



Esa Kurkela, Pekka Simell,  
Paterson McKeough & Minna Kurkela

## Synteesikaasun ja puhtaan polttikaasun valmistus



VTT PUBLICATIONS 682

# **Synteetikaasun ja puhtaan polttikaasun valmistus**

Esa Kurkela, Pekka Simell,  
Paterson McKeough & Minna Kurkela



ISBN 978-951-38-7097-3 (nid.)

ISSN 1235-0621 (nid.)

ISBN 978-951-38-7098-0 (URL: <http://www.vtt.fi/publications/index.jsp>)

ISSN 1455-0849 (URL: <http://www.vtt.fi/publications/index.jsp>)

Copyright © VTT 2008

**JULKAISIJA – UTGIVARE – PUBLISHER**

VTT, Vuorimiehentie 3, PL 1000, 02044 VTT

puh. vaihde 020 722 111, faksi 020 722 4374

VTT, Bergsmansvägen 3, PB 1000, 02044 VTT

tel. växel 020 722 111, fax 020 722 4374

VTT Technical Research Centre of Finland, Vuorimiehentie 3, P.O. Box 1000, FI-02044 VTT, Finland  
phone internat. +358 20 722 111, fax +358 20 722 4374

VTT, Biologinkuja 5, PL 1000, 02044 VTT

puh. vaihde 020 722 111, faksi 020 722 7048

VTT, Biologgränden 5, PB 1000, 02044 VTT

tel. växel 020 722 111, fax 020 722 7048

VTT Technical Research Centre of Finland, Biologinkuja 5, P.O. Box 1000, FI-02044 VTT, Finland  
phone internat. +358 20 722 111, fax +358 20 722 7048

Kansikuva: Paineistettu kaasutuksen prosessinkehityslaitteisto, VTT Otaniemi

Toimitus Anni Repo

Edita Prima Oy, Helsinki 2008

Kurkela, Esa, Simell, Pekka, McKeough, Paterson & Kurkela, Minna. Synteesikaasun ja puhtaan polttokaasun valmistus [Production of synthesis gas and clean fuel gas]. Espoo 2008. VTT Publications 682. 54 s. + liitt. 5 s.

**Avainsanat** gasification, biomass, reforming, synthesis gas

## Tiivistelmä

Julkaisussa esitetään VTT:n koordinoiman Ultra Clean Gas -projektin keskeisimmän osatehtävän, kaasutusprosessin kehitys, tulokset ja johtopäätökset. Hanke toteutettiin vuosina 2004–2007. Osatehtävän tavoitteena oli kehittää kiinteiden polttoaineiden kaasutus- ja kaasun puhdistustekniikkaa tulevaisuuden voimalaitosprosesseja ja biopolttonesteiden tai vedyn valmistusta varten.

Julkaisussa kuvataan, kuinka projektissa edettiin pienen mitan koelaitteilla vuosina 2004–2005 tehdyistä kokeista prosessien arvioinnin ja valinnan kautta noin 0,5 MW:n prosessinkehityskoelaitteen (UCG-PDU) rakentamiseen ja sillä vuonna 2007 toteutettuun koetoimintaan.

Projektin työn kohteena oli paineistettuun leijukeroskaasutukseen, kaasun kuumasuodatuksen ja katalyyttiseen hiilivetyjen reformointiin perustuva kaasutusprosessi, jonka toimivuudesta saatiin positiivinen näyttö projektin loppuvaiheessa toteutetuissa onnistuneissa PDU-kokeissa. Projekti loi siten pohjaa yritysvetoisissa jatkohankkeissa tehtäville varsinaisen teollisen prosessin kehittämiseksi ja demonstroinnille.

Kurkela, Esa, Simell, Pekka, McKeough, Paterson & Kurkela, Minna. Synteesikaasun ja puhtaan polttoikaasun valmistus [Production of synthesis gas and clean fuel gas]. Espoo 2008. VTT Publications 682. 54 p. + app. 5 p.

**Keywords** gasification, biomass, reforming, synthesis gas

## **Abstract**

The main results of the project, Development of Ultra-Clean Gas (UCG) Technologies for Biomass Gasification, are presented in the publication. The UCG project was directed towards the development of innovative biomass gasification and gas-cleaning technologies for the production of ultra-clean synthesis gas. The project was carried out from 2004 to 2007 and it was co-ordinated by VTT Technical Research Centre of Finland.

The publication describes how the work progressed from small-scale experiments and process-evaluation studies in the initial stages of the project to the design, construction and operation of a Process Development Unit (PDU) in the latter stages of the project. The 0.5 MW PDU, located at VTT, was taken into operation at the end of 2006.

The experimental work focussed on the following sub-processes: pressurized fluidised-bed gasification, catalytic gas reforming and initial gas cleaning. The PDU gasification tests were successful and all components of the PDU-plant operated reliably. The project created a knowledge base upon which subsequent industrial-driven development and demonstration projects have been built.

# Alkusanat

Tekesin ryhmähanke ”Synteesikaasun ja ultrapuhtaan polttokaasun valmistus (UltraCleanGas)” toteutettiin vuosina 2004–2007. Tässä projektin loppuraportissa esitetään projektin keskeisimmän osatehtävän, kaasutusprosessin kehitys, tulokset ja johtopäätökset. Projektissa tehtyjen eri sovelluksiin liittyvien teknis-taloudellisten tarkastelujen tulokset on esitetty vastaavasti omana julkaisunaan (VTT Research Notes 2434). Katalyyttisen reformoinnin perusteisiin liittyviä TKK:n tutkimustuloksia julkaistaan erillisjulkaisuina.

Projekti toteutettiin VTT:n kaasutustekniikan tiimin vetäjän Esa Kurkelan koordinoimana. TKK:n vastuullisena johtajana toimi professori Outi Krause. Tutkimusprojektiin ja johtoryhmätyöskentelyyn osallistuivat lisäksi yritysosapuolista Foster Wheeler Energia Oy, Neste Oil Oyj, Andritz Oy, Vapo Oy, Pohjolan Voima Oy, UPM-Kymmene Oyj, M-real Oyj, Stora Enso Oyj, Oy Metsä Botnia Ab ja Rintekno Oy. Johtoryhmän puheenjohtajana toimi Juha Jakkula Neste Oil Oyj:stä ja päärahoittajan Tekesin edustajana Jukka Leppälahti.

Espoo huhtikuu 2008

Tekijät

# Sisällysluettelo

Tiivistelmä .....	3
Abstract .....	4
Alkusanat .....	5
Määritelmät ja lyhenteet .....	8
1. Johdanto .....	9
2. Kaasutusmenetelmän valinta .....	11
2.1 Lähtökohta .....	11
2.2 Penkkikokoluokan kaasutuskokeet .....	12
2.3 Prosessiarviot ja kaasutusmenetelmän valinta .....	20
3. Tuotekaasun reformoinnin laboratoriotutkimus .....	28
3.1 Tutkitut prosessikonseptit .....	28
3.2 Katalyyttisen reformoinnin laboratorioskokeet .....	29
3.3 Esireformointi .....	32
3.4 Reformointi .....	34
3.5 Shift-konversio .....	37
4. Prosessinkehityslaitteiston suunnittelu ja rakentaminen .....	39
5. PDU-koetoiminta .....	41
5.1 Tehdyt koeajot .....	41
5.2 Polttoaineet .....	43
5.3 Tulokset .....	45
5.3.1 Esikokeiden tulokset .....	45
5.3.2 Koeajojen 10/2007 ja 16/2007 tulokset .....	46
6. Yhteenveto .....	52
Lähdeluettelo .....	54



Liitteet:

Liite A: Penkkikokoluokan kaasutuskoeajojen prosessiolosuhteet

Liite B: Penkkikokoluokan kaasutuskoeajojen prosessiolosuhteet

Liite C: Penkkikokoluokan kaasutuskoeajojen prosessiolosuhteet

Liite D: Koejaksojen 0704 ja 0710 toimintaolosuhteet ja prosessimittaukset

Liite E: Koejaksojen 0710 ja 0716 toimintaolosuhteet ja prosessimittaukset

# Määritelmät ja lyhenteet

## Määritelmät

Biodiesel	Kasviöljypohjainen dieselpolttoaine, joka valmistetaan kasviöljyistä vaihtoeströimällä.
Freeboard	Kaasuttimen yläosa
Kaasutus	Terminen prosessi, jossa kaasuttava aine reagoi kiinteän tai nestemäisen polttoaineen kanssa korkeassa lämpötilassa muodostan polttokaasuseoksen.
Synteesikaasu	Kaasuseos, jonka pääkomponentit ovat vety ja hiilimonoksidi. Synteesikaasua voidaan valmistaa kaasutuksen kautta erityyppisistä biomassoista.

## Lyhenteet

BFB	Bubbling Fluidised Bed (kerrosleiju)
CFB	Circulated Fluidised Bed (kiertoleiju)
CHP	Combined Heat and Power production (yhdistetty lämmön ja sähkön tuotanto)
C2-C5Hy	Hiilivety-yhdiste, joka muodostuu hiili- (C) ja vety- (H) atomeista, y kuvaa vetyatomien lukumäärää.
FT	Fischer-Tropsch
HTW	High Temperature Winkler
PDU	Process Development Unit (prosessinkehityslaitteisto)
REF	Recovered Fuel (kierrätyspolttoaine)

## Yksiköt

daf	dry ash free (tuhkaton kuiva-aine)
-----	------------------------------------

# 1. Johdanto

Vuosina 2004–2007 toteutetun VTT:n koordinoiman UCG-projektin tavoitteena oli kehittää kiinteiden polttoaineiden kaasutustekniikkaa ja kaasun puhdistusta tulevaisuuden voimalaitosprosesseja ja biopolttonesteiden tai vedyn valmistusta varten. Tavoitteena oli edetä vuosina 2004–2005 tehdyistä pienen mitan koetoinnista ja arviointityöstä projektissa suunnitellulla ja rakennetulla 500 kW:n PDU-laitteistolla tehtäviin koeajoihin, joissa keskityttiin synteetikäyttöön tähtäävien kaasutusmenetelmän ja tuotekaasun reformoinnin kehittämiseen. Lisäksi tavoitteena oli luoda pohjaa aiheisiin liittyville pilotointi- ja demonstraatiohankkeille yhdessä projektiin osallistuvien yritysten kanssa. Soveltuvuustarkastelujen avulla haettiin biopolttoaineille sopivia toteutuskelpoisia kokonaisratkaisuja, jotka lisäisivät biopolttoaineiden käytön kokonaistehokkuutta ja loisivat pohjaa uusien 2010-luvun vientituotteiden kehittämiseksi.

Tässä loppuraportissa esitetään kaasutus- ja kaasunpuhdistusprosessin tutkimus- ja kehitystehtävien tulokset. Tältä osin projektin työ on tehty kokonaisuudessaan VTT:n kaasutustekniikan tiimissä. Loppuraportoinnin muissa osaraporteissa ja erillisjulkaisuissa kuvataan projektissa tehtyjen teknis-taloudellisten tarkastelujen, katalyyttitutkimuksen sekä kansainvälisten hankkeiden seuranta- ja arviointitöiden tulokset.

Kuvatun kaasutusprosessin tutkimus- ja kehitystyön tavoitteena oli luoda perusteita kehittää uusi synteetikaasun valmistusprosessi, joka täyttäisi seuraavat vaatimukset:

- soveltuu mahdollisimman laajalle polttoainepohjalle (puu- ja peltobiomassat, REF, turve)
- koostuu luotettavista ja varmatoimisista osaprosesseista (kaasutus, suodatus, hiilivetyjen reformointi)
- hyvä kokonaishyötysuhde: synteetikaasu + sähkö + lämpö
- kilpailukykyiset tuotantokustannukset
- ei hankalasti hallittavissa olevia ympäristöongelmia, esim. ei tarvetta tervavesien käsittelylle.

Uuden synteesikaasuprosessin kehityksen tärkeimpinä lähtökohtina käytettiin seuraavaa taustamateriaalia:

- aiemmat eri synteesikaasuteknologioiden arviot ja vertailut sekä kokemukset Oulun turveammoniakkihankkeesta
- tietotaito CFB- ja BFB-kaasuttimista ja eri polttoaineiden kaasutuskäyttäytymisestä
- tietotaito kaasutuskäytön kuumasuodatuksista
- katalyyttisen kaasunpuhdistuksen osaaminen ja ennen projektia syntyneet uudet synteesikaasusovelluksiin liittyvät tuotekaasun reformoinnin ideat.

Tässä osaprojektissa edettiin pienen mitan koetoiminnan ja eri kaasutus- ja kaasun reformointivaihtoehtojen arvioinnin kautta valitun teknologian PDU-mitassa tapahtuvaan tutkimukseen ja kehitykseen.

## 2. Kaasutusmenetelmän valinta

### 2.1 Lähtökohta

Projektin lähtökohtana vuoden 2004 alussa oli VTT:n arvio siitä, että laajalle polttoainepohjalle soveltuva ja varmatoiminen synteetikaasun valmistus voitaisiin toteuttaa leijukerosreaktorissa joko ”paranneltuna” paineistettuna happikaasutuksena tai epäsuorana vesihöyrykaasutuksena. Molemmissa tapauksissa kaasutusprosessin olennaisena osana on luvussa 3 kuvattu hiilivetyjen ja tervojen katalyyttinen reformointi. Sen avulla synteetikaasusaantoa voidaan nostaa siitä tasosta, joka saavutettiin Oulussa 1980-luvun lopulla demonstroidussa paineistetussa happi- ja höyrykaasutukseen perustuvassa saksalaisessa HTW-kaasuttimessa [1, 2]. Optimiprosessissa pystytään laajalla polttoainekirjolla samanaikaisesti maksimoimaan tuotekaasun vetysisältö, selvittää kohtuullisella hapen kulutuksella, saavutetaan lähes täydellinen hiilikonversio ja vältetään tuhkan aiheuttamat ongelmat.

Kun katalyyttinen reformointi suunnitellaan synteetikaasutusprosessin olennaiseksi osaksi, voidaan itse kaasutusvaihe toteuttaa vapaammin kuin esim. HTW-prosessissa tai epäsuoraan vesihöyrykaasutukseen perustuvissa prosesseissa (esim. Güssing [3] ja SilvaGas [4]), joissa jo itse kaasuttimessa pyritään tehokkaaseen tervojen hajoamiseen toteuttamalla kaasutus mahdollisimman korkeassa lämpötilassa. Tästä puolestaan ovat helposti seurauksena tuhkan aiheuttamat ongelmat joko itse kaasuttimessa (HTW) tai hapetusreaktorissa (epäsuora kaasutus).

Osaprojektin työtä käynnistettäessä vuonna 2004 arvioitiin, että epäsuoraan vesihöyrykaasutukseen perustuvalla prosessikonseptilla saattaisi olla joitakin potentiaalisia etuja paineistettuun happikaasutukseen verrattuna. Itse kaasutus voitaisiin toteuttaa ilman kallista ja paljon sähköä kuluttavaa hapen valmistusta. Kirjallisuustietojen mukaan myös tervojen muodostus olisi höyrykaasutuksessa vähäisempää kuin ilma- tai happikaasutuksessa. VTT:n alustavien suunnitelmien mukaan epäsuoraa vesihöyrykaasutusta voitaisiin myös tehostaa pienellä hapen tai ilman tuonnilla, jolloin mahdollisesti voitaisiin yhdistää molempien perusvaihtoehtojen etuja menettämättä tavoitteena olevaa joustavuutta polttoainepohjan suhteen.

Tästä happikaasutuksen ja epäsuoran vesihöyrykaasutuksen yhdistelmästä ja vesihöyrykaasutuksesta yleensäkin oli Suomessa huomattavasti vähemmän kokemuksia

kuin suorasta happi- tai ilmakaasutuksesta. Myöskään kirjallisuuden perusteella ei voitu muodostaa luotettavaa kuvaa vesihöyrykaasutuksen ja ilma- tai happikaasutuksen eroista. Niinpä projektin koetoiminta aloitettiin tutkimalla vesihöyrykaasutusta projektissa käyttöönotetulla pienellä koelaitteella.

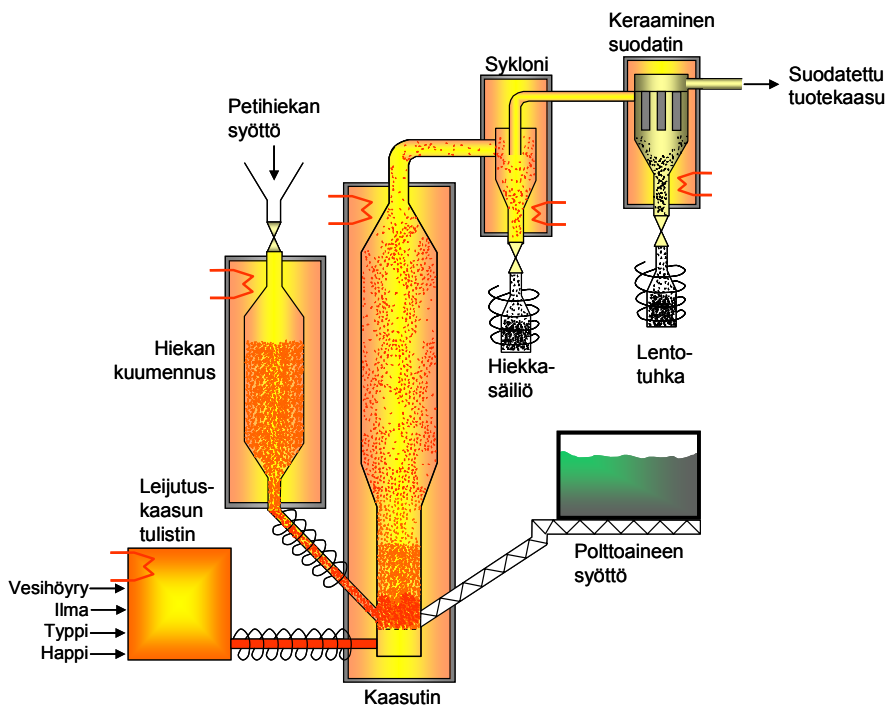
## 2.2 Penkkikokoluokan kaasutuskokeet

Vesihöyrykaasutustutkimusta varten VTT:lle rakennettiin uusi penkkikokoluokan koelaitteisto. Koelaitteen periaatepiirros esitetään kuvassa 1. Laitteistolla voidaan tutkia epäsuoralla lämmöntuonnilla varustetun vesihöyrykaasutuksen prosessiparametrien vaikutuksia ja siten täydentää aiheesta rajallisesti saatavilla olevaa julkaistua tulosaineistoa. Samaten voidaan testata uusien omien ideoiden toteutettavuutta ja hyvyttä. Laitteistoon liitettiin myös ilman ja hapen syöttölinjat, jolloin voitiin tehdä vertailuaineistoa myös ilma- ja happikaasutuksesta.

Laitteisto rakennettiin osittain jo ennen UCG-projektin käynnistymistä ja se sijoitettiin aiemman VTT:n pölykaasutusreaktorin paikalle hyödyntäen olemassa ollutta sähkölämmitteistä uunia ja muita oheislaitteita. Uusina komponentteina laitteistoon rakennettiin a) kaasutusreaktoriputki, polttoaineen syöttölaite ja kuumasykloni, b) vesihöyryn tulistusyksikkö ja syöttöyhteet muille leijutuskaasuille (käyttäen olemassa olevia massavirtasäätimiä), c) hiekan kuumennusyksikkö ja kuuman hiekan siirtolaitteet, d) hiekan erotussyklonit sekä e) tuotekaasun kuumasuodatin.

