REFORMING OF NATURAL GAS USING AN ALTERNATING CURRENT GLIDING ARC SYSTEM

Nongnuch Rueangjitt

A Dissertation Submitted in Partial Fulfilment of the Requirements
for the Degree of Doctor of Philosophy
The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
in Academic Partnership with
The University of Michigan, The University of Oklahoma,
and Case Western Reserve University
2008

Thesis Title: Reforming of Natural Gas Using an Alternating Current Gliding Arc System

By: Nongnuch Rueangjitt

Program: Petrochemical Technology

Thesis Advisors: Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej

Assoc. Prof. Hidetoshi Sekiguchi

Accepted by the Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University, in partial fulfilment of the requirements for the Degree of Doctor of Philosophy.

Nantaya Yanumet .... College Director

(Assoc. Prof. Nantaya Yanumet)

Thesis Committee:

....

(Prof. Somchai Osuwan)

....

(Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej)

....

(Assoc. Prof. Hidetoshi Sekiguchi)

....

(Dr. Thammanoon Sreethawong)

Pichet Limsuwan ....

(Assoc. Prof. Pichet Limsuwan)

บทคัดย่อ

นงค์นุช เรืองจิตต์ : การเปลี่ยนรูปของก๊าซธรรมชาติโดยใช้ระบบประกายไฟฟ้าร่อนแบบกระแสสลับ (Reforming of Natural Gas Using an Alternating Current Gliding Arc System) อ. ที่ปรึกษา : รศ. ดร. สุเมธ ชวเดช และ รศ. ดร. ฮิเดโตชิ เซคิกุจิ 126 หน้า

ในงานวิจัยนี้ การเปลี่ยนรูปของก๊าซธรรมชาติได้ถูกดำเนินการโดยใช้ระบบประกายไฟฟ้าร่อนแบบกระแสสลับ ภายใต้สภาวะบรรยากาศ โดยได้มีการศึกษาผลกระทบต่าง ๆ ได้แก่ องค์ประกอบของก๊าซไฮโดรคาร์บอนอื่น ๆ และก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ ที่มีอยู่ในก๊าซธรรมชาติ, ปัจจัยที่เกี่ยวข้องกับกระบวนการ และการเติมก๊าซออกซิเจน โดยพบว่า ก๊าซอีเทน, ก๊าซโพรเพน และก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ที่มีอยู่ในก๊าซธรรมชาติมีส่วนในการช่วยเพิ่มประสิทธิภาพการเกิดปฏิกิริยาโดยรวมอย่างเด่นชัด โดยเฉพาะอย่างยิ่งก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ซึ่งมีคุณสมบัติในการเป็นก๊าซออกซิเดทีฟ ซึ่งแสดงผลเพิ่มอย่างชัดเจนต่อการเพิ่มค่าการเปลี่ยนแปลงก๊าซไฮโดรคาร์บอนทั้งหมดในก๊าซตั้งต้น โดยลดการเกิดโค้ก และลดพลังงานจำเพาะที่ต้องการ ผลของการทดลองแสดงให้เห็นว่า ทั้งความต่างศักย์ไฟฟ้าและความถี่กระแสไฟฟ้า ไม่เพียงแต่มีอิทธิพลเป็นอย่างมากต่อความเสถียรของพลาสมาเท่านั้น ยังมีผลต่อการการกระตุ้นปฏิกิริยาของก๊าซธรรมชาติที่มีองค์ประกอบก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์สูงด้วย ยิ่งไปกว่านั้นงานวิจัยนี้ได้ทำการทดลองผลของก๊าซออกซิเจนที่เติมในสารตั้งต้นด้วย โดยใช้ก๊าซออกซิเจนบริสุทธิ์หรืออากาศเป็นแหล่งออกซิเจนสำหรับปฏิกิริยาออกซิเดชั่นบางส่วน โดยสปีชี่ส์ออกซิเจนหรือสารว่องไวที่ก่อกำเนิดจากก๊าซออกซิเจนที่เติมในก๊าซธรรมชาติ มีบทบาทที่สำคัญในการช่วยลดการเกิดโค้กได้เป็นอย่างมาก นอกจากนี้ยังช่วยเพิ่มค่าการเปลี่ยนแปลงของก๊าซต่าง ๆ ในสารตั้งต้น ค่าผลผลิตของผลิตภัณฑ์และค่าการเลือกสรรในการเกิดผลิตภัณฑ์ รวมทั้งยังช่วยลดความต้องการพลังงานจำเพาะของระบบอีกด้วย โดยอากาศได้ถูกเลือกให้เป็นแหล่งออกซิเจนที่เหมาะสมสำหรับปฏิกิริยาเปลี่ยนรูปก๊าซธรรมชาติกับปฏิกิริยาออกซิเดชั่นบางส่วนนี้

