

# METHANOL PRODUCTION VIA BLACK LIQUOR GASIFICATION WITH EXPANDED RAW MATERIAL BASE - SUMMARY

The project has been carried out within the collaborative research program *Renewable transportation fuels and systems* (Förnybara drivmedel och system), project no 40759-1. The project has been co-financed by f3 and the Swedish Energy Agency.

The publication of the full report is delayed due to the process of scientific peer review of a submitted article.

*Joakim Lundgren, Lara Carvalho & Elisabeth Wetterlund, Bio4Energy/Luleå University of Technology*

*Erik Furusjö, IVL and Bio4Energy/Luleå University of Technology*

*Johanna Olofsson & Pål Börjesson, Lund University*

*Golnar Azimi, Perstorp Bioproducts AB*

## ENGLISH SUMMMARY

Gasification of black liquor with downstream synthesis to biofuels in Kraft pulp mills shows advantages regarding energy efficiency and economic performance compared to combustion in a recovery boiler. The good performance is partly due to the strong catalytic effect of the black liquor that enhances gasification reactions. Experimental research has shown that the reactivity can be kept even if the black liquor is significantly diluted with a secondary feedstock. Therefore, as a way to increase the operation flexibility as well as the biofuel production capacity of a mill integrated gasifier, a secondary biomass feedstock could be blended into the black liquor and co-gasified.

The main aim of this work was to evaluate the techno-economic and greenhouse gas (GHG) performances of co-gasification of black liquor with various blends of pyrolysis liquid, crude glycerol and fermentation residues for production of biomethanol of two different qualities, grade AA and crude. Material and energy balances to evaluate the systems' techno-economic and greenhouse gas performances were obtained via process modelling, with input data mainly from pilot and lab-scale experiments.

All investigated cases showed good economic performance under the assumed conditions. The cases where crude glycerol was blended with black liquor showed the best economic performances. The crude methanol could currently be competitive with today's prices of fossil based methanol and the grade AA quality methanol to untaxed fossil gasoline. Each case also showed good energy performance with high energy efficiencies. Blending feedstocks with black liquor showed positive influences on the cold gas efficiency and methanol production efficiency due to the catalytic effect of the black liquor. All co-gasification cases also showed higher efficiencies than that of gasification of pure black liquor.

By calculating GHG emissions following the RED method, the methanol produced in all cases resulted in emissions savings of 82-94 % compared to the fossil fuel reference. Following the ISO standards, the results showed lower GHG emissions savings potentials in the range of 62-88 %.

As a consequence of the blending, the methanol production capacities became very large. In one of the glycerol cases (50-50 blend), the capacity exceeded 1000 MW methanol. In this case, the required annual glycerol volume exceeded the current total European glycerol consumption (crude and refined), putting the glycerol availability as a significant bottle-neck.

The general conclusions were that blending a secondary feedstock with black liquor for co-gasification was an energy efficient and cost effective pathway to convert the feedstock to methanol. The produced methanol, in all considered cases, fulfilled the currently required 60 % GHG emissions reduction target as compared to a fossil fuel reference according to RED.

From the results it was further hypothesized that co-gasification could be a pathway to make black liquor gasification with biofuel production economically feasible also when using only a partial stream of the total black liquor flow from a pulp mill, while also keeping the recovery boiler for processing the rest of the black liquor. This would lead to the potential dual benefit of increased pulp production from debottlenecking the recovery boiler, and significantly reduced technical risk compared to total replacement of the recovery boiler with black liquor gasification. While this concept has been outside the scope of this project to evaluate, it is recommended for further studies.

## SWEDISH SUMMARY

Biodrivmedelsproduktion via svartlutsförgasning ger bättre energieffektivitet och ekonomisk prestanda jämfört med konventionell förbränning av svartlut i en sodapanna. Förgasningsprocessen är mycket energieffektiv, främst på grund av den höga reaktiviteten i svartlut, vilken beror av den katalytiska effekten av alkali som finns i höga koncentrationer. Detta kan utnyttjas för att utvidga bioråvarubasen genom att blanda in och samförgasa exempelvis pyrolysvätska, råglycerol och fermenteringsrester, som därigenom kan åka ”snålskjuts” på svartlutens höga reaktivitet. Detta innebär samtidigt en större driftflexibilitet och en potentiell stor ökning av biodrivmedelsproduktionskapaciteten.

Huvudsyftet med projektet var att klimatmässigt och teknoekonomiskt utvärdera samförgasning av svartlut med biprodukter från biokemisk drivmedelsproduktion (råglycerol och fermenteringsrester) samt pyrolysvätska från skogrester för produktion av två olika kvaliteter av biometanol (råmetanol och grade AA). Utvärderingarna baserades på mass- och energibalanser från processmodelleringar där en stor del erforderliga ingångsdata härrörde från experiment i pilot och labbskala.

Samtliga undersökta fall visade god ekonomisk prestanda under antagna förhållanden. De fall där råglycerol blandades med svartlut resulterade i bäst ekonomi. Råmetanol baserad på svartlut och råglycerol låg i nivå med dagens priser på fossilbaserad metanol och säljpriset för grade AA-metanol i nivå med beskattad fossil bensin. Samtliga fall visade också bra energiprestanda med hög energieffektivitet. Inblandning av andra bioråvaror i svartlut hade positiva inverkan på verkningsgraderna, bland annat på grund av svartlutens katalytiska effekt. Samtliga samförgasningsfall visade också högre effektivitet än vid förgasning av enbart svartlut.

Beräkningar av växthusgasprestandan för metanolen enligt RED-metoden resulterade i CO<sub>2</sub>-utsläppsbesparingar i spannet 82-94 % jämfört med fossila drivmedel. Enligt ISO-standarderna visade resultaten något lägre besparingspotentialer i intervallet 62-88 %.

Ytterligare en konsekvens av samförgasningskonceptet var att produktionskapaciteterna blev mycket stora. I ett av glycerolfallen (50-50 blandning) översteg produktionskapaciteten 1000 MW metanol. Detta fall innebar dock att den totalt erforderliga årliga volymen av glycerol var större än den nuvarande totala europeiska glycerolförbrukningen (både rå och raffinerad), vilket gör glyceroltillgängligheten till en stor flaskhals.

De generella slutsatserna från projektet var att inblandning av en sekundär bioråvara i svartlut för samgasning var ett energieffektivt och kostnadseffektivt sätt att omvandla råvaran till metanol. Den producerade metanolen uppfyllde också i samtliga fall de aktuella kraven på 60 % reduktion av växthusgasutsläpp jämfört med den fossila referensen enligt nuvarande RED.

En viktig insikt var att samförgasning kan vara ett sätt att göra svartlutsförgasning med biodrivmedelsproduktion genomförbar genom att endast använda en delström av det totala svartlutflödet, samtidigt som sodapannan kan behållas. På detta sätt kan risker relaterade till brukets kemikalie- och energiåtervinning minskas väsentligt, eftersom sodapannan fortfarande är i drift och sköter det mesta av återvinningen. Samtidigt kan utökad massaproduktion möjliggöras genom avlastning av sodapannan, som i många bruk är en kapacitetsbegränsande process. Detta koncept har varit utanför ramen för detta projekt och rekommenderas därför för vidare studier.