Laitteiston viimeistely ja käyttöönotto tapahtuivat UCG-projektin puitteissa keväällä 2004, ja koeajot toteutettiin syksyllä 2004 ja alkuvuodesta 2005. Niissä tutkittiin seuraavia kaasutusprosessin arvioinnin kannalta keskeisiä kysymyksiä:

- lämpötilan, virtausnopeuden ja viipymääjan vaikutus hiilikonversioon ja tuotekaasun koostumukseen
- petimateriaalin vaikutus prosessin toimintaan ja tuotesaantoihin
- polttoaineen (puu, olki, turve) vaikutukset saantoihin
- pienen ilma- ja happilisäyksen vaikutus kaasuttimen toimintaan ja tuotesaantoihin.



Kuva 1. Vesihöyrykaasutuksen bench-scale-koelaitteen periaatepiirros (polttoainesyöttö 1–10 kg/h).

Koelaitteeseen kuuluvaa petimateriaalin kuumennus- ja syöttöyksikköä ei saatu toimimaan riittävän luotettavasti ja toistettavasti, jotta olisi voitu tutkia hiekka- ja polttoainesyötön vaikutuksia kaksoisleijukerrosprosessin kiertohiekkavirran vaikutusten arviointia ajatellen. Niinpä vesihöyrykaasutuksen tarvitsema lämpöenergia tuotiin tulistamalla vesihöyry ennen kaasutinta ja lämmittämällä reaktoriputkea sähköisesti. Kokeessa käytetty petimateriaali lisättiin reaktoriin ennen koetta ja koejaksojen välissä panoksina. Vesihöyrykaasutukseen liittyvien alkuvaikeuksien jälkeen (mm. höyryn kondensoituminen polttoaineensyöttölinjaan ja mittausyhteisiin) koelaitteella pystyttiin toteuttamaan toistettavissa olevat koesarjat, joiden tulokset olivat johdonmukaisia.

Taulukossa 1 esitetään yhteenveto 25:n teknisesti onnistuneen kokeen polttoaineista ja koeolosuhteista. Lisäksi tehtiin muutama esikoe ja muutama koeajo päättyi laiteteknisistä syistä kokeen keskeytymiseen. Oljella yritettiin myös toista koeajoa, jossa kaasutuslämpötila oli korkeampi (noin 730 °C). Tämä koe kuitenkin päättyi parin tunnin ajon jälkeen pedin sintraantumiseen.

Penkkikokoluokan koeajojen olosuhteet ja päätulokset esitetään liitteissä A, B ja C. Taulukossa 2 on käytettyjen polttoaineiden analyysit. Kuvissa 2–8 tarkastellaan saatuja koetuloksia. Koejaksoissa simuloitiin ilmakaasutusta (5 koetta), puhdasta höyrykaasutusta (17 koetta) ja ilma- tai happilisäyksellä toteutettua höyrykaasutusta (3 koetta). Suurin osa eri toimintaparametrien vaikutuksiin liittyvistä kokeista tehtiin käyttäen polttoaineena mäntypurua. Muutamissa valituissa olosuhteissa tehtiin kokeet myös turpeella ja oljella.

*Taulukko 1. Onnistuneet penkkikokoluokan kaasutuskokeet ja niiden koeolosuhteet.*

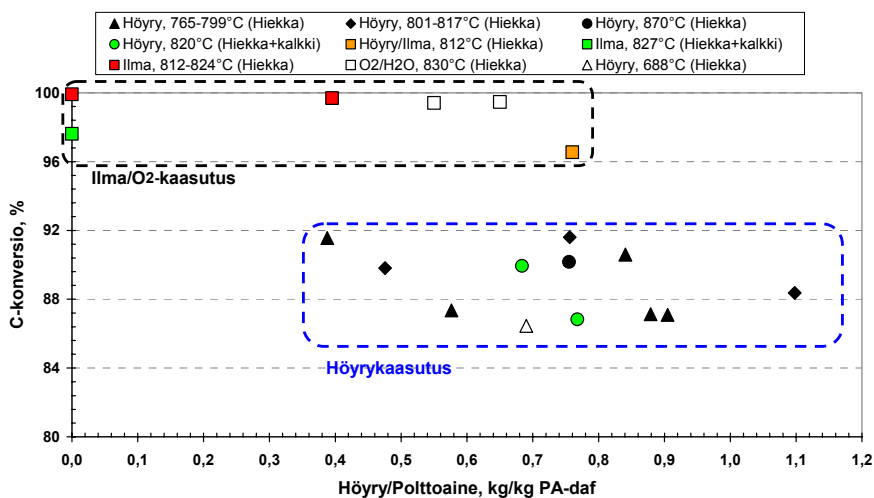
Koetyyppi	Lukumäärä	Lämpötila-alue, °C
Koeajot mäntypurulla, yhteensä	19	
– 100 %:n höyrykaasutus	12	690–880
– ilmakaasutus	5	810–840
– happi- ja höyrykaasutus	2	830–840
Kokeet turpeella, yhteensä	5	
– höyrykaasutus	4	690–880
– ilmakaasutus	1	830
Kokeet vehnän oljella, höyrykaasutus	1	690–700

*Taulukko 2. Penkkikokoluokan kaasutuskokeissa käytettyjen polttoaineiden koostumus (ka: kuiva-aine).*

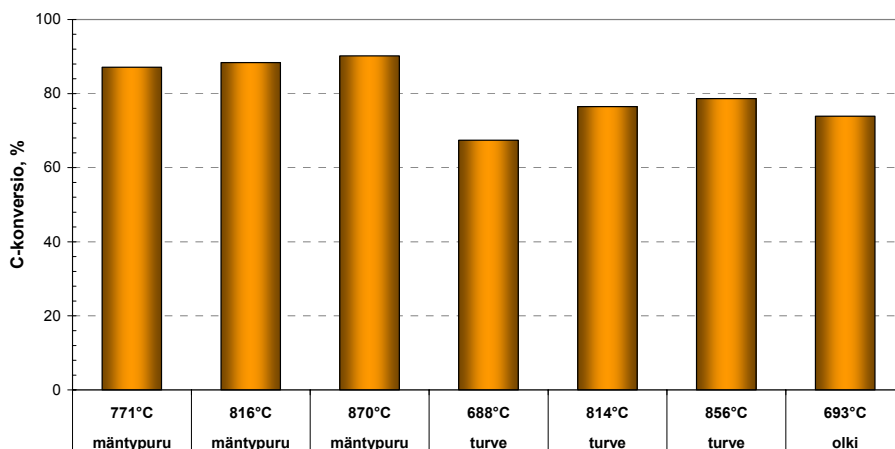
Polttoaine	Mäntypuru	Turve	Olki
Kosteus, m-%	8,5	14,5	8,0
Haihtuvat, m-% (ka)	81,0	72,1	75,9
Tuhka, m-% (ka)	0,3	3,7	6,5
Partikkelikoko, mm	0,52–0,92	0,52–0,92	0,52–0,92
Alkuainekoostumus, m-% (ka)			
C-pitoisuus	50,7	48,9	45,8
H	6,3	5,5	5,9
N	0,10	0,8	1,4
S	0,002	0,14	0,18
O (erotus)	42,6	41,0	45,8
Tuhka	0,3	3,7	6,5
Teh. lämpöarvo, MJ/kg (ka)	19,3	18,2	17,3



Kuvaan 2 on koottu mäntypurulla tehdyissä kokeissa määritetyt hiilikonversiot. Tässä yhteydessä hiilikonversiolla ymmärretään polttoaineen sisältämän alkuainehiilen muuntumista kaasumaiseen muotoon (sisältäen kevyet kaasut, hiilivedyt ja tervat). Hiilikonversio on määritetty epäsuorasti määrittämällä syntyneen lentopölyn ja kokeen aikana petiin kertyvän hiiliaineksen määrät. Kuvan perusteella koedata voidaan ryhmittää kahteen pääryhmään: kokeissa, joissa kaasutus toteutettiin pelkästään höyryllä, päästiin 86–92 %:n konversioon ja kokeissa, joissa käytettiin joko pääosin ilmaa tai ilma- tai happilisäystä höyrykaasutuksessa, päästiin lähes 100 %:n konversioon. Sen sijaan muilla tutkituilla parametreilla ei ollut yhtä selkeää vaikutusta hiilikonversioon.



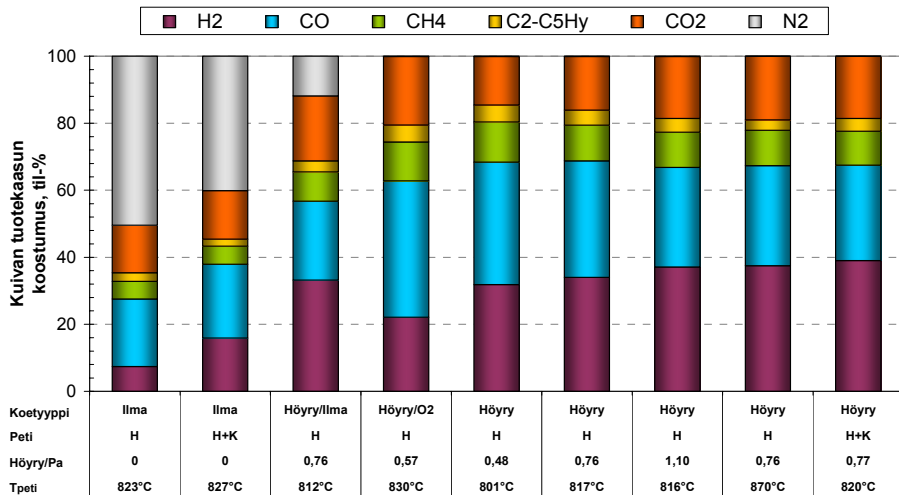
Kuva 2. Sahanpurun (mänty) penkkikokoluokan kaasutuskokeiden hiilikonversiot.



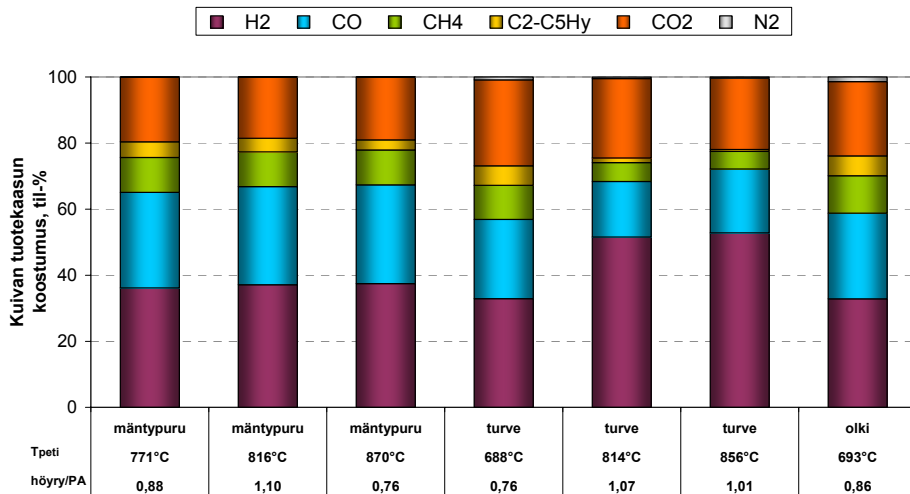
*Kuva 3. Sahanpurun, turpeen ja oljen hiilikonversiot penkkikokoluokan höyrykaasutuskokeissa. Lämpötila kuvaa pedin lämpötilaa kaasuttimessa.*

Kuvassa 3 verrataan puun, turpeen ja oljen höyrykaasutuksen hiilikonversioita. Kuvaan on poimittu eri petilämpötilaa vastaavat konversiot. Tältä osin tulos oli odotettu. Turpeella saavutettiin alhaisempi konversio, ja lämpötilan nostolla oli selvästi positiivinen vaikutus turpeen höyrykaasutuksen hiilikonversioon. Konversio kuitenkin jäi alle 80 %:n vielä kokeessa, jossa petilämpötila oli 854 °C ja yläosan lämpötila 879 °C. Turpeen ilmakaasutuksessa hiilikonversio oli noin 86 %, joka sekkin on aiempien ilmakaasutuskokemusten mukainen [5].

Kuvissa 4 ja 5 esitetään vastaavasti mäntypurun erityyppisissä kaasutuskokeissa määritetyt kuivan tuotekaasun koostumukset ja verrataan eri polttoaineiden puhtaassa höyrykaasutuksessa määritettyjä kaasun koostumuksia.



Kuva 4. Kuivan tuotekaasun koostumus sahanpurun kaasutuskokeissa. Polttoainelinjan ja mittausyhteiden tyypipuulauksen laimentava vaikutus on laskettu pois tuloksissa.

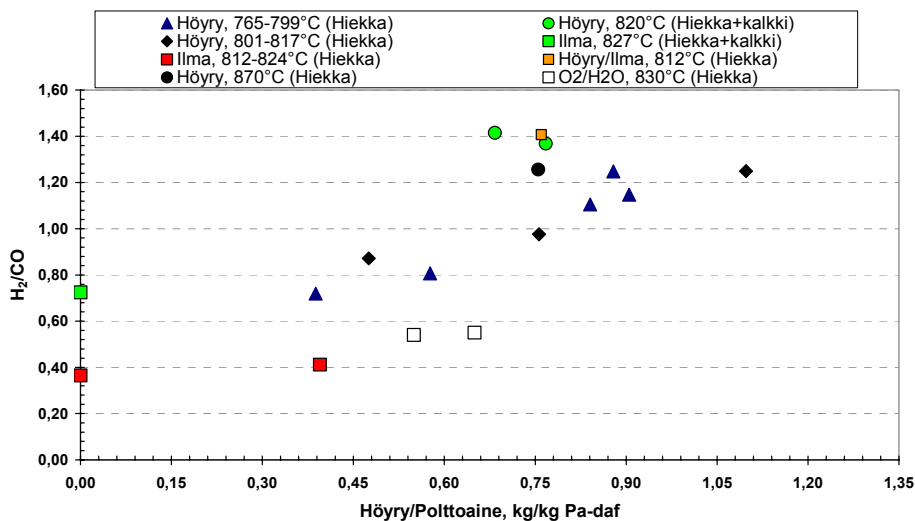


Kuva 5. Tuotekaasun koostumus sahanpurun, turpeen ja oljen kaasutuksessa (polttoainelinjan ja mittausyhteiden tyypipuulauksen laimentava vaikutus on laskettu pois).

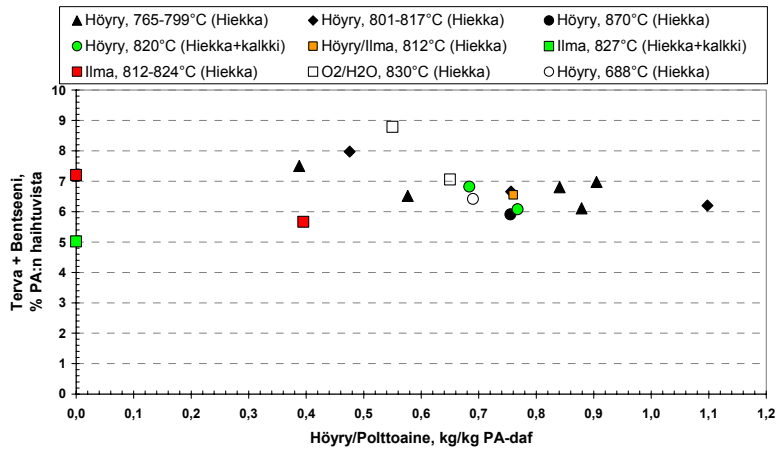
Puun tuotekaasun vedyn ja hiilimonoksidin suhdetta ( $H_2/CO$ ) tarkastellaan vielä erikseen kuvassa 6. Koetulosten perusteella näyttää selvästi siltä, että höyrykaasutuksessa höyry-polttoainesuhteen nostaminen käytännössä alimmalta mahdolliselta

tasolta 0,35–0,45 tasolle 0,75–0,8 nostaa selvästi tuotekaasun  $H_2/CO$ -suhdetta. Parhaimmillaankin suhde tosin oli vain hieman yli 1. Höyrykaasutuksen ja ilma- tai happikaasutuksen ero tuli myös selkeästi esille. Kalkkilisäyksellä eli kalsiumoksidin läsnäololla oli myös odotetun suuntainen vaikutus homogeenisen vesikaasureaktion kautta näissäkin kokeissa, vaikka tuotekaasujen ja petimateriaalin kontakti ei pienessä kerrosleijuperiaatteella toimivassa koelaitteessa olekaan paras mahdollinen.

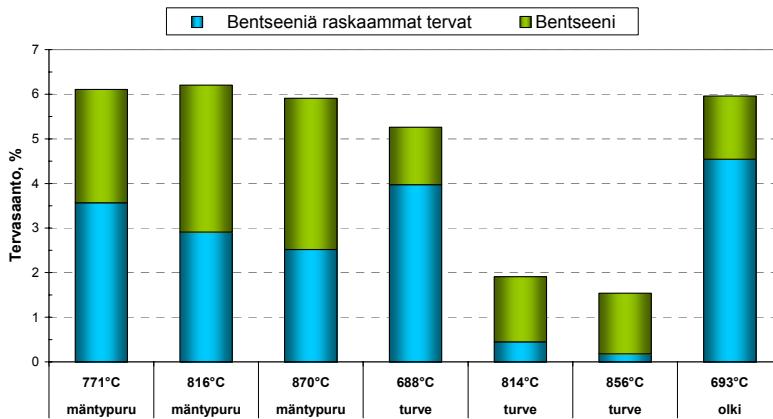
Kuvassa 7 tarkastellaan kaasutuksessa syntyvän tervan ja bentseenin määrän riippuvuutta eri toimintaolosuhteissa mäntypurun kaasutuksessa. Tulokset esitetään massaosuutena (%) polttoaineen haihtuvien aineiden määrästä. Kuvan perusteella näyttää siltä, että vesihöyrykaasutuksessa ei päästä olennaisesti alempaan tervapitoisuuteen kuin ilmakaasutuksessaan. Tervan ja bentseenin kokonaismäärä näytti puun kaasutuksessa olevan pääosin 6–8 % polttoaineen haihtuvien aineiden määrästä, eikä selkeää kuvaa eri parametrien vaikutuksista syntynyt näissä kokeissa.



Kuva 6. Tuotekaasun  $H_2/CO$ -suhde sahanpurun kaasutuksessa.



Kuva 7. Tervan ja bentseenin määrä sahanpurun kaasutuksessa.



Kuva 8. Tervasaantojen vertailu puun, turpeen ja oljen kaasutuksessa.

Kuvassa 8 esitetyt eri polttoaineiden väliset erot sen sijaan olivat odotetusti merkittäviä. Turpeen vesihöyrykaasutuksessa lämpötilan nosto johti selvään tervasaannon pienenemiseen. Myös tervan koostumus muuttui odotetulla tavalla (ks. viite [5]) kaasutuslämpötilaa nostettaessa.

Penkkikokoluokan laitteistolla tehdyn kaasutuskoesarjan perusteella tehtiin seuraavia kaasutusprosessin valinnassa hyödynnettyjä johtopäätöksiä:

- Ilmakaasutuksessa ja happi-höyrykaasutuksessa saavutetaan noin 10 %-yksikköä korkeampi hiilikonversio kuin puhtaassa höyrykaasutuksessa, mutta vesihöyrykaasutuksessa voidaan päästä parhaimmillaan yli 85 %:n konversioon.

- Höyrykaasutuksessa tuotekaasun vedyn ja hiilimonoksidin suhde on suurimmillaan 1–1,2, kun vesihöyrysyötön ja polttoainesyötön suhde on korkea. Ilmakaasutuksessa ja happi-höyrykaasutuksessa suhde on pienempi.
- Puun vesihöyrykaasutuksessa syntyy likimain sama määrä tervoja kuin ilmakaasutuksessa tai happi-höyrykaasutuksessa.
- Turpeen ja puun väliset erot vesihöyrykaasutuksessa ovat samansuuntaisia kuin aiemman kokemuksen mukaan ilmakaasutuksessa: erityisesti tervoja muodostuu selvästi vähemmän turpeella, ja turpeen kaasutuksen hiilikonversio jää puun kaasutuksen konversiota pienemmäksi.

