

## CARACTERIZAÇÃO DO RETARDO DE REDUÇÃO PARA SÍNTER E PELOTA DURANTE O AMOLECIMENTO E FUSÃO \*

Otávio Henrique Matos de Assis<sup>1</sup>  
Ismael Vemdrame Flores<sup>2</sup>  
Maurício Covcevich Bagatini<sup>3</sup>

### Resumo

De modo a explorar o fenômeno de retardo de redução sobre a taxa de redução de cargas ferrosas no início da zona coesiva, testes de redução e de amolecimento e fusão, completos e interrompidos (nas temperaturas pré, 10 e 50% de contração), foram realizados para duas variedades de cargas ferrosas comumente utilizadas em altos-fornos: sinter e pelota. Os produtos dos experimentos interrompidos foram caracterizados fisicamente por meio de testes de densidade real, densidade aparente e porosidade (aberta, fechada e total). Os resultados obtidos mostraram que para as matérias-primas utilizadas o retardo de redução ocorreu em menor temperatura para a pelota, sendo também mais pronunciado. Por meio da análise dos resultados obtidos, foi possível verificar o aumento da porosidade aberta e total das cargas durante sua redução até níveis de contração de 10%. Para contrações de 50%, dentro do intervalo de retardo de redução, uma redução significativa da porosidade aberta para ambos os materiais foi observada.

**Palavras-chave:** Retardo de Redução; Amolecimento e Fusão de Cargas Ferrosas; Redução sob carga; Alto-forno.

### CHARACTERIZATION OF THE REDUCTION RETARDATION FOR SINTER AND PELLET DURING SOFTENING AND MELTING

#### Abstract

To approach the phenomena of reduction retardation on the reduction rate of iron-bearing materials, which occurs at the beginning of the cohesive zone, complete and interrupted (at pre, 10 and 50% contraction temperatures) softening and melting tests were performed for two commonly used blast furnace burden: sinter and pellet. The interrupted tests' products were physically characterized by its apparent and real density, and porosity (open, closed and total). It was observed that the reduction retardation occurred at lower temperatures and in a more prominent way for pellets in comparison to sinter. The results also showed an increase of open and total porosity during reduction until contraction levels reach 10%. At higher contraction levels (50%) a significant decrease in open porosity was observed for both samples.

**Keywords:** Reduction Retardation; Ferrous Burden Softening and Melt; Reduction Under Load; Blast Furnace.

<sup>1</sup> Engenharia Metalúrgica, Estudante de Graduação, Universidade Federal de Minas Gerais, Departamento de Engenharia Metalúrgica e de Materiais, Belo Horizonte, Minas Gerais, Brasil.

<sup>2</sup> Engenharia Metalúrgica, Doutorando, Universidade Federal de Minas Gerais, Departamento de Engenharia Metalúrgica e de Materiais, Belo Horizonte, Minas Gerais, Brasil.

<sup>3</sup> Engenharia Metalúrgica, Doutor, Professor Adjunto e Coordenador do Laboratório de Processos Siderúrgicos, Universidade Federal de Minas Gerais, Departamento de Engenharia Metalúrgica e de Materiais, Belo Horizonte, Minas Gerais, Brasil.

## 1 INTRODUÇÃO

O alto-forno é o principal reator utilizado para a obtenção de ferro primário, sendo usualmente dividido em diferentes zonas, de acordo com níveis térmicos e as reações químicas existentes. A partir de um certo nível de temperatura, a redução da carga ferrosa é acompanhada do amolecimento e da fusão do leito – determinando a região denominada como zona coesiva. Devido à baixa permeabilidade apresentada pela carga ferrosa durante sua transformação do estado sólido para líquido, essa região é conhecida por ser a zona onde os gases em ascensão experimentam uma grande perda de pressão, influenciando a distribuição do fluxo gasoso e, conseqüentemente, na produtividade dos altos-fornos. De modo geral, sabe-se que as propriedades em altas temperaturas das cargas ferrosas, bem como a distribuição de carga no reator controlam o formato, a posição e a espessura da zona de amolecimento e fusão<sup>[1]</sup>. De acordo com Bakker e Hereema<sup>[2]</sup>, as seguintes etapas descrevem o amolecimento e fusão das cargas ferrosas:

