

**COMBINED STEAM REFORMING AND PARTIAL OXIDATION OF
CO₂-CONTAINING NATURAL GAS IN AN AC GLIDING ARC
DISCHARGE SYSTEM**



Attaphol Jindanin

**A Thesis Submitted in Partial Fulfilment of the Requirements
for the Degree of Master of Science
The Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn University
in Academic Partnership with
The University of Michigan, The University of Oklahoma,
Case Western Reserve University and Institut Français du Pétrole
2011**


T28345154

Thesis Title: Combined Steam Reforming and Partial Oxidation of
CO₂-Containing Natural Gas in an AC Gliding Arc
Discharge System
By: Atthaphol Jindanin
Program: Petroleum Technology
Thesis Advisors: Asst. Prof. Thammanoon Sreethawong
Prof. Sumaeth Chavadej

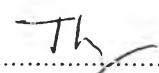
Accepted by the Petroleum and Petrochemical College, Chulalongkorn
University, in partial fulfilment of the requirements for the Degree of Master of
Science.

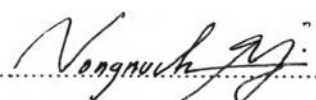

..... College Dean
(Asst. Prof. Pomthong Malakul)

Thesis Committee:


.....
(Asst. Prof. Thammanoon Sreethawong)


.....
(Prof. Sumaeth Chavadej)


.....
(Asst. Prof. Siriporn Jongpatiwut)


.....
(Dr. Nongnuch Rueangjitt)

ABSTRACT

5273001063: Petroleum Technology

Atthaphol Jindanin: Combined Steam Reforming and Partial Oxidation of CO₂-Containing Natural Gas in an AC Gliding Arc Discharge System. 56 pp.

Thesis Advisors: Asst. Prof. Thammanoon Sreethawong and Prof. Sumath Chavadej.

Keywords: Plasma/ Gliding Arc Discharge/ Applied Voltage/ Input Frequency/ Natural Gas/ Methane Reforming/ CO₂ Reforming of Methane/ Partial Oxidation

Conventional catalytic processes for converting CH₄ to synthesis gas require both high temperature and high pressure. Partial oxidation of methane is another way to solve the problems. In this work, a technique of combining steam reforming with partial oxidation of CO₂-containing natural gas in gliding arc discharge plasma was investigated. The effects of several operating parameters, including hydrocarbons (HCs)/O₂ feed molar ratio, applied voltage, input frequency, and electrode gap distance, on reactant conversions, product selectivities and yields, and power consumptions were examined. The results showed an increase in both CH₄ conversion and synthesis gas yield with increasing applied voltage and electrode gap distance, where the opposite trends were observed with increasing HCs/O₂ feed molar ratio and input frequency. The optimum conditions were found at a HCs/O₂ feed molar ratio of 2/1, an applied voltage of 14.5 kV, an input frequency of 300 Hz, and an electrode gap distance of 7 mm, providing high CH₄ and O₂ conversions with high synthesis gas selectivity and very low power consumptions. Under these optimum conditions, the power consumptions were as low as 2.04×10^{-18} Ws (12.72 eV) per molecule of converted reactant and 1.43×10^{-18} Ws (8.93 eV) per molecule of produced hydrogen.

บทคัดย่อ

อรรถพล จินคานิล : การรวมกระบวนการเปลี่ยนรูปด้วยไอน้ำและการออกซิเดชันบางส่วนของก๊าซธรรมชาติที่มีคาร์บอนไดออกไซด์เป็นองค์ประกอบภายใต้ระบบพลาสมาประกายไฟฟาร้อนแบบกระแสสลับ (Combined Steam Reforming and Partial Oxidation of CO₂-Containing Natural Gas in an AC Gliding Arc Discharge System.) อ. ที่ปรึกษา : ผศ.ดร.ธรรมนุญ ศรีทวงษ์ และ ศ. ดร. สุเมธ ชวเดช 56 หน้า