## 2.3 Prosessiarviot ja kaasutusmenetelmän valinta

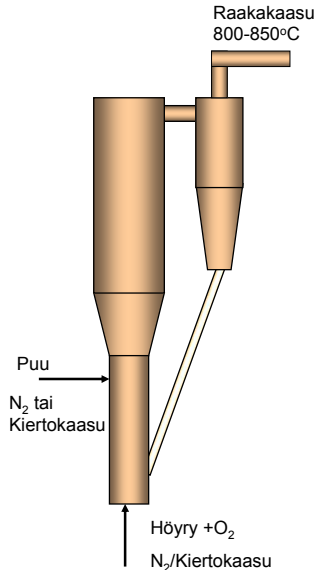
Vuoden 2004 aikana penkkikokoluokan koetoiminnan rinnalla arvioitiin alustavasti teollisen mitan kaasutusprosessin toiminta-arvoja sekä happi-höyrykaasutukseen että höyrykaasutukseen (kaksoisleijukerrosprosessi) perustuville vaihtoehdoille. Molempiin vaihtoehtoihin perustuen tehtiin myös karkea mitoitus 200 MW:n ja 400 MW:n kokoisille kaasutusreaktoreille. Laskennassa tarkasteltiin ilmanpaineista ja paineistettua kaasutusta (5, 10 ja 30 bar). Myös Suomessa hyvin tunnettu ilmakaasutus pidettiin vertailussa mukana, vaikka tavoitteena olikin synteesikaasukäyttöön soveltuvan prosessin kehittäminen. Koska kaksoisleijukerrosprosessin paineistusta pidettiin selvästi haastavampana kuin yhdessä leijukerrosreaktorissa toteutettavissa prosesseissa, tarkasteltiin tätä vaihtoehtoa vain ilmanpaineisena ja 5 barin paineessa.

Happi-höyrykaasutuksen taseet arvioitiin pääosin 1980-luvun lopun Kemiran HTW-kaasuttimen mittausdatan, julkaistun happikaasutusaineiston ja VTT:n oman ilmakaasutusdatan perusteella. Höyrykaasutuksen kaasutusvaiheen hiilikonversion ja kaasun koostumuksen arvioinnissa käytettiin kvalitatiivisesti edellä kuvattujen kokeiden tuloksia, joiden avulla arvioitiin erot happi- ja ilmakaasutukseen verrattuna. Aine- ja energiataseet laskettiin VTT:n taselaskentaohjelmalla.

Tarkastellut päävaihtoehdot ja arvioidut kaasun koostumukset esitetään kuvassa 9. Molemmissa tapauksissa kaasutusprosessiin ajateltiin kuuluvan kaasutusvaiheen jälkeen hiukkasten erotus ja katalyyttinen reformointi. Niinpä itse kaasutusvaiheessa ei ollut tarpeen tavoitella tervojen ja keveiden hiilivetyjen hajoamista. Happikaasutus ajateltiin toteutettavan 850 °C:n lämpötilassa, jonka arvioitiin olevan riittävän korkea lämpötila 97 %:n hiilikonversion saavuttamiseksi. Höyrykaa-

sutuksen laskettiin toimivan 650–700 °C:n lämpötilassa, jossa arvioitiin saavutettavan 81 %:n hiilikonversio.

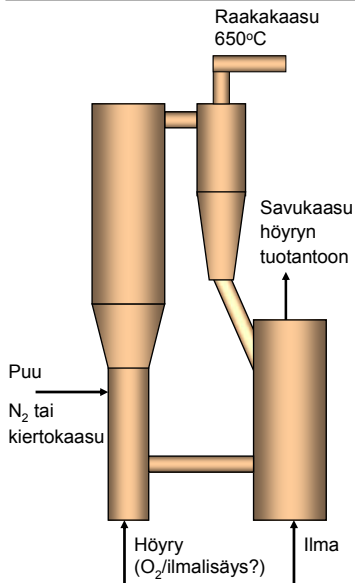
### Vaihtoehto 1: Happi/höyrykaasutus CFB-reaktorissa



- Polttoaineteho 200/400 MW
- Tavoitteena hyvä hiilikonversio 95-98 % mahdollisimman alhaisessa lämpötilassa (750-850 °C)
- Ei tarvetta hiilivetyjen krakkaamiselle vielä kaasuttimessa
- Taseet arvioitu HTW:n ja RenuGasin perusteella
  - Hapen kulutus: 0,37 kg/kg daf puuta
  - Höyryn kulutus: 0,20 kg/kg daf puuta
  - Kiertokaasu+typpi: 0,24 kg/kg daf puuta

Kuivan kaasun analyysi	Til-%
CO	34,5
CO2	24,0
H2	31,5
CH4	8,50
C2H2	0,00
C2H4	0,30
C2H6	0,10
C3-C5HX	0,00
H2S	0,01
COS	0,00
NH3	0,30
N2 (erotus)	0,79

### Vaihtoehto 2: Höyrykaasutus epäsuoralla lämmityksellä



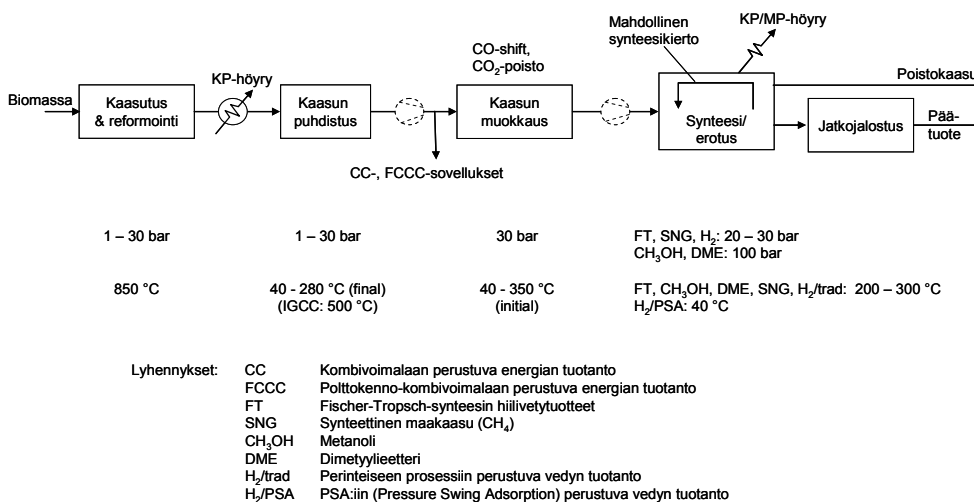
- Polttoaineteho 200/400 MW
- Kaasutuksen hiilikonversio 80-86 % alhainen CO<sub>2</sub>-pitoisuus
- Kaasun lämpötila 650 °C
- Taseet omaan arvioon perustuen
  - Höyrysyöttö 0,5 kg/kg daf puuta
  - Pyrolyysi + vähän H<sub>2</sub>O kaasutusta
  - Polttovaiheen lämpötila 850 °C

Kuivan kaasun analyysi	Til-%
CO	35,8
CO2	13,0
H2	32,7
CH4	12,2
C2H2	0,3
C2H4	4,0
C2H6	0,2
C3-C5HX	0,1
H2S	0,014
COS	0,001
NH3	0,1
HCl	0,009
N2	1,58

Kuva 9. Tarkastellut leijukerroskaasutuksen vaihtoehdot ja arvioidut tuotekaasun koostumukset.

Happikaasutuksen, ilmaaasutuksen ja kaksoisleijukerroskaasutuksen soveltuvuutta eri loppukäyttökohteisiin arvioitiin myös osana projektin soveltuvuustarkasteluosatehtävää, jossa kokonaisprosesseille laadittiin yksinkertaiset Excel-pohjaiset laskentataulukot (ks. kuva 10). Tämän tarkastelun yhteenveto esitetään kuvassa 11. Happikaasutuksella ja sitä seuraavalla reformoinnilla valmistettu tuotekaasu soveltuu loppupuhdistuksen jälkeen kaikkiin mahdollisiin loppukäyttökohteisiin, kun taas ilmaaasutuskaasun tuotekaasu soveltuu parhaiten sähkön tuotannon sovelluksiin. Sen sijaan nestemäisten polttoaineiden tai kemikaalien valmistamiseen esim. FT-synteesillä ilmaaasutuskaasun tuotekaasu soveltuu heikommin. Kirjallisuuden perusteella vain kerran läpi -tyyppiset Fischer-Tropsch-prosessit voisivat tulla kyseeseen runsaasti laimentavaa tyyppiä sisältävillä ilmaaasutuksen tuotekaasuilla. Höyrykaasutusprosessin tuotekaasu sisältää selvästi enemmän hiilivetyjä kuin happi- tai ilmaaasutuksen tuotekaasu, joten sen reformointiin arvioitiin liittyvän myös selvästi enemmän haasteita.

### Yleiskaavio synteesikaasun tuotanto- ja konversioprosessille



Kuva 10. Synteesikaasun eri sovellukset.

Soveltuvuustarkasteluissa vuonna 2004 käytetyllä yksinkertaisella mallilla arvioitiin myös kaasutusprosessien painetaso vaikutuksia lopputuotteen (FT-neste) tuotantokustannuksiin. Kaikissa tapauksissa tuotekaasun loppupuhdistus- ja synteesipaineeksi oli valittu 30 baria. Kuvassa 12 esitetään hapen valmistuksen ja tuotekaasun paineistuksen suhteelliset kustannusvaikutukset FT-nesteen tuotantokustannuksiin.



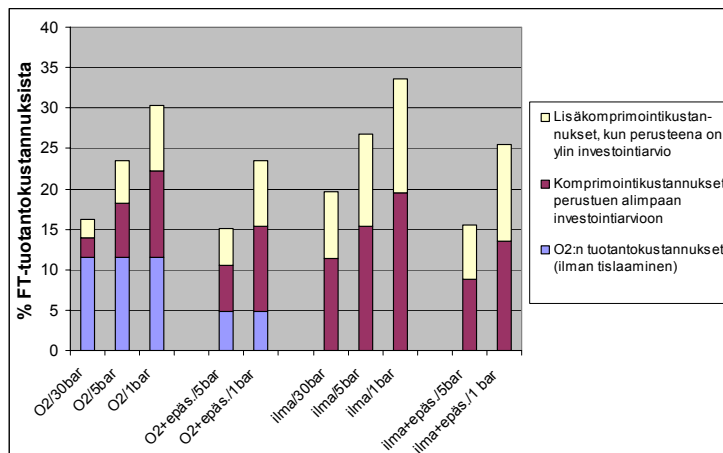
## Kaasutusprosessin konfiguraatio: hapetin ja paine Konfiguraatio vs. sovellukset

Konfiguraatio	Lupaavat sovellukset (sulkeissa olevat sovellukset vaativat vielä lisäselvityksiä)
<b>O<sub>2</sub> hapettimena</b> epäsuoran lämmityksen kanssa (5 bar) tai ilman epäsuoraa lämmitystä (5-30 bar)	<b>Kaikki tunnetut sovellukset:</b> FT, FT/R, CH <sub>3</sub> OH, DME, NH <sub>3</sub> , SNG, H <sub>2</sub> /trad, H <sub>2</sub> /PSA, FCCC, CC
Ilma hapettimena (30 bar)	FT ilman reformointikiertoa (H <sub>2</sub> /modifioitu PSA) FCCC + kaasun lämmin/kuiva puhdistus CC + kaasun kuumapuhdistus
Ilma hapettimena + epäsuora lämmitys (5 bar)	FT ilman reformointikiertoa (NH <sub>3</sub> ) (H <sub>2</sub> /modifioitu PSA) (FCCC + kaasun märkäpuhdistus) (CC + kaasun märkäpuhdistus)

Huomautus: kerran-läpi-prosessit on kehitetty myös CH<sub>3</sub>OH:lle ja SNG:lle mutta nämä eivät osoittautuneet lupaaviksi siinä tapauksessa, että hapetin on ilma.

*Kuva 11. Happi- ja ilmakaasutuksen sekä epäsuoran höyrykaasutuksen soveltuvuus eri loppukäyttökohteille.*

## Kaasutusprosessin konfiguraatio: hapetin ja paine Arvioidut vaikutukset kustannuksiin



Huomautus: kompressoreiden investointitarve on tässä vaiheessa epävarma. Suurimmat arvot pohjautuvat laiteoimittajan budjettitarjoukseen. Tätä lähdettä on käytetty laajasti hollantilaisissa arvioinneissa (Hamelinck, et al). Matalimmat arvot perustuvat VTT:n toiselta laitevalmistajalta saatuun budjettitarjoukseen.

*Kuva 12. Hapen valmistuksen ja kaasun komprimoinnin vaikutus FT-vahan tuotantokustannuksiin (kaasun laadun vaikutuksia kaasun loppupuhdistuksen tai synteasilaitteiden kustannuksiin ei ole otettu tässä huomioon).*

Tehtyjen tarkastelujen ohella arvioitiin eri prosessivaihtoehtojen etuja ja haittoja kvalitatiivisesti. Yhteenveto tarkastelujen tuloksista esitetään taulukossa 3.

*Taulukko 3. Eri leijukerrosmenetelmien kvalitatiivinen vertailu. Taulukossa vihreä väri kuvastaa edullista vaikutusta ja hyötyä ja punainen epäedullista vaikutusta.*

	Höyrykaasutus/epäsuora lämmöntuonti	Happi/höyrykaasutus yksi leijureaktori	Ilmakaasutus
Kaasutusvaiheen hiilikonversio	75–85 %	93–98 %	93–98 %
Kemiallinen hyötysuhde (kaasu+terva)	70–78 %	75–80 %	70–78 %
Raakakaasun H <sub>2</sub> /CO-suhde	0,8–1,2	0,8–0,9	0,6–0,8
N <sub>2</sub> -pitoisuus	< 5 %	< 5 %	50 %
Hiilivetyjen kokonaispitoisuus	> 15 til-%	9–12 %	5–9 %
Hiilikonversio tervaksi, %	> 10 %	< 5 %	< 5 %
Suodatuksen toimintavarmuus	??	?	ok, tunnetaan rajat tunnetaan
Reformerin toimintavarmuus	??	?	rajat tunnetaan
Reformoidun kaasun laatu ja soveltuvuus eri käyttökohteisiin	hyvä soveltuu kaikkiin	melko hyvä soveltuu kaikkiin	laiha kaasu erittäin rajallinen
Kaasutuslämpötila	650–750 °C	750–850 °C	800–850 °C
Kaasutusaine, bar-a	1–5	5–30	1–30
Poltoreaktorin lämpötila	800–850 °C	-	-
Maksimikoko/kaasutusreaktori, MW	100–200 ?	200–400	100–400
Tuhkan sintraantumisherakkyys	poltoreaktorissa rajoittaa lämpötilaa	rajoittaa kaasutuslämpöt. selvitetävää kokeilla	hallitaan rajat tunnetaan
Hapen tarve	tarvitaan reformerissa	kaasutus + reformeri	ei tarvita
Järjestelmän yksinkertaisuus	kaksi leijureaktoria ja niiden väliset virrat	yksinkertainen kaasutin	yksinkertainen kaasutin suuret kaasuvolyymit jälkiprosessit suuria
Olemassa oleva kokemuspohja	hyvin vähäinen	kohtuullinen	suuri
Tekniset riskit	kaasutusvaiheen konversio kaksoisleijun kytkentä polttovaiheen tuhkan käyttäytyminen	tuhkan käyttäytyminen saattaa rajoittaa PA-pohjaa selviää kokeissa	vähäiset

Tehtyjen tarkastelujen pohjalta todettiin, että ilmakaasutus soveltuu parhaiten sähköntuotantoprosesseihin, kuten kombivoimaloihin, ja tulevaisuudessa ehkä myös polttokennovoimaloihin. Näissä sovelluksissa tuotekaasun puhdistuksen tulee tapahtua mieluiten kuumana, jolloin prosessi on yksinkertaisempi ja kokonaishyötysuhde parempi kuin perinteisiä kylmäpuhdistusmenetelmiä käytettäessä. Kuumapuhdistuksen merkitys korostuu ilmakaasutuksessa, jossa kaasuvolyymit

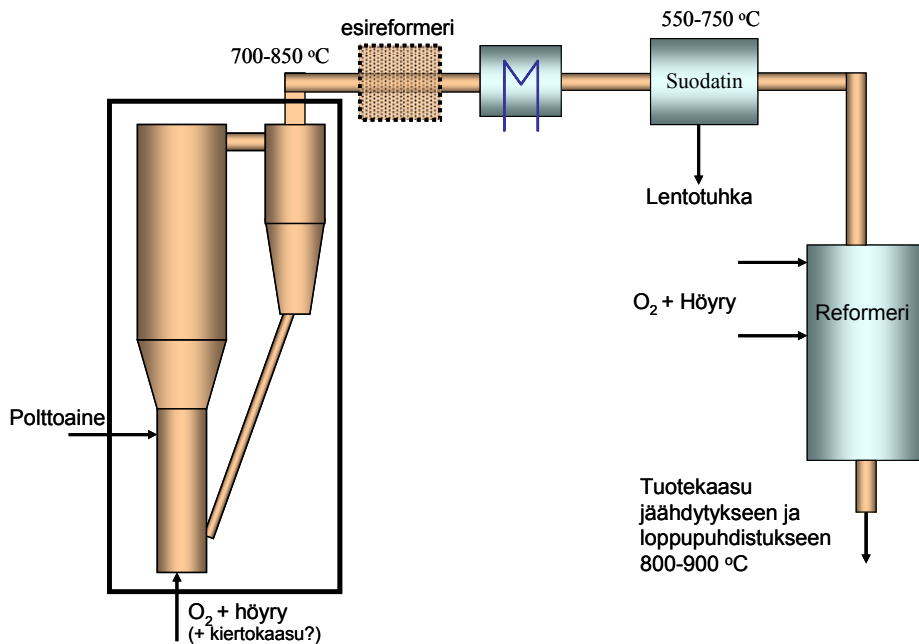
ovat suuria ja suurempi osa polttoaineen energiasta on kaasun tuntuvana lämpönä. Periaatteessa ilmakaasutuksen tuotekaasua voitaisiin ehkä käyttää myös joissakin synteesisovelluksissa, mutta suurten kaasuvolyymien takia kaasun loppupuhdistus- ja synteasilaitteista tulee epäkäytännöllisen suuria. Kustannussyistä ilmakaasutus pitäisi pystyä toteuttamaan synteesisipaineessa, muutoin kaasun komprimointikustannukset entisestään lisäisivät tuotantokustannuksia. Edellä mainituista syistä ilmakaasutusvaihtoehtoja ei projektissa selvitetty pidemmälle.

