

# 産業活動由来の希薄な窒素化合物の循環技術創出 —プラネタリーバウンダリー問題の解決に向けて

## 項目2-2. $\text{NH}_4^+$ の分離濃縮による資源化に関する研究開発

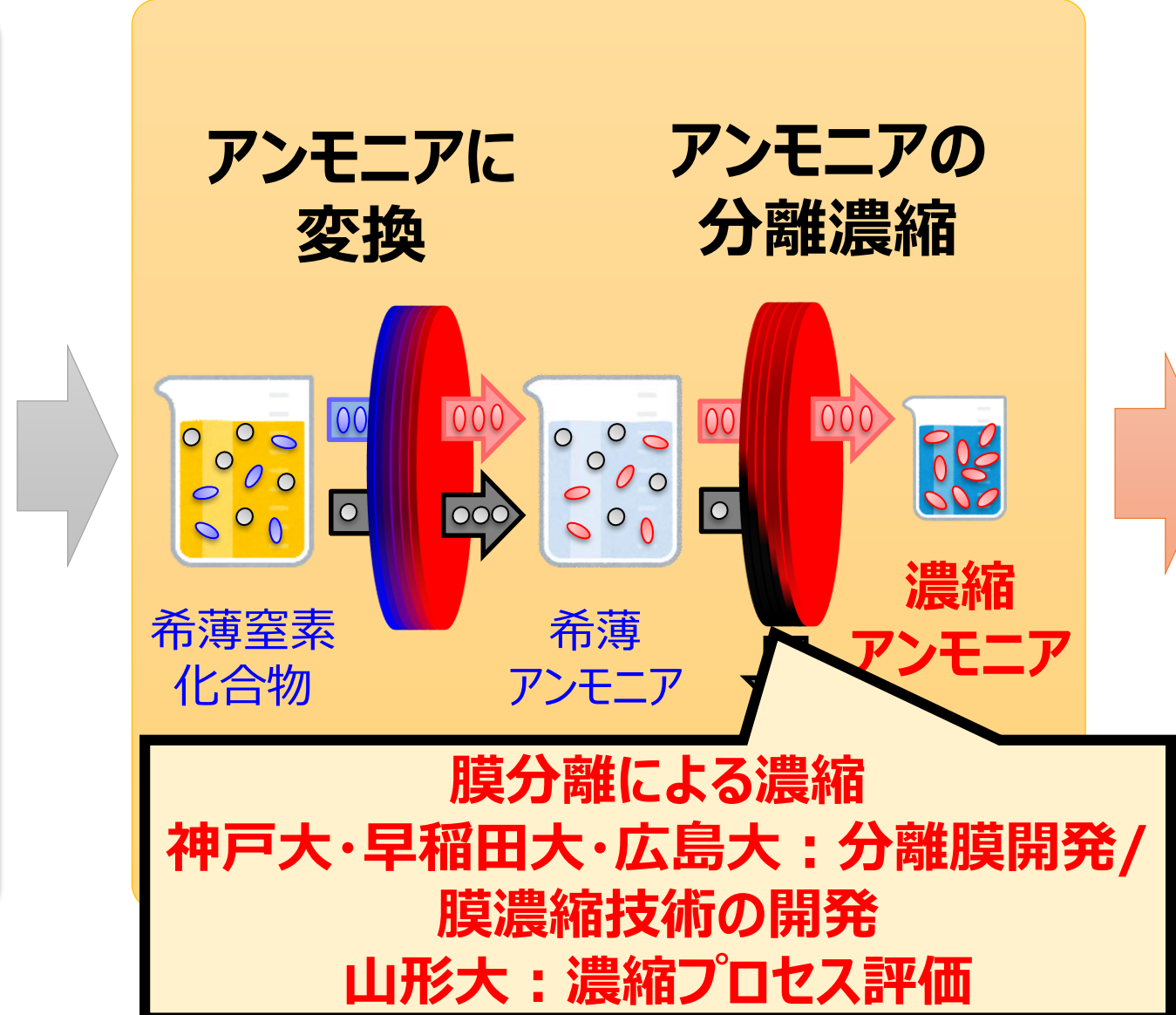
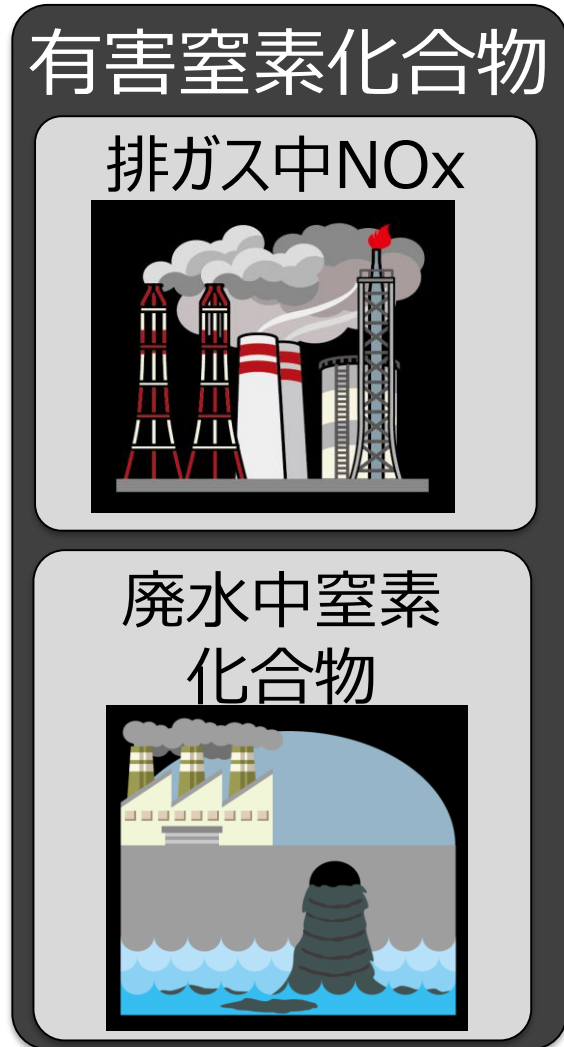
### 膜分離によるアンモニア廃水濃縮プロセスの開発・評価

**発表者：松山秀人（神戸大学）**

**PM：川本 徹**

**国立研究開発法人産業技術総合研究所 材料・化学領域 ナノ材料研究部門  
研究グループ長**

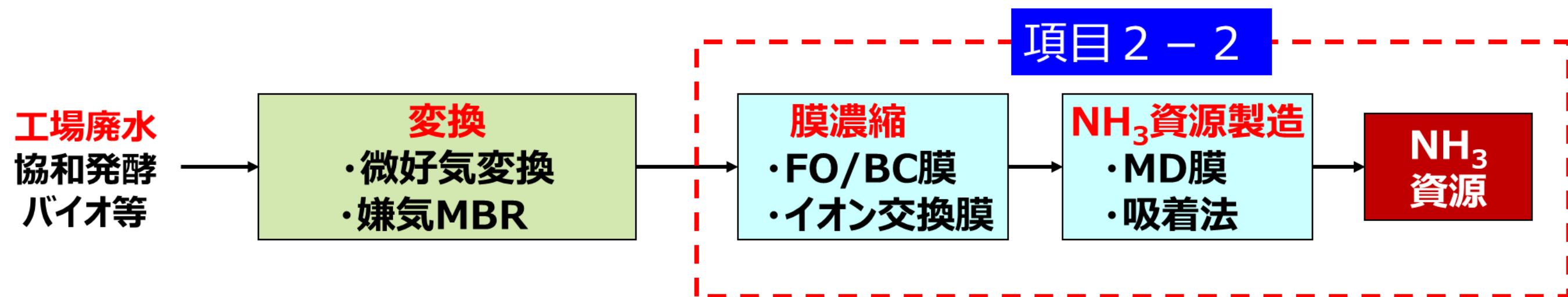
**PJ参画機関：国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立大学法人東京大学、  
学校法人早稲田大学、国立大学法人東京農工大学、国立大学法人神戸大学、  
国立大学法人大阪大学、国立大学法人山口大学、協和発酵バイオ株式会社、  
株式会社アストム、東洋紡株式会社、株式会社フソウ、宇部興産株式会社**



項目2の2029年度目標：水相変換・濃縮により廃水中の窒素化合物をアンモニア等として回収するパイロット設備を、5～15 m<sup>3</sup>/d 規模で実証

