

## (論文内容の要旨)

本論文は、RF電池に関して、構成要素である電気回路、化学反応系、流体循環系の連成を考慮した動的モデルについて検討し、電池の設計・制御に関して重要な示唆を与えている。本論文は8章からなっている。

第1章では、本研究の背景および研究の意義について述べている。

第2章では、一般に知られている実用電池、特に二次電池についてまとめ、中でも本研究で対象とするRF電池に関して説明している。また、RF電池の動作原理、構造について詳細に述べている。

第3章では、本研究遂行の目的で製作した、実用化されたRF電池に近い構造を有する供試RF電池システムの概要、特性測定のための回路構成、さらに実験方法に関して述べている。特に、供試RF電池システムの特徴である内部状態観測用のモニタセルについて説明している。

第4章では、第3章で説明した供試RF電池システムを用いて、充放電電流の広い範囲における出力電圧の測定を行い、その実験結果に基づいて応答特性を表わす実験式を導いている。ここでは、設置したモニタセルの電圧と充放電セルの電圧の比較を行い、内部状態の計測より電池特性を考察する手法を用いている。その結果、内部抵抗および過電圧を導出する際にはセル内の電解液濃度分布および電解液循環系の管による輸送時間の遅れの影響は無視できることを示している。また、動的平衡状態と過渡状態との差異に相当する電圧を求め、従来RF電池の実用電流および電圧領域で十分に検討できていなかった過渡時の電池出力特性の結果より、電池の内部状態を表す実験式を導出している。得られた実験式に関して、電気化学的、物理的意味を検討し、モニタセルの電圧に関しては、電解液タンクの中の活物質の濃度変化を化学的平衡状態と仮定して、Nernstの式を用いた評価値を得ている。この値を実験結果と比較した結果、RF電池の定常動作に対応する動的平衡状態を化学的平衡状態と仮定することは定量的に問題がないことを示している。充放電セル内の過渡状態に関して時定数に基づく検討を行い、過渡状態を支配する主な要因が充放電切換え時の平均濃度(分布)の変化であることを明らかにし、充放電切換え時の過渡状態の表現可能な実験式を得ている。充放電セル内の化学反応に関しては実験的に把握することには限界があることから、実験結果の化学反応との関係については、適切なモデルによる数値計算が必要であることを述べている。

第5章では、第4章で導出した実験式を用いた考察に基づき、RF電池の充放電セル内における電解液の濃度変化に着目し、化学反応論に基づいて電池の内部状態を示す電解液の濃度に関するモデル式を導出している。モデル式により実験結果より得られた電池特性を表わすパラメータを用いた数値計算を行なった結果、実験とよく一致することが示され、モデルの妥当性が確認された。さらに、このモデル式を用いて実験では実施が

氏名	李明華
----	-----

難しいRF電池の過負荷運転特性と低周波数応答特性に関して検討を加えた。この検討により、RF電池の過渡特性から得られた時定数とモデルより得られた濃度変化の時定数が対応することを示した。このように、RF電池の動的モデルの妥当性が実験結果に基づき確認できたことから、RF電池の設計・制御を検討する準備ができた。

第6章では、第5章で導出したRF電池のモデル式を用いて、RF電池の実応用上の構成である組電池システムにおける電解液濃度のモデル式を導き、電解液の流量、電池ユニットの体積をパラメータとして、直列、並列、および直並列運転時の電池ユニット間相互作用による出力端子電圧への影響に関して検討している。直並列運転時の充電深度に関する検討により、組電池システムの充電深度を高めるためには、電解液の流量、電池ユニットの体積を可能な限り一致させる必要があることを示している。すなわち、ユニットの体積および流量を揃えることが電池の充電深度を上げるために最も重要であることを示している。また、過渡時において、高い出力電圧を得るためには電池ユニット内の電解液の初期濃度に応じて流量を制御する必要があることも明らかにしている。RF電池の化学反応速度に基づく提案モデルを用いた解析は、実験では困難な様々な運転状態におけるユニットセル間の相互作用の把握を可能としており、複数個の電池ユニットを組んだシステムの設計およびその制御の検討に有効な手段となりうることを示した。

第7章では、第5章で導いたRF電池のモデルを用いて、負荷となる電気回路の動特性のRF電池の動作への影響を検討した。その結果、電気回路の振動との連成により電解液濃度の振動現象が生じることを示し、その現象の発生を示している。

第8章では、本論文の結論をまとめ、今後の課題を述べている。

以上のように本研究は、RF電池の動的モデルを、構成要素である電気回路、化学反応系、流体循環系の連成を考慮して検討したものである。本論文で得られた結果は、同様の構造を持つ二次電池の特性表現に対しても拡張が可能であり、それらの解析および動的モデルの構築に多くの示唆を与えている。

## (論文審査の結果の要旨)

本論文は、二次電池であるレドックスフロー (RF) 電池に関して、その構成要素である電気回路、化学反応系、流体循環系の連成を考慮した動的モデルを実験結果に基づき検討したものである。そのモデルにより、電池の内部状態、出力特性、組電池システムにおけるユニット間相互作用を把握すること、および電池システムの設計・制御に必要な特性の検討が可能となった。本論文で得られた主な成果は次の通りである。

1. 供試RF電池システムを用いて、充放電電流の広い範囲における入出力実験を行い、その実験結果に基づいて応答特性を表す実験式を導き、その電気化学的、物理的意味を検討した。その解析は無負荷における内部状態を測定するモニタセル電圧を基準とし、電気化学的な観点からモニタセル電圧は Nernstの式を用いた評価値が適用できることを実験結果より確認した。そして、電池の充放電動作を司るセル電圧（充放電セル電圧）とモニタセル電圧との差異に関して検討を加え、過渡時の電池の電氣的応答特性の時定数から、過渡状態を支配する主因が充放電切換え時のセル内電解質の平均濃度(分布)であることを明らかにした。この考察に基づき、充放電切換え時の過渡状態を表す実験式を得た。

2. RF電池の動作を支配する充放電セル内の電解液の濃度変化に着目し、化学反応論に基づき電池の内部状態を示す変数となる電解液の濃度に関するモデル式を導出した。導出したモデル式が実験結果を記述できることを、定性的かつ定量的に確認した。さらに、このモデル式によりRF電池の過負荷運転特性および低周波数応答特性を検討し、実験におけるRF電池の過渡特性から得られた時定数とモデルから得られる濃度変化の時定数が定量的に対応することを示した。

3. RF電池の組電池システムのモデル式を導出し、直列、並列、直並列運転時に関する数値計算を行った。その結果、組電池システムの充電深度を高めるためには、ユニットの体積及び流量を一律に保つことが最も重要であることを示した。また、過渡時において高い出力電圧を得るためには、電池ユニット内の電解液の初期濃度に応じて流量を制御する必要があることも明らかにした。以上、RF電池の提案モデルを用いた解析により、実験で明らかにされていないセル間の相互作用の把握が可能となった。

本論文では、RF電池に関して、構成要素である電気回路、化学反応系、流体循環系の連成を考慮した動的モデルを構築した。得られた結果はRF電池の設計・制御に対して、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成21年1月6日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。