# SYNTHESIS GAS PRODUCTION FROM $CO_2$-CONTAINING NATURAL GAS BY COMBINED STEAM REFORMING AND PARTIAL OXIDATION IN MULTI-STAGE GLIDING ARC DISCHARGE SYSTEM

Krittiya Pornmai

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
2014

| | |
|---|---|
| **Thesis Title:** | Synthesis Gas Production from $CO_2$-Containing Natural Gas by Combined Steam Reforming and Partial Oxidation in Multi-Stage Gliding Arc Discharge System |
| **By:** | Krittiya Pornmai |
| **Program:** | Petrochemical Technology |
| **Thesis Advisors:** | Prof. Sumaeth Chavadej |

---

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

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

**Thesis Committee:**

..... (Asst. Prof. Pomthong Malakul)

..... (Prof. Sumaeth Chavadej)

..... (Prof. Hidetoshi Sekiguchi)

..... (Assoc. Prof. Apanee Luengnaruemitchai)

..... (Prof. Pichet Limsuwan)

## ABSTRACT

5081002063: Petrochemical Technology Program

Krittiya Pornmai: Synthesis Gas Production from $CO_2$-Containing Natural Gas by Combined Steam Reforming and Partial Oxidation in Multi-Stage Gliding Arc Discharge System.

Thesis Advisor: Prof. Sumaeth Chavadej 157 pp.

Keywords: Gliding arch discharge/ Plasma/ Steam reforming/ Partial oxidation/ Natural gas

In this work, the reforming of $CO_2$-containing natural gas was conducted under the alternating current AC gliding arc discharge plasma system at ambient conditions. The results reveal that the addition of steam content of 10 mol% to the simulated natural gas was found to greatly enhance the natural gas reforming performance in terms of reactant conversions, product yields, product selectivities, and power consumptions. Next, a technique of combining steam reforming with partial oxidation of $CO_2$-containig natural gas in an AC gliding arc discharge was examined in order to optimize the reforming efficiency. The results show that the partial oxidation could increase both methane conversion and synthesis gas yield. The optimum oxygen feed molar ratio was found at a $HCs/O_2$ feed molar ratio of 2/1, providing high $CH_4$ and $O_2$ conversions with high synthesis gas selectivity and relatively low power consumptions, as compared with the other processes (sole natural gas reforming, natural gas reforming with steam, and combined natural gas reforming with partial oxidation). For the combined plasma reforming of $CO_2$-containing natural gas with steam and partial oxidation in multistage gliding arc discharge system was finally investigated. The series of experiments were carried out to investigate reactant conversions, product selectivities and yields, and power consumption by varying residence time, stage number of plasma reactors, feed flow rate, hydrocarbons $(HCs)/O_2$ feed molar ratio, and input voltage. An increase in stage number from 1 to 3 stages at a constant feed flow rate enhanced the reactant conversions, and product yields with a reduction of power consumptions.

# บทคัดย่อ

กฤติยา พรใหม่ : การผลิตก๊าซสังเคราะห์จากก๊าซธรรมชาติที่มีองค์ประกอบคาร์บอนไดออกไซด์โดยกระบวนร่วมการเปลี่ยนรูปด้วยไอน้ำและการออกซิเดชันบางส่วนในระบบประกายไฟฟ้าร่อนกระแสสลับ (Synthesis Gas Production from $CO_2$-Containing Natural Gas by Combined Steam Reforming and Partial Oxidation in Multi-Stage Gliding Arc Discharge System) อ. ที่ปรึกษา ศ. ดร. สุเมธ ชวเดช 157 หน้า