神戸大の役割：膜分離法によるアンモニア廃水濃縮プロセスの開発  
神戸大の2029年度目標：パイロット設備で用いるFO膜プロセスの構築、実廃水を用いたFOプロセスでの要求性能を満たすDSの完成、パイロット設備に用いる膜蒸留装置の完成

項目2-1で回収変換したアンモニア態窒素を多用途に活用できる高濃度に濃縮するための、各種分離膜によるアンモニア濃縮技術の開発、および高性能吸着剤による吸着分離濃縮技術の開発を行う



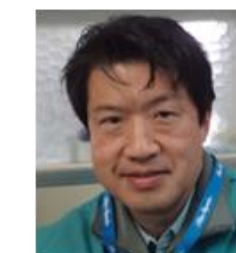
## 【開発内容】

- 正浸透（FO）膜法、Brine Concentration(BC)膜法、イオン交換膜法、および膜蒸留（MD）法の開発と、それらを用いた低消費エネルギーアンモニア濃縮技術の研究開発
- 高性能アンモニア吸着剤の開発と、その吸着脱着法の検討を行い、吸着剤を用いた資源化プロセスの実装に関する検討を加える

## 膜分離濃縮

: 神戸大学チーム

- 膜分離によるアンモニア廃水濃縮プロセスの開発・評価(神戸大学)
- 中空糸FO膜の構造最適化とモジュール化検討(東洋紡(株))
- 高温工場廃水用ゼオライトFO膜の開発(早稲田大学) **再委託**
- イオン交換膜法によるアンモニア廃水濃縮プロセスの開発(山口大学)
- イオン交換膜および膜モジュールの大型化検討((株)アストム)
- 膜蒸留におけるシステム解析とモジュール設計(広島大学) **再委託**



## 吸着分離濃縮

- 廃水中アンモニア吸着材および廃水中アンモニア資源化プロセスの研究開発(産業技術総合研究所)
- 錯形成反応を利用した廃水中アンモニア吸着材の研究開発(東京大学)
- 廃水中アンモニア吸着材を利用した資源化プロセスの実装に関する評価・開発((株)フソウ)



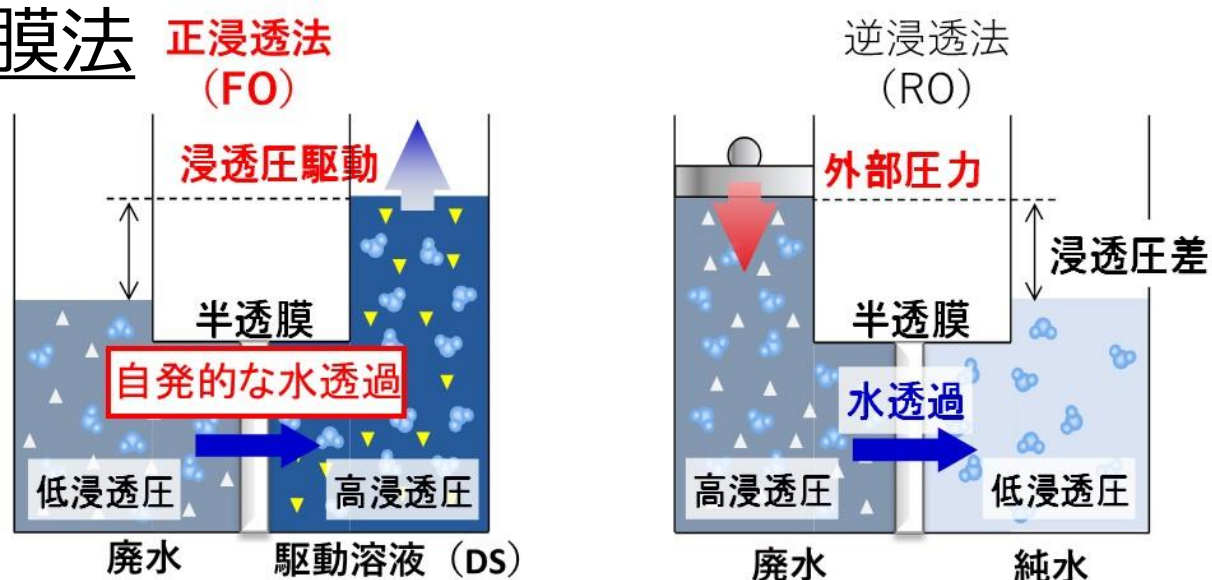
## 濃縮プロセス評価

- 分離膜・吸着などを用いた水相中窒素化合物の濃縮プロセスの合成・評価(山形大学) **再委託**

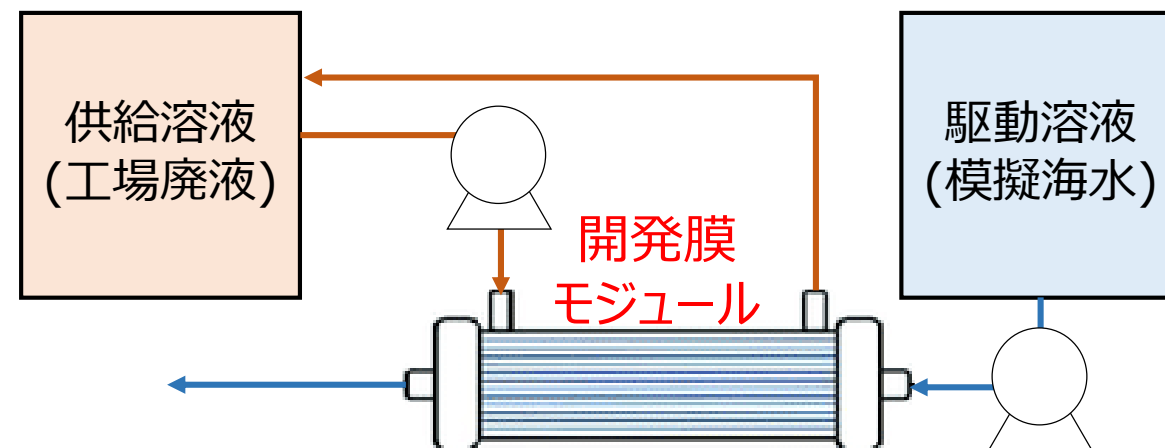


- 工場実廃水A、Bのどちらも海水をDSにして10倍濃縮が可能であることを示した。
- 工場実廃水A、Bのどちらも目標濃度(4,000ppm T-N)の濃縮を達成

