



# HOKKAIDO UNIVERSITY

|                     |                                                                                                                                                           |
|---------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Title               | Ironmaking Process using Carbon Deposition by Chemical Vapor Infiltration (CVI) Method [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review] |
| Author(s)           | Cahyono, Rochim Bakti                                                                                                                                     |
| Degree Grantor      | 北海道大学                                                                                                                                                     |
| Degree Name         | 博士(工学)                                                                                                                                                    |
| Dissertation Number | 甲第11881号                                                                                                                                                  |
| Issue Date          | 2015-03-25                                                                                                                                                |
| Doc URL             | <a href="https://hdl.handle.net/2115/58584">https://hdl.handle.net/2115/58584</a>                                                                         |
| Rights(URL)         | <a href="https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/">https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/</a>                                 |
| Type                | doctoral thesis                                                                                                                                           |
| File Information    | Rochim_Bakti_Cahyono_review.pdf, 審査の要旨                                                                                                                    |



## 学位論文審査の要旨

|            |         |       |                      |
|------------|---------|-------|----------------------|
| 博士の専攻分野の名称 | 博士 (工学) | 氏名    | Rochim Bakti Cahyono |
| 審査担当者      | 主 査 教 授 | 秋山 友宏 |                      |
|            | 副 査 教 授 | 岩井 一彦 |                      |
|            | 副 査 教 授 | 上田 幹人 |                      |

## 学位論文題名

Ironmaking Process using Carbon Deposition by Chemical Vapor Infiltration (CVI) Method  
(化学気相浸透 (CVI) 法による炭素析出を用いる製鉄プロセス)

世界の鉄鋼消費は、中国、インドネシア、インド、及びブラジルなどのいくつかの国々の急速な経済成長に合わせて近い将来増大するであろう。しかしながら、鉄鋼産業は、高品位な鉱石及び原料炭への依存度が高いために、限りある資源、エネルギー及び環境に関する深刻な問題に同時に直面している。従って、従来の原料及びエネルギー資源に代わる革新的な製鉄法が切望されている。

化学気相浸透 (CVI) を利用する製鉄プロセスは、タール熱分解と多孔質低品位鉱石内部への炭素蒸着との組み合わせからなる。このプロセスは、低品位炭及びバイオマスの有効利用によって前述の問題を解決するために提案された。配管の詰まり、凝縮、及びタールエアロゾルの生成などの操業上の問題を引き起こすことがあるタールも、このプロセスで問題が解決される。本論文では、提案した CVI システムを、種々の多孔質材料、異なる炭素源、最適温度、速度論的解析、及び生成物のマイクロ構造解析などのいくつかの重要な観点から包括的に考察している。さらに、提案したシステムの総合評価をエクセルギー解析に基づいて論じ、システムの利点を確認している。本論文は 6 つの章からなり、最初の章と最後の章では、それぞれ緒論及び結論を述べる。

第 2 章では、炭素貯蔵媒体及びタール分解触媒として低品位鉱石を用いる CVI 製鉄プロセスの詳細な評価を述べる。低品位の鉱石は、炭素析出及び総ガス生成物を増加させる点においてタール分解プロセスに大きな影響を示した。熱分解から得られるタール量は炭素析出に強く影響を与えた。高品位の瀝青炭は、タール生成量が多く、最も多く炭素析出を生じさせた。多くの結晶水を含む低品位鉱石は、結果的に 4nm 未満の細孔径を有する多孔質体構造になり、これは炭素析出に適していた。瀝青炭のタール熱分解及び炭素蒸着がそれぞれ 800 °C 及び 600 °C で行われた時に炭素析出量が最大となった。より高いタール熱分解温度は、ガス化を促進し、結果的により低い炭素析出量をもたらした。しかしながら、800 °C で鉄鉱石の焼結が始まるため、この温度で BET 表面積は著しく減少した。間接還元が炭素蒸着と同時に起こり、これにより、600 °C で  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、及び 800 °C で  $\text{FeO}$  が生じた。得られた CVI 鉱石の還元が 750 °C で始まる一方、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  とコークスとの参照混合物の還元は 1100 °C の高温で始まった。CVI 鉱石は、鉄鉱石と炭素とのナノスケールでの接触に起因してより高い反応性を示した。

第 3 章では、CVI プロセスを理解するために低品位鉱石でのタール熱分解の速度論的解析及び炭素蒸着現象を考察する。簡単な反応モデルを用いて解析した結果、500~700 °C において、活性化エネルギーは 44.86 kJ/mol、速度定数は  $0.13\text{--}0.55\text{s}^{-1}$ 、触媒失活定数は  $1.72\text{--}2.53\text{s}^{-1}$  であった。触

媒失活の要因は、鉄鉱石細孔内の炭素析出量と類似の傾向を示した。

第4章では、CVI生成物の特性を、多孔質鉱石の微細構造及び鉱石内部の炭素析出の分布の観点から研究する。TEM像に基づくと、脱水後に $\text{FeOOH}$ からのヒドロキシ(OH)基の脱離に起因して直径 $\sim 3\text{nm}$ の細孔を有する層状構造が観察された。この細孔径は、タール熱分解による炭素析出に適するとみなされた。EDS結果は、炭素分布は外表面付近で最も高く、鉱石の中心に向かって徐々に減少することを確認した。鉱石の構造とは別に、析出炭素のタイプもラマン分光法を用いて評価することに成功し、鉱石の細孔内にCVIにより析出した炭素は、19–21%の $\text{sp}^3$ 成分を有するアモルファスカーボン(a:C)であった。

第5章では、CVIプロセスのエクセルギー解析及び製鉄産業でのその利用の実現可能性の研究を述べる。CVIプロセスは、鉄鉱石のエクセルギー量を著しく増加させる。3.86wt%の炭素析出(実験値)及び1000kgの金属鉄の生産に基づき、提案したシステムのエクセルギー損失は、タールの化学的及び熱的エクセルギーの回収を通じて、従来のシステムに比べて約16.7%減少することが分かった。CVI鉱石を焼結プラントに装入したときに、析出された炭素の量は粉コークスと完全に置き換わるのに十分な量であり、CVI鉱石の比率が総投入鉱石の70%を上回る。CVI鉱石の総エンタルピーは、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ の再酸化と、析出される炭素に由来するものであった。焼結プラントでのCVI鉱石の利用により、結果的に粉コークス及び $\text{CO}_2$ 放出が大いに減少することが推察できる。

これらの結果を通して、提案したCVI製鉄プロセスは、資源、エネルギー、及び環境問題を同時に解決することができる可能性を有し、有意義な効果をもたらすことを材料科学、反応工学およびプロセスシステム工学の観点から明らかにした。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格があるものと認める。