แนวคิดใหม่ในการนำเทคโนโลยีของประกายไฟฟ้าร่อนอุณหภูมิต่ำร่วมกับเครื่องปฏิกรณ์ขนาดจิ๋ว มีข้อดีอยู่หลายประการด้วยกัน เช่น ปฏิกิริยาเกิดได้ที่อุณหภูมิต่ำ เครื่องปฏิกรณ์มีการถ่ายเทและการกระจายความร้อนที่ดี และเวลาในการเกิดปฏิกิริยาสั้น เป็นต้น ดังนั้นงานวิจัยนี้จึงได้นำแนวคิดนี้มาประยุกต์ใช้กับเครื่องปฏิกรณ์ประกายไฟฟ้าร่อน ซึ่งเครื่องปฏิกรณ์ประกายไฟฟ้าร่อนขนาดจิ๋วได้ถูกออกแบบเป็นครั้งแรกเพื่อใช้ศึกษาปฏิกิริยาเปลี่ยนรูปก๊าซธรรมชาติแทนเครื่องปฏิกรณ์ประกายไฟฟ้าร่อนแบบดั้งเดิม โดยในการศึกษาเบื้องต้นนี้ ก๊าซมีเทนซึ่งเป็น

องค์ประกอบหลักของก๊าซธรรมชาติได้ถูกใช้แทนก๊าซธรรมชาติ ทั้งนี้เพื่อลดความซับซ้อนของสารตั้งต้น ปฏิกิริยาเปลี่ยนรูปก๊าซมีเทนนี้ได้ถูกดำเนินการทดลองในเครื่องปฏิกรณ์ประกายไฟฟ้าร่อนขนาดจิ๋ว ทั้งในกรณีมีและไม่มีตัวเร่งปฏิกิริยา โดยในระบบที่ใช้ประกายไฟฟ้าร่อนอย่างเดียวนั้น ปัจจัยต่าง ๆ ของกระบวนการมีผลกระทบต่อการเปลี่ยนแปลงก๊าซมีเทนและการเลือกสรรการเกิดผลิตภัณฑ์ ส่วนในระบบที่ใช้ประกายไฟฟ้าร่อนกับตัวเร่งปฏิกิริยาพบว่า การกระจายตัวของอุณหภูมิภายในเครื่องปฏิกรณ์ประกายไฟฟ้าร่อนขนาดจิ๋วมีบทบาทเป็นอย่างมากในการปรับปรุงประสิทธิภาพโดยรวมของปฏิกิริยา

ABSTRACT

4791003063: Petrochemical Technology
Nongnuch Rueangjitt: Reforming of Natural Gas Using an Alternating Current Gliding Arc System.
Thesis Advisors: Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej and Assoc. Prof. Hidetoshi Sekiguchi 126 pp.
Keywords: Plasma/ Gliding arc discharge/ Applied voltage/ Input frequency/ Natural gas/ Methane reforming / CO_2 reforming of methane/ Partial oxidation/ Plasma-catalytic reaction/ Microreactor/ Ni catalyst

In this work, the reforming of simulated natural gas was conducted under the alternating current gliding arc system at ambient conditions. The effects of all gaseous hydrocarbons and CO_2 present in the natural gas, process parameters, and O_2 added were investigated. The presence of other gas components (C_2H_6, C_3H_8 and CO_2) in natural gas was found to contribute prominently to the synergistic effects on the overall plasma reaction performance. Especially, CO_2, an oxidative gas, exhibited pronounced effects by enhancing the conversions of all hydrocarbons in the feed, by reducing coke formation, and by lowering specific energy consumption. The results showed that not only did the effects of applied voltage and input frequency strongly influence the stability of the gliding arc discharge, they affect the chemical activation of simulated CO_2-containing natural gas reforming as well. Furthermore, the effect of added oxygen in the feed was tested with using pure oxygen or air as an oxygen source for partial oxidation. The oxygen species derived from the addition of oxygen to the simulated natural gas play an active role in significantly minimizing carbon formation; moreover, they provided improvement in the reactant conversions, product yields, and product selectivities, as well as the decrease in specific energy consumption. Air was best suited for use as the oxygen source in the combined CO_2-containing natural gas reforming and partial oxidation.