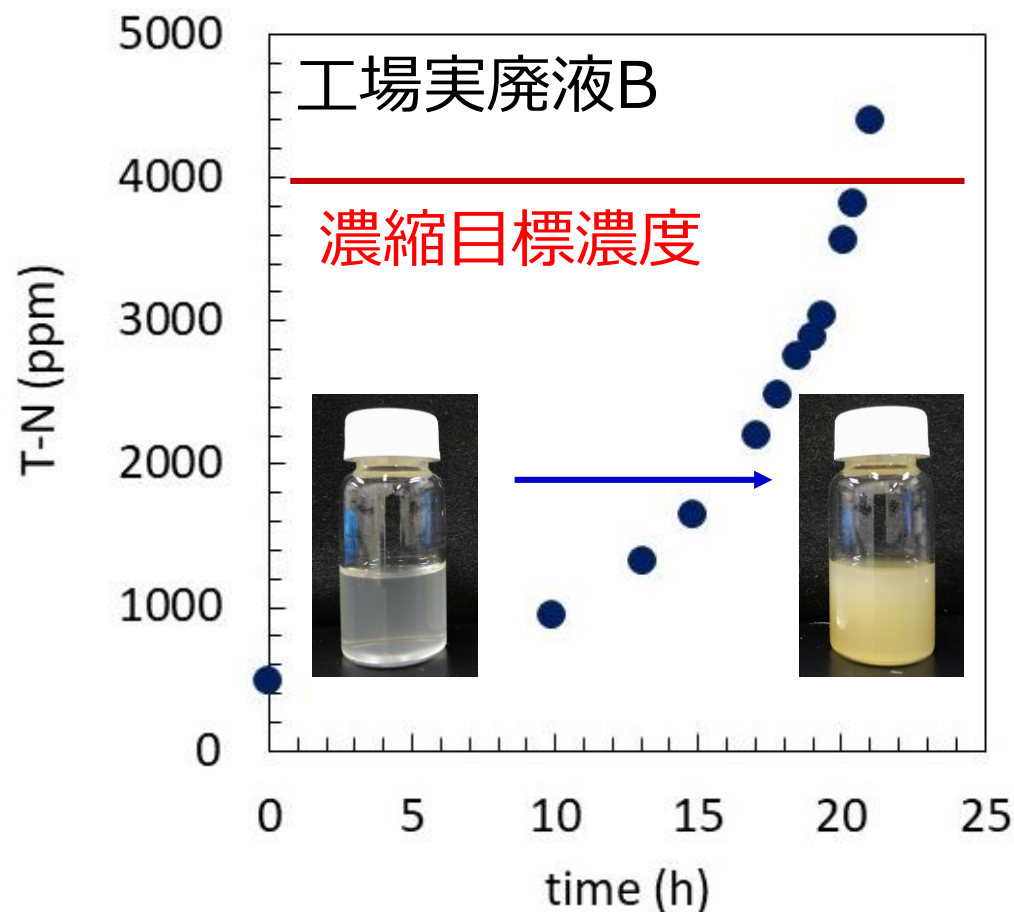
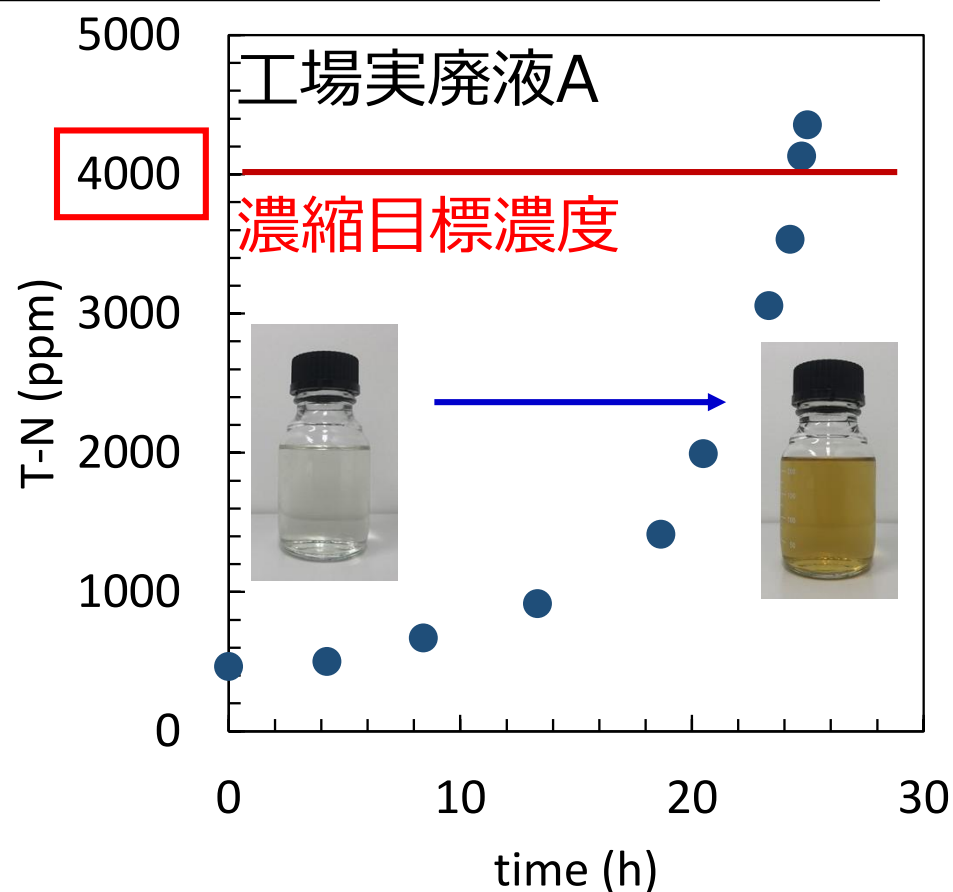
## FO膜法



## FO濃縮プロセス



## 開発膜を用いた実液濃縮試験



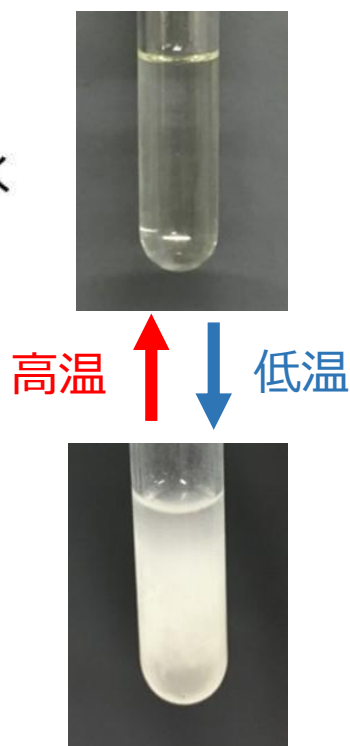
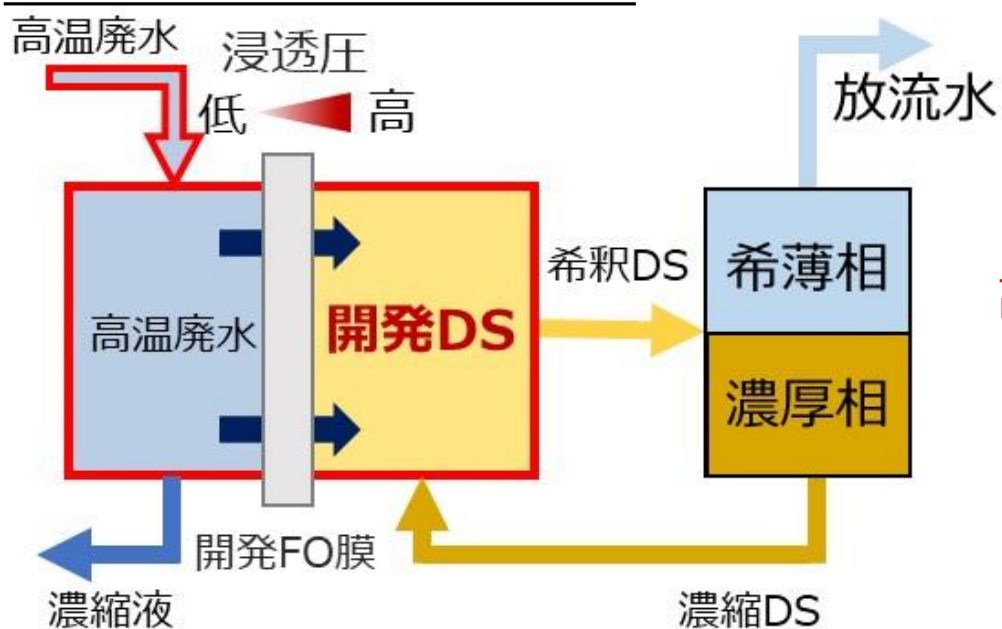
工場実廃液A, Bのどちらも、海水をDSに用いて10濃縮と目標濃度(4000ppm T-N)の濃縮に成功

# 成果(1) FO膜法(神戸大・早稲田大)

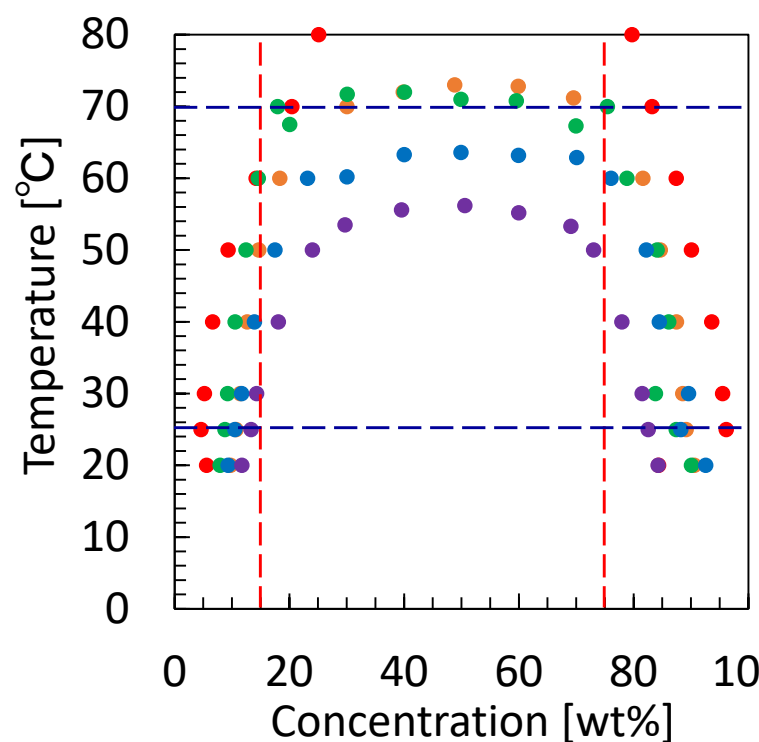


- 目標とする相分離性能を有するUCST型イオン液体を見出した (神戸大)
- 80°Cで駆動可能なゼオライト膜を開発、高温駆動型イオン液体DSとゼオライト膜を用いてFO操作が可能であることを実証した (早稲田大)

