

Dr.-Ing. habil. Agata Godula-Jopek FRSC
Scientific Coordinator
Institute of Energy and Climate Research
IEK-3: Institute of Techno-Economic Systems Analysis
Forschungszentrum Jülich

Phone: +49 2461 61-85863
Mobil: +49 151 53 252690
Telefax +49 2461 61-3385
E-Mail: a.godula-jopek@fz-juelich.de
Internet: <http://www.fz-juelich.de/iek/iek-3>

Düren, 16.04.2021

RECENZJA

rozprawy doktorskiej Pana Mgr Inż. Mateusza Palusa na temat:
**„Modelowanie systemów wyposażonych w ogniwa paliwowe przy
zastosowaniu symulatora procesowego”**
**(Numerical modelling of power generator systems based on fuel cells using
process simulation tool)**

Ocena rozprawy

Rozprawa doktorska Pana Magistra Inżyniera Mateusza Palusa związana jest z modelowaniem numerycznym układów ze stałotlenkowymi wysokotemperaturowymi ogniwami paliwowymi (Solid Oxide Fuel Cells) przy zastosowaniu symulatora procesowego. Praca została zrealizowana na Wydziale Technologii i Inżynierii Chemicznej Zachodniopomorskiego Uniwersytetu Technologicznego w Szczecinie, pod kierunkiem Pani Doktor Habilitowanej Inżynier Pauliny Pianko-Oprych, Profesor ZUT. Pani Profesor jest autorką szeregu publikacji z tego zakresu i tym też obszarze badawczym znajduje się praca Doktoranta wykonana pod jej opieką naukową.

European Green Deal traktuje ogniwa paliwowe i technologie wodorowe jako nieodłączną część strategii dla ochrony klimatu i dekarbonizacji gospodarki. Unia Europejska wprowadziła długofalową politykę ograniczania emisji gazów cieplarnianych, zgodnie z którą emisje gazów cieplarnianych zostaną ograniczone o 40% do 2030 roku i o 80-95% do 2050 roku, co stwarza pilną potrzebę pełnego przedstawienia systemów energetycznych na ekologiczne, niskoemisyjne technologie. Technologia różnych ogniw paliwowych, jak również technologie wodorowe jako technicznie dojrzałe i zweryfikowane, wpisują się w ten trend. Liczne udane wdrożenia pokazują, że jest to realne i bezpieczne rozwiązanie, które sprawdza się

w praktyce. Poprzez ciągłą poprawę wydajności pod względem efektywności energetycznej i kosztu cyklu życia komponentów, inwestycje w badania i rozwój przyczyniają się w znacznym stopniu do realizacji strategii redukcji emisji gazów cieplarnianych.

W przypadku wysokotemperaturowych ogniw paliwowych, do których zalicza się również ogniwa stałotlenkowe SOFC, optymalne parametry operacyjne pracy ogniwa stanowią jeden z najistotniejszych problemów eksploatacyjnych. Z tego też powodu duże szanse na rozwój technologii SOFC wiąże się z innowacyjnymi narzędziami badawczymi, umożliwiającymi sprawne projektowanie, optymalizację i monitorowanie wydajności analizowanych kompletnych systemów w postaci symulatorów procesowych. Takie symulacje numeryczne pozwalają na analizę szeregu parametrów operacyjnych, przez co mogą prowadzić do redukcji kosztów związanych z projektowaniem skomplikowanych układów i testów ściśle laboratoryjnych.

Jak zauważa Doktorant, „modułowa struktura budowy ogniw paliwowych pozwala na umiejscowienie systemu bezpośrednio w miejscu odbioru paliwa zasilającego, co znacząco eliminuje straty związane z przesyłem energii elektrycznej i cieplnej. Praktycznie zerowa emisja hałasu jest ich dodatkowym atutem, który z powodzeniem jest stosowany przy projektowaniu pojazdów ciężarowych oraz infrastruktury wielkomiejskiej“.

Tematyka pracy doktorskiej i badań mogących poszerzyć stan wiedzy z tego zakresu jest więc niezwykle aktualna, o dużym potencjale aplikacyjnym, jak również poznawczym, a jednocześnie złożona. Z tego względu zainteresowanie się tym problemem przez Doktoranta uważam za celowy i trafny wybór.

