

#### RECENZJA

Rozprawy doktorskiej pt. „Minimalizacja emisji NO<sub>x</sub> w procesie fluidalnego spalania”, której autorką jest mgr inż. Jolanta Ziaja

Rozprawa koncentruje się na badaniach minimalizacji emisji NO<sub>x</sub> z energetycznego kotła z cyrkulacyjną warstwą fluidalną. Praca jest oparta na wynikach badań eksperymentalnych prowadzonych z wykorzystaniem trzech kotłów fluidalnych. Kotły są opalane węglem brunatnym. Doktorantka formułuje tezę oraz cel pracy, cel pracy to według doktorantki „opracowanie algorytmu eksperymentalnej minimalizacji emisji tlenków azotu NO<sub>x</sub> z cyrkulacyjnej warstwy fluidalnej w kotle opalanym węglem brunatnym dokonywanej metodą SNCR oraz zastosowanie algorytmu do minimalizacji emisji tlenków azotu NO<sub>x</sub>”. Natomiast teza to „Sterowanie dystrybucją przestrzenną mocznika i warunkami przepływowymi w kotle umożliwi minimalizację emisji tlenków azotu NO<sub>x</sub> z kotła energetycznego”.

Temat podjęty przez doktorantkę jest w mojej opinii aktualny, a część badań jakie przeprowadziła ma wręcz charakter unikalny. Emisja tlenków azotu stanowi jeden z podstawowych elementów jakimi określamy wymogi emisyjne. Dlatego wszelkie prace mające na celu rozwój technologii ograniczających emisję tlenków azotu mają nie tylko duże znaczenie poznawcze, ale również duże znaczenie praktyczne ze względu na znaczenie całego procesu. Ważnym elementem zwiększającym znaczenie rozprawy jest wykorzystanie obiektów rzeczywistych jako obiektów badawczych (kocioł OE700) i skoncentrowanie się na procesie spalania fluidalnego (stosunkowo rzadko badanego).

#### **Streszczenie zawartości rozprawy doktorskiej**

Rozprawa doktorska przedłożona przez Panią mgr inż. Jolantę Ziaję nosi tytuł „Minimalizacja emisji NO<sub>x</sub> w procesie fluidalnego spalania” i liczy 149 stron. Jej zasadniczą treść tworzy 7 rozdziałów, które uzupełniają streszczenia (polskie i angielskie), spisy rysunków, tabel i ważniejszych oznaczeń oraz wykaz cytowanej literatury (ok. 160 pozycji).

**Rozdział 1** jest wstępem, nakreślającym problematykę emisji tlenków azotu NO<sub>x</sub>, regulacji prawnych obligujących do ograniczania ich emisji oraz wymieniającym oryginalne osiągnięcia Autorki dotyczące układów redukcji emisji tlenków azotu w kotłach energetycznych. Omówiono tutaj też m.in. metody redukcji emisji NO<sub>x</sub> stosowane na kotłach OP-650 w elektrowniach Dolna Odra i Ostrołęka.

W **rozdziale 2** na 25 stronach dokonano przeglądu literatury. Omówiono w nim mechanizmy i reakcje chemiczne prowadzące do powstania tlenków azotu: tlenku NO, podtlenku  $N_2O$  i dwutlenku  $NO_2$ . Przedstawiono także metodę selektywnej niekatalitycznej redukcji (SNCR) emisji  $NO_x$  przez wtrysk do komory paleniskowej kropel roztworu mocznika  $CO(NH_2)_2$  lub wody amoniakalnej  $NH_4OH$ . Opisano zagadnienia związane z zastosowaniem tej metody w kotłach z cyrkulacyjną warstwą fluidalną, dotyczące temperatury reakcji, czasu ekspozycji reagentów, lokalizacji punktów wtrysku mocznika, aerodynamiki warstwy fluidalnej i koncentracji tlenu w komorze paleniskowej. W części przeglądu literatury, zatytułowanej „Rozwiązania techniczne w kotle fluidalnym” zreferowano też publikacje dotyczące badań eksperymentalnych, modelowania i symulacji numerycznych reakcji chemicznych i dynamiki płynów w warstwie fluidalnej.