## 高温廃水の濃縮プロセス



## 合成したUCST型イオン液体(IL)の相図

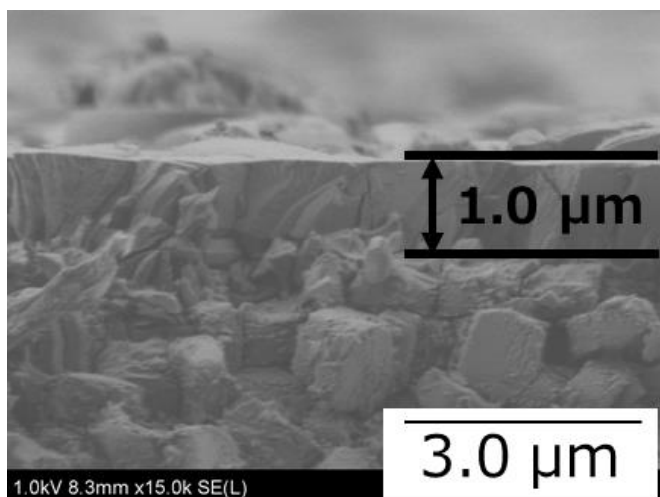
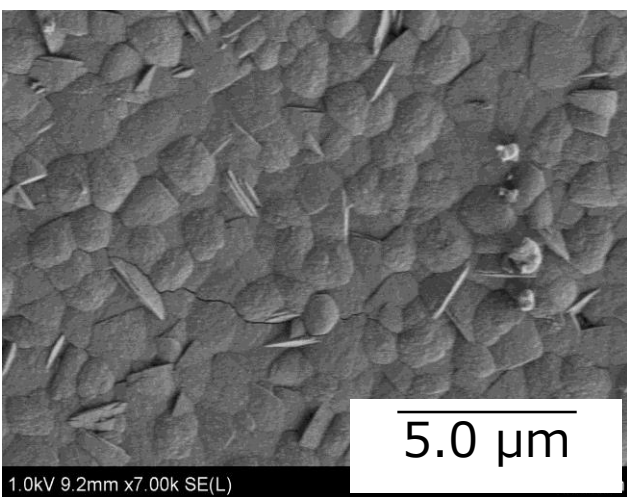


### 目標性能

- 70°C以下で相転移
- 25°C相分離後  
濃厚相75 wt%以上  
希薄相15 wt%以下

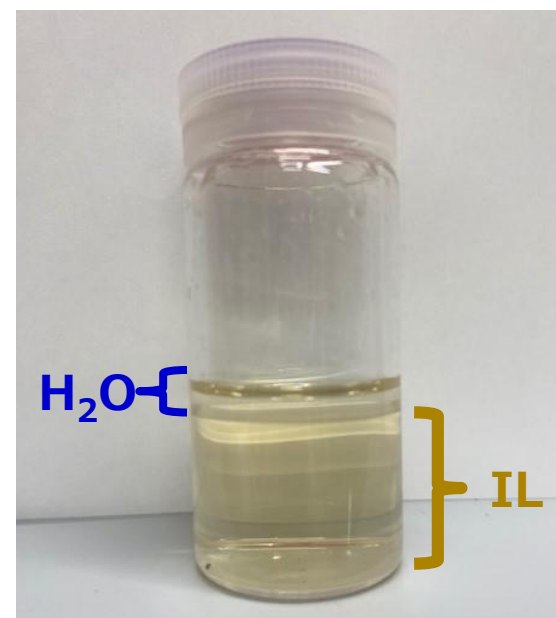
約10種類のイオン液体を合成し、そのうち2種類が目標性能を達成

## 高温FO用ゼオライト膜の開発



NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃縮にはカチオン交換サイトをもたず、かつ親水的なゼオライト膜が必要であることを見出し、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃縮に適したゼオライトを新規に開発中

### FO操作後のイオン液体

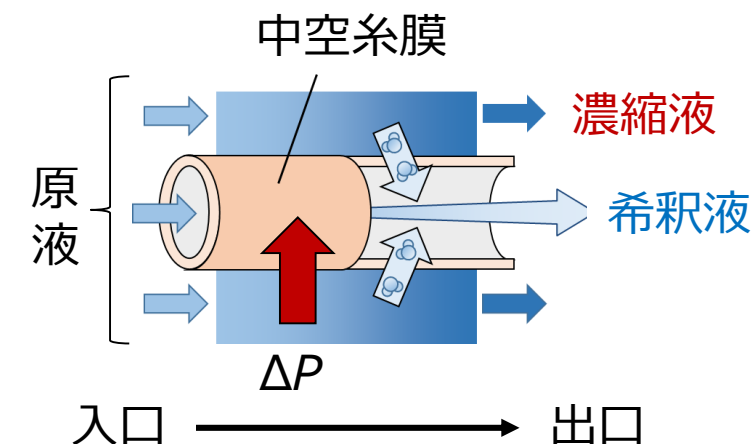
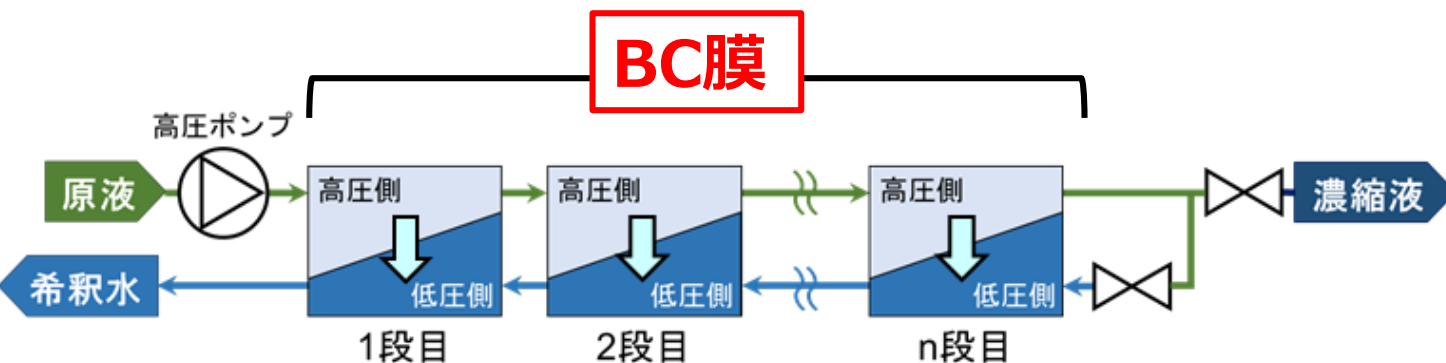