ในงานวิจัยนี้ การเปลี่ยนรูปก๊าซธรรมชาติที่มีองค์ประกอบก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ได้ถูกดำเนินการโดยใช้ระบบประกายไฟฟ้าร่อนแบบกระแสสลับ ภายใต้สภาวะบรรยากาศ ผลการศึกษาเปิดเผยว่า การเติมปริมาณไอน้ำที่ 10 โมลเปอร์เซ็นเข้าไปในก๊าซธรรมชาติจำลองที่มีองค์ประกอบคาร์บอนไดออกไซด์พบว่า ช่วยเพิ่มประสิทธิภาพในการเปลี่ยนรูปของก๊าซธรรมชาติเป็นอย่างมาก ทั้งในรูปของการเปลี่ยนแปลงสารตั้งต้น, ผลิตผลของผลิตภัณฑ์, ค่าการเลือกเกิดของผลิตภัณฑ์, อัตราส่วนของก๊าซสังเคราะห์, และพลังงานจำเพาะที่ต้องใช้ จากนั้นได้ศึกษาเทคนิคการร่วมเปลี่ยนรูปโดยไอน้ำและการออกซิเดชันบางส่วนของก๊าซธรรมชาติที่มีองค์ประกอบของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ภายใต้ระบบประกายไฟฟ้าแบบร่อน เพื่อทำให้ประสิทธิภาพของการเปลี่ยนรูปสูงสุด ที่อัตราส่วนโมลที่เติมของไฮโดรคาร์บอนต่อออกซิเจนเท่ากับ 2/1 ให้การเปลี่ยนแปลงทั้งออกซิเจนและมีเทนที่สูง การเลือกเกิดก๊าซสังเคราะห์ที่สูง และความต้องการพลังงานต่ำ เมื่อเปรียบเทียบกับกระบวนการอื่นๆ (การเปลี่ยนรูปของก๊าซธรรมชาติอย่างเดียว, การเปลี่ยนรูปของก๊าซธรรมชาติด้วยไอน้ำ, และการเปลี่ยนรูปของก๊าซธรรมชาติร่วมกับการออกซิเดชันบางส่วน) สำหรับการร่วมเปลี่ยนรูปก๊าซธรรมชาติที่มีองค์ประกอบของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ โดยใช้ไอน้ำและการออกซิเดชันบางส่วนในระบบประกายไฟฟ้าร่อนแบบหลายขั้นตอนได้ถูกศึกษาเป็นลำดับสุดท้าย ชุดอนุกรมของการทดลองได้ถูกนำมาศึกษาการเปลี่ยนแปลงสารตั้งต้น, การเลือกเกิดและผลิตผลของผลิตภัณฑ์ต่างๆ, และพลังงานที่ต้องใช้ โดยการแปรเวลาอยู่ของสารตั้งต้น, จำนวนปฏิกรณ์พลาสมา, อัตราส่วนระหว่างไฮโดรคาร์บอนต่อออกซิเจน, และค่าความต่างศักย์ เมื่อเพิ่มจำนวนเครื่องปฏิกรณ์จาก 1 เครื่อง ไปเป็น 3 เครื่อง สำหรับระบบที่มีการควบคุมให้มีอัตราการไหลคงที่ปรับปรุงการเปลี่ยนแปลงของสารตั้งต้น, ผลิตผลของผลิตภัณฑ์ต่างๆ รวมทั้งการลดลงของพลังงานที่ต้องใช้

## ACKNOWLEDGEMENTS

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

First of all, I am heartily thankful to my advisors, Prof. Sumaeth Chavadej and Prof. Hidetoshi Sekiguchi, whose encouragement, guidance and support from the initial to the final level enabled me to develop an understanding of these work. My Ph.D. experience would not have begun if Prof. Sumaeth Chavadej had not selected me as his student. Prof. Hidetoshi Sekiguchi influenced my interest in plasma research since I was an exchange student in his laboratory (Young Scientist Exchange Program). It is my honor to work with and learn so great lessons from them.

I also owe sincere and earnest thankfulness to Dr. Thammanoon Sreethawong , for all helpfulness, fruitful suggestion, and encouragement. I would like to express my special thanks of gratitude to Mr. Robert Wright and Ms. Babara Best for their valuable advices in writing papers.

It is a pleasure to acknowledge The Center of Excellence on Petrochemical and Materials Technology under the Ministry of Education, Thailand and the Ratchada Pisak Sompot Fund, Chulalongkorn University 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 am obliged to many of The Petroleum and Petrochemical College's staffs for their help in many aspects.

Finally, I would like to take this opportunity to thank all of my PPC friends and master degree students for their friendly assistance and cheerfulness. Last but not the least, I am greatly indebted to my parents and my family for their support, love, and understanding.

## TABLE OF CONTENTS

CHAPTER PAGE

## LIST OF TABLES

**TABLE** **PAGE**

**TABLE** **PAGE**

**TABLE** **PAGE**

**TABLE** **PAGE**

**TABLE** **PAGE**

**TABLE** **PAGE**

**TABLE** **PAGE**

**TABLE** **PAGE**

**TABLE** **PAGE**

# LIST OF FIGURES

**FIGURE** **PAGE**

**FIGURE** **PAGE**

**FIGURE** **PAGE**

**FIGURE** **PAGE**

**FIGURE** **PAGE**

**FIGURE** **PAGE**

**FIGURE** **PAGE**

**FIGURE** **PAGE**

**FIGURE** **PAGE**

**FIGURE** **PAGE**