Kaksoisleijukerrosreaktorissa toteutettu höyrykaasutus ja sen perään kytketty katalyyttinen reformointi näyttivät tehtyjen tarkastelujen valossa mielenkiintoisilta. Tällä prosessilla näytti olevan mahdollista päästä suurin piirtein samaan kaasutuksen kemialliseen hyötysuhteeseen (polttoaineesta raakakaasun palaviksi yhdisteiksi) kuin happi-höyrykaasutuksessa, ja suurena etuna oli luonnollisesti varsin vähäinen hapen kulutus, koska happea tarvittaisiin vain reformointivaiheessa. Prosessin yhtenä etuna on myös alhainen tuotekaasun hiilidioksidipitoisuus ja korkea vety-pitoisuus, koska jäännöshiilen palamisreaktioissa syntyvä hiilidioksidi ei joudu tuotekaasun sekaan, vaan poistuu polttoreaktorin savukaasuina. Projektissa ideoitii lisäksi paranneltua kaksoisleijukerroskaasutinta, jossa myös kaasuttimeen johdetaan pieni ilmasyöttö, ja tällä tavoin saataisiin kaasuttimeen luotua hieman korkeamman lämpötilatason vyöhyke. Tämän vaihtoehdon toteutukseen arvioitiin kuitenkin liittyvän liikaa tuntemattomia kysymyksiä ja teknisiä riskejä, joista merkittävimpinä pidettiin seuraavia: a) kahden leijukerroskoneen toimivuus ja tekniset ratkaisut erityisesti paineistettuina, b) alhaiseen kaasutuslämpötilaan ja korkeaan tervapitoisuuteen liittyvät potentiaaliset ongelmat tuotekaasun suodatuksessa ja reformoinnissa, c) hapetusreaktorin lämpötilaa rajoittavat tuhkan käyttäytymiseen liittyvät ongelmat. Koska tällä kaasutusmenetelmällä ei myöskään ollut saavutettavissa huomattavia etuja paremmin tunnettuun happi-höyrykaasutukseen verrattuna, luovuttiin myös kaksoisleijukerroskaasutuksen jatkokehittämisestä tässä projektissa.

Projektin tutkimus- ja kehitystyön kohteeksi vuodesta 2005 eteenpäin valittiin siis paineistettu happi-höyrykaasutus yhdistettynä tuotekaasun suodatukseen ja katalyyttiseen reformointiin. Tämän kuvassa 13 havainnollistetun vaihtoehdon etuna nähtiin olevan seuraavia tekijöitä:

- Hyvä hiilikonversio on saavutettavissa suhteellisen helposti.
- Tuotekaasu soveltuu kaikkiin projektin kohteena oleviin loppukäyttökoh-teisiin.

- Tuotekaasun tervapitoisuuteen voidaan vaikuttaa kaasuttimen toimintaolosuhteilla, ja siten riskit kaasun suodatuksessa ja reformoinnissa ovat pienet.
- Kaasutusprosessin toiminta on samankaltainen kuin ilma kaasutuksessa, josta Suomessa on paljon kokemusta (ilmanpaineessa ja paineistettuna, pilottilaitteista teollisiin kaasuttimiin, kerrosleiju- ja kiertoleijuratkaisut).
- Happikaasutuksesta on saatavilla kirjallisuustietoja ja omia kokemuksia HTW-kaasutusprosessista Kemiran Oulun turveammoniakkilaitokselta 1980-luvun lopulta.
- Paineistettuna kaasutus voidaan tarvittaessa toteuttaa yhdellä reaktorilla 200–400 MW:n kokoon saakka.
- Teollisiin laitoksiin voidaan edetä vaiheittain (ilma kaasutus → happikaasutus, ilmanpaine → lievästi paineistettu → korkea paine) pohjautuen teollisen mitan kokemuksiin ilmanpaineisista ilma kaasutus ratkaisuisista ja uuteen tietotaitoon paineistetusta happikaasutuksesta.



Kuva 13. Projektin tutkimuskohteeksi valittu kaasutusprosessi.

VTT:n kaasutuskokemuksen perusteella kaasuttimen reaktoriyypiksi valittiin kierto-leijureaktori ja maksimitoimintapaineeksi 9 bar seuraavista syistä:

- Tuhkan käyttäytymiseen liittyvät ongelmat kasvavat ja tuotekaasun reformointi vaikeutuu, jos toimintapaine on yli 9 bar. Myös polttoaineen syöttö ja tuhka-irtojen poisto on hankalampaa korkeassa paineessa.
- Jo 5 barin paineistus säästää huomattavasti komprimointikuluja ja pienentää laitteiden mittoja verrattuna ilmanpaineisiin laitteisiin.
- Kiertopetikaasutin on osoittautunut varmatoimiseksi ja on helposti skaalattavissa projektin kohteena oleviin kokoluokkiin.
- Kiertopetireaktorissa voidaan VTT:n kokemuksen mukaan helpommin välttää tuhkan aiheuttamat pedin sintraantumiseen ja kerrostumien muodostumiseen liittyvät ongelmat kuin kerrosleijureaktorissa.
- Kiertopetireaktorissa, jossa polttoaine syötetään nousevaan kiertovirtaukseen kiinteämmän petiosan yläpuolelle ja jäännöshiili palautetaan kiertomassan mukana reaktorin alaosaan, päästään runsaasti haihtuvia aineita sisältävillä biomassoilla yleensä parempaan hiilikonversioon kuin kerrosleijureaktorissa, jossa happi helposti reagoi pedissä polttoaineesta vapautuvien pyrolyysikaasujen kanssa.

Kuvan 13 mukaisessa prosessissa termodynaamisesti parhaaseen tulokseen päästään, jos kaasutus voidaan toteuttaa mahdollisimman alhaisessa lämpötilassa, tuotekaasua ei tarvitsisi jäähdyttää ennen suodatusta ja reformeri toimisi mahdollisimman alhaisessa lämpötilassa.

Käytännössä kuitenkin kaasutuslämpötila joudutaan valitsemaan hiilikonversion ja tuotekaasun suodatettavuuden perusteella ja suotimen korkein mahdollinen toimintalämpötila valitaan toisaalta suotimen rakenneratkaisujen ja toisaalta tarvittavan alkali- ja raskasmetallien pidätystehokkuuden perusteella. 1990-luvun paineistetun kaasutustutkimuksen perusteella suodatuslämpötilan valintaa rajoittaa myös tervojen ja noen aiheuttama tukkeutumisriski [5]. Tämän riskin takia projektin koelaitteessa varauduttiin myös raskaiden tervojen esireformointiin ennen kaasun suodatusta. Hiukkasia sisältävän kaasun esireformointia on VTT:ssä aiemmin kehitetty ilmakaasutuksen moottorisovelluksiin [6].

### 3. Tuotekaasun reformoinnin laboratoriotutkimus

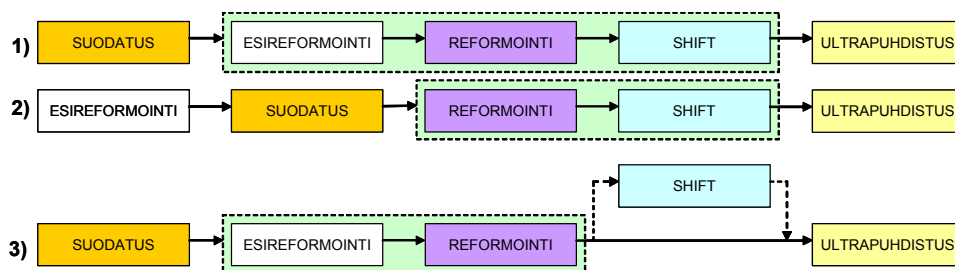
#### 3.1 Tutkitut prosessikonseptit

Synteesikaasu- ja polttokennosovelluksissa hiilivetyjen reformoinnilla on aiempia kaasutussovelluksia keskeisempi merkitys koko konseptin toimivuudelle ja saavutettavalle hyötysuhteelle. Terveiden täydellinen poistaminen on välttämätöntä sekä loppupuhdistuslaitteiden ja kaasun komprimoinnin että synteesien ja polttokennojen toiminnan kannalta. Tervet ja hiilivedyt voidaan poistaa kemianteollisuudesta tunnettujen erotusprosessien avulla, mutta silloinkin ne edustavat merkittävää vety- ja hiilihäviötä ja pienentävät synteesikaasusaantoa oleellisesti.

Ideaalitapauksessa reformointiprosessi täyttäisi seuraavat vaatimukset:

- soveltuu raakakaasulle, jonka hiilivety- ja tervapitoisuus on korkea
- tervojen ja  $C_2$ - $C_6$ -hiilivetyjen konversio on täydellinen
- mahdollisimman suuri osa metaanista ja ammoniakista reformoituu tai hajoaa
- ei hiilen kertymistä eikä rikin tai kloorin aiheuttamaa myrkyttymistä
- mahdollisimman korkea tuotekaasun  $H_2/CO$ -suhde, jota säädetään vesikaasureaktion avulla shift-yksiköllä (luku 3.5).

Tehtyjen teknistaloudellisten tarkastelujen ja projektin alkuvaiheessa saatujen koetulosten perusteella tarkasteltavat reformointi- ja shift-yksiköiden kytkennät rajattiin kuvassa 14 esitettyyn kolmeen prosessikonseptiin.



Kuva 14. Tarkastelussa mukana olleet konseptit reformointi- ja shift-yksiköiden kytkemiseksi.

Vaihtoehdossa 1) ja 3) kaasu suodatetaan ennen kaasun johtamista reformeriin. Pölytön syöttökaasu mahdollistaa tiheän kennon tai pakatun pedin käyttämisen, jolloin reaktorin kokoa voidaan pienentää verrattuna harvempaan pölypitoiselle kaasulle suunniteltuun kennoreaktoriin. Vaihtoehdossa 1) reformointi- ja shift-vaiheet on järjestetty samaan reaktoriin, vaihtoehdossa 3) sen sijaan vain reformointivaiheet ovat samassa. Vaihtoehto 3):ssa osa kaasusta johdetaan reformoinnin jälkeen tarvittaessa shift-reaktoriin kaasun  $H_2/CO$ -suhteen korjaamiseksi. Vaihtoehdossa 2) oletetaan, ettei tervapitoisen kaasun suodatus onnistu ilman, että suodattimet tukkeutuvat. Tämän estämiseksi pölypitoisesta kaasusta hajotetaan raskaimmat tervayhdisteet erillisessä esireformerissa ennen suodatinta.

Kaikissa tarkastelluissa konsepteissa yhteisenä piirteenä on, ettei niissä tarvita rikinpoistoa ennen reformointia ja CO-shiftiä, eli kyseessä ovat ”likaisen” kaasun reformointi ja ns. ”likainen” shift. Rikin- ja muiden epäpuhtauksien poisto on oletettu tapahtuvan vasta ultrapuhdistusvaiheessa. Tästä syystä tutkimukseen valittujen katalyyttien rikinsietokykyyn kiinnitettiin erityistä huomiota.

### 3.2 Katalyyttisen reformoinnin laboratoriokeet

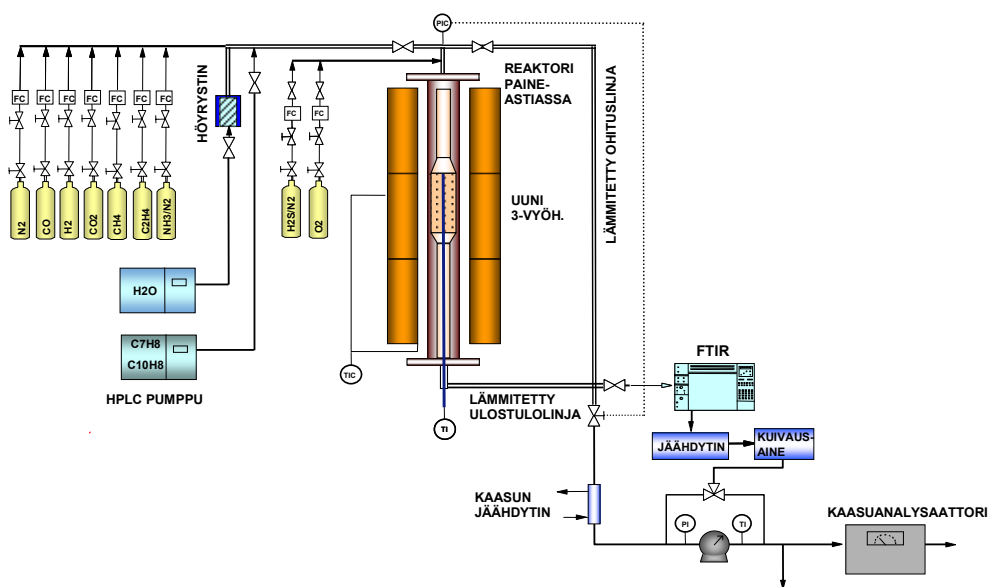
Laboratoriokekein tehdyn tutkimuksen tavoitteena oli luoda tarvittavaa pohjatietoa synteesikaasuprosessin kannalta optimaalisen katalyyttisen kaasunkäsittelyprosessin ideoinnille ja PDU-laitteistolla toteutettavalle kehitystyölle. Työ toteutettiin rinnakkain teknistaloudellisten tarkastelujen kanssa ja koesuunnitelmaa tarkennettiin ja laajennettiin laskennassa saatujen tulosten perusteella.

VTT:n osatehtävän tavoitteena oli tutkia laboratoriomitan koelaitteilla

- kuinka lähelle termodynaamista tasapainoa ”likaisessa” reformoinnissa päästään
- kuinka lähelle tasapainoa päästään ”likaisessa” shiftissä
- kuinka lähelle tasapainoa reformoinnissa ja shiftissä päästään, kun rikki on poistettu tasolle 0–5 ppm
- esireformoinnin tehokkuus: onnistuuko reformointi tai suodatus sen jälkeen.

Työn tulosten perusteella tarkoituksena oli kyetä rajaamaan teknisesti mahdolliset prosessikonseptit jatkokehitystä varten.

Kokeet suoritettiin paineistetulla putkireaktorilla (kuva 15), jolla voitiin tutkia sekä kenno- että palamaisia katalyyttejä. Reaktori oli kvartsiputki, jossa oli tila katalyyttinäytteelle ja termoelintasku. Kvartsiputki puolestaan oli asennettu uunin sisällä olevaan painekuoreen. Reaktoriin voitiin syöttää kaasutuskaasua simuloivaa kaasuseosta, jossa oli myös mukana tervan malliaine (tolueeni-naftaleeni-seos). Kaasun koostumuksen mittaukseen käytettiin jatkuvatoimista kaasuanalysaattoria (CO, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>) ja FTIR-mittalaitetta (bentseeni, tolueeni, naftaleeni, NH<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O). Tutkimuksissa käytetyt simuloidut kaasutuskaasuseokset esitetään taulukossa 4.



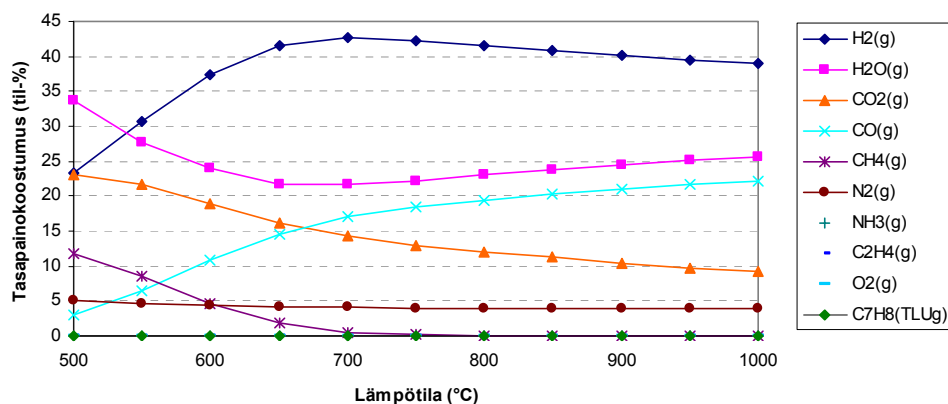
Kuva 15. Katalyyttitutkimuksessa käytetty paineistettu koelaitteisto.



Taulukko 4. Tutkimuksissa käytetyt simuloidut kaasutuskaasuseokset. Seokset A vastaavat vesihöyrykaasutuksen tuotekaasun koostumusta, seokset B happikaasutuksessa saatavaa tuotekaasua. Koostumukset perustuvat VTT:n arvioon.

Kaasu	N <sub>2</sub> t-%	CO t-%	CO <sub>2</sub> t-%	CH <sub>4</sub> t-%	H <sub>2</sub> t-%	O <sub>2</sub> t-%	C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> ppm	NH <sub>3</sub> ppm	H <sub>2</sub> S ppm	vesi g/m <sup>3</sup> n	terva g/m <sup>3</sup> n
A1 vesihöyry- kaasutus	7,8	25	20	10	35	0	20000	2000	100	300–538	20
A2 vesihöyry- kaasutus	4,4	25	20	10	35	3	20000	2000	100	538	20
B1 happikaasutus		25	20	10	35	0	5000	2000	120	538	5
B2 happikaasutus		25	20	10	35	3	5000	2000	120	538	5

Tutkittujen kaasuseosten termodynaaminen tasapainokoostumus laskettiin eri katalyyteillä saatavien reformointikoetulosten arviointia varten. Laskentaan käytettiin Outokumpu HSC 5 -ohjelmaa. Kaasuseoksella A1 saatu tulos esitetään kuvassa 16.



Kuva 16. Kaasuseos A1:n tasapainokoostumus lämpötilan funktiona.

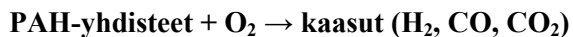
Koetoiminta jaettiin kuvassa 14 esitettyjen prosessikonseptien mukaisesti esireformointi-, reformointi- ja shift-vaiheisiin liittyviin osatehtäviin. Tutkimuksessa käytetyt esireformointi-, reformointi- ja shift-katalyytit esitetään taulukossa 5.

Taulukko 5. Tutkitut katalyyttinäytteet sekä valmistaja ja katalyyttityyppi.

Esireformointi	Reformointi	Shift
VTT/TKK ZrO <sub>2</sub> pinnoitettu kenno	BASF G1-25S, murskattu pelletti, Ni-katalyytti	Süd-Chemie kenno SC-S
VTT/TKK omat jalometallikatalyytit	Süd-Chemie kenno SC-A  G-90 EW, muotoon puristettu palamainen Ni-katalyytti	BASF-kennoja 1) Cu Zeolite 2) CuO/TiO <sub>2</sub> 3) CuO/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 4) MoO <sub>3</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
	BASF nikkelikkenno	
	VTT/TKK omat jalometallikatalyytit	

### 3.3 Esireformointi

Esireformoinnissa raskaimpien tervan sisältämien yhdisteiden, jotka ovat yleensä polyaromaattisia hiilivetyjä (PAH), oletetaan hapettuvan kaasumaisiksi komponenteiksi (CO, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O):



Esireformointikatalyyttinä tutkittiin zirkoniumoksidikatalyyttejä, joiden on havaittu hajottavan raskaimpia aromaattisia yhdisteitä. Zirkoniumkatalyyttien käyttö kaasutuskaasun puhdistamiseen on VTT:n keksintö, joka on suojattu kansainvälisin patentein. Katalyyttien kehityksestä kaasutusprosesseihin on vastannut VTT, jota TKK on avustanut.

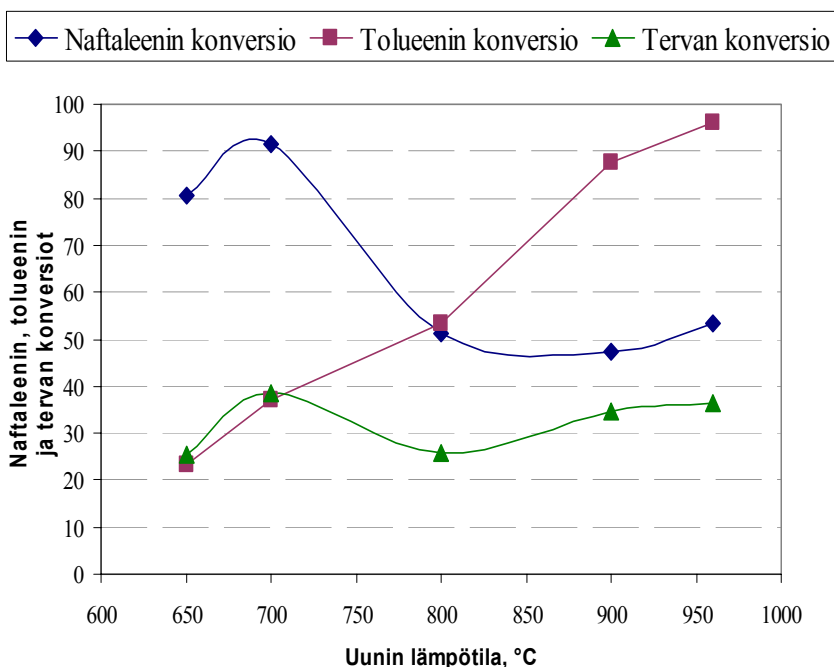
Zirkoniumoksidikatalyyttien keskeiset ominaisuudet:

- raskaat tervayhdisteet hajoavat
- ylin käyttölämpötila 950 °C
- käyttökokemusta kaasutusprosesseista.