### Conditions

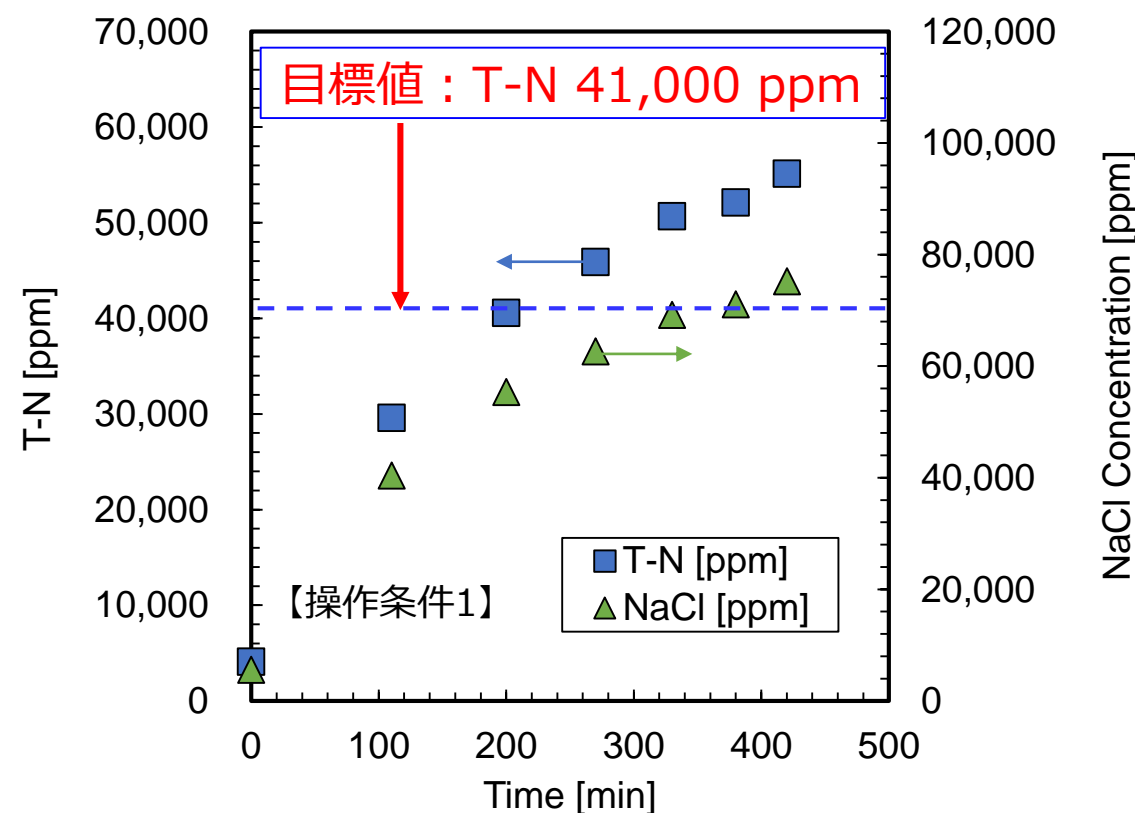
DS: Ionic liquid  
FS: H<sub>2</sub>O  
Temperature: 343 K

- 高温駆動型イオン液体を用いて水の引き抜きに成功
- 室温では水とILが相分離 (容易に回収可能)

- BC法の運転条件（供給流量，操作圧力，還流比）を最適化
- NaCl共存モデル廃液を用いてNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の10倍濃縮(4,000→41,000ppm)を達成



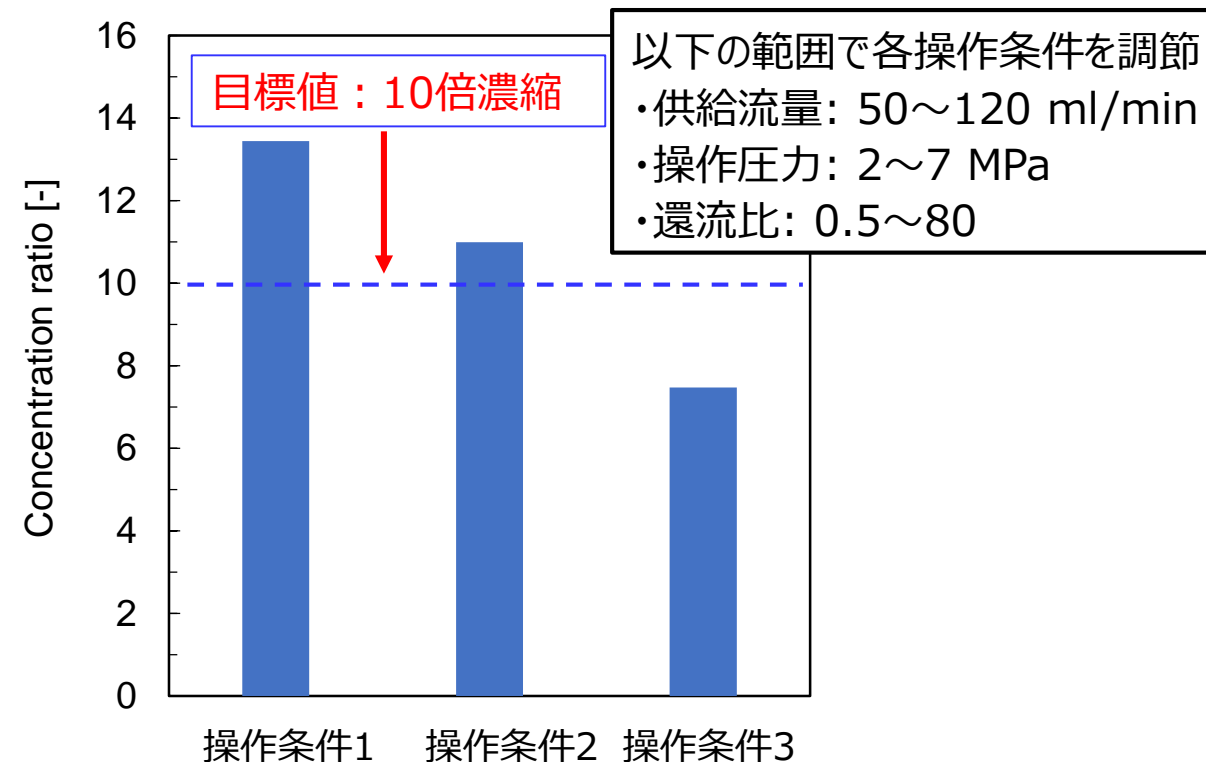
## Brine Concentration (BC) 法の原理



NaCl共存モデル廃液での各イオン濃度の時間変化

## BC膜モジュール

## 中空糸膜による濃縮



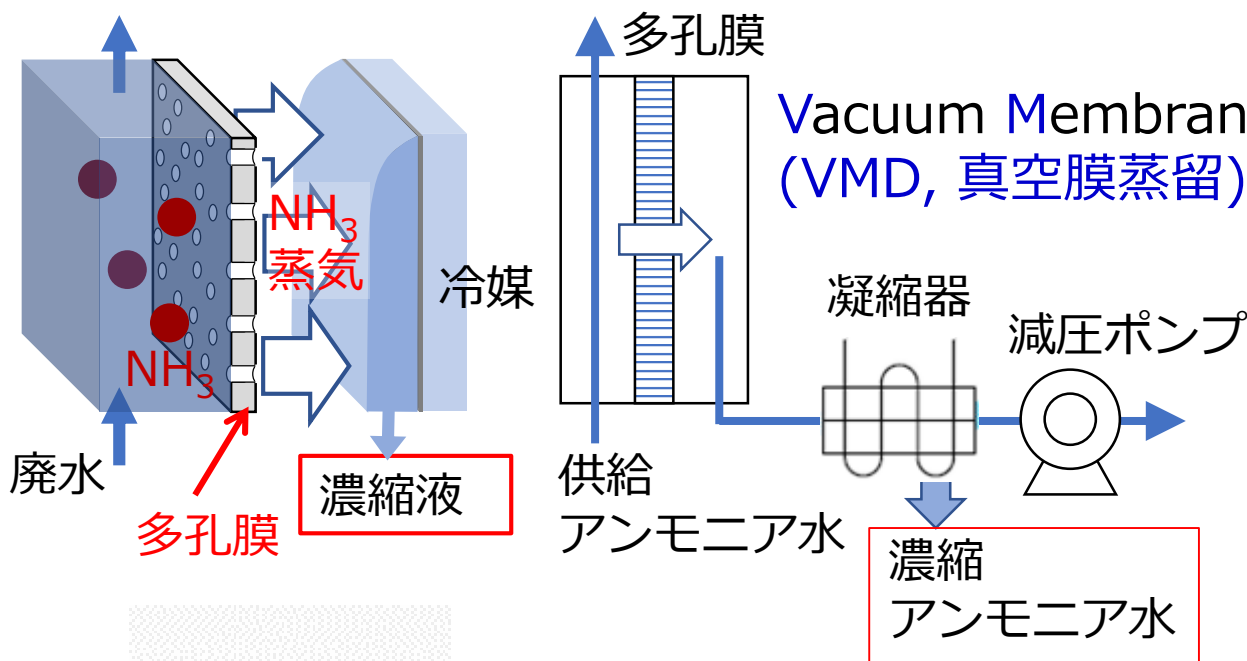
各操作条件における濃縮度

NaCl共存モデル廃液(T-N 4,000 ppm)から、目標(10倍以上)のNH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃縮に成功