Pan Mgr Inż. Mateusz Palus jasno formułuje cel pracy – jest nim modelowanie procesów transportu masy, energii oraz reakcji elektrochemicznych w układzie wyposażonym w dwa stosy wysokotemperaturowych, ceramicznych, stałotlenkowych ogniw typu SOFC o różnej liczbie ogniw w każdym ze stosów, za pomocą symulatora procesowego do produkcji energii elektrycznej i ciepła. W pracy rozpatrywano dwa rodzaje reformingu paliw: Catalytic Partial Oxidation, CPO_x oraz Steam Reforming, SR. Badania prowadzono dla dwu systemów zdefiniowanych jako: (i) System A – składający się z pojedynczego stosu ogniw wraz z reformingiem katalitycznym CPO_x, dopalaczem i wymiennikiem ciepła o łącznej mocy 100 W oraz (ii) System B – na który składały się dwa stosy ogniw, o liczbie ogniw w stosie odpowiednio 90 i 240,

dwa procesy reformingu: parowy SR oraz katalityczny, CPOx, dopalacz i wymiennik ciepła. Łączna moc systemu B wynosiła 7,222 kW. Szczegółowe opracowanie modeli systemów zasilania CHP-SOFC umożliwiło symulacje zarówno w stanie statycznym, jak i dynamicznym, łącznie z opisem implementacji w symulatorze procesowym.

Rozprawa doktorska jest dobrze skonstruowana i zredagowana, z uwzględnieniem bogatej listy symboli greckich i łacińskich oraz skrótów użytych w tekście. Zawiera wszystkie obowiązujące w takiej rozprawie elementy, mianowicie: aktualny stan wiedzy, wynikający z niego cel, część koncepcyjną, eksperymenty własne, podsumowanie, wnioski oraz obszerną bibliografię, z uwzględnieniem publikacji własnych Autora. Cała praca liczy 192 strony, zatem jest bardzo obszerna.

Samą dysertację można podzielić na cztery zasadnicze segmenty. Część pierwsza zawiera wprowadzenie i jasno precyzuje zadania postawione przez Doktoranta (rozdział pierwszy) oraz obejmuje obszerny przegląd literatury dotyczącej podstawowych zagadnień związanych z badaną tematyką (rozdział drugi). Należy przy tym podkreślić, że na podstawie wnikliwej analizy danych literaturowych, Autor rozprawy identyfikuje lukę badawczą i wskazuje rozwiązanie, które według niego może przyczynić się do rozwoju omawianej problematyki wysokotemperaturowych ogniw paliwowych SOFC. Sugeruje on mianowicie opracowanie uniwersalnego modelu matematycznego podsystemu ogniw paliwowych typu SOFC oraz modelu matematycznego systemu wyposażonego w ogniwa, służącego do obliczania wydajności ogniw i całego systemu. Zauważa przy tym, iż modelowanie stanu ustalonego może nie być wystarczające, zaznaczając, że symulacje w trybie nieustalonym umożliwiają analizę systemu w warunkach zbliżonych do rzeczywistych, bądź nawet skrajnych.

Część druga pracy obejmuje część koncepcyjną, zaś część trzecia to badania własne Doktoranta z rozróżnieniem badań wstępnych, opartych na modelowaniu systemu podstawowego A oraz badań głównych, przeprowadzonych dla złożonego systemu B. Na czwarty zasadniczy element rozprawy składają się odpowiednio podsumowanie i wnioski końcowe.

W części koncepcyjnej pracy Doktorant sformułował główne tezy rozprawy doktorskiej, jak również precyzyjnie określił zakres prac badawczych.

Jako główne tezy pracy przyjęto pięć następujących założeń:

1. Poprawne modelowanie systemów wyposażonych w ogniwa paliwowe typu SOFC przy użyciu komercyjnych symulatorów procesowych typu Aspen Plus oraz Aspen Dynamics i zastosowaniu domyślnych modeli aparatów jest możliwe, lecz wymaga dodatkowej implementacji równań w celu wykonania obliczeń charakterystyki prądowo-napięciowej SOFC.
2. Charakterystyka prądowo-napięciowa ogniwa paliwowego typu SOFC może być przewidywana za pomocą symulatorów procesowych.
3. Dobór ciśnienia roboczego ogniwa i temperatury pracy ogniw paliwowych typu SOFC wpływa na wielkość generowanego napięcia i mocy ogniwa.
4. Zdefiniowanie optymalnych parametrów pracy systemu zasilania złożonego z dwu stosów ogniw paliwowych może być przeprowadzone za pomocą metod analizy numerycznej.
5. Określenie optymalnej wartości współczynnika lambda dla reformera CPOx może być osiągnięte przy wykorzystaniu symulatora procesowego.

