	学 位 論 文 要 旨 (Summary of the Doctoral Dissertation)
学位論文題目 (Dissertation Title)	Study on development and application of reverse electrodialysis (RED) process from lab scale to pilot scale (ラボ及びパイロットスケールにおける逆電気透析プロセスの開発と応用に関する研究)
氏 名(Name)	Soroush Mehdizadeh

Salinity gradient energy (SGE) is well known as a renewable energy and defined as an electrochemical potential between two solutions with different salinities such as river water and seawater. Because of huge energy potential of SGE in the world an energy conversion system from SGE into available electric energy is highly recommended. Therefore, in this Dr. thesis, membrane-based reverse electrodialysis (RED) technique is studied toward its future's implementation of RED power generation system in order to producing the power density of around 1.5 W/m² using one of the biggest RED pilot scale stack. This thesis consists of 5 experimental chapters (Chapter 2~6) except Introduction (Chapter 1) and Summary (Chapter 7). The experimental chapters focused on the important research topics such as to improve "RED stack design" (Chapter 2), to optimize the "RED operation condition" (Chapter 3), to find out suitable "RED applications and membrane" (Chapter 4), and to find out suitable "pre-treatment method for RED" (Chapter 5), and to estimate "scale-up of RED stack" (Chapter 6) using high number of stacked IEMs with large effective membrane area. The followings are brief summaries of the experimental chapters including research motivation and new finding through my comprehensive study.

In Chapter 2, because the presence of porous spacer between the membranes inside the RED stack would cause reduction of the RED performance, the effect of spacer on the RED stack internal resistance has been investigated. The result revealed the presence of spacer increased the RED internal resistance around 14-48% due to the spacer shadow effect. Furthermore, comprehensive study using 16 types of spacer having different geometry enabled to propose new simple numerical equations to express spacer shadow effect on both membrane and solution compartments of the stack in terms of non-ohmic resistance. Our proposed equations well agreed with the experimental resistance data under a wide range of the spacer geometry, promising to be helpful not only for estimation of different spacer on RED performance, but also developing a novel spacer design. Through this study, we successfully chose a best spacer among them and used it for bench- and pilot-scale RED stacks (Chapter 3 and 7, respectively).

In Chapter 3, The effect of operating conditions such as inlet flow rate and feed solution temperature on RED power generation performance has been investigated by using two types of bench-scale RED stacks having different intermediate distance between the membranes. Although the most of previous literatures also investigated the effect of temperature on the performance, the study in a bench-scale under different operating conditions had not been conducted yet. The results clearly revealed that power generation performance linearly increased with increasing water temperature with its coefficient of about 1~3%/°C. Furthermore, for the first time, we successfully found that the linear temperature dependences were strongly influenced by inlet flow rate condition and intermediate distance of the stack. This result led to suggest that a suitable location for setting a pilot-scale RED stack was Okinawa (Chapter 6) in Japan because of high temperature.

(様式7号) (Format No.7) H本語版

In Chapter 4, to find where the RED process can be potentially installed, the RED process using discharging solutions from a real salt production plant has been investigated. For this purpose, we used four types of discharging solutions having different salinity and different ionic compositions. Feasibility study on the energy production potential via membrane potential measurement, resistance measurement and subsequent RED power generation performance using various types of membranes successfully proposed the best feed solutions combination as well as membrane types and orientation of monovalent selective layer of the membrane. Changing the membrane orientation of selective layer interestingly increased the power generation of 30% when divalent ions included in the solution. This results proposed the using one side monovalent selective membrane for a pilot-scale RED stack (Chapter 6).

In Chapter 5, to find what is appropriate pre-treatment before RED when using wastewater as a feed, we have investigated on the effect of coagulation process on the subsequent RED power generation performance using real municipal wastewater. Membrane resistance and membrane potential measurements with different dosage of poly aluminum chloride (PAC) as a coagulant proposed that excess amount of PAC will lead severe membrane fouling especially only in the case of cation exchange membrane. After then, we successfully found the optimized dosage of PAC which enabled to improve RED performance because of 50% removal of natural organic material in the wastewater during pre-treatment.

In Chapter 6, toward future's RED implementation, we have developed one of the biggest RED stack in the world at Okinawa, based on my previous studies above, and evaluated the performance using discharging brine solution from seawater reverse osmosis (SWRO) plant and river water. We successfully got around 264 W (~1.5 W/m²) of RED power generation which was the highest gross power density using pilot-scale in the world. This results also proved that our previous studies were truly reliable in order to scale up the RED process.