Cel, zakres i tezy pracy podano w **rozdziale 3**. Celem pracy został sformułowany jako „opracowanie [i zastosowanie] algorytmu eksperymentalnej minimalizacji emisji tlenków azotu  $NO_x$  z cyrkulacyjnej warstwy fluidalnej w kotle opalanym węglem brunatnym dokonywanej metodą SNCR”. Teza pracy głosi, że „Sterownie dystrybucją przestrzenną mocznika i warunkami przepływowymi w kotle umożliwia minimalizację emisji tlenków azotu  $NO_x$  z kotła energetycznego”.

**Rozdział 4** nosi tytuł „Część eksperymentalna” i liczy 56 stron. Zawiera opis obiektu badań, czyli trzech kotłów z cyrkulacyjną warstwą fluidalną typu OE700, a także zainstalowanych na nich instalacji do redukcji emisji  $NO_x$  metodą SNCR przy pomocy roztworu mocznika. Bloki energetyczne z badanymi kotłami OE700 posiadają system automatycznej regulacji (DCS), który jest wyposażony w system pomiarowy, pozwalający na ciągły monitoring i zapis (co 30 s) parametrów pracy kotłów łącznie z układem SNCR. Przebiegi czasowe około 190 parametrów pochodzące z tego systemu pomiarowego zostały wykorzystane w badaniach prezentowanych w rozprawie doktorskiej. W celu minimalizacji emisji tlenków azotu poddano analizie m.in. wpływ układów automatycznej regulacji bloku, regulacji rozdziału powietrza w kotle, wpływ współczynnika nadmiaru tlenu, strumienia masy powietrza, temperatury w komorze paleniskowej, a także wpływ strumienia CaO (stosowanego do odsiarczenia spalin). W rozdziale 4 opisano także wybór położenia wtryskiwaczy roztworu mocznika, a także dobór dysz wtryskowych i parametrów pracy układu SNCR, tzn. strumienia masy, stężenia i ciśnienia roztworu mocznika.

Wyniki badań eksperymentalnych opisano w kolejnym, **5. rozdziale** (29 stron). Przedstawiono tutaj analizę wpływu mocy elektrycznej bloku i strumienia masy kamienia wapiennego na poziom emisji tlenków azotu. Rozdział 5 zawiera również część teoretyczną, w której zawarto modele i obliczenia prowadzące do wyznaczenia liczb kryterialnych (podobieństwa) Reynoldsa, Archimedesesa i Froude’a dla cyrkulacyjnej warstwy fluidalnej w badanych kotłach OE700. Podano również związki (korelacje) wyrażające współczynnik oporu aerodynamicznego, liczbę Archmedesa i Froude’a jako funkcje liczby Reynoldsa. Na zakończenie tego rozdziału podano wyniki analizy wzajemnej korelacji pomiędzy

poziomem emisji tlenków azotu a około 190 innymi mierzonymi parametrami pracy kotła. Wynikiem tej analizy są wartości współczynnika korelacji liniowej Pearsona pomiędzy rozkładami czasowymi dwóch parametrów, z których jednym zawsze była zawartość  $\text{NO}_x$  w spalinach.

**Rozdział 6** przedstawia główny wynik badań, jakim jest wykazanie, że dla kotła OE700 jest możliwe zmniejszenie zawartości tlenków azotu w spalinach z około  $200 \text{ mg/m}^3$  do  $150 \text{ mg/m}^3$  w zakresie od 100 do 40 % maksymalnej wydajności trwałej. Tutaj porównano też wyniki autorskiego systemu redukcji  $\text{NO}_x$  pracującego na kotłach nr 4, 5, 6 z innym rozwiązaniem, wdrożonym na kotłach 1, 2, 3 w tej samej elektrowni, dowodząc przewagę konstrukcji opracowanej i zoptymalizowanej przez Autorkę rozprawy doktorskiej.

Rozprawę doktorską kończy **rozdział 7** – podsumowanie i wnioski.