Zakres prac badawczych z kolei obejmował między innymi:

- Opracowanie modelu matematycznego dla systemu A w stanie ustalonym (użyto symulator Aspen Plus) i nieustalonym (użyto Aspen Dynamics) oraz analizę wyników symulacji.
- Opracowanie modelu matematycznego dla systemu B w stanie ustalonym, obejmującego modele dla pierwszego i drugiego stosu ogniw SOFC i modele dla podsystemów oraz dla systemu B w stanie nieustalonym.
- Przeprowadzenie właściwych symulacji numerycznych dla systemu B z użyciem symulatora procesowego Aspen Plus w stanie ustalonym i Aspen Dynamics w stanie nieustalonym.
- Walidację wyników symulacji numerycznych systemu B na podstawie dostępnych danych literaturowych, projektowych i doświadczalnych oraz ich analizę.

Badania przeprowadzono na pojedynczych płaskich (planar) i mikrorurkowych (tubular) ogniwach paliwowych SOFC.

Badania wstępne Doktoranta miały na celu sprawdzenie poprawności przewidywania podstawowych parametrów operacyjnych i wygenerowanie krzywej prądowo-

napięciowej dla uproszczonego systemu A o mocy 100 W, zawierającego pojedynczy stos ogniw paliwowych SOFC i wyposażony w reformer katalityczny CPOx.

W ramach badań wstępnych źródłem paliwa w układzie A był metan, CH₄. Model matematyczny systemu A uwzględniał zjawiska zachodzące wewnątrz pojedynczego ogniwa, reakcje chemiczne i elektrochemiczne, jak procesy transportu masy i ciepła. W systemie tym założono stałą wartość mocy elektrycznej i zmniejszenie wartości współczynnika wykorzystania paliwa w zakresie od 0,85 do 0,60, co przy zachowaniu stałej wartości lambda oraz gęstości prądu powodowało spadek zarówno napięcia, jak i temperatury pracy ogniwa. Z kolei zmiana parametru lambda w zakresie 0,61 - 0,80 przy utrzymaniu niezmiennych wartości stopnia wykorzystania paliwa oraz gęstości prądu implikowała spadek napięcia oraz temperatury badanych ogniw, aczkolwiek zmiana ta była mniej zauważalna niż wielkość zmian parametrów operacyjnych w przypadku zmian wartości współczynnika wykorzystania paliwa.

Modele dla systemu A, wykonane w symulatorach Aspen Plus dla stanu ustalonego i w symulatorach Aspen Dynamics dla stanu nieustalonego, były punktem wyjściowym do opracowania w ramach badań zasadniczych innowacyjnego modelu systemu B, złożonego z dwu stosów o różnej liczbie ogniw w obrębie każdego stosu oraz uwzględniającego dwa różne procesy reformingu, CPOx i SR. Przy modelowaniu kompletnego systemu B również uwzględniono bilans masowo-energetyczny, jak i charakterystyki prądowo-napięciowe stosów dla stanu ustalonego i dynamicznego w zakresie prądów 0-6000 A/cm². Parametry operacyjne analizowano przy częściowym (47%) i całkowitym obciążeniu (100%) systemu. Dokonano również analizy zachowania przejściowego podczas pracy systemu przy zmiennych wartościach parametru lambda i stopnia zużycia paliwa, jak również oceniono wpływ temperatury i ciśnienia na napięcie ogniwa i przeanalizowano stosunek napięć ogniw w obu stosach. W badaniach zasadniczych układ B zasilany był gazem ziemnym, przy czym w przypadku stosu złożonego z 90 ogniw planar zastosowano reforming katalityczny, CPOx, zaś dla drugiego stosu złożonego z 240 ogniw planar zastosowano reforming parowy, SR.

Otrzymane wyniki wykazały, że przy stałej wartości współczynnika wykorzystania paliwa, wyższa wartość ciśnienia, a także temperatury wewnątrz podsystemu SOFC powodowały wzrost napięcia pojedynczego ogniwa w obu stosach. Dla badanego zakresu temperatur i ciśnień wykazano, że zmiana temperatury miała bardziej