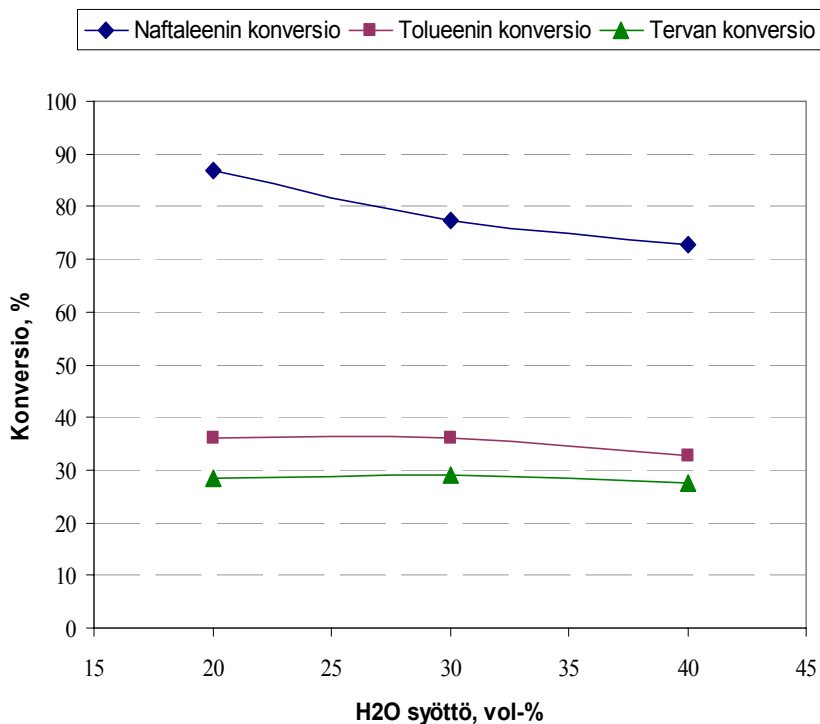
Tutkittu olosuhdealue:

- paine 1–5 bar
- lämpötila 600–900 °C
- vaihtuma (space velocity, SV) 5000, 10 000, 25 000 1/h
- kaasun vesipitoisuus 20, 30 ja 40 vol-%.

Esireformointikatalyyteillä tehdyissä kokeissa voitiin todeta, että katalyytti toimii sille asetettujen tavoitteiden mukaisesti: raskaimpien tervayhdisteiden (malliaine naftaleeni) konversio oli yli 80 % lämpötila-alueella 650–750 °C. Koetulos esitetään kuvassa 17. Katalyytin voi näin ollen olettaa hajottavan raskaimpia tervayhdisteitä esireformointivaiheessa ja vähentävän koksautumisriskiä varsinaisessa reformointivaiheessa. Kaasun pääkomponenttien suhteen kaasun koostumus pysyi lähes muuttumattomana koko tutkitulla olosuhdealueella.



Kuva 17. Naftaleenin, tolueenin ja tervan malliaineen konversio lämpötila-alueella 650–960 °C, paine 1 bar, kaasun virtaus  $2 \text{ dm}^3/\text{min}$ . Zirkoniumkatalyytti, SV [1/h] 3300. Kaasuseos A2.

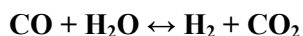
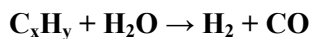


Kuva 18. Kaasun vesipitoisuuden vaikutus naftaleenin, tolueenin ja tervan konversioon 700 °C lämpötilassa, paine 1 bar, kaasun virtaus 2 dm<sup>3</sup>/min. Zirkoniumkatalyytti. Kaasuseos A2.

Kaasun vesipitoisuus vaikutti tervan raskaiden komponenttien konversioon. Vesipitoisuuden suurentaminen pienensi havaittua naftaleenin konversiota (kuva 18). Paineen ei sen sijaan havaittu vaikuttavan yhtä merkittävästi malliaineiden konversioihin.

### 3.4 Reformointi

Reformoinnissa pääreaktiotyyppi on hiilivetyjen reaktio veden kanssa, minkä tuotteena saadaan vetyä ja hiilimonoksidia. Lisäksi reaktioissa on aina mukana myös vesikaasun shift-reaktio, jota reformointikatalyytit katalysoivat.

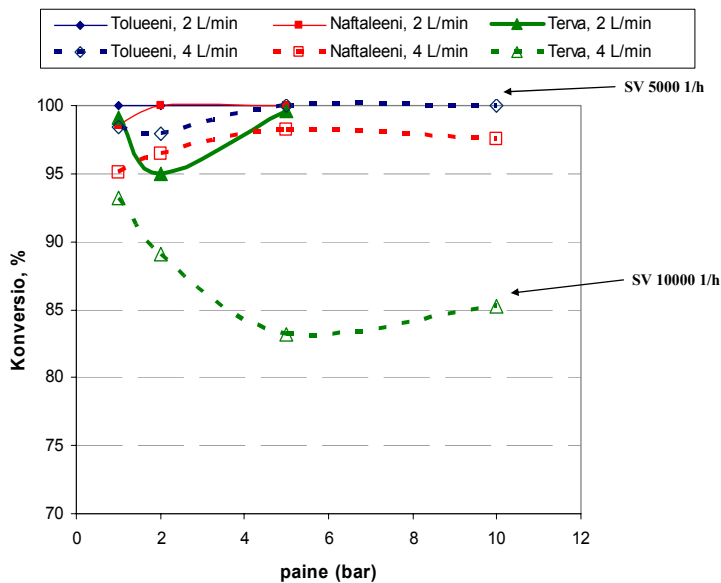


Yleisin reformointikatalyytti on nikkeli, joka on lisätty kantajamateriaalin pinnalle. Kantaja voi olla esim. alumiinioksidi. Uutena katalyyttityyppinä tutkittiin myös jalometallikatalyyttejä, jotka koetulosten perusteella vaikuttavat lupaavalta vaihtoehdolta. Tutkitut katalyyttityypit esitetään taulukossa 5.

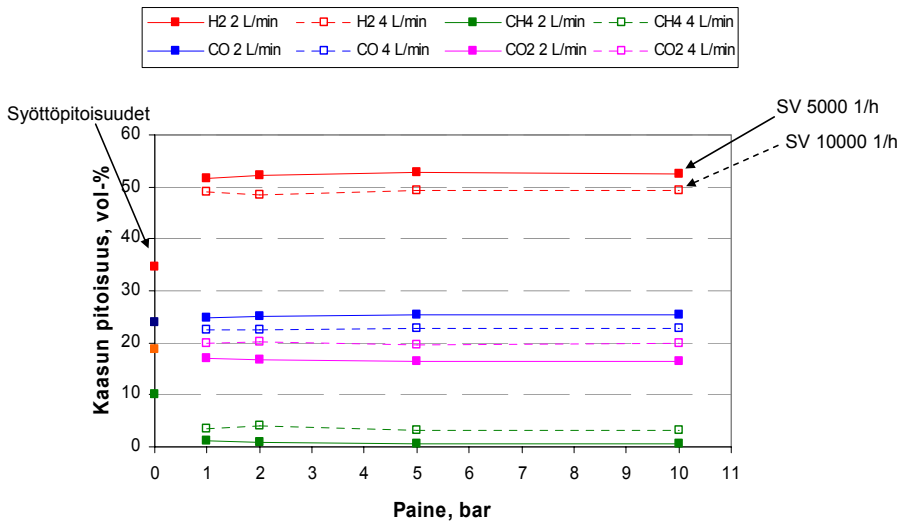
Reformointikatalyyteillä tutkittu olosuhdealue:

- paine 1–10 bar
- lämpötila 600–950 °C
- vaihtuma (space velocity, SV) 5000, 10 000, 25 000 1/h.

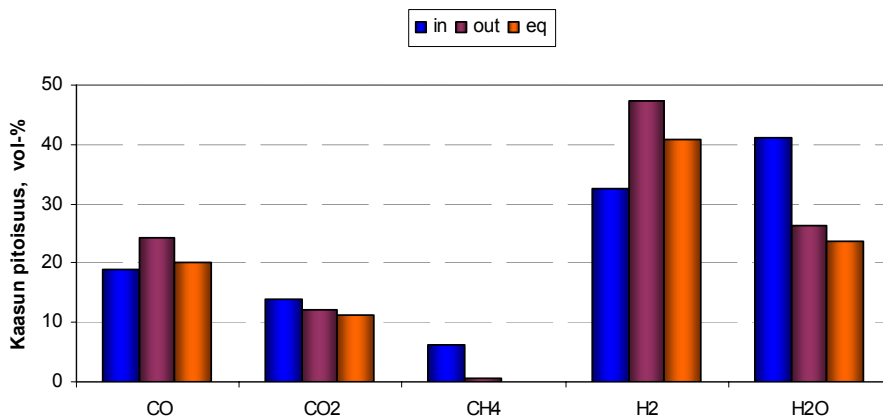
Jalometallikatalyytit olivat nikkelikatalyyttejä aktiivisempia sekä tervan malliaineen reformoitumisen että kaasun konvertoimisen suhteen. Süd-Chemien jalometallikatalyytillä saavutettiin korkeimmat tervan malliaineen konversiot koko tutkittulla olosuhdealueella ja päästiin kaasun suhteen kaikkein lähimmäs termodynaamista tasapainokoostumusta (kuvat 19, 20 ja 21). Kaasun viipymääjan (vaihtuman) vaikutus konversioihin oli merkittävä. Kaasun vaihtuman tulee olla riittävän pieni, jotta saavutetaan mahdollisimman korkea raskaimpien tervayhdisteiden ja erityisesti metaanin konversio. Reformoidun kaasun  $H_2/CO$ -suhde oli lähes tavoitteen mukainen 850–900 °C:n lämpötilassa ( $H_2/CO = 2$ ) (kuva 20).



Kuva 19. Paineen vaikutus tervan malliaineen konversioon vaihtuma-arvoilla 5000 ja 10 000 1/h. Lämpötila 910 °C, jalometallikennokatalyytti. Kaasuseos A2.



Kuva 20. Paineen vaikutus kaasun koostumukseen vaihtuma-arvoilla 5000 ja 10 000 1/h. Lämpötila 910 °C, jalometallikennokatalyytti. Kaasuseos A2.



Kuva 21. Kaasun koostumus jalometallikennokatalyytillä 850 °C:n lämpötilassa, paine 1 bar, ja termodynaaminen tasapainopitoisuus näissä olosuhteissa. Kaasuseos A1 (eq: tasapaino).

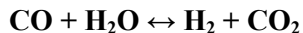
Testauksessa käytetyt nikkelikatalyytit eivät reformoineet keveitä hiilivetyjä ja metaania yhtä tehokkaasti kuin jalometallikatalyytit. Tervejen suhteen aktiivisuus oli samaa luokkaa. Hiilen kertyminen paineessa vaikutti nikkelikatalyyteillä ongelmallisemmalla kuin jalometallikatalyyteillä.

Jalometallikatalyyttien toiminnasta voidaan todeta yhteenvetona seuraavaa:

- erittäin aktiivisia tervojen reformoinnissa
- tuotekaasulla saavutettavissa  $H_2/CO > 2$  ja metaanipitoisuus  $< 1$  vol-%
- ammoniakki ei hajoa
- paineessa vaihtuman (SV-arvo laskettuna NTP:ssä) oltava sama kuin ilmanpaineessa
- ylin käyttölämpötila  $950\text{ °C}$
- kestää oikeita kaasuja (alustava kestopesti tehtiin projektissa, n. 50 h).

### 3.5 Shift-konversio

Shift-konversiolla tarkoitetaan vesikaasun konvertointireaktiota, joka vaikuttaa kaasun vety-hiilimonoksidisuhteeseen:



Mikäli reformointivaiheen jälkeen  $H_2/CO < 2$ , tarvitaan vielä shift-vaihe esim. konseptin 3) mukaisesti ennen kuin kaasu puhdistetaan FT-synteesiä varten.

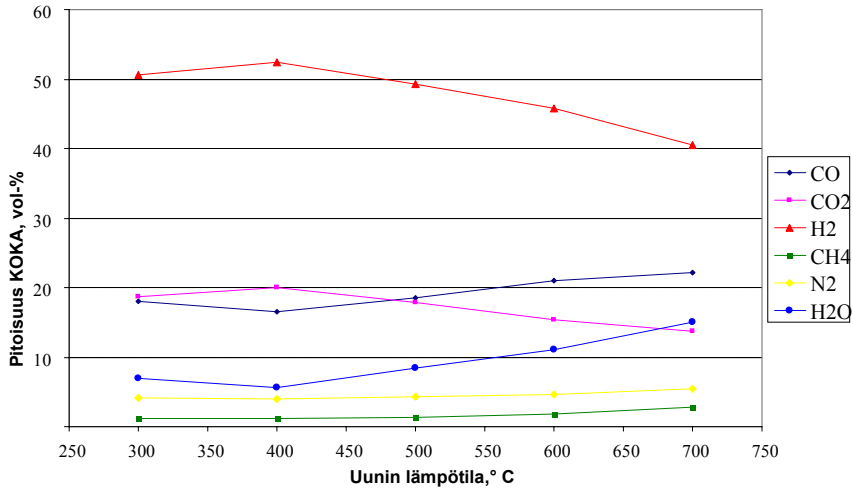
Katalyytteinä testattiin uudentyyppisiä kennokatalyyttejä, jotka soveltuvat käytettäväksi ns. ”dirty shift” -reaktiossa. Tämä tarkoittaa lähinnä sitä, että kaasussa voi olla huomattavan paljon (kymmeniä tai satoja ppm:iä) rikkivetyä.

Shift-katalyyteillä tutkittu olosuhdealue:

- vesipitoisuuden vaikutus: 20 vol-%
- paine 1–5 bar
- lämpötila 300–700 °C
- vaihtuma (space velocity, SV) 5000, 10 000, 25 000 1/h
- syöttökaasu: kaasuseos, joka vastasi jalometallikatalyytillä saatavaa reformoitua kaasua, kun syöttökaasuna oli seos A2.

Kaikkein aktiivisimmalla shift-katalyytillä kaasun vety-hiilimonoksidisuhdetta voitiin optimiolosuhteissa nostaa arvosta 2 arvoon 3. Näin ollen konseptin 3) mu-

kainen  $H_2/CO$ -suhteen korjaus esim. erillisessä shift-reaktorissa olisi mahdollinen. Kuvassa 22 on esimerkkituloksena kaasun koostumus eri lämpötiloissa 5 bar paineessa Süd-Chemien katalyytillä.



Kuva 22. Kostean kaasun (KOKA) koostumus Süd-Chemien shift-katalyytillä lämpötilan funktiona kun paine 5 bar. Syöttökaasuna oli reformerin ulostulokaasu, kun käytettiin kaasuseosta A2.



## 4. Prosessinkehityslaitteiston suunnittelu ja rakentaminen

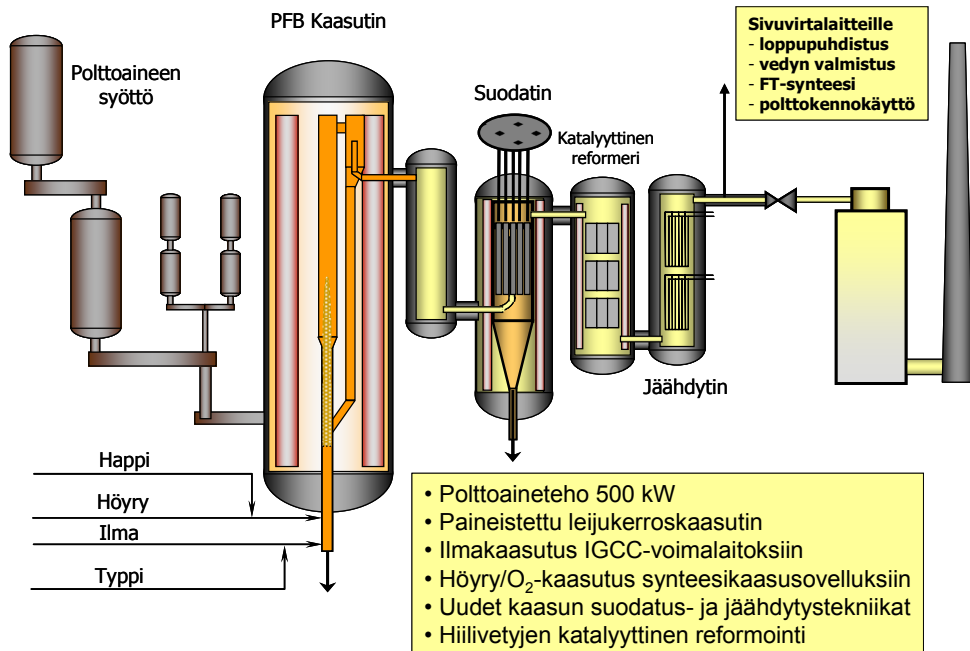
Vuoden 2005 alussa päätettiin, että VTT:n kaasutuskoehalliin sijoitettavalla prosessinkehityslaitteistolla (UCG-PDU) pyritään tutkimaan ja kehittämään pääasiassa kuvassa 13 kuvattua kaasutusprosessia. Lisäksi koelaitteen haluttiin soveltuvan ilmakaasutuksen tutkimustehtäviin, mm. VTT:n EU-projektin BIGPOWER tarpeisiin. Koelaitteen suunnittelun lähtökohdiksi otettiin edellä kuvattujen prosessin tavoitteiden ohella seuraavia reunaehtoja:

- Sijointipaikaksi valittiin VTT:n vanhan paineistetun ilmakaasutuslaitteen paikka. Laitteen korkeuden takia koehalliin tarvittiin katon läpivienti ja sen suojarakenteet.
- Koelaitteessa oli kustannussyistä hyödynnettävä vanhoja komponentteja mahdollisuuksien mukaan: ilmakompressori, höyrynkehitin, polttoaineen syöttösiilot ja kaasujen hävitysyksikkö. Näistä syistä koelaitteen maksimitehoksi valittiin noin 500 kW.
- Lämpöhäviöiden kompensoimiseksi kaasutin, suodatin ja reformeri toteutettiin siten, että sisäreaktorit tehtiin tulenkestävästä teräksestä ja asennettiin sähkölämmitteisten uunien sisään. Lämpöeristetty uuni asennettiin varsinaisen painevaipan sisään. Tämän ratkaisun takia jouduttiin kaikki astiat varustamaan sisä- ja vaippatilan paineen säädöillä, vaippakaasun vuotojen valvonnalla sekä vaippatilan jäähdytyksellä.
- Laitteiston monimutkaisuuden takia päätettiin, että se on varustettava logiikkaohjauksella, joka mahdollistaa eri toimintojen automatisoinnin ja turvallisuusmielessä tarvittavat lukitukset ja muut automaattiset toiminnot.

