあと、流路を洗浄してから、次サイクルの実験が開始され、これを積算していく方法を用いた。このため、所定の濃縮率に到達した時点で運転が停止されるようにシステムを構成していたが、実験準備の都合でこの停止する時刻が夜中になる事が多々あり、このときには膜内に高濃縮水が長時間保持させられたまま放置される事になった。これが膜面の汚染の大きな原因になったものと思われる。宇宙での水処理システムの運用もバッチ処理方式となる事が予想されるため、処理終了後はただちにシステムの洗浄を行う方式にする必要がある。

(ii) UFは尿成分の除去に対してはほとんど効力が無い事がわかった。但し、細菌等の高分子物の除去機能は有するため、ROから先のシステム内の細菌汚染を防御する点からは必要と思われる。

(iii) 回収率一定の試験を目指したが、電源変動等によるポンプ圧力上昇によって安全回路が作動し、運転が停止する場合があって、正確に実現できなかった。今後の試験にはこの点も考慮する事が必要である。

(iv) TPV は除去率の面では優れた特性を持っている事が実証できた。しかし、平膜型であると溶液流入口付近などで、濃縮された成分の付着がおこり、流れを悪くする他、不安定にすることで性能低下の原因となるので、できるだけ中空糸型にする事が望ましいと言える。

6. ま と め

宇宙用水再生循環システムの構成を検討し、宇宙での運用状況を想定してシステム主要構成要素として考えた各種膜フィルターに対する高濃縮繰り返し長期試験を実施した。その結果、このような高濃縮を目的とする場合には各膜フィルターは公称されている性能が十分には発揮されない為、第1次処理水を植物の栽培用として使用する場合にはNaClを除去する装置を加える等の工夫が必要であることがわかった。又、システムの構成要素としてこれらの膜フィルターの採用を検討する場合には、処理すべき排水の種類によって、又、使用法によってかなり寿命等の特性が異なってくるので、かならず事前性能評価を行うことが必要である。又、本実験を実施することによって、このようにシステムを構成して評価試験を行う場合の実験手法の修得及び実験システム構成上の考慮すべき問題点等を明らかにする等の成果を得た。今後の研究としては得られた知見をもとに実験装置の改良を行い、尿だけでなく、その他の排水に対しても性能評価試験を行い、宇宙用水再生循環システム研究開発のための技術データの蓄積をはかって行く予定である。

7. 参 考 文 献

- 1) 新田慶治；小地球を作る，1986，丸善株式会社。
- 2) R. Ray ; Membrane-Based Water-and Energy-Recovery Systems for the Manned Space Station, SAE Tech. Paper 851345, 1985.
- 3) C. E. Martin, A. S. Bacskay ; Hydraulic Model of the Proposed Water Recovery and Management System for Space Station Freedom, SAE Tech. Paper 911472, 1991.
- 4) K.Otsubo, K.Nitta, M.Oguchi, S.Hayashi, S. Hatayama, A. Nakajima, A. Asida, S. Kanda ; Gas and Water Recycling System for IOC Vivarium Experiments, Proc. of 15th ISTS, 1986, pp.1349-1354.
- 5) A. Ashida, K. Mitani, H. Kurokawa, T. Sawa, K. Nitta ; Water Recycling for CELSS Environment in Space, SAE Tech. Paper 901208, 1990.
- 6) T. Tanemura, K. Otsubo, K. Nitta, M. Oguchi ; Evaluation for Waste Water Purification Using Thermopervaporation Method, Proc. of 17th ISTS, 1990, pp.1555-1560.
- 7) ヴァン・デア・リン；トイレットからの発想，BLUE BACKS, P.75，講談社。

航空宇宙技術研究所資料646号

平成4年4月発行

発行所 航空宇宙技術研究所
東京都調布市深大寺東町7丁目44番地1
電話三鷹(0422)47-5911(大代表)〒182
印刷所 株式会社 東京プレス
東京都板橋区桜川2-27-12