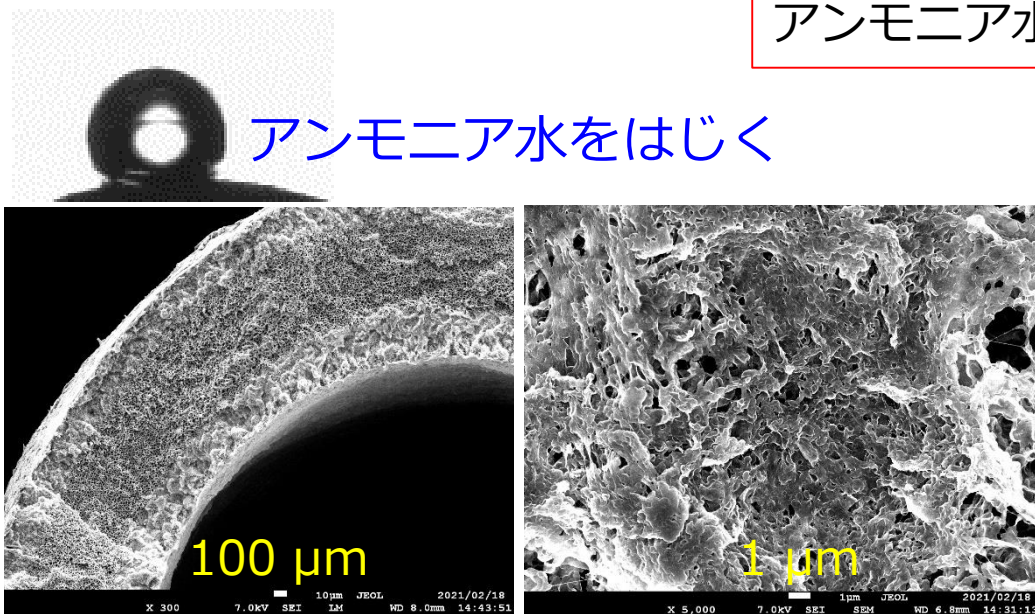
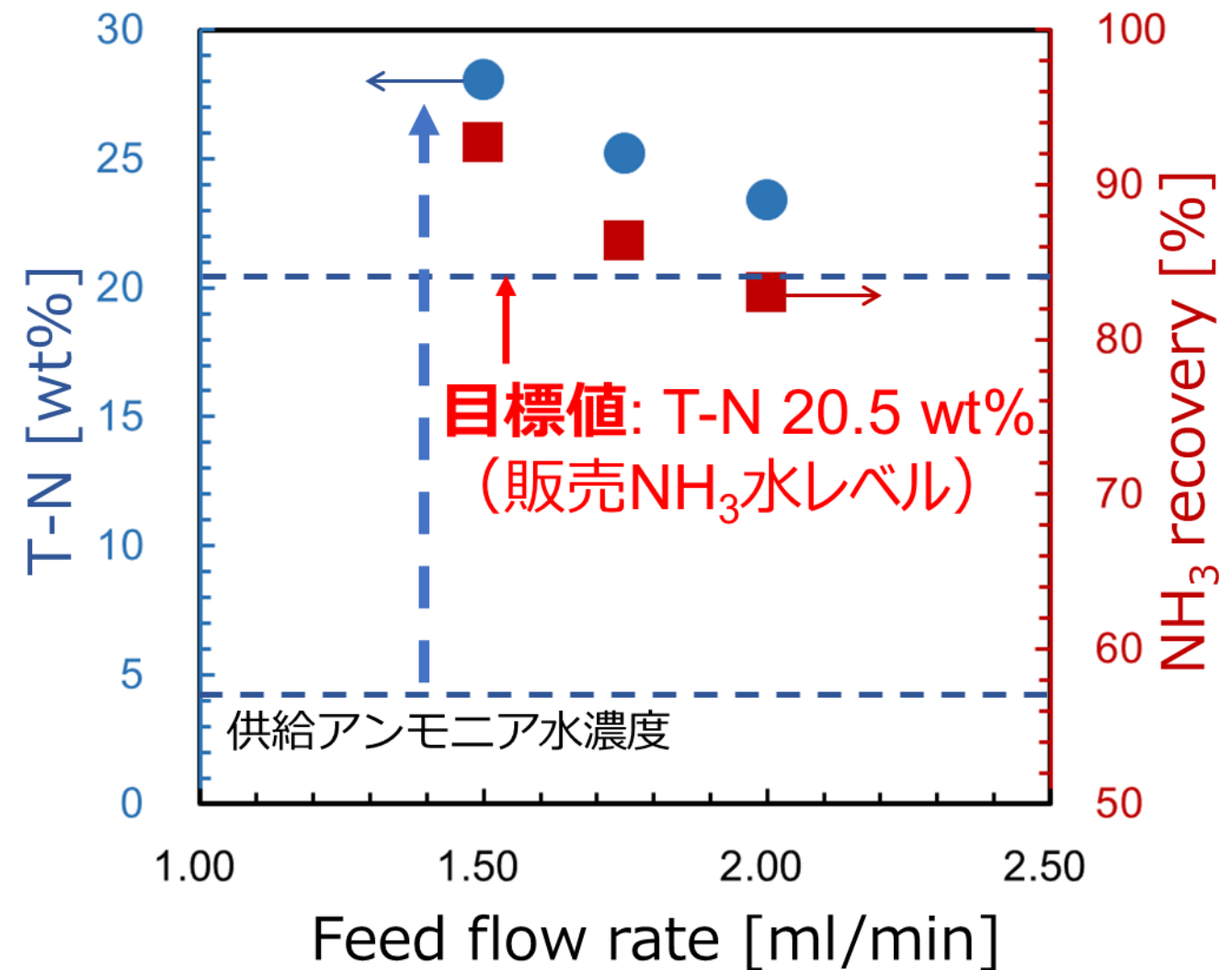
- アンモニア水を膜蒸留法により濃縮可能な疎水性の多孔性中空糸膜を開発
- 流通式の真空膜蒸留 (VMD) 操作により高回収率で目標濃度を達成