Koelaitteen rakentaminen ja asennukset tapahtuivat vuosina 2005–2006, ja laitteiston käyttöönotto tapahtui loppuvuodesta 2006, yli puoli vuotta alkuperäistä epärealistiseksi osoittautunutta aikataulua myöhemmin. Koelaitteen parantaminen ja kehittäminen jatkui myös toteutettujen koejaksojen välisinä aikoina ja jatkuu myös koko laitteiston käyttöajan ajan, mikä on tyypillistä tämän kaltaisille prosessinkehityslaitteille. Laitteiston detaljisuunnitteluun ja rakentamiseen käytettiin myös VTT:n investointirahoitusta ja muuta VTT:n omaa rahoitusta. Tässä julkaisussa kuvatun UCG-projektin puitteissa varusteltiin laitteisto synteetikaasukäyttöön soveltuvaksi sekä tehtiin pääosa asennus- ja käyttöönottoehtävistä.

Kaasutuskoelaitteisto esitetään kuvassa 23. Koelaitteen keskeinen osa on noin 11 metriä korkea, halkaisijaltaan 1,6 metriä oleva paineastia, jonka sisään kaasutin, kiertosykloni ja kiertomassan paluulinja sekä niiden ympärille rakennettu lämmitys-uuni on sijoitettu. Seuraavassa astiassa on tilat varattu esireformerille ja kaasun jäädyttimelle, josta kaasu johdetaan kuumasuodatukseen. Suodatettu kaasu virtaa reformeriasiastaan, joka on toteutettu siten, että erilaisia katalyyttejä voidaan tarpeen mukaan tutkia sisäastiaa modifioimalla. Lopulta reformoitu tuotekaasu johdetaan lämmönvaihtimen kautta paineenalennukseen ja kaasujen hävitykseen.

Tuotekaasusta voidaan ottaa joko suodattimen tai reformerin jälkeen pieni sivuvirta muihin kaasunpuhdistuksen tutkimuslaitteisiin ja myöhemmin myös pieneen FT-reaktoriin, joka on rakennettu ja kehitetty VTT:n omarahoitteisessa projektissa.



Kuva 23. Paineistettu kaasutuksen prosessinkehityslaitteisto, VTT Otaniemi.

## 5. PDU-koetoiminta

### 5.1 Tehdyt koeajot

Koelaitteistolla (kuvassa 24) tehtiin projektissa kaikkiaan neljä koeajoa, joista ensimmäinen, viikolla 45/2006 toteutettu koe oli luonteeltaan esikoe (ks. taulukko 6). Koeajon aikana huomattiin, että kaasutusreaktorin painevaipan lämpötila nousee paineistetussa käytössä liian suureksi. Tämän jälkeen painevaipan yläosaan asennettiin vesikäyttöinen lämmönvaihdin ja vaippatilan kaasulle kiertolinja. Myös sisäreaktorin eristystä paranneltiin.



*Kuva 24. VTT:n paineistettu koelaitte (UCG-PDU).*

Viikon 4/2007 kokeessa testattiin uusien laitemuutosten toimintaa, siirryttiin paineistettuun kaasutukseen ja tehtiin ensimmäinen happikaasutuksen koejakso. Koeajossa saatiin jo mittausdataa kaasutus-, suodatus- ja reformointiprosessin

toimivuudesta sekä paineistettuna ilma- että happikaasutuksena. Reformerissa oli tässä kokeessa vielä vastaavat kaupalliset nikkelikennot, joita oli käytetty aiemmissa ilmakaasutushankkeissa, ja esireformointiin käytettiin VTT:n omia kennoja.

*Taulukko 6. Projektissa toteutuneet PDU-koeajot.*

vko 45/2006	<ul style="list-style-type: none"> <li>• koelaitteen käyttöönotto, kaasutin+suodatin+reformer</li> <li>• koejakso ilmanpaineessa ilmakaasuttimena, puupelletti polttoaineena</li> <li>• vain yksi reformeriblokki käytössä (Zr+nikkelikeno)</li> <li>• muutostarpeita paineistettua ajoa varten (mm. painekuoren jäähtyminen)</li> </ul>
vko 4/2007	<ul style="list-style-type: none"> <li>• paineistettu kaasutus, puupelletti polttoaineena, hiekka ja kalkki tai dolomiitti petimateriaalina</li> <li>• kaksi koejaksoa, joista toinen ilmakaasutus ja toinen happihöyrykaasutus</li> <li>• reformerissa kaksi vyöhykettä, molemmissa Zr- ja nikkelikennot (vain toinen toimi kunnolla)</li> </ul>
<b>vko 10/2007</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• koeajoa ennen reformeriin asennettiin uusi katalyyttilataus: Zr- ja jalometallikennot</li> <li>• paineistetun kaasutuksen peruskoeajo puupelletillä ja metsätähdemurskeella</li> <li>• kuusi koejaksoa, kaksi ilmakaasutuksella ja neljä happikaasutuksella, suoritettiin perusmittaukset</li> <li>• kaasutus-, suodatus- ja reformointiprosessit toimivat ongelmitta</li> </ul>
<b>vko 16/2007</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• jatkettiin viikon 10/2007 laitekoonpanolla ja täydennettiin koedataa</li> <li>• kolme koejaksoa turpeella ja yksi puupellettimurskeella, kaksi happikaasutuksena ja kaksi ilmakaasutuksena</li> <li>• kaasutus-, suodatus- ja reformointiprosessit toimivat ongelmitta</li> <li>• laajat mittaukset: tervat, typpiyhdisteet ja rikkikaasut</li> </ul>

Ennen viikkojen 10/2007 ja 16/2007 koeajoja reformeriin asennettiin aiemmin laboratoriokokeissa testattu esikaupallinen jalometallikatalyytti SC-A ja esireformointiin käytettiin VTT:n omia Zr-pohjaisia katalyyttejä.

Kaasun kuumasuodattimessa käytettiin kaikissa koeajoissa keraamisia kynttilä-suodattimia, jotka olivat peräisin VTT:n aiemmista ilmakaasutuksen koeajoista. Suodatinastiaa ei ollut tarpeen avata koeajojen välisinä aikoina ja suodatusprosessi ja keraamiset suotimet toimivat koko koesarjan ajan moitteettomasti, lukuun ottamatta koeajoissa 45/2006 ja 4/2007 havaittua pulssipuhdistuksen toimintaan liittyvää häiriötä (kaikkia suodatinelementtejä ei pulssitettu tehokkaasti). Niinpä suotimen painehäviö oli ensimmäisissä kokeissa normaalia korkeampi. Kun puls-siventtiilien ohjauslogiikkaan liittyvä vika havaittiin ja korjattiin ennen viikon 10/2007 koeajoja, oli suodattimen painehäviön kehitys odotetun rauhallista kokeissa 10/2007 ja 16/2007.

Viikkojen 10/2007 ja 16/2007 kokeet pystyttiin toteuttamaan ilman merkittäviä laiteteknisiä tai prosessin toimivuuteen liittyviä ongelmia. Viikon 10 koeajo oli keskeytyksetön, kun taas viikon 16 ajossa jouduttiin tekemään lyhyt alasajo juuri ennen ensimmäisen tasejakson aloittamista. Syynä tähän alasajoon oli höyrynkehittimen toimintaan liittyvä vika, jonka korjaaminen kesti muutaman tunnin.

## 5.2 Polttoaineet

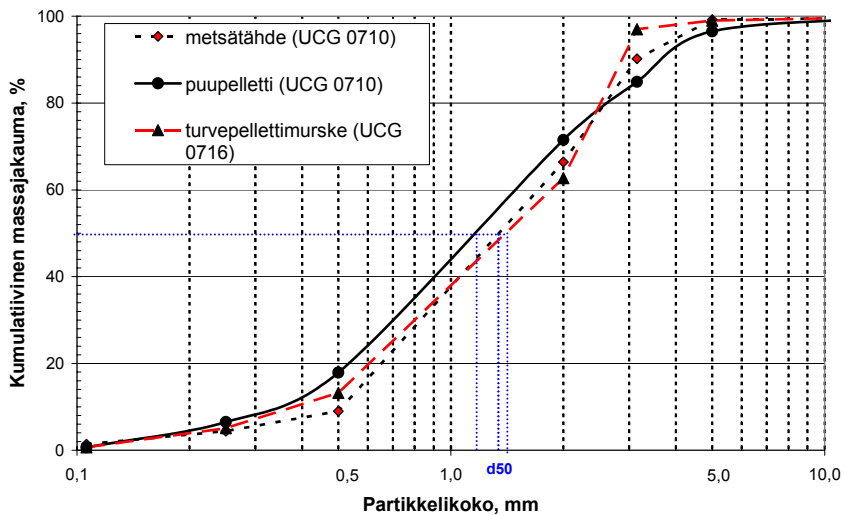
Koeajoissa käytetyt polttoaineet ja niiden analyysitulokset esitetään taulukossa 7. Kuvassa 25 on valokuvat polttoaineista ja kuvassa 26 esitetään polttoaineiden partikkelikokojakaumat. Turvepelletit ja metsätähde oli murskattu jo aiempia tutkimuksia varten [7, 8]. Puupelletit (PP) ajettiin myös murskaimen läpi, jotta raekoko olisi lähempänä todellisen puuraaka-aineen raekokoa.



*Kuva 25. UCG-PDU-koeajoissa käytetyt polttoaineet murskattuina.*

Taulukko 7. UCG-PDU-kaasutuskokeissa käytettyjen polttoaineiden koostumukset.

Koeajo/Tase	UCG0704 (testaus)	UCG 0710 A, B, C, F, G	UCG 0710 H	UCG 0716 A1, A2, B	UCG 0716 C
pv	25.1.2007	6.–8.3.2007	9.3.2007	18.–19.4.2007	20.4.2007
Polttoaine	Puupelletti- murske	Puupelletti- murske	Metsätähde	Turvelletti- murske	Puupelletti- murske
Kosteus, m-%	6,0	6,9	10,4	14,0	7,4
Haihtuvat, m-% (ka)	81,8	83,3	76,8	71,4	82,9
Tuhka, m-% (ka)	0,1	0,2	2,6	2,9	0,4
Alkuainekoostumus, m-% ka					
C	51,1	50,7	51,3	51,0	51,1
H	5,9	6,2	6,1	5,6	6,1
N	0	0,1	0,5	0,9	0,1
S	0,01	0,01	0,05	0,16	0,01
O (erotus)	42,9	42,8	39,5	39,4	42,3
Tuhka	0,1	0,2	2,6	2,9	0,4
Teh. lämpöarvo, MJ/kg (ka)	19,2	19,2	19,7	19,0	19,3

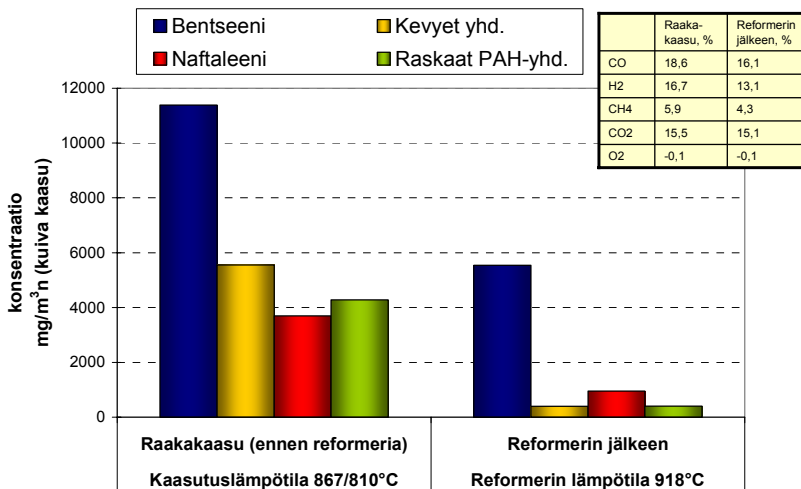


Kuva 26. Polttoaineiden partikkelikokojakaumat koeajoissa.

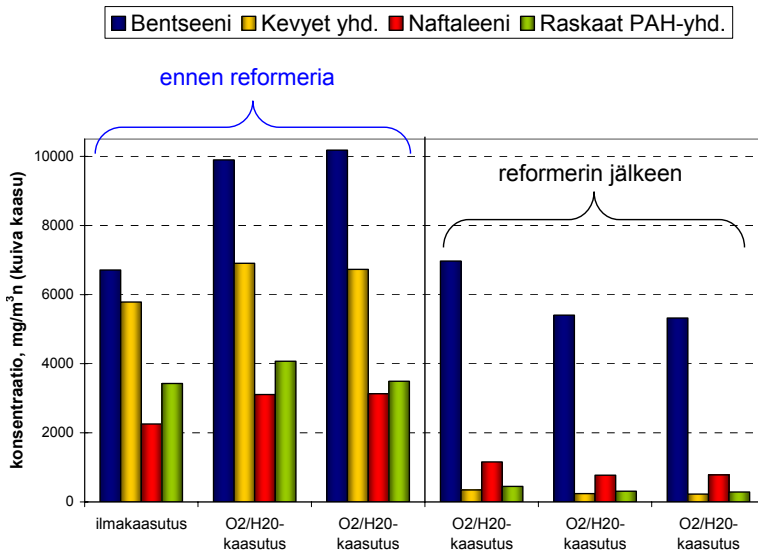
## 5.3 Tulokset

### 5.3.1 Esikokeiden tulokset

Viikkojen 45/2006 ja 4/2007 koeajoissa ei vielä tehty täydellisiä mittauksia, joiden perusteella olisi voitu määrittää prosessin ainetaset ja laskea konversiot ja eri tuotteiden saannot. Jo näissä koeajoissa kuitenkin havaittiin, että kaasutuksen hiilikonversio oli kaikissa jaksoissa korkea (yli 98 %) ja että sekä ilmakaasutus- että happi-höyrykaasutusjaksot voitiin toteuttaa jouhevasti ja myös siirtyminen ilmalta hapelle ja päinvastoin oli helppoa. Kuvissa 27 ja 28 esitetään kokeissa mitatut tuotekaasun tervapitoisuudet ennen reformeria ja reformoinnin jälkeen.



Kuva 27. Viikon 45/2006 esikokeen tuloksia. Ilmanpaineinen ilmakaasutus, reformerissa Zr- ja nikkelikenna ja polttoaineena murskattu puupelletti.



Kuva 28. Viikon 4/2007 koeajossa mitattuja tervapitoisuuksia (paineistettu ilma- ja happikaasutus, Zr- ja nikkelikkenno, polttoaineena murskattu puupelletti).

### 5.3.2 Koeajojen 10/2007 ja 16/2007 tulokset

Projektin varsinaisissa koeajoissa toteutettujen koejaksojen toimintaolosuhteet ja prosessimittausten tulokset on koottu liitteisiin D ja E. Mittaustulosten perusteella laskettiin koejaksojen alkuainetaseet ja niiden perusteella tehtiin muu tulosten laskenta.

Kaasutuksen hiilikonversio määritettiin lentopölyn ja pohjatuhkan punnitustulosten ja analysoitujen koostumusten sekä kaasuttimeen syötetyn polttoaineen sisältämän alkuainehiilen syötön perusteella. Taulukoissa 8 ja 9 esitetään lentopöly- ja pohjatuhkanäytteiden analysoidut koostumukset. Pohjatuhkista analysoitiin vain tuhkapitoisuus ja lopun laskettiin olevan hiiltä (mikä ei tee suurta virhettä, koska tuhkapitoisuudet olivat hyvin korkeita). Taulukoissa esitetään myös koejaksoille määritetyt hiilikonversiot, jotka siis kuvaavat polttoaineen sisältämän alkuainehiilen konversiota kaasutusvaiheessa tuotekaasun yhdisteiden ja tervojen sisältämäksi hiileksi.



*Taulukko 8. Lentotuhka- ja pohjatuhkanäytteiden koostumukset koeajossa UCG 0710.*

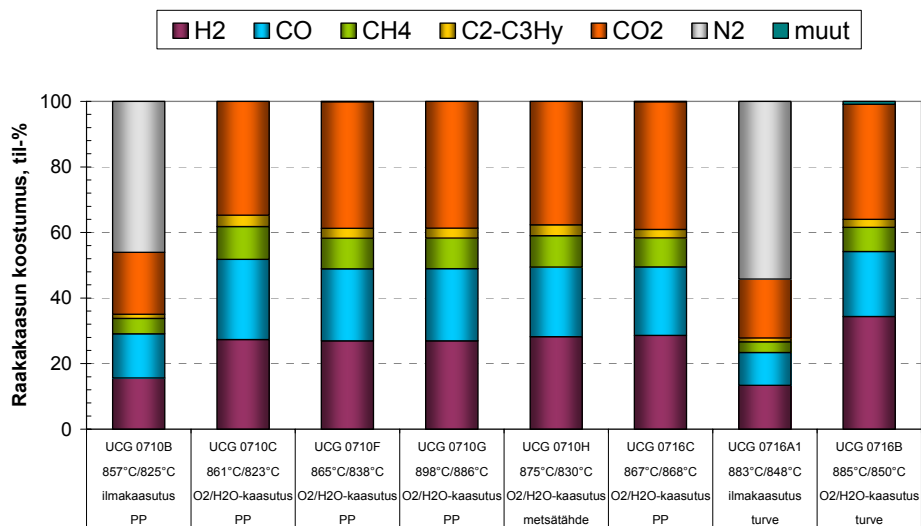
<b>Tase</b>	<b>0710B</b>	<b>0710C</b>	<b>0710F</b>	<b>0710G</b>	<b>0710H</b>
Polttoaine koeajossa	PP	PP	PP	PP	Metsä- tähte
Kuumasuodinpöly, m-%					
C	40,0	38,5	21,7	22,4	38,2
H	0,4	0,4	0,3	0,3	0,4
N	0,3	0,3	0,1	0,1	0,2
O (erotus)	9,4	9,7	11,7	11,1	10,9
Tuhka	50,0	51,3	66,3	66,2	50,4
Pohjatuhka, m-%					
Tuhka	97,4	93,1	95,8	99,0	97,4
Laskettu hiilikonversio, % polttoaineen hiilisytöstä	98,8	98,9	99,4	99,8	98,7

*Taulukko 9. Lentotuhka- ja pohjatuhkanäytteiden koostumukset koeajossa UCG 0716.*

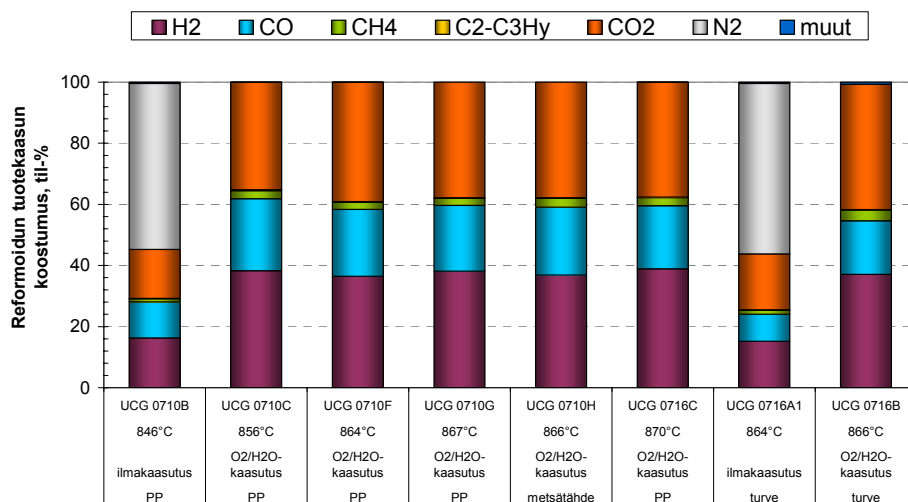
<b>Tase</b>	<b>0716A1</b>	<b>0716A2</b>	<b>0716B</b>	<b>0716C</b>
Polttoaine koeajossa	Turve	Turve	Turve	PP
Kuumasuodinpöly, m-%				
C	43,2	47,2	46,8	47,0
H	0,5	0,5	0,6	0,6
N	0,5	0,6	0,6	0,4
O (erotus)	4,1	4,0	2,9	2,3
Tuhka	51,9	47,7	49,2	49,8
Pohjatuhka, m-%				
Tuhka	98,9	98,5	99,0	99,1
Laskettu hiilikonversio, % polttoaineen hiilisytöstä	97,7	98,1	97,0	97,1

Tuotekaasun koostumus suodattimen ja reformerin jälkeen määritettiin sekä jatkuvatoimisilla kaasuanalysaattoreilla että kaasukromatografeilla. Koelaitteen eri pisteisiin (mm. näytteenotto- ja mittausyhteet, polttoaineen syöttölinja ja tuhkan poistolinjat ym.) johdettujen typpipuhallusten vaikutus kaasun koostumukseen poistettiin laskennallisesti, koska pienessä koelaitteessa näillä kaasuilla on selvästi

suurempi laimentava vaikutus kuin todellisissa teollisissa kaasutusprosesseissa. Kuvassa 29 esitetään näin saadut kuivan tuotekaasun koostumukset eri koejaksoissa ennen reformointia. Kuvassa 30 esitetään vastaavasti kaasun koostumus reformerin jälkeen. Tulokset on koottu myös liitteisiin D ja E.