znaczący wpływ w porównaniu do zmian wartości ciśnienia. Uzyskano wyższe wartości napięcia dla wyników przy stałej wartości ciśnienia, lecz różnej temperaturze. Wzrost temperatury zapewnił zwiększenie napięcia roboczego ogniwa, co w konsekwencji wpływało na wielkość wytwarzanej mocy. Wraz ze zwiększeniem gęstości prądu, różnice mocy dla określonych parametrów temperatury i ciśnienia nieznacznie zwiększały się przy tej samej wartości ciśnienia roboczego, chociaż w zakresie roboczym gęstości prądu 1000-2000 A/m² różnice te były niewielkie. Zbliżone wartości chwilowego napięcia pojedynczego ogniwa w obu stosach nie występowały w całym zakresie gęstości prądu w przedziale wartości 0-6000 A/m², lecz wraz z jego wzrostem różnica napięć pojedynczego ogniwa pomiędzy obydwoma stosami zwiększała się z powodu znaczącego spadku napięcia w drugim stosie. Również w tym przypadku, w zakresie gęstości prądu w przedziale roboczym 1000-2000 A/m², różnice te były niewielkie. W zakresie zmian wartości współczynnika wykorzystania paliwa od 0,75 do 0,85, zaobserwowano wzrost napięcia pojedynczego ogniwa w pierwszym stosie, zaś napięcie w drugim stosie ogniwo SOFC malało. Wzrost wartości współczynnika wykorzystania paliwa powodował zubożenie strumienia paliwa wylotowego z pierwszego podsystemu SOFC. Zmniejszenie ilości wodoru przełożyło się na mniejszą jego ilość w strumieniu zasilającym drugi stos, mimo wcześniejszego wzbogacenia paliwa w podsystemie reformingu parowego.

Przeprowadzone i pozytywnie zweryfikowane symulacje numeryczne wykazały, że symulatory procesowe mogą być z sukcesem zastosowane do przewidywania zachowania systemów wyposażonych w ogniwa paliwowe typu SOFC. Zarówno badania wstępne, jak i pełne modelowanie numeryczne systemów do produkcji energii elektrycznej i ciepła stosów ogniwo paliwowych typu SOFC dostarczyły wielu cennych informacji odnośnie wpływu parametrów operacyjnych i zjawisk elektrochemicznych na warunki pracy ogniwo, stanowiących istotny element systemu, jak i pozostałych jego komponentów. Przy okazji Doktorant stwierdził bardzo dobrą zgodność otrzymanych przewidywanych wyników z danymi projektu europejskiego STAGE-SOFC, w których to pracach brał on czynny udział.

Przy użyciu nowoczesnych symulatorów procesowych typu Aspen Plus i Aspen Dynamics, główne tezy i założenia pracy doktorskiej zostały z sukcesem udowodnione.

Przedstawione poniżej uwagi są dyskusyjne i w najmniejszym stopniu nie obniżają pozytywnej oceny pracy, stanowiąc raczej naturalną konsekwencję znacznego stopnia złożoności analizowanych zagadnień.

- (1) Zbyt obszerne są pewne fragmenty zwłaszcza rozdziału drugiego dysertacji, a nie stanowiące własnego wkładu Autora. Powielanie znanych równań, definicji i omówień nie wydaje się konieczne dla zachowania przejrzystości i spójności pracy. Za to cenne jest krytyczne omówienie cytowanych źródeł literaturowych.
- (2) Omawiając ogniwa paliwowe Doktorant posługuje się pojęciem „produkcja spalin“. Generalnie jest to pojęcie poprawne, niemniej jednak w aspekcie ogniw paliwowych może należałoby raczej użyć określenia „produkty reakcji“. Trudno bowiem mianem „spalin“ określać na przykład produkty reakcji ogniwa polimerowego PEMFC, gdzie paliwem jest wodór o bardzo wysokiej klasie czystości. W tym przypadku tzw. „spalinami“ byłaby głównie para wodna.
- (3) Biorąc pod uwagę rodzaj zastosowanego elektrolitu jako kryterium podziału ogniw paliwowych (str. 18), Doktorant wskazuje między innymi „ogniwa węglanowe ze stopionym węglanem“. Otóż w przypadku ogniw węglanowych MCFC, nie jest to jeden stopiony węglan, ale mieszanina eutektyczna stopionych węglanów. Zwyczajowo są to stopione węglany litu i sodu w proporcji odpowiednio 0.53:0.47, lub węglany litu i potasu w proporcji odpowiednio 0.62:0.38.
- (4) W spisie symboli i oznaczeń (str. 10) uwzględniono dwa razy ciśnienie, oznaczając je raz jako „P“, a raz jako „Pc“. Brak wyszczególnienia, że w drugim przypadku chodzi prawdopodobnie o ciśnienie krytyczne.
- (5) Zademonstrowany model złożonego systemu B wykorzystuje dwa typy reformingu, CPOx oraz reforming parowy, SR. W przypadku pierwszego z nich, CPOx, wartość temperatury strumienia opuszczającego reformer, będącego jednocześnie strumieniem zasilającym anodę pierwszego stosu ogniw SOFC, strumień, ST1-ANIN, była określona w toku obliczeń omawianego reaktora, w którym to zdefiniowano reakcje (R23) – (R32), str. 122-123. W przypadku podsystemu reformingu parowego, wartość strumienia opuszczającego podsystem reformingu parowego została zdefiniowana wprost jako 700°C, co wydawać się może pewnym uproszczeniem, dlaczego?
- (6) W Rozdziale 2.4 (od str. 151) przeanalizowano wpływ m.in. ciśnienia operacyjnego strumieni (nominalne oraz zwiększone dwukrotnie) wewnątrz