W rozprawie doktorskiej podjęto badania ważnego dla ochrony środowiska zagadnienia, jakim jest ograniczenie emisji tlenków azotu w istniejącym kotle energetycznym z cyrkulacyjnym złożem fluidalnym. Badany problem został rozwiązany z powodzeniem, a wyniki wykonanych prac kotły OE700 zostały zmodernizowane, dzięki czemu stało się możliwe obniżenie zawartości  $\text{NO}_x$  w spalinach do  $150 \text{ mg/m}^3$  nawet przy 40 % obciążenia bloku.

#### **Uwagi merytoryczne**

Wykres na rys. 1.5 (str. 19), ilustrujący działanie regulatora neuronowego jest słabo czytelny, a liczby przy pionowej osi współrzędnych są zupełnie nieczytelne. Wykres zaczyna się od godz. 13<sup>25</sup>, więc nie widać fragmentu, o którym mowa w tekście, że „sztuczna sieć neuronowa (SSN) była włączona około 12<sup>45</sup>. Po 20 minutach emisja tlenków azotu  $\text{NO}_x$  spada do  $530 \text{ mg/m}^3_{\text{usr.}}$ ”

Na rysunkach 2.6 i 2.7 pojawiają się krzywe przedstawiające sprawność redukcji  $\text{NO}_x$  w funkcji temperatury dzięki reakcji z amoniakiem. Jednak na rys. 2.6 maksimum tej sprawności wynosi ok. 45 % przy  $850 \text{ }^\circ\text{C}$ , a na rys. 2.7 jest to ok. 90 % przy  $990 \text{ }^\circ\text{C}$ . Skąd ta różnica? Źródłem wykresów na rys. 2.6 i 2.7 jest praca [63], jednak przebiegi krzywych widoczne na tych rysunkach są wyraźnie inne, niż w oryginale.

Tabela 4-2 „Analiza elementarna i techniczna węgla brunatnego” (str. 53) nie jest skomentowana w tekście rozprawy.

Reakcje 4.10 i 4.11 (str. 78) są zapisane nieprawidłowo. Produkty nie odpowiadają substratom. Jeśli zamiarem doktorantki było pokazanie produktów w postaci  $\text{NO}$  i  $\text{N}_2$ , to właściwszy byłby opis w formie pełnych zdań. W rzeczywistości w obecności  $\text{CaO}$  zachodzi wiele reakcji prowadzących do powstania  $\text{NO}$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  i  $\text{N}_2\text{O}$ .

W zapisie reakcji 4.12 (str. 79) nie zachowano stechiometrii.

W trakcie optymalizacji pracy instalacji SNCR na kotle nr 5, najpierw zbadano efekty działania 32 wtryskiwaczy mocznika w separatorach, po czym ich liczbę zmniejszono do 8 (str. 54). Nie uzyskano

jednak obniżenia emisji  $\text{NO}_x$  poniżej  $190 \text{ mg/m}^3_{\text{usr}}$  (str. 88), więc dodano 4 wtryskiwacze na ścianach komory paleniskowej (str. 90–91). Po tej modyfikacji zawartość  $\text{NO}_x$  w spalinach spadła do  $150 \text{ mg/m}^3_{\text{usr}}$  (str. 104). Czy rozważano dalsze zmniejszenie liczby wtryskiwaczy w separatorach lub ich całkowite usunięcie, a w zamian montaż większej liczby wtryskiwaczy w komorze paleniskowej? W komorze panuje wyższa temperatura niż w separatorach, co tworzy bardziej sprzyjające warunki dla przebiegu reakcji redukcji tlenków azotu.

Na stronie 66 opisano zmiany wprowadzone w nastawach systemu DCS. Na jakiej podstawie wybrano nowe wartości dla wymienionych tam dolnych limitów natężenia przepływu powietrza, granic zakresu działania korektora zawartości tlenu i punktów na charakterystyce procentowych ilości powietrza pierwotnego i wtórnego?

We wzorze (4.19) (str. 96) powinna występować funkcja tangens, a nie kotangens.

Na rys. 4.46 (str. 101) przedstawiono wykresy stężenia mocznika i ciśnienia w instalacji SNCR. Wydaje się, że skale na osiach pionowych są błędne. Stężenie roztworu mocznika waha się w pobliżu 60 %. Jak to jest możliwe, skoro pierwotne stężenie mocznika, przed rozcieńczeniem wodą, wynosi tylko 40 %? Dlaczego ciśnienie na wykresie ma wartości ujemne, a przebieg ciśnienia pokazany na wykresie przyjmuje wartości pomiędzy -1.5 a -5 MPa?