## 膜蒸留 (Membrane Distillation, MD) 法

疎水性の多孔性膜の片側に溶液を供給し、膜の反対側に揮発性の高いアンモニア分子を優先的に蒸発・透過・凝縮させることで透過側にアンモニア濃縮溶液を得る。



**NH<sub>3</sub>水製造としてT-N25wt% 達成**



断面

外表面

**疎水的な多孔性中空糸膜の作製に成功**

**高回収率でアンモニア水を濃縮可能**

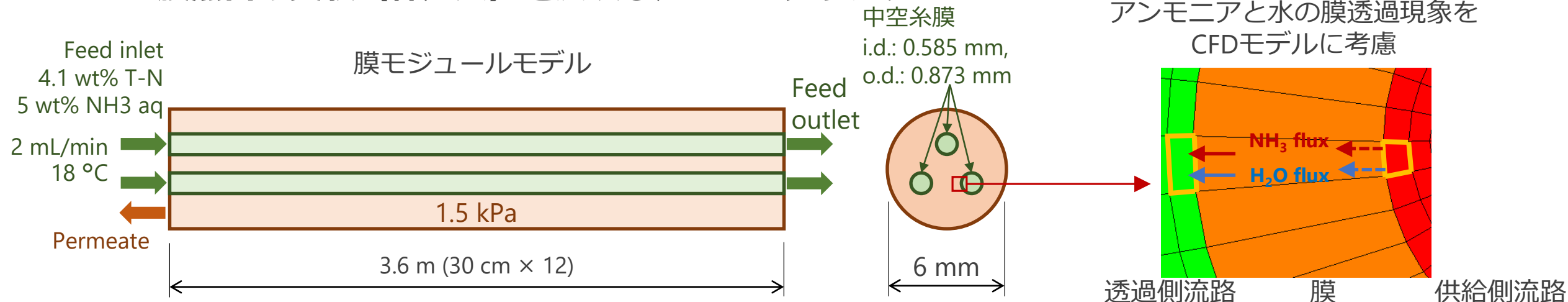


# 成果(3) 膜蒸留(広島大)

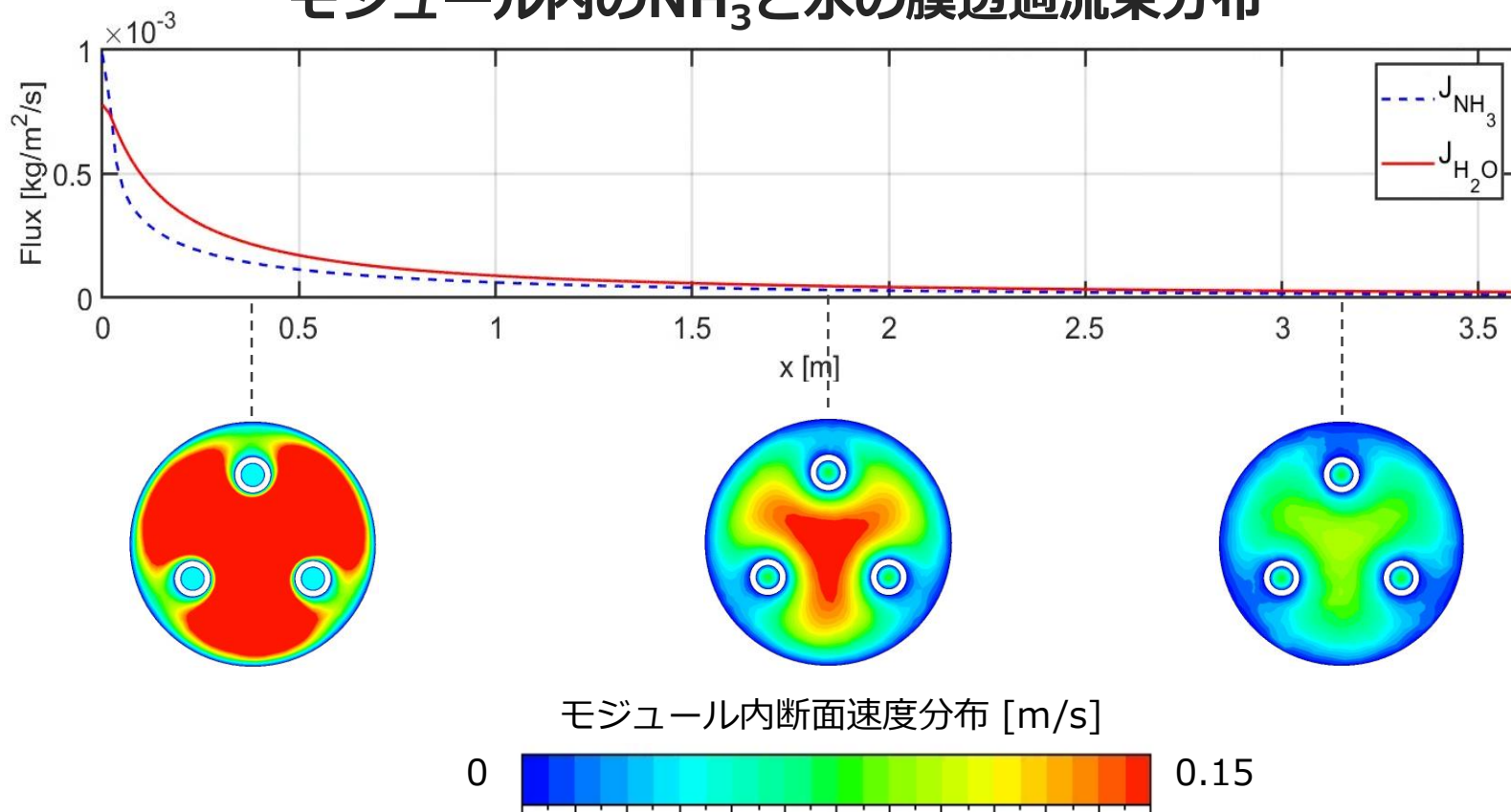


- 膜蒸留モジュールの数値流体力学 (CFD) モデルの開発に成功
- 本シミュレーションは実験結果を定量的に予測可能

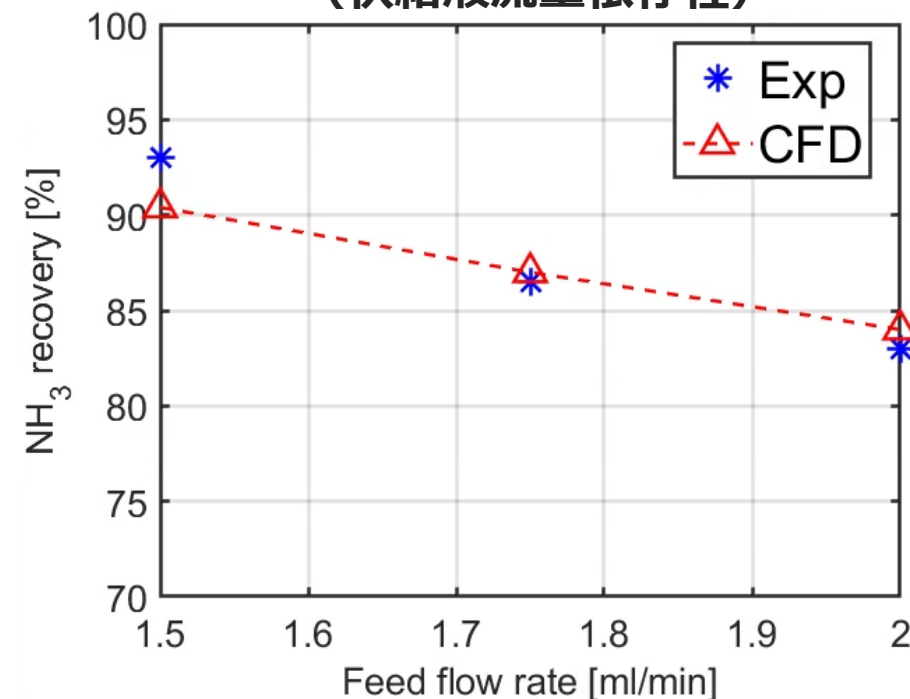
## 膜蒸留の実験 (神戸大) を反映したCFDモデリング



## モジュール内のNH<sub>3</sub>と水の膜透過流束分布



## 実験結果との比較 (供給液流量依存性)

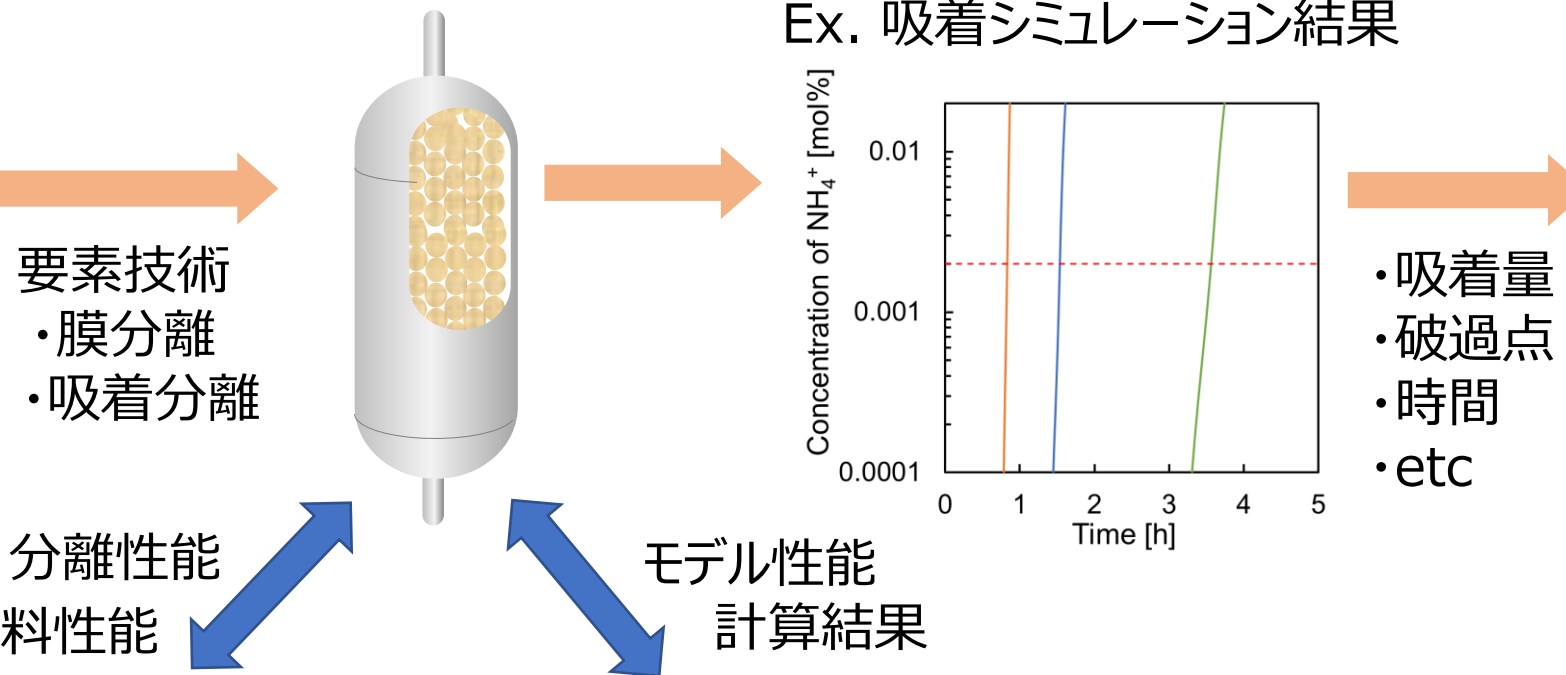


**本シミュレーションは  
実験結果を定量的に予測可能**

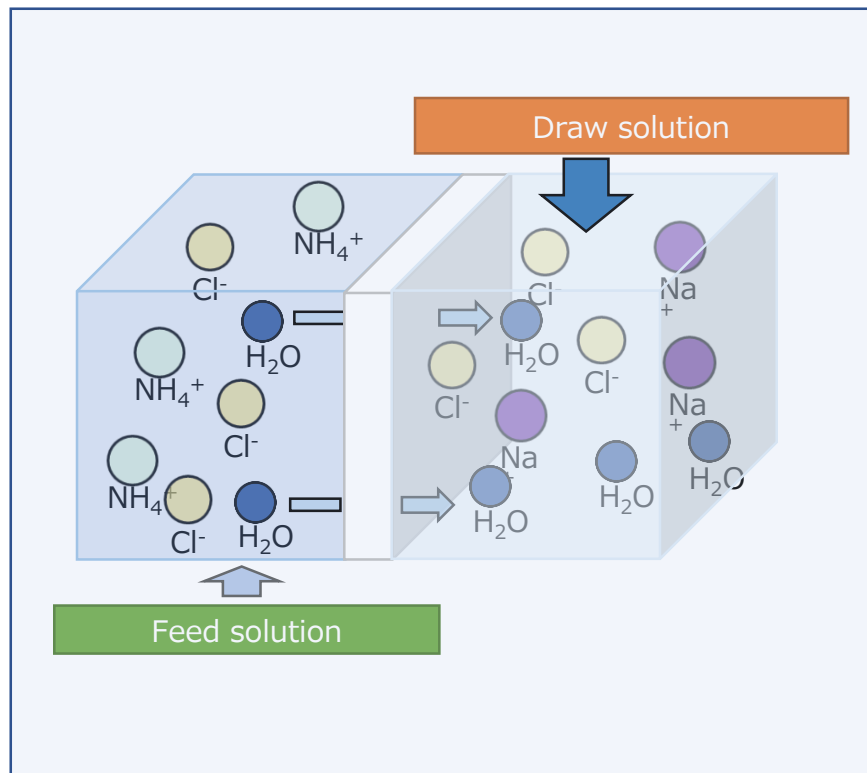
**モジュール内の膜透過現象や速度分布等を妥当に表現可能**

- 液相濃縮に関する要素分離プロセス（膜，吸着）を高い予測精度でモデル化。