The innovative concept of integrating non-thermal plasma and microreactor technology offers several advantages, e.g. low reaction temperature, good heat transfer and heat distribution, and short reaction time. Based on this concept, the gliding arc microreactor was first designed to investigate the reforming reaction of natural gas instead of using the conventional gliding arc reactor. For this preliminarily study, methane, a major constituent of natural gas, was used instead of the simulated natural gas in order to reduce the complexity of feed composition. The reforming of methane was conducted under the gliding arc microreactor, with and without catalyst. In the sole plasma system, all operational parameters affected both methane conversion and product selectivities. In the plasma and catalytic system, the temperature distribution within the plasma microreactor has a significant role in improving the reaction performance.

ACKNOWLEDGEMENTS

This work cannot be successful without the participation of the following individuals and organizations.

First of all, I would like to express my sincere gratitude to my thesis advisors, Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej and Assoc. Prof. Hidetoshi Sekiguchi, for all of their direction, valuable guidance and assistance throughout my research. Assoc. Prof. Sumaeth Chavadej has encouraged my interest in plasma research. With his considerable enthusiasm and support, this work was finally completed. Assoc. Prof. Hidetoshi Sekiguchi has made me to learn more about the technical knowledge of plasma devices while I was conducting my work at Tokyo Institute of Technology (TIT) and he always taught me to realize the originality of research. I was indebted unforgettably to him for giving me a great opportunity to visit his plasma lab at TIT.

I would also like to specially thank Dr. Thammanoon Sreethawong, for all helpfulness, fruitful suggestions, and discussions. I would like to express my deep gratitude to Mr. Robert Wright for his valuable advices in writing papers and thesis. Moreover, I would like to express my deepest thank to Ms. Kanittha Hiriwiriyakul, a kind-hearted staff of Chiang Mai University, who always support me to arrange all official documents with unconditional assistance.

I would like to gratefully acknowledge the Department of Industrial Chemistry, Faculty of Science, Chiangmai University through the Commission on Higher Education under the Ministry of Education, Thailand in granting the scholarship of Master-Doctoral study to me.

It is a pleasure to acknowledge the Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University, the Department of Chemical Engineering, Tokyo Institute of Technology, the National Research Council of Thailand (NRCT), the National Center of Excellence for Petroleum, Petrochemicals, and Advanced Materials, and the Research Unit of Petrochemical and Environmental Catalysis under the Ratchadapisek Somphot Endowment Fund, Chulalongkorn University, Thailand, for providing research facilities.

I would like to give special thanks to Prof. Somchai Osuwan and Assoc. Prof. Pichet Limsuwan for their kindness being as a chairman and a thesis committee, respectively, and giving me the valuable comments and recommendations.

I also especially extend many thanks to Jung san, Tatsuro (my tutor), Sho, and everyone in Prof. Sekiguchi's plasma group as well as Thai friends for their kindness and help during my stay in Tokyo. At PPC, I would like to sincerely thank C.P.O. Poon Arjpru, Mr. Sanit Prinakorn, Mr. Chaturong Tiamsiri, and Mr. Udom Pordee for helping to make all electrical and mechanical pieceworks.

Last but not least, the great thankfulness is forwarded to my parents, my elder sister, and Ms. Supaporn Suparpwiboon for their encouragement, strong belief, and understanding in me.

TABLE OF CONTENTS

CHAPTER PAGE

CHAPTER PAGE

LIST OF TABLES

TABLE		PAGE

TABLE **PAGE**

TABLE **PAGE**

LIST OF FIGURES

FIGURE **PAGE**

CHAPTER II

CHAPTER III

CHAPTER IV

FIGURE **PAGE**

CHAPTER V

FIGURE **PAGE**