W układzie automatycznej regulacji (UAR) systemu SNCR zaimplementowano utrzymywanie stałego ciśnienia roboczego roztworu mocznika przy zmiennym stężeniu tego roztworu (str. 103). Stwierdzono, że strumień objętości 40-procentowego mocznika wyniósł średnio  $7.59 \text{ l/min}$ . Jaki był strumień wody zdemineralizowanej zużyty do rozcieńczania mocznika. Czy utrzymywanie stałego ciśnienia roboczego nie spowodowało zwiększenia ilości wody wtryskiwanej do komory paleniskowej?

Rysunek 4.48 (str. 104) ma przedstawiać pracę bloku w zakresie obciążeń 40–80 % WMT, jednak strumień pary świeżej jest w pokazanym przedziale czasu prawie stały, na poziomie  $100 \text{ kg/s}$ , i tylko na krótko wzrasta do  $150 \text{ kg/s}$ . Czy wykres ten nie jest błędny? Pokazane przebiegi są identyczne jak na rys. 4.9 (str. 63), gdzie ilustrują problemy z utrzymaniem zadanej zawartości tlenu w spalinach.

Przy dyskusji wyników przedstawionych na wykresach często jest mowa o ich zależności od procentów wydajności maksymalnej trwałej (WMT), jednak ten parametr na wykresie bezpośrednio nie występuje. Zamiast tego jest strumień pary świeżej lub moc elektryczna. Byłoby ułatwieniem dla czytelnika, gdyby w rozprawie znalazło się powiązanie WMT z wartościami strumienia pary i mocy elektrycznej.

Definicja liczby Reynoldsa, podana na str. 111 poniżej równania (5.9) jest błędna. W rzeczywistości podana zależność określa odwrotność tej liczby.

W równaniu, z którego wyznaczono minimalną prędkość fluidyzacji (str. 118) jest błąd: liczba Reynoldsa w drugim składniku po lewej stronie nie powinna być podniesiona do kwadratu.

Na stronie 119 brakuje wyjaśnienia, dlaczego przyjęto, że minimalna prędkość warstwy fluidalnej wynosi 2.52 m/s, a maksymalna 5.01 m/s.

Na stronach 121–123 podano zależności na współczynniki oporu  $C_d$  (5.14) i  $C_D$  (5.16) oraz liczby podobieństwa Archimedes’a (5.15) i Froude’a (5.17, 5.18), jako funkcje liczby Reynoldsa. W jaki sposób te zależności uzyskano i w jakim celu?

Na początku rozdz. 5.3 (str. 123) podano, że: „Rys. 5.19 przedstawia wynik badania przy liniowym wzroście obciążenia z 181 MW<sub>e</sub> do 261 MW<sub>e</sub>. Stężenie tlenu w spalinach spadło z 7,3% do 2,1%.” Na wykresie z rys. 5.19 nie ma rozkładu obciążenia, nie widać też spadku zawartości tlenu w podanym zakresie wartości.

Jakie jest zastosowanie dla korelacji między mocą elektryczną a stężeniem tlenu (5.20) oraz między emisją tlenków azotu a stężeniem tlenu (5.22), podanych na stronie 123. Dlaczego wyznaczono korelacje wymiarowe, których wynik zależy od przyjętych jednostek miary? Podobne pytania można zadać dla korelacji między stężeniem dwutlenku siarki a tlenem, podanej na str. 126.

Czym kierowano się przy doborze sygnałów do korelacji wpływu strumienia CaO, opisanych w rozdziale 5.4.1 (str. 124–125)? Na marginesie, etykieta lewej osi pionowej na rys. 5.21 jest błędna.

Współczynnik korelacji Pearsona przyjmuje wartości z przedziału domkniętego  $[-1,+1]$ , tymczasem najwyższy słupek na rys. 5.35 ma wartość wyraźnie większą od 1 (str. 132). Dlaczego? Co oznacza czerwona krzywa na tym i na następnym rysunku? Na marginesie, etykiety osi pionowej są praktycznie nieczytelne, zwłaszcza na rys. 5.36.

