

Diss. ETH No. 17703

**DYNAMIC MODELING OF
AUTO-THERMAL GASOLINE
FUEL PROCESSORS**

A dissertation submitted to
ETH ZURICH

for the degree of
Doctor of Sciences

presented by

THOMAS RAINER BÖHME

Dipl.-Ing. University of Stuttgart, Germany
M.Sc. University of Wisconsin-Madison, WI, U.S.A.

born August, 24th 1974

citizen of Germany

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Lino Guzzella, examiner
Prof. Dr.-Ing. Gerhart Eigenberger, co-examiner

2008

Zusammenfassung

Die Kraftstoffreformierung zur Erzeugung von Wasserstoff aus Kohlenwasserstoffen hat erhebliches Interesse hervorgerufen. Dabei kann der Wasserstoff entweder als Treibstoff für Brennstoffzellen genutzt werden oder dem herkömmlichen Verbrennungsmotor zugeführt werden, um die Verbrennung zu verbessern. Bei beiden Anwendungen ist ein schnelles Nachführen der gewünschten Wasserstoffproduktion notwendig. Ein dynamisches Prozessmodell ist dabei ein nützliches Werkzeug für die Auslegung und Optimierung von Reformiersystemen, sowie für die Synthese geeigneter Regelverfahren. In der vorliegenden Arbeit wird ein dynamisches Modell eines autothermen Benzinreformers präsentiert. Das Modell ist auf der Grundlage von dynamischen Messungen entwickelt worden, die an einem Prüfstand, der speziell für dieses Projekt gebaut wurde, durchgeführt wurden. Der Prüfstand, wie auch das Messverfahren, werden in dieser Arbeit behandelt.

Das mathematische Modell des Benzinreformers basiert auf einem vereinfachten, eindimensionalen Kanalmodell. Die Massen- und Energiebilanzen sind als partielle Differentialgleichungen formuliert, die durch Wärme- und Stoffaustauschsterme gekoppelt sind. Das chemische Reaktionsnetzwerk wurde empirisch auf Basis eines vereinfachten Oberflächenreaktionsmodells entwickelt. Es besteht aus elf Gleichgewichtsreaktionen, wobei Benzin zu einer einzelnen Spezies zusammengefasst wird.

Die resultierenden Modellgleichungen werden mittels eines Programmcodegenerators implementiert, der als Teil dieser Arbeit entwickelt wurde. Ausgehend von einfachen xml-Konfigurationsfiles, die das Reaktionsschema beschreiben, werden FORTRAN Routinen für die Verwendung mit dem partiellen Differentialgleichungslöser BACOL von Wang *et al.* erzeugt. Daneben erlaubt der Codegenerator auch die automatische Erzeugung von Langmuir-Hinshelwood Globalkinetiken basierend auf einer Quasigleichgewichtsannahme. Der sich ergebende Programmcode erlaubt ein robustes und effizientes Lösen der komplexen Modellgleichungen.

Unbekannte oder unsichere Modellparameter werden aus dynamischen Mes-

sungen mittels eines Optimierungsverfahrens geschätzt. Das Verfahren und einige Aspekte der Transformation des Parameterraumes zur Reduktion von Parameterkoppelungen werden diskutiert.

Das vorgestellte Modell zeigt eine gute Übereinstimmung mit Messungen. Alle relevanten dynamischen Phänomene werden korrekt wiedergegeben. Dies wird anhand von Vergleichen der vorhergesagten Gasströme und Temperaturen für mehrere Messungen demonstriert.

Zuletzt wird, ausgehend von Simulationsergebnissen des Modells, eine einfache stationäre Betriebsstrategie vorgeschlagen. Es wird gezeigt, dass diese einfache Strategie bei dynamischem Betrieb zu einer akzeptablen Nachführung des gewünschten Wasserstoffbedarf führt. Jedoch kommt es bei schneller Erhöhung des Wasserstoffbedarfs zu einem unerwünschten Durchbruch von nicht umgesetzten Benzin.

Abstract

Fuel processors for hydrogen production from hydrocarbon-based fuels have attracted significant attention, both for producing hydrogen for fuel cells as well as for addition of hydrogen-rich gas to internal combustion engines. Both applications require a fast tracking of a given hydrogen demand. For the design and optimization of fuel processor systems and the synthesis of suitable control strategies, a dynamic process model presents a useful tool.

In this thesis, a dynamic model of an auto-thermal gasoline fuel processor is presented. The model is developed based on dynamic measurements that are obtained on a dynamic gasoline fuel processor test bench, built as part of this project. The measurement setup as well as the measurement procedure are discussed.

The mathematical model is based on a simplified one-dimensional single-channel model. Mass and energy balances are formulated as partial differential equations coupled by mass respectively heat exchange terms. The chemical reaction network is empirically determined based on a simplified surface reaction network and consists of a total of eleven reversible reactions. Here, gasoline is treated as a single species.

The resulting model equations are implemented using a code-generator-based software framework that was developed within this project. Given simple xml-files specifying the reaction network, this program generates FORTRAN code for the use with the partial differential equation solver BACOL by Wang *et al.* In addition, the code generator has an option to automatically generate Langmuir-Hinshelwood global reaction rates using a quasi-equilibrium assumption. The resulting numerical code allows for a robust and efficient solving of the complex model equations.

Unknown or uncertain model parameters are estimated from dynamic measurements by an optimization procedure. The procedure and some aspects of transformation of parameter space to reduce parameter correlations are discussed.

The resulting model shows a very good agreement with measurements. All

relevant dynamic phenomena observed in the measurements are accurately reflected in the model. This is demonstrated by comparison of predicted gas flows as well as temperatures with a set of validation measurements.

Finally, based on simulation results of the model, a simple steady-state operating strategy for the fuel processor is proposed. It is shown that using this simple strategy for dynamic operation results in a reasonable hydrogen demand tracking. However, during fast hydrogen demand increase, the simple strategy will result in some undesired gasoline slip.