กระบวนการแบบดั้งเดิมสำหรับการเปลี่ยนรูปก๊าซมีเทนให้เป็นก๊าซสังเคราะห์โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยานั้น เป็นกระบวนการที่ต้องใช้ความร้อนและความดันสูง กระบวนการออกซิเดชันบางส่วนของก๊าซมีเทนเป็นอีกทางเลือกหนึ่งที่ถูกนำมาใช้ในการแก้ปัญหา ในงานวิจัยนี้ได้ทำการศึกษาเทคนิคใหม่ของการรวมกระบวนการเปลี่ยนรูปด้วยไอน้ำและการออกซิเดชันบางส่วนของก๊าซธรรมชาติที่มีคาร์บอนไดออกไซด์เป็นองค์ประกอบภายใต้ระบบพลาสมาประกายไฟฟาร้อนแบบกระแสสลับ โดยทำการศึกษาผลกระทบของตัวแปรต่างๆ ได้แก่ อัตราส่วนของสารไฮโดรคาร์บอนต่อออกซิเจนในสารตั้งต้นที่มีไอน้ำเป็นส่วนประกอบ, ค่าความต่างศักย์ไฟฟ้า, ค่าความถี่ไฟฟ้า, และระยะห่างระหว่างขั้วอิเล็กโทรด ที่มีผลกระทบต่อการเปลี่ยนแปลงของสารตั้งต้น, การเลือกเกิดของผลิตภัณฑ์, ค่าผลได้ของผลิตภัณฑ์, และ กำลังไฟฟ้าที่ใช้ จากการศึกษาพบว่า การเปลี่ยนแปลงของสารตั้งต้น และค่าผลได้ของก๊าซสังเคราะห์มีปริมาณเพิ่มมากขึ้น เมื่อมีการเพิ่มค่าความต่างศักย์ไฟฟ้า และเมื่อระยะห่างระหว่างขั้วอิเล็กโทรดเพิ่มมากขึ้น ซึ่งให้ผลตรงข้ามกับการเพิ่มอัตราส่วนของสารไฮโดรคาร์บอนต่อออกซิเจนในสารตั้งต้น และการเพิ่มค่าความถี่ไฟฟ้า โดยสภาวะที่เหมาะสมที่สุดได้แก่ อัตราส่วนโดยโมลของสารไฮโดรคาร์บอนต่อออกซิเจนที่ 2/1, ค่าความต่างศักย์ไฟฟ้าที่ 14.5 กิโลโวลต์, ค่าความถี่ไฟฟ้า 300 เฮิร์ตซ์, และระยะห่างระหว่างขั้วอิเล็กโทรดที่ 7 มิลลิเมตร ซึ่งให้ค่าการเปลี่ยนแปลงของสารตั้งต้น ค่าการเลือกเกิดของผลิตภัณฑ์ และ ค่าผลได้ของผลิตภัณฑ์สูง โดยพบว่าภายใต้สภาวะที่เหมาะสมดังกล่าว กำลังไฟฟ้าที่ใช้ คือ 2.04×10^{-18} วัตต์วินาที (12.72 อิเล็กตรอนโวลต์) ต่อโมเลกุลของสารตั้งต้นที่เปลี่ยนแปลงไป และ 2.57×10^{-18} วัตต์วินาที (8.93 อิเล็กตรอนโวลต์) ต่อโมเลกุลของก๊าซไฮโดรเจนที่ผลิตได้

ACKNOWLEDGEMENTS

This thesis work would have never been possible without the assistance of the following persons and organizations:

First of all, I would like to express my deepest appreciation to Asst. Prof. Thammanoon Sreethawong and Prof. Sumaeth Chavadej, for all of their excellent guidance, useful recommendations, creative comments, intensive attention, and encouragement throughout the course of my work. They have not only taught me about the theoretical knowledge but also made me realize in myself that this research is very challenging. As well, they taught me in the better way of working life and working style.

I would like to express my sincere thank to the National Research Council of Thailand (NRCT) and the National Excellence Center for Petroleum, Petrochemicals, and Advanced Materials under the Ministry of Education, Thailand for providing the financial support for this thesis work.

I deeply appreciate C.P.O. Poon Arjpru, who assisted me to repair the experimental instrument and electrical parts. I would like to thank the Petroleum and Petrochemical College's staffs for their help in many aspects.

Special thanks go to Ms. Krittiya Pormmai for her valuable suggestions throughout this research work.

Finally, I would like to take this opportunity to thank all of my PPC friends for their friendly assistance, cheerfulness, and encouragement. Also, I am greatly indebted to my parents and my family for their support, love, and understanding.

TABLE OF CONTENTS

	PAGE
Title page	i
Abstract (in English)	iii
Abstract (in Thai)	iv
Acknowledgements	v
Table of Contents	vi
List of Tables	ix
List of Figures	x
CHAPTER	
I INTRODUCTION	1
II LITERATURE REVIEW	3
2.1 Natural Gas	3
2.2 Physical and Chemical Properties of Methane	4
2.3 Gaseous Plasmas for Activating Methane Molecules	5
2.3.1 Fundamental Properties of Plasma	5
2.3.2 Generation of Plasmas	6
2.4 Types of Non-Equilibrium Plasmas	8
2.4.1 Glow Discharge	8
2.4.2 Corona Discharge	8
2.4.3 Radio Frequency Discharge (RF Discharge)	9
2.4.4 Microwave Discharge	9
2.4.5 Dielectric Barrier Discharge	9
2.4.6 Gliding Arc Discharge	10
2.5 Related Research Works	11
III EXPERIMENTAL	19
3.1 Materials	19
3.2 Experimental Setup	19