Stwierdzenie, że „punkty byłyby usytuowane wzdłuż linii prostej pod kątem 45°” (str. 133-134) jest nieprecyzyjne, bo kąt takiej linii zależy od skalowania rysunku. W jaki sposób wyznaczono przebieg ukośnych linii prostych na wykresach z rys. 5.37 i co one mają oznaczać?

W rozdziale 6 (str. 136) podano, że „Rys. 6.1 przedstawia dane z eksperymentu prowadzonego przez 10 000 minut.” Tymczasem na wykresie z tego rysunku widać przedział czasu trwający 84 godziny, czyli 5040 minut. Nie ma więc też na nim wspomnianych dalej fragmentów trwających 7500 i 2500 minut. Podano też, że jest na nim fragment, który „pokazuje pracę bloku z zadaną wartością tlenków NO<sub>x</sub> w spalinach 200 mg/m<sup>3</sup><sub>usr</sub>” oraz „że osiągnięto zadaną wartość [...] 150 mg/m<sup>3</sup><sub>usr</sub>”. Na wykresie widać długi okres czasu z zawartością tlenków azotu na średnim poziomie ok. 270 mg/m<sup>3</sup><sub>usr</sub>, który później faktycznie spada do 150 mg/m<sup>3</sup><sub>usr</sub>. Czy wartość 200 mg/m<sup>3</sup><sub>usr</sub> jest poprawna, ale układ sterujący pracą kotła nie był w stanie obniżyć emisji z 270 do 200 mg/m<sup>3</sup><sub>usr</sub>?

#### **Uwagi redakcyjne**

– Niekonsekwencja w stosowaniu oznaczeń wielkości fizycznych. Używane są cztery symbole dla prędkości:  $u$ ,  $U$ ,  $v$ ,  $V$ . Ponadto, wielka litera  $V$  na str. 115 jest oznaczeniem objętościowego natężenia przepływu, a symbol  $V_0$  najpierw oznacza zapotrzebowanie powietrza do spalania jednostki masy



węgla, a potem objętościowe natężenie przepływu powietrza. Z kolei w tabeli 4-4 (str. 66) zarówno masowe, jak i objętościowe natężenie przepływu oznaczono literą F. Natomiast na str. 93 jako symbol objętościowego natężenia przepływu użyto litery Q, która wg spisu oznaczeń ma określać moc cieplną. Do oznaczenia ciśnienia używana jest wielka litera P (str. 93), zarezerwowana w tym spisie dla mocy elektrycznej. Do oznaczenia lepkości dynamicznej używane są dwa symbole:  $\mu$  (str. 64, 65) i  $\eta$  (str. 65, 111, 117–119). Ten drugi symbol na wykresie 4.13 (str. 68) oznacza też sprawność kotła. Dla kąta rozpylania są używane dwa oznaczenia:  $\alpha_d$  i TSA (str. 96). Normalny metr sześcienny jest zapisywany w skrócie na dwa sposoby, jako  $\text{Nm}^3$ ,  $\text{m}_N^3$ .

– Dla ciśnienia są używane jednostki miary spoza obowiązującego w Polsce układu SI, takie jak tor (str. 23), atmosfera fizyczna (atm, str. 23), metry  $\text{H}_2\text{O}$  (mH<sub>2</sub>O, rys. 4.45 na str. 101), milimetry  $\text{H}_2\text{O}$  (rys. 5.13), kilogram siły na metr kwadratowy ( $\text{kg-wt/m}^2$ , rys. 5.13). Dla energii pojawia się też kaloria (str. 29, 30).

– Rozmiar czcionki na wielu wykresach jest bardzo mały, przez co etykiety i teksty są nieczytelne.

– W tekście pojawiają się odwołania do rozdziałów lub podrozdziałów o numerze 0 (str. 54, 140, 141).

– W opisie prawej osi pionowej wykresu na rys. 4.44 (str. 100) pojawia się „ciśnienie mocznika” zamiast „strumień objętości mocznika”. Natomiast na rys. 4.51 (str. 105) w opisie osi jest ciśnienie zamiast stężenia mocznika.