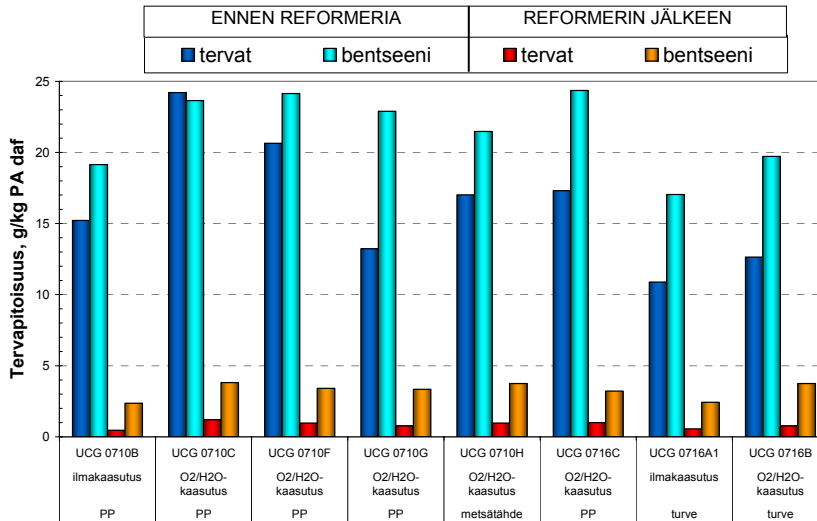


Kuva 29. Kuivan tuotekaasun koostumus UCG-PDU-kaasutuskokeissa ennen reformointia (lämpötilat kuvassa: peti/freeboard).



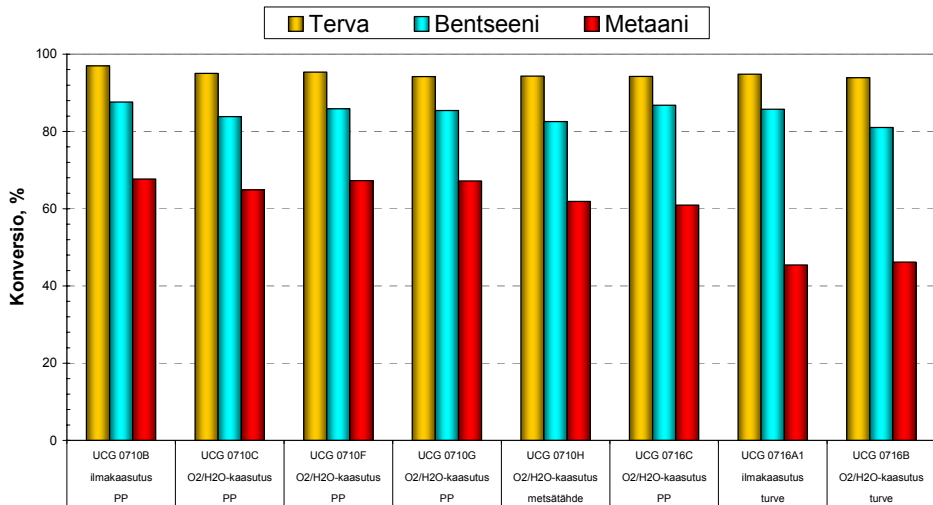
Kuva 30. Reformoidun tuotekaasun koostumus UCG-PDU-kaasutuskokeissa (lämpötila kuvassa: reformoinnin loppulämpötila).

Tuotekaasun tervapitoisuudet esitetään vastaavasti raakakaasulla ennen reformeria ja reformoidulle tuotekaasulle kuvassa 31. Myös nämä pitoisuudet on laskettu edellä mainitussa ”puhallustyyppivapaassa” kuivassa kaasussa.



Kuva 31. Raakakaasun ja reformoidun tuotekaasun tervapitoisuudet UCG-PDU-kaasutuskokeissa.

Ainetaseista lasketut tervojen, bentseenin ja metaanin konversiot reformerissa esitetään kuvassa 32. Kun tarkastellaan kuvissa 29–32 esitettyjä tuloksia, voidaan havaita, että reformerissa pääosa tervoista kaasuuntuu ja myös kevyet hiilivedyt reformoituvat. Tuotekaasun massavirta kokonaisuudessaan kasvaa ja erityisesti kaasun vetypitoisuus kasvaa. Kaasuanalyyseissä näkyvä lopputulos on useiden reaktioiden summa. Tervojen kaasuuntumisen ja hiilivedyjen reformoitumisen (vesihöyry- ja CO<sub>2</sub>-reformoituminen) lisäksi kaasun koostumukseen vaikuttavat homogeeninen vesikaasureaktio ja eri yhdisteiden palamisreaktiot. Reformoinnin toimivuus saatiin todennettua ja reformeria opittiin käyttämään sekä ilma- että happikaasutuksessa niin, ettei toiminnallisia ongelmia esiintynyt. Projektin tavoitteena olleita tervojen ja metaanin konversioita ei kuitenkaan vielä aivan saavutettu. Puun kaasutuksessa päädyttiin tervan osalta noin 95 %:n ja metaanin osalta 60–70 %:n konversioon. Turpeen kaasutuksessa konversiot olivat pienempiä ilmeisesti turpeen sisältämän rikin takia.



Kuva 32. Reformerin terva-, bentseeni- ja metaanikonversiot (%).

Muutamassa viikon 16/2007 koejaksossa mitattiin myös tuotekaasun typpiyhdisteiden ja rikkikaasujen pitoisuudet. Tulokset esitetään taulukoissa 10 ja 11. Typpi-kaasujen osalta esitetään myös lasketut polttoainetyypen konversiot. Leijukerroskaasutuksessa huomattava osa polttoaineen tyypestä muuntuu tuotekaasun ammoniakiksi [7, 8]. Lisäksi pienempi osa muuntuu HCN:ksi ja tervan sisältämäksi orgaaniseksi tyypeksi, joiden vaikutus UCG-tuotekaasuissa oli melko pieni: 1–2 % polttoaineen tyypestä. Ilman ja puhalluskaasujen sisältämän tyyppien oletetaan yleisesti kulkevan kaasutusprosessin läpi muuntumatta [8]. Turpeen kaasutusjaksoissa  $\text{NH}_3$ - ja HCN-pitoisuudet olivat selvästi korkeammat kuin puun kaasutuksessa, mikä selittyi turpeen korkeammalla typpipitoisuudella. Myös polttoainetyypen konversio ammoniakiksi oli turpeella hieman korkeampi kuin puulla.

Taulukko 10. Typpiyhdisteiden pitoisuudet koeajossa UCG 0710 (nd: not determined).

	Ennen reformeria		Reformerin jälkeen	
	0710C	0710F	0710C	0710F
Tase				
Polttoaine koeajossa	PP	PP	PP	PP
Pitoisuus kuivassa kaasussa, ppmv				
NH <sub>3</sub>	nd	664,0	472,7	486,0
HCN	nd	21,5	nd	23,6
Polttoaineen typen konversio, m-%				
NH <sub>3</sub> -N	nd	56,0	42,6	42,9
HCN-N	nd	1,8	nd	2,1

Taulukko 11. Typpi- ja rikkiyhdisteiden pitoisuudet koeajossa UCG 0716 (nd: not determined).

	Ennen reformeria		Reformerin jälkeen	
	0716B	0716C	0716B	0716C
Tase				
Polttoaine koeajossa	Turve	PP	Turve	PP
Pitoisuus kuivassa kaasussa, ppmv				
NH <sub>3</sub>	6705	685	4586	451
HCN	78	14	148	16
Polttoaineen typen konversio, m-%				
NH <sub>3</sub> -N	82,7	63,8	55,5	44,8
HCN-N	1,0	1,3	1,8	1,6
Pitoisuus kuivassa kaasussa, ppmv				
H <sub>2</sub> S	nd	59	343	54
COS	nd	3,7	22,5	4,1

## 6. Yhteenveto

Julkaisussa kuvatus UCG-projektin kaasutus- ja kaasunpuhdistusprosessin kehittämiseen liittyvän osatehtävän tulosten perusteella voitiin tehdä seuraavia johtopäätöksiä:

- Laboratoriokokeiden ja tehtyjen arviointien perusteella valittiin paineistettu happi-höyrykaasutus projektin keskeisimpien synteesikaasutuksen sovellusten kannalta parhaimmaksi kaasutusmenetelmäksi. Ilmakaasutuksen soveltamismahdollisuudet rajoittuvat lähinnä voimalaitossovelluksiin, ja kaksoisleijukerroksikaasutuksena toteutettavaan höyrykaasutukseen arvioitiin liittyvän liian paljon teknisiä haasteita ja riskejä.
- Laboratorio- ja sivuvirtalaittein tehdyissä kokeissa löydettiin mielenkiintoisia vaihtoehtoja toteuttaa leijukerrokskaasuttimen raakakaasun sisältämien tervojen ja hiilivetyjen reformointi sekä tuotekaasun H<sub>2</sub>/CO-suhteen säätö shift-konversion avulla.
- Projektissa otettiin onnistuneesti käyttöön VTT:n kaasutuskoehalliin rakennettu paineistetun kaasutuksen ja kaasun puhdistuksen koelaitteisto, joka soveltuu sekä happi- että ilmakaasutuksen tutkimus- ja kehitystehtäviin.
- Rakennetulla PDU-koelaitteella todennettiin kehitetyn prosessin periaatteellinen toimivuus puupurulla, metsätähteellä ja turpeella tehdyissä koeajoissa:
  - Kiertopetikaasuttimen toiminta sekä happi- että ilmakaasuttimena oli varmatoimista, ja kaikilla testatuilla polttoaineilla saavutettiin yli 97 %:n hiilikonversio eikä tuhkan aiheuttamia ongelmia esiintynyt. Metsätähteen ja murskatun puupelletin välillä ei havaittu merkittäviä eroja prosessin toiminnan tai kaasun koostumusten suhteen.
  - Siirtyminen ilmakaasutukselta happikaasutukselle ja päinvastoin oli helppoa ja nopeaa.
  - Tuotekaasun suodatus jäykällä keraamisilla suodattimilla 500–600 °C:n lämpötilassa onnistui ilman teknisiä ongelmia.

- Kaasun katalyyttisen reformoinnin toimivuus saatiin todennettua ja reformeria opittiin käyttämään sekä ilma- että happikaasutuksessa niin, ettei toiminnallisia ongelmia esiintynyt. Projektin tavoitteena olleita tervojen ja metaanin konversioita ei kuitenkaan vielä aivan saavutettu. Puun kaasutuksessa päädyttiin tervan osalta 90–95 %:n ja metaanin osalta 60–70 %:n konversioon.
- Projekti loi hyvän lähtökohdan yrityshankkeina toteutettavalle jatkokehitykselle ja teknologian demonstroinnille. Myös tarpeita julkiselle UCG-teknologian perusteiden jatkotutkimukselle identifioitiin.

## Lähdeluettelo

1. Koljonen, J., Kurkela, E. & Wilen, C. Peat based HTW-plant at Oulu. *Bio-resource Technology*, 1993. Vol. 46, No. 1–2, s. 95–102.
2. Sipilä, K., Koljonen, J., Fagnäs, L., Kurkela, E., Moilanen, A., Rautalin, A., Södervall, T. & Wilen, C. Turpeen kaasutustekniikan kehittäminen – Oulun turveammoniakkitehdas. Helsinki, Kauppa- ja teollisuusministeriö KTM, energiaosasto, 1989. Sarja D. 108 s. + liitt. 3 s.
3. Hofbauer, H., Rauch, R., Bosch, K., Koch, R. & Aichernig, C. Biomass CHP Plant Güssing – a success story. Teoksessa: Bridgewater, A. V. (toim.) *Pyrolysis and Gasification of Biomass and Waste*. CPL Press, Newsbury, UK, 2003. S. 527–536.
4. Paisley, M. A. & Overend, R. P. The SilvaGas Process from Future Energy Resources – A Commercialization Success. 12th European Conference and Technology Exhibition on Biomass for Energy, Industry and Climate Protection, Amsterdam, June 2002.
5. Kurkela, E. Formation and removal of biomass-derived contaminants in fluidized-bed gasification processes. Espoo, VTT, 1996. VTT Publications 287. 47 s. + liitt. 87 s.
6. Simell, P. Catalytic hot gas cleaning of gasification gas. Espoo, VTT, 1997. VTT Publications 330. 68 s. + liitt. 87 s.
7. Kurkela, E., Ståhlberg, P. & Laatikainen-Luntama, J. Pressurised fluidised-bed gasification experiments with wood, peat and coal at VTT in 1991–1994. Part 2. Experiences from peat and coal gasification and hot gas filtration. Espoo, VTT, 1995. VTT Publications 249. 58 s. + liitt. 10 s.
8. Leppälahti, J. Behaviour of fuel-bound nitrogen in gasification and in high-temperature NH<sub>3</sub> removal processes. Espoo, VTT, 1998. VTT Publications 369. 77 s. + liitt. 205 s.



# Liite A: Penkkikokoluokan kaasutuskoeajojen prosessiolosuhteet

IDFB-koeajo – pvm	19.8.2004	2.9.2004	3.9.2004	13.10.2004	24.9.2004	25.1.2005	26.1.2005	20.8.2004	24.8.2004	25.8.2004
Koetyyppi	ilma- kaasutus	ilma- kaasutus	ilma- kaasutus	ilma- kaasutus	höyry/ilma- kaasutus	höyry/O <sub>2</sub> - kaasutus	höyry/O <sub>2</sub> - kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus
Polttoaine	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru
Petimateriaali	hiekkä	hiekkä	hiekkä	hiekkä+ kalkki	hiekkä	hiekkä	hiekkä	hiekkä	hiekkä	hiekkä
T(peti/yläosa), °C	826/834	823/835	824/831	827/835	812/831	829/840	831/841	817/831	788/829	816/834
Polttoaineen syöttö, mg/s	196	223	144	280	264	345	295	277	555	181
Höyryn syöttö, kg/kg-daf polttoainetta	0,59	0	0,40	0	0,76	0,55	0,65	0,76	0,39	1,10
O <sub>2</sub> -syöttö, % stoikiometrisen palamisen hapen tarpeesta	14	24,5	28,8	20	4,4	14	17	0	0	0
Leijutusnopeus <sup>1</sup> , m/s	1,26	1,20	1,22	1,21	1,37	1,22	1,25	1,44	1,43	1,37
Kaasun viipymäaika <sup>2</sup> , s	6,12	6,6	7,5	5,7	5,3	5,5	5,8	4,98	3,8	6,3
Pedin paine-ero, mbar	5,9	5,7	8,7	15	12,2	11,6	21	13,3	13,4	10,8
Kuivan tuotekaasun koostumus <sup>3</sup> , til%										
CO	26,2	20,2	18,2	22,0	23,6	40,7	39,2	34,8	40,9	29,7
CO <sub>2</sub>	13,9	14,2	14,6	14,4	19,4	20,5	23,3	16,0	12,2	18,5
H <sub>2</sub>	14,5	7,4	7,5	15,9	33,2	22,1	21,7	34,0	29,4	37,1
N <sub>2</sub> (+Ar)	34,7	50,4	53,2	40,1	11,8	0,08	0,08	0,07	0,08	0,07
CH <sub>4</sub>	7,3	5,3	4,4	5,4	8,7	11,6	11,2	10,7	12,2	10,5
C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	3,36	2,5	2,1	2,1	3,3	4,9	4,5	4,4	5,1	4,1
C <sub>3</sub> -C <sub>5</sub> H <sub>8</sub>	0,06	0,05	0,03	0,01	0,04	0,1	0,09	0,08	0,13	0,05
Bentseenin muodostus, g/kg PA-daf	29,0	26,2	24,2	21,3	26,0	31,2	26,1	28,4	29,0	26,8
Tervan muodostus, g/kg PA daf	30,4	32,3	21,8	19,5	27,2	40,2	31,3	25,7	32,0	23,6
C-konversio <sup>4</sup> , m-%	100,0	99,9	99,7	97,6	96,5	99,4	99,5	91,6	91,6	88,4
C-konversio <sup>5</sup> , m-%	97,9	98,2	98,5	99,2	96,4	100,3	100,2	91,4	89,0	89,6
Massataseet (ulos/sisään)										
O-tase	0,98	0,98	0,99	1,02	1,00	1,01	1,01	1,00	0,98	1,01
C-tase	0,96	1,04	1,03	1,06	1,13	0,99	0,93	0,90	0,93	0,92

<sup>1)</sup> laskettu nopeutena tyhjässä reaktoriputkessa ja käyttämällä leijutuskaasujen tilavuusvirtaa, petilämpötilaa ja painetta laskennassa

<sup>2)</sup> laskettu kaasun tilavuusvirran, kaasuttimen kokonaistilavuuden ja keskilämpötilan ja paineen perusteella (freeboard)

<sup>3)</sup> polttoainelinjaan, pohjaputkeen ja mittausyhteisiin puhalletun huuhdetutypen laimentava vaikutus on laskennallisesti poistettu

<sup>4)</sup> laskettu lentopölyjen ja petiin jäävän alkuainehiilen suhteena syötetyn polttoaineen alkuainehiilen massavirtaan

<sup>5)</sup> laskettu muodostuvien kaasujen ja tervan hiilisisällön perusteella

## Liite B: Penkkikokoluokan kaasutuskoeajojen prosessiolosuhteet

IDFB-koeajo – pvm	26.8.2004	27.8.2004	6.9.2004	7.9.2004	8.9.2004	9.9.2004	8.10.2004	12.10.2004	3.11.2004
Koetyyppi	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus
Polttoaine	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru	mäntypuru
Petimateriaali	hiekkä	hiekkä	hiekkä	hiekkä	hiekkä	hiekkä	hiekkä+ kalkki	hiekkä+ kalkki	hiekkä
T(peti/ylaosa), °C	765/780	771/781	799/831	793/825	801/825	870/878	820/831	817/835	688/698
Polttoaineen syöttö, mg/s	335	222	170	325	450	268	291	257	289
Höyryn syöttö, kg/kg- daf polttoainetta	0,58	0,88	0,84	0,90	0,48	0,76	0,77	0,68	0,69
O <sub>2</sub> -syöttö, % stoikiometrisen palamisen hapen tarpeesta	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Leijutusnopeus <sup>1</sup> , m/s	1,30	1,31	1,02	1,89	1,44	1,47	1,47	1,24	1,20
Kaasun viipymä- aika <sup>2</sup> , s	5,5	6,2	7,7	4,3	4,4	5,1	5,1	5,8	6,2
Pedin paine-ero, mbar	17	12,8	18,8	13,5	13,1	11,5	13	15,5	29
Kuivan tuotekaasun koostumus <sup>3</sup> , til%									
CO	36,9	29,0	31,9	31,3	36,5	29,9	28,5	28,1	37,0
CO <sub>2</sub>	15,7	19,6	16,9	17,1	14,5	18,9	18,5	18,3	16,9
H <sub>2</sub>	36,1	36,1	35,3	36,0	31,8	37,5	39,0	39,8	27,1
N <sub>2</sub> (+Ar)	0,07	0,07	0,07	0,07	0,08	0,07	0,06	0,06	0,09
CH <sub>4</sub>	10,5	10,5	11,4	10,8	12,0	10,6	10,1	10,2	12,9
C <sub>2</sub> Hy	4,4	4,4	4,4	4,70	5,0	3,1	3,8	3,5	4,9
C <sub>3</sub> -C <sub>5</sub> Hy	0,33	0,33	0,02	0,08	0,09	0	0,04	0,03	1,12
Bentseenin muodostus, g/kg PA-daf	20,5	20,6	26,4	23,7	27,1	27,6	22,5	26,0	11,5
Tervan muodostus, g/kg PA daf	32,5	29,0	28,9	32,9	37,8	20,5	26,9	29,5	40,7
C-konversio <sup>4</sup> , m-%	87,4	87,1	90,6	87,1	89,8	90,2	86,8	89,9	86,5
C-konversio <sup>5</sup> , m-%	84,5	85,9	89,7	86,5	88,4	91,1	86,0	90,0	80,6
Massataseet (ulos/sisään)									
C-tase	0,97	0,99	0,99	0,99	0,99	1,01	0,99	1,00	0,94
O-tase	0,91	0,97	0,98	0,97	0,96	1,01	0,98	1,11	1,01