stosów ogniw SOFC na napięcie pojedynczego ogniwa/gęstość mocy (Rys. 53 oraz Rys. 54). Doktorant nie podał jednak informacji, w jaki sposób został zrealizowany proces zwiększenia ciśnienia strumieni zasilających podsystem SOFC. Poza tym, czy w przypadku pracy systemu pod zwiększonym ciśnieniem uwzględniono straty energii wynikające z potrzeby użycia np. dodatkowego kompresora?

- (7) Czym kierowano się wybierając do badań pakiet oprogramowania AspenTech pomimo braku domyślnego modelu ogniw SOFC? Jakie zalety przeważały?
- (8) Przedstawiony system B zawiera dwa odrębne stosy ogniw SOFC, pierwszy zawiera 90, drugi 240 ogniw. Czym podyktowany był taki podział?
- (9) Dlaczego dla prostego systemu A wybrano reforming katalityczny CPOx, a nie reforming parowy SR?
- (10) Dlaczego w przeprowadzonych symulacjach nie brano pod uwagę reformingu autotermalnego ATR?

Wnioski końcowe

Przedstawiona do oceny rozprawa doktorska Pana Magistra Inżyniera Mateusza Palusa skonstruowana jest w sposób logiczny i konsekwentny, dowodząc sprawności badawczej Kandydata, jego wiedzy i umiejętności korzystania ze złożonych narzędzi numerycznych. Postawione tezy i cele pracy zostały w pełni zrealizowane, zaś wnioski wypływające z pracy dobrze udokumentowane. Przyjęty sposób postępowania wskazuje na dużą wiedzę teoretyczną i praktyczną Doktoranta w zakresie modelowania procesów o różnym stopniu złożoności na potrzeby analizy i oceny warunków operacyjnych pracy systemów do produkcji energii elektrycznej i ciepła, wyposażonych w stosy ogniw paliwowych typu SOFC. Praca pod tym względem spełnia kryteria przyjęte w obszarze Inżynierii Chemicznej i Procesowej. Racjonalne podejście do relacji między stosowanymi modelami, a stopniem dokładności eksperymentalnych danych pomiarowych zasilającymi ten opis, jest jednym z istotnych walorów rozprawy. Recenzent uważa za główne dokonanie Doktoranta opracowanie innowacyjnego modelu systemu umożliwiającego przeprowadzenie symulacji w stanie statycznym oraz dynamicznym, wraz z zaimplementowanym modelem matematycznym obliczeń charakterystyki prądowo-napięciowej ogniw SOFC, co stanowi nowatorskie podejście do problemu projektowania systemów zasilania wyposażonych w ogniwa paliwowe typu SOFC.

Coraz liczniejsze publikacje związane z prezentowanymi badaniami również dowodzą wagi podjętej tematyki, zaś uzyskane wyniki stanowią bardzo dobrą podstawę dalszych prac, co zresztą podkreśla sam Doktorant, formułując wnioski końcowe.

W tej sytuacji, zgodnie z Ustawą z dnia 14 marca 2003 o stopniach naukowych i tytule naukowym oraz o stopniach i tytule w zakresie sztuki (Dz.U. Nr 65, poz. 595, z późn. zm.) oraz w Ustawie z dnia 27 lipca 2005 – Prawo o szkolnictwie wyższym (Dz.U. Nr 164, poz. 1365, z późn. zm.), bez zastrzeżeń wnoszę o dopuszczenie Kandydata, Pana Magistra Inżyniera Mateusza Palusa, do publicznej obrony rozprawy doktorskiej.

Agata Godula-Jopek