– Na stronie 117 liczba Reynoldsa względem średnicy D jest błędnie oznaczona jako  $\text{Re}_d$  (zamiast  $\text{Re}_D$ ). Podobny błąd pojawia się przy oznaczeniu współczynnika oporu  $C_d$ .

– Na rysunkach 5.16 i 5.17 (str. 122) opisy osi wykresu nie są zgodne z podpisem rysunku.

– W opisie do rys. 5.34 (str. 131) napisano, że „Dotychczasowa praktyka była taka, że w układzie utrzymywano tylko stałe ciśnienie mocznika.” Powinno raczej być „stałe stężenie mocznika”, zgodnie z opisem wprowadzonych modyfikacji podanych na str. 103.

– Brak jednolitego formatu dla danych bibliograficznych cytowanych publikacji. W wykazie literatury dla niektórych z nich podano tytuł, dla innych go pominięto. Około 20 publikacji pojawia się w wykazie dwa lub trzy razy.

### **Ogólna ocena pracy**

W mojej ocenie zakres prac badawczych oraz uzyskane przez doktorantkę wyniki spełniają wymogi stawiane rozprawom doktorskim. Przedmiotowa rozprawa niewątpliwie stanowi oryginalne rozwiązanie problemu badawczego. Dodatkowo unikalny zakres prowadzonych badań, ich skala oraz oddziaływanie na praktykę przemysłową, w mojej ocenie uprawniają wniosek o wyróżnienie rozprawy. Rozprawa obejmuje ważne zagadnienia ograniczenia emisji tlenków azotu. Prowadzone prace badawcze doprowadziły do uzyskania oczekiwanych przez autorkę rezultatów, czyli przede wszystkim

obniżenia poziomu emisji tlenków azotu z kotłów OE700 do poziomu 150 mg/um<sup>3</sup> oraz uzyskania eksperymentalnego potwierdzenia możliwości pracy systemu ograniczania emisji tlenków azotu dla temperatur wynoszących 750 °C (zamiast dotychczasowych 870 °C). Szczegółowe uwagi krytyczne zostały przedstawione powyżej, natomiast nie wpływają one na wysoką ocenę merytoryczną pracy i stanowią one krytyczny głos w dyskursie naukowym. Elementem wpływającym na pewne odczucie niedosytu jest „bardzo praktyczne”, niesformalizowane podejście do zagadnienia określanego przez autorkę jako optymalizacja (problem optymalizacyjny). W mojej ocenie użycie takich sformułowań powinno powodować zastosowanie pewnego formalizmu z nimi związanego chociażby określenia kryteriów optymalizacyjnych, zmiennych decyzyjnych, zależności kryteriów od zmiennych decyzyjnych i innych procedur i wielkości z procesem optymalizacji związanych.

Niewątpliwie istotnym wkładem doktorantki jest pokazanie wpływu poszczególnych elementów sterowania kotłem i samego procesu spalania na pracę systemu zmniejszenia emisji tlenków azotu. Pokazuje to ogromne doświadczenie i niewątpliwie głęboką praktyczną znajomość badanego procesu. W mojej ocenie wpisuje się to w ideę doktoratów realizowanych przez osoby związane z przemysłem. Tematyka rozprawy mieści się w dyscyplinie inżynieria środowiska, górnictwo i energetyka.

Podsumowując, w mojej ocenie przedstawiona rozprawa **doktorska spełnia wymagania ustawowe i wnioskuję o jej dopuszczenie do publicznej obrony.**

#### **Wniosek o wyróżnienie rozprawy**

Biorąc pod uwagę zakres prac eksperymentalnych prowadzonych przez doktorantkę, unikalny charakter otrzymanych wyników oraz niezaprzeczalną wiedzę i praktyczne doświadczenie doktorantki stawiam wniosek o wyróżnienie rozprawy. W mojej ocenie rozprawa doktorska mgr inż. J. Ziąki stanowi przykład dobrze przygotowanej rozprawy o charakterze wdrożeniowym, wnoszącej znaczący wkład do rozwiązania zadania badawczego o dużym znaczeniu praktycznym.