- シミュレーションから操作・設計指針を検討中。全体システムとしてモデルを拡張中。

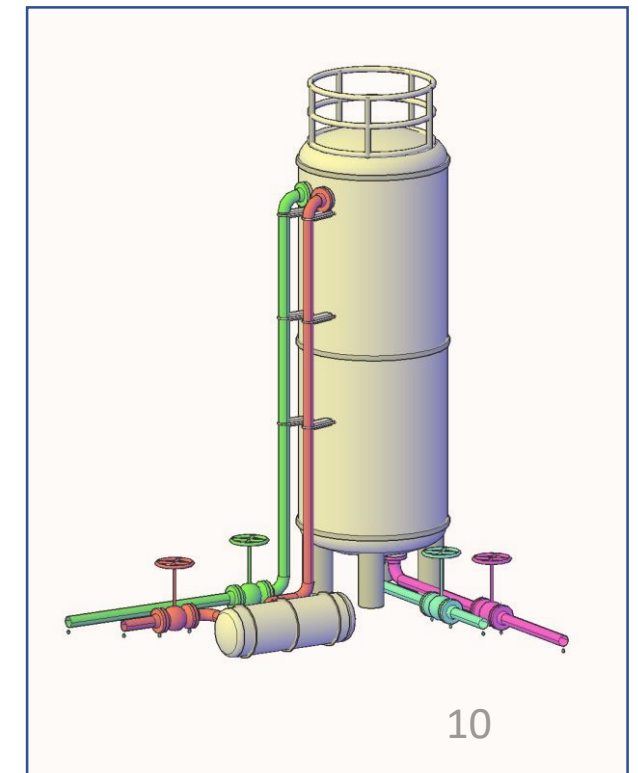
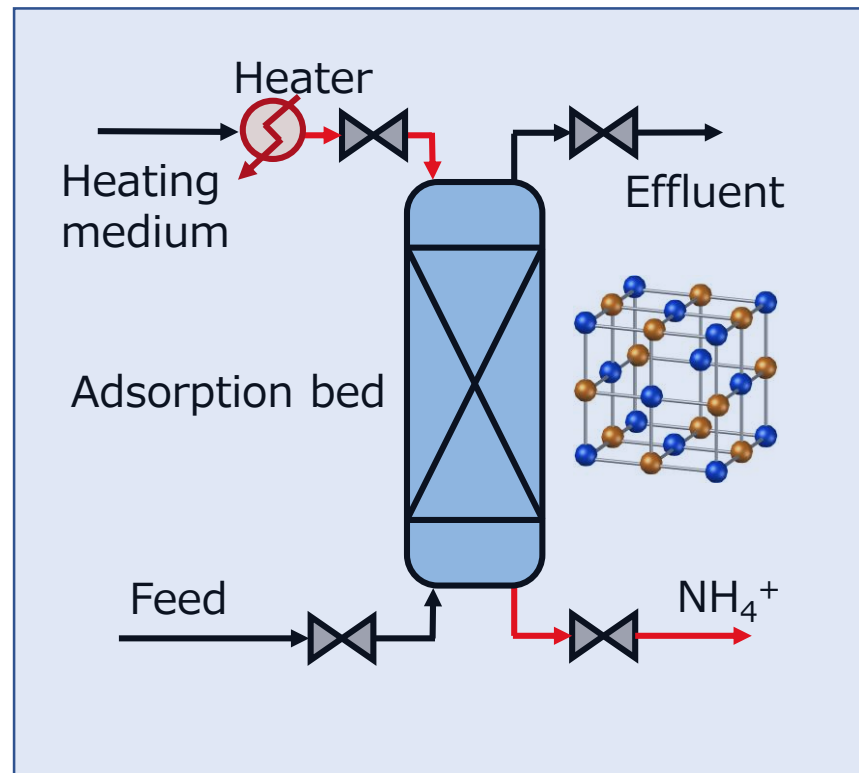
## 液相濃縮 プロセス



## Ex. 膜分離 (FO) モデリング & シミュレーション



## Ex. 吸着分離 (PB)



## 【プロジェクト内役割】

膜分離法によるアンモニア廃水濃縮プロセスの開発

## 【2029年度目標】

パイロット設備で用いるFO膜プロセスの構築、実廃水を用いたFOプロセスでの要求性能を満たすDSの完成、パイロット設備に用いる膜蒸留装置の完成

## 【開発項目】

- 膜分離によるアンモニア廃水濃縮プロセスの開発・評価（神戸大）
- 高温工場廃水用ゼオライトFO膜の開発（早稲田大）
- 膜蒸留におけるシステム解析とモジュール設計（広島大）
- 分離膜・吸着などを用いた窒素化合物の濃縮プロセスの合成・評価（山形大）

## 【成果 1 (神戸大・早稲田大)】

- FO膜法により実アンモニア工場廃水の10倍の濃縮に成功

## 【成果 2 (神戸大)】

- BC膜法によりNaCl共存モデルアンモニア廃水をさらに10倍濃縮し、T-N40,000ppm達成

## 【成果 3 (神戸大・広島大)】

- 膜蒸留法により25wt%のアンモニア水溶液の製造に成功

## 【成果 4 (山形大)】

- 液相濃縮に関する要素分離プロセスをモデル化、全体システムとしてモデルを検討<sup>1</sup>。