## 学位論文審査の結果及び最終試験の結果報告書

山口大学大学院創成科学研究科

氏	名	Soroush Mehdizadeh
審查委員		主 査: 比嘉 充
	副 查:中山 雅晴	
		副 査: 田中 俊彦
	多員	副 查:鈴木 祐麻
		副 查: 安川 政宏
		副 查:
		副 查:
論 文 思	Í 🗐	ラボ及びパイロットスケールにおける逆電気透析プロセスの開発と応用に関する研究 Study on development and application of reverse electrodialysis (RED) process from lab scale to pilot scale

## 【論文審査の結果及び最終試験の結果】

塩分勾配エネルギー(SGE)は河川水や海水などの異なる塩分を持つ2つの溶液間に存在する混合自由エネルギーであり、世界で2TW級の膨大なポテンシャル量が存在する新たな再生可能エネルギー源として有望視されている。本学位申請論文では、SGEを電力に直接変換する技術としてイオン交換膜(IEM)を用いた逆電気透析(Reverse electrodialysis: RED)に着目し、RED 発電システムの将来的な社会実装に向けた要素技術の研究開発と大型化の検討を行っている。

第1章では研究背景、REDに関連する理論、および関連する国内外の研究動向について論じている。その中で供給水の種類・膜・スペーサー・供給水量・水温・大型化といった技術要素についての現状と課題を明らかとし、本学位論文ではそれらをラボスケール及びパイロットスケールで系統的に取り組み、性能向上を行うことが目的であることを明確にしている。

第2章では、RED スタックに用いる膜間流路スペーサーの形状が RED スタックの電気抵抗 および発電出力に与える影響について調査しており、形状の異なる 16 種類のスペーサーを用 いた検討により、スペーサー形状に依存した遮蔽効果の存在を明らかとしており、更に膜およ び流路区画部位におけるそれぞれの抵抗増加値を予測することができる新たな経験式を提案 している。得られた経験式は形状の異なる様々なスペーサーに由来する電気抵抗増加の実験 値を、従来モデルよりも良い精度で予測することが可能であることを明らかとしている。

第3章では、水温と供給流量が出力特性に与える影響を2種のベンチスケールREDスタックを用いて検討し、各操作因子と出力の相関性を明らかとすると共に、ポンプエネルギーを差し引いた正味出力が最大となる運転条件を見出している。また水温の上昇に伴い発電性能が直線的に増加することを明らかとし、温度-出力変動係数は1~3%/°Cであり、運転条件およびスタック条件に強く依存することを明らかとした。

第4章では、製塩工場から得られる実溶液を用いて、RED における IEM 種類の影響を検討し、実溶液に含まれる2価イオンが各 IEM の起電力と膜抵抗に与える影響を明らかにすると共に、高出力を達成するための最適な IEM の組み合わせ条件を見出した。

第 5 章では、下水処理水等の実廃水を用いた RED のための前処理としてポリ塩化アルミニウム (PAC) を用いた凝集沈殿法を適用し、PAC そのものが出力に与える影響の調査を通じてPAC 添加条件を最適化し、実廃液中に含まれる有機物を適切に除去して RED 出力を向上できる前処理条件を見出した。

第6章では、これまでの検討から得られた知見を活かしてスタックの大型化を検討し、総膜面積  $180 \text{ m}^2$  のスタックにて実海水、実濃縮海水、実河川水を用いた試験を行い、太陽光発電の 2kW 級に相当する約  $264 \text{ W} (1.5 \text{ W/m}^2)$  の高出力密度を達成している。

第7章では、本学位論文で得られた研究成果の結論を述べるとともに、今後の検討課題について述べている。

## 【本審査および公聴会における主な質問内容】

本審査および公聴会においては、①REDにおける最適膜間距離、②更なる高出力化に向けた 今後の課題、③実液を使用した場合の膜汚染の種類、④更なる高濃度塩水への適用の可能性に ついてなどの質問があった。いずれの質問に対しても発表者から的確な回答がなされた。

以上より、本研究は実用性、創造性、有効性、信頼性ともに優れ、博士(工学)の学位論文 に十分値するものと判断した。論文内容および審査会、公聴会での質問に対する応答などから、 最終試験は合格と判定した。

## 【関連論文の発表状況】

関連学術論文(査読付き)は4編であり、主な論文は以下のとおりである。

- (1) <u>S. Mehdizadeh</u>, M. Yasukawa, T. Abo, Y. Kakihana, M. Higa, "Effect of spacer geometry on membrane and solution compartment resistance in reverse electrodialysis", *J. Membr. Sci.*, **572**, 271-280 (2019)
- (2) <u>S. Mehdizadeh</u>, M. Yasukawa, T. Abo, M. Kuno, Y. Noguchi, M. Higa, "The effect of feed solution temperature on the power generation performance of a pilot-scale reverse electrodialysis (RED) system with different intermediate distance", *Membranes*, **9**, 73 (2019)
- (3) <u>S. Mchdizadch</u>, M. Yasukawa, M. Kuno, Y. Kawabata, M. Higa, "Evaluation of energy harvesting from discharged solutions in a salt production plant by reverse electrodialysis (RED)", *Desalination*, 467, 95-102 (2019)
- (4) T. Abo, <u>S. Mehdizadeh</u>, Y. Kakihana, M. Yasukawa, M. Higa, "Power generation performance of a pilot-scale reverse electrodialysis (RED) stack", *Bull. Soc. Sea Water Sci., Jpn.*, **73**, 96-97 (2019)