CHAPTER	PAGE
3.2.1 Feed Gas Mixing Section	20
3.2.1.1 Gas Mixing Section	20
3.2.1.2 Steam Generation Section	20
3.2.2 Reactor Section	21
3.2.3 Power Supply Section	21
3.2.4 Analytical Section	22
3.3 Reaction Performance Evaluation	23
3.4 Studied Conditions	24
IV RESULTS AND DISCUSSION	25
4.1 Effect of Hydrocarbons (HCs)/O ₂ Feed Molar Ratio	29
4.1.1 Effect on Reactant Conversions and Product Yields	29
4.1.2 Effect on Product Selectivities and Product Molar ratios	31
4.1.3 Effect on Power Consumptions	31
4.2 Effect of Applied Voltage	36
4.2.1 Effect on Reactant Conversions and Product Yields	36
4.2.2 Effect on Product Selectivities and Product Molar ratios	37
4.2.3 Effect on Power Consumptions	37
4.3 Effect of Input Frequency	41
4.3.1 Effect on Reactant Conversions and Product Yields	41
4.3.2 Effect on Product Selectivities and Product Molar Ratios	42
4.3.3 Effect on Power Consumptions	42
4.4 Effect of Electrode Gap Distance	46
4.4.1 Effect on Reactant Conversions and Product Yields	46
4.4.2 Effect on Product Selectivity and Product Molar ratios	46
4.4.3 Effect on Power Consumptions	47

CHAPTER	PAGE
V CONCLUSIONS AND RECOMMENDATIONS	51
5.1 Conclusions	51
5.2 Recommendations	51
REFERENCES	53
CURRICULUM VITAE	56

LIST OF TABLES**TABLE**

2.1	Average chemical bond energy of some covalent bonds (Perry <i>et al.</i> , 1996)	5
2.2	The first ionization potential of some common gases (Perry <i>et al.</i> , 1996)	5
2.3	Collision mechanisms in the plasma (Nasser, 1971)	7

LIST OF FIGURES

FIGURE	PAGE
2.1	Phase of gliding arc phenomena 10
3.1	Schematic of gliding arc discharge system 20
3.2	Schematic of gliding arc discharge reactor 21
3.3	Schematic of the power supply unit 22
4.1	Effect of HCs/O ₂ feed molar ratio on (a) reactant conversions and product yields and (b) concentrations of outlet gas for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; applied voltage, 13.5 kV; input frequency, 300 Hz; and electrode gap distance, 6 mm). 33
4.2	Effect of HCs/O ₂ feed molar ratio on (a) product selectivities and (b) product molar ratios for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; applied voltage, 13.5 kV; input frequency, 300 Hz; and electrode gap distance, 6 mm). 34
4.3	Effect of HCs/O ₂ feed molar ratio on power consumptions and coke formation for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; applied voltage, 13.5 kV; input frequency, 300 Hz; and electrode gap distance, 6 mm) (E _C : power per reactant molecule converted; E _{H₂} : power per H ₂ molecule produced). 35

FIGURE	PAGE
4.4 Effect of applied voltage on (a) reactant conversions and product yields, (b) concentrations of outlet gas, and (c) generated current for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; HCs/O ₂ feed molar ratio of 2/1; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; input frequency, 300 Hz; and electrode gap distance, 6 mm).	38
4.5 Effect of applied voltage on (a) product selectivities and (b) product molar ratios for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; HCs/O ₂ feed molar ratio of 2/1; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; input frequency, 300 Hz; and electrode gap distance, 6 mm).	39
4.6 Effect of applied voltage on power consumptions and coke formation for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; HCs/O ₂ feed molar ratio of 2/1; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; input frequency, 300 Hz; and electrode gap distance, 6 mm) (E _C : power per reactant molecule converted; E _{H₂} : power per H ₂ molecule produced).	40
4.7 Effect of input frequency on (a) reactant conversions and product yields, (b) concentrations of outlet gas, and (c) generated current for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; HCs/O ₂ feed molar ratio of 2/1; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; applied voltage, 14.5 kV; and electrode gap distance, 6 mm).	43

FIGURE	PAGE
4.8 Effect of input frequency on (a) product selectivities and (b) product molar ratios for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; HCs/O ₂ feed molar ratio of 2/1; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; applied voltage, 14.5 kV; and electrode gap distance, 6 mm).	44
4.9 Effect of input frequency on power consumptions and coke formation for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; HCs/O ₂ feed molar ratio of 2/1; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; applied voltage, 14.5 kV; and electrode gap distance, 6 mm) (E _C : power per reactant molecule converted; E _{H₂} : power per H ₂ molecule produced).	45
4.10 Effect of electrode gap distance on (a) reactant conversions and product yields, (b) concentrations of outlet gas, and (c) generated current for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; HCs/O ₂ feed molar ratio of 2/1; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; applied voltage, 14.5 kV; and input frequency, 300 Hz)..	48
4.11 Effect of electrode gap distance on (a) product selectivities and (b) product molar ratios for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; HCs/O ₂ feed molar ratio of 2/1; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; applied voltage, 14.5 kV; and input frequency, 300 Hz).	49
4.12 Effect of electrode gap distance on power consumptions and coke formation for the combined steam reforming and partial oxidation of natural gas (steam content, 10 mol%; HCs/O ₂ feed molar ratio of 2/1; total feed flow rate, 100 cm ³ /min; applied voltage, 14.5 kV; and input frequency, 300 Hz) (E _C : power per reactant molecule converted; E _{H₂} : power per H ₂ molecule produced).	50