<sup>1)</sup> laskettu nopeutena tyhjässä reaktoriputkessa ja käyttämällä leijutuskaasujen tilavuusvirtaa, petilämpötilaa ja painetta laskennassa

<sup>2)</sup> laskettu kaasun tilavuusvirran, kaasuttimen kokonaistilavuuden ja keskilämpötilan ja paineen perusteella (freeboard)

<sup>3)</sup> polttoainelinjaan, pohjaputkeen ja mittausyhteisiin puhalletun huuhletutypen laimentava vaikutus on laskennallisesti poistettu

<sup>4)</sup> laskettu lentopölyjen ja petiin jäävän alkuainehiilen suhteena syötetyn polttoaineen alkuainehiilen massavirtaan

<sup>5)</sup> laskettu muodostuvien kaasujen ja tervan hiilisällön perusteella

## Liite C: Penkkikokoluokan kaasutuskoeajojen prosessiolosuhteet

IDFB-koeajo – pvm	15.10.2004	19.10.2004	21.10.2004	2.11.2004	20.10.2004	9.11.2004
Koetyyppi	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	höyry- kaasutus	ilma- kaasutus	höyry- kaasutus
Polttoaine	turve	turve	turve	turve	turve	olki
Petimateriaali	hiekkä	hiekkä	hiekkä+ kalkki	hiekkä	hiekkä	hiekkä
T(peti/yläosa), °C	814/831	856/879	815/832	688/713	825/834	693/703
Polttoaineen syöttö, mg/s	211	248	272	266	260	246
Höyryn syöttö, kg/kg-daf polttoainetta	1,07	0,91	0,88	0,76	0	0,86
O <sub>2</sub> -syöttö, % stoikiometrisen palamisen hapen tarpeesta	0	0	0	0	24,5	0
Leijutusnopeus <sup>1</sup> , m/s	1,37	1,42	1,42	1,12	1,2	1,2
Kaasun viipymäaika <sup>2</sup> , s	5,8	5,3	5,2	6,8	6,08	0,7
Pedin paine-ero, mbar	19	18	19	25	18	22
Kuivan tuotekaasun koostumus <sup>3</sup> , til%						
CO	16,8	19,4	17,6	24,0	17,3	25,9
CO <sub>2</sub>	24,0	21,5	23,3	26,1	15,9	22,5
H <sub>2</sub>	51,6	52,8	51,3	32,9	16,9	32,9
N <sub>2</sub> (+Ar)	0,4	0,4	0,4	0,8	45,2	1,4
CH <sub>4</sub>	5,7	5,3	5,8	10,4	3,5	11,4
C <sub>2</sub> Hy	1,4	0,6	1,5	4,9	1,3	4,7
C <sub>3</sub> -C <sub>5</sub> Hy	0	0	0	1,1	0	1,2
Bentseenin muodostus, g/kg PA-daf	10,9	9,3	11,0	9,7	13,4	11,6
Tervan muodostus, g/kg PA daf	3,4	1,2	3,7	29,8	7,3	36,9
C-konversio <sup>4</sup> , m-%	76,5	78,7	77,3	67,4	86,4	73,9
C-konversio <sup>5</sup> , m-%	79,9	78,9	77,2	66,5	86,9	72,6
Massataseet (ulos/sisään)						
C-tase	1,03	1,00	0,99	0,99	1,00	0,99
O-tase	1,01	1,03	1,01	0,95	1,00	1,05

<sup>1)</sup> laskettu nopeutena tyhjässä reaktoriputkessa ja käyttämällä leijutuskaasujen tilavuusvirtaa, petilämpötilaa ja painetta laskennassa

<sup>2)</sup> laskettu kaasun tilavuusvirran, kaasuttimen kokonaistilavuuden ja keskilämpötilan ja paineen perusteella

<sup>3)</sup> polttoainelinjaan, pohjaputkeen ja mittausyhteisiin puhalletun huuhtelutypen laimentava vaikutus on laskennallisesti poistettu

<sup>4)</sup> laskettu lentopölyjen ja petiin jäävän alkuainehiilen suhteena syötetyn polttoaineen alkuainehiilen massavirtaan

<sup>5)</sup> laskettu muodostuvien kaasujen ja tervan hiilisisällön perusteella

## Liite D: Koejaksojen 0704 ja 0710 toimintaolosuhteet ja prosessimittaukset

UCG-PDU-koeajo – pvm	UCG 0704 25.1.2007	UCG 0710A 6.3.2007	UCG 0710B 7.3.2007	UCG 0710C 7.3.2007	UCG 0710F 8.3.2007
Koetyyppi	O <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> O- kaasutus	ilma- kaasutus	ilma- kaasutus	O <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> O- kaasutus	O <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> O- kaasutus
Polttoaine	puupelletti	puupelletti	puupelletti	puupelletti	puupelletti
Toimintapaine, bar	2,5	2,5	2,5	2,5	2,5
<b>Kaasutin</b>					
T(peti/yläosa), °C	835/786	852/819	857/827	861/823	865/838
Höyryn syöttö, kg/kg-PA-daf	0,58	0,20	0,22	0,50	0,54
O <sub>2</sub> -syöttö, % stoikiometrisen palamisen hapen tarpeesta	0,30	0,26	0,29	0,23	0,28
Leijutusnopeus <sup>1)</sup> , m/s	2,43	2,90	2,89	2,29	2,36
Pedin paine-ero, mbar	66,3	36,6	38,3	40,0	50,0
Suodattimen lämpötila, °C	513	476	500	515	517
Ennen reformeria: Bentseenin muod., g/kg PA-daf	16,8	nd	19,2	23,7	24,2
Tervan muod., g/kg PA daf	22,1	nd	15,2	24,2	20,6
Ennen reformeria Kuiva tuotekaasu <sup>2)</sup> , til%					
CO	21,0	15,4	13,5	22,5	21,2
CO <sub>2</sub>	30,7	18,4	18,9	31,9	37,2
H <sub>2</sub>	23,6	16,4	15,6	25,1	25,9
N <sub>2</sub> (+Ar)	13,5	42,6	46,0	8,1	3,7
CH <sub>4</sub>	8,5	6,0	4,7	9,2	9,0
C <sub>2</sub> Hy	2,7	1,3	1,3	3,1	2,9
C <sub>3</sub> -C <sub>5</sub> Hy	0,12	0	0	0,05	0,03
C-konversio <sup>3)</sup> , m-%	nd	nd	98,8	98,9	99,4
<b>Reformeri</b>					
Reformeri T (sisään), °C	489	483	492	515 856	519
T (ulos), °C	845	786	846		864
Reformerin jälkeen Kuiva tuotekaasu <sup>2)</sup> , til%					
CO	26,0	11,3	11,8	23,6	22,0
CO <sub>2</sub>	35,2	17,3	16,1	35,2	39,0
H <sub>2</sub>	29,2	17,6	16,3	38,3	36,4
N <sub>2</sub> (+Ar)	0	50,5	54,3	0	0
CH <sub>4</sub>	8,5	2,6	1,04	2,6	2,4
C <sub>2</sub> Hy	1,1	0,3	0,08	0,3	0,2
C <sub>3</sub> -C <sub>5</sub> Hy	0	0	0	0	0
Reformerin jälkeen: Bentseenin muod., g/kg PA-daf	11,7	nd	2,4	3,8	3,4
Tervan muod., g/kg PA daf	3,0	nd	0,5	1,2	1,0

<sup>1)</sup> laskettu nopeutena tyhjässä reaktoriputkessa ja käyttämällä leijutuskaasujen tilavuusvirtaa, petilämpötilaa ja painetta

<sup>2)</sup> polttoainelinjaan, pohjaputkeen ja mittausyhteisiin puhalletun huuhtelutypen laimentava vaikutus on laskennallisesti poistettu

<sup>3)</sup> laskettu lentopölyjen ja petiin jäävän alkuainehiilen suhteena syötetyn polttoaineen alkuainehiilen massavirtaan

## Liite E: Koejaksojen 0710 ja 0716 toimintaolosuhteet ja prosessimittaukset

UCG-PDU-koeajo – pvm	UCG 0710G 8.3.2007	UCG 0710H 9.3.2007	UCG 0716A 18–19.4.2007	UCG 0716B 19.4.2007	UCG 0716C 20.4.2007
Koetyyppi	O <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> O- kaasutus	O <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> O- kaasutus	ilma- kaasutus	O <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> O- kaasutus	O <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> O- kaasutus
Polttoaine	puupelletti	metsätähde	turve	turve	puupelletti
Toimintapaine, bar	2,5	2,5	2,5	2,5	2,5
<b>Kaasutin</b>					
T(peti/yläosa), °C	898/886	875/830	883/848	885/850	867/868
Höyryn syöttö, kg/kg-PA daf	0,54	0,54	0,23	0,82	0,75
O <sub>2</sub> -syöttö, % stoikiometrisen palamisen hapen tarpeesta	0,32	0,29	0,38	0,39	0,35
Leijutusnopeus <sup>1)</sup> , m/s	2,50	2,38	3,30	2,99	3,10
Pedin paine-ero, mbar	43,1	46,7	49,6	49,2	50,8
Suodattimen lämpötila, °C	526	531	540	564	575
Ennen reformeria:					
Bentseenin muod., g/kg PA-daf	22,9	21,5	17,0	19,7	24,4
Tervan muod., g/kg PA daf	13,2	17,0	10,9	12,6	17,3
Ennen reformeria Kuiva tuotekaasu <sup>2)</sup> , til%					
CO	21,0	19,7	10,0	16,04	18,1
CO <sub>2</sub>	37,0	35,0	17,9	28,4	33,8
H <sub>2</sub>	25,8	26,2	13,4	27,9	24,8
N <sub>2</sub> (+Ar)	4,32	7,3	54,2	19,4	13,5
CH <sub>4</sub>	8,9	8,9	3,3	6,0	7,7
C <sub>2</sub> Hy	2,9	3,03	1,2	1,9	2,2
C <sub>3</sub> -C <sub>5</sub> Hy	0,03	0,04	0,01	0,01	0,02
C-konversio <sup>3)</sup> , m-%	99,8	98,7	97,7	97,0	97,1
<b>Reformeri</b>					
Reformeri					
T (sisään), °C	523	538	546	578	592
T (ulos), °C	867	866	864	866	870
Reformerin jälkeen Kuiva tuotekaasu <sup>2)</sup> , til%					
CO	21,5	22,2	8,8	17,6	20,6
CO <sub>2</sub>	37,9	37,8	18,3	41,2	37,6
H <sub>2</sub>	38,1	36,9	15,2	37,2	38,9
N <sub>2</sub> (+Ar)	0	0	55,8	0	0
CH <sub>4</sub>	2,4	2,9	1,5	3,5	2,7
C <sub>2</sub> Hy	0,1	0,2	0,06	0,2	0,2
C <sub>3</sub> -C <sub>5</sub> Hy	0	0	0	0	0
Reformerin jälkeen:					
Bentseenin muod., g/kg PA-daf	3,34	3,75	2,4	3,74	3,22
Tervan muod., g/kg PA daf	0,76	0,96	0,56	0,77	0,99

<sup>1)</sup> laskettu nopeutena tyhjässä reaktoriputkessa ja käyttämällä leijutuskaasujen tilavuusvirtaa, petilämpötilaa ja painetta

<sup>2)</sup> polttoainelinjan, pohjaputkeen ja mittausyhteisiin puhalletun huuhelutypen laimentava vaikutus on laskennallisesti poistettu

<sup>3)</sup> laskettu lentopölyjen ja petiin jäävän alkuainehiilen suhteena syötetyn polttoaineen alkuainehiilen massavirtaan

Tekijä(t) Kurkela, Esa, Simell, Pekka, McKeough, Paterson & Kurkela, Minna		
Nimeke <b>Synteetikaasun ja puhtaan polttokaasun valmistus</b>		
Tiivistelmä Julkaisussa esitetään VTT:n koordinoiman, 1.1.2004–31.5.2007 toteutetun Ultra Clean Gas -projektin keskeisimmän osatehtävän, kaasutusprosessin kehitys, tulokset ja johtopäätökset. Osatehtävän tavoitteena oli kehittää kiinteiden polttoaineiden kaasutus- ja kaasun puhdistustekniikkaa tulevaisuuden voimalaitosprosesseja ja biopoltonesteiden tai vedyn valmistusta varten.  Julkaisussa kuvataan, kuinka projektissa edettiin pienen mitan koelaitteilla vuosina 2004–2005 tehdyistä kokeista prosessien arvioinnin ja valinnan kautta noin 0,5 MW:n prosessinkehityskoelaitteen (UCG-PDU) rakentamiseen ja sillä vuonna 2007 toteutettuun koetointiaan.  Projektin työn kohteena oli paineistettuun leijukerroskaasutukseen, kaasun kuumasuodattukseen ja katalyyttiseen hiilivetyjen reformointiin perustuva kaasutusprosessi, jonka toimivuudesta saatiin positiivinen näyttö projektin loppuvaiheessa toteutetuissa onnistuneissa PDU-kokeissa. Projekti loi siten pohjaa yritysvetoisissa jatkohankkeissa tehtäville varsinaisen teollisen prosessin kehittämiseksi ja demonstroinnille.		
ISBN 978-951-38-7097-3 (nid.) 978-951-38-7098-0 (URL: <a href="http://www.vtt.fi/publications/index.jsp">http://www.vtt.fi/publications/index.jsp</a> )		
Avainnimeke ja ISSN VTT Publications 1235-0621 (nid.) 1455-0849 (URL: <a href="http://www.vtt.fi/publications/index.jsp">http://www.vtt.fi/publications/index.jsp</a> )		Projektinumero 5910
Julkaisuaika Toukokuu 2008	Kieli suomi, engl. tiiv.	Sivuja 54 s. + liitt. 5 s.
Projektin nimi Synteetikaasun ja ultrapuhtaan polttokaasun valmistus		Toimeksiantaja(t) Tekes, VTT, Foster Wheeler Energia Oy, Neste Oil Oyj, Andritz Oy, Vapo Oy, Pohjolan Voima Oy, UPM-Kymmene Oyj, M-real Oyj, Stora Enso Oyj, Oy Metsä Botnia Ab
Avainsanat gasification, biomass, reforming, synthesis gas		Julkaisija VTT PL 1000, 02044 VTT Puh. 020 722 4520 Faksi 020 722 4374



Series title, number and  
report code of publication

VTT Publications 682  
VTT-PUBS-682

Author(s) Kurkela, Esa, Simell, Pekka, McKeough, Paterson & Kurkela, Minna		
Title <b>Production of synthesis gas and clean fuel gas</b>		
Abstract <p>The main results of the project, Development of Ultra-Clean Gas (UCG) Technologies for Biomass Gasification, are presented in the publication. The UCG project was directed towards the development of innovative biomass gasification and gas-cleaning technologies for the production of ultra-clean synthesis gas. The project was carried out from 2004 to 2007 and it was co-ordinated by VTT Technical Research Centre of Finland.</p> <p>The publication describes how the work progressed from small-scale experiments and process-evaluation studies in the initial stages of the project to the design, construction and operation of a Process Development Unit (PDU) in the latter stages of the project. The 0.5 MW PDU, located at VTT, was taken into operation at the end of 2006.</p> <p>The experimental work focussed on the following sub-processes: pressurized fluidised-bed gasification, catalytic gas reforming and initial gas cleaning. The PDU gasification tests were successful and all components of the PDU-plant operated reliably. The project created a knowledge base upon which subsequent industrial-driven development and demonstration projects have been built.</p>		
ISBN 978-951-38-7097-3 (soft back ed.) 978-951-38-7098-0 (URL: <a href="http://www.vtt.fi/publications/index.jsp">http://www.vtt.fi/publications/index.jsp</a> )		
Series title and ISSN VTT Publications 1235-0621 (soft back ed.) 1455-0849 (URL: <a href="http://www.vtt.fi/publications/index.jsp">http://www.vtt.fi/publications/index.jsp</a> )		Project number 5910
Date May 2008	Language engl. abstr.	Pages 54 p. + app. 5 p.
Name of project Production of synthesis gas and ultra clean gas		Commissioned by Tekes, VTT, Foster Wheeler Energia Oy, Neste Oil Oyj, Andritz Oy, Vapo Oy, Pohjolan Voima Oy, UPM-Kymmene Oyj, M-real Oyj, Stora Enso Oyj, Oy Metsä Botnia Ab
Keywords gasification, biomass, reforming, synthesis gas		Publisher VTT Technical Research Centre of Finland P.O. Box 1000, FI-02044 VTT, Finland Phone internat. +358 020 722 4520 Fax +358 020 722 4374

Julkaisussa esitetään VTT:n koordinoiman, 1.1.2004- 31.5.2007 toteutetun Ultra Clean Gas -projektin keskeisimmän osatehtävän, kaasutusprosessin kehitys, tulokset ja johtopäätökset. Osatehtävän tavoitteena oli kehittää kiinteiden polttoaineiden kaasutus- ja kaasun puhdistustekniikkaa tulevaisuuden voimalaitosprosesseja ja biopolttonesteiden tai vedyn valmistusta varten.

Julkaisussa kuvataan, kuinka projektissa edettiin pienen mitan koe-laitteilla vuosina 2004- 2005 tehdyistä kokeista prosessien arvioinnin ja valinnan kautta noin 0,5 MW:n prosessinkehityskoelaitteen (UCG-PDU) rakentamiseen ja sillä vuonna 2007 toteutettuun koetoimintaan.

Projektin työn kohteena oli paineistettuun leijukerroskaasutukseen, kaasun kuumasuodatukseen ja katalyyttiseen hiilivetyjen reformointiin perustuva kaasutusprosessi, jonka toimivuudesta saatiin positiivinen näyttö projektin loppuvaiheessa toteutetuissa onnistuneissa PDU-kokeissa. Projekti loi siten pohjaa yritysvetoisissa jatkohankkeissa tehtäville varsinaisen teollisen prosessin kehittämiseksi ja demonstroinnille.

---

Julkaisu on saatavana

VTT  
PL 1000  
02044 VTT  
Puh. 020 722 4520  
<http://www.vtt.fi>

Publikationen distribueras av

VTT  
PB 1000  
02044 VTT  
Tel. 020 722 4520  
<http://www.vtt.fi>

This publication is available from

VTT  
P.O. Box 1000  
FI-02044 VTT, Finland  
Phone internat. + 358 20 722 4520  
<http://www.vtt.fi>

---