- I. Estágio prévio ao amolecimento: a carga é pré-reduzida seguindo o modelo de núcleo não-reagido, produzindo uma estrutura constituída por uma casca metálica no exterior das partículas com um núcleo predominantemente na forma de wüstita;
- II. Estágio de amolecimento: ocorre uma significativa deformação do leito, seguido por uma diminuição na taxa (retardo) de redução. Ainda não há perda de pressão significativa, já que, mesmo com a contração do leito, ainda existem espaços vazios que permitem a passagem dos gases;
- III. Estágio de exsudação: a fase líquida, rica em FeO, presente no interior das partículas, é expulsa para o leito, preenchendo os espaços existentes entre as partículas, causando um brusco aumento da taxa de redução e da perda de pressão;
- IV. Estágio de gotejamento: nesse estágio o material fundido começa a gotejar. A perda de pressão e a taxa de redução, também diminuem.

No que diz respeito ao estágio de amolecimento, a observação do fenômeno de retardo de redução se deve ao preenchimento dos poros na superfície das partículas (casca metálica) pela escória formada no interior das mesmas, levando a densificação do ferro metálico. Bakker<sup>[3]</sup> verificou que a transição de fases decorrente da formação do líquido facilita a deformação e conseqüente o preenchimento dos poros. De acordo com Tokutake et al.<sup>[4]</sup>, a minimização da quantidade de escória formada em baixas temperaturas previne o retardo de redução. Ademais, segundo Shigaki et al.<sup>[5]</sup>, o aumento da basicidade dos aglomerados de óxidos de ferro pode gerar uma elevação da temperatura *solidus*, melhorando suas propriedades à alta temperatura e minimizando o retardo de redução.

Uma vez que o grau de redução da carga ferrosa está relacionado à quantidade de FeO presente no núcleo das partículas, influenciando também na quantidade de escória primária formada, o estudo do retardo de redução torna-se importante. Esse estudo teve como objetivo obter uma melhor compreensão dos fenômenos envolvidos nas etapas I e II, por meio da realização de ensaios de amolecimento e fusão para diferentes cargas comumente utilizadas em altos-fornos. O comportamento de amostras de sinter e de pelota de minério de ferro quando submetidas a altas temperaturas e condições redutoras foi avaliado, e, a partir de

ensaios interrompidos as características físicas das partículas que compõem o leito foram avaliadas.

## 2 MATERIAIS E MÉTODOS

### 2.1 Matérias-Primas

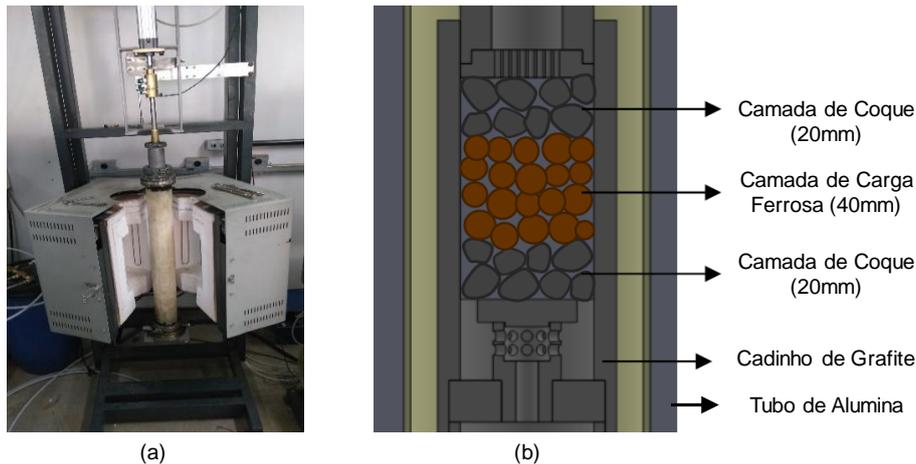
Para esse estudo, foram utilizadas amostras de sinter e pelota empregadas em reatores de escala industrial, cuja caracterização química encontra-se na Tabela 1.

**Tabela 1.** Análise química das matérias-primas utilizadas no estudo.

| (%)                            | Sinter | Pelota |
|--------------------------------|--------|--------|
| Fe(t)                          | 57,60  | 63,25  |
| CaO                            | 8,66   | 1,81   |
| SiO <sub>2</sub>               | 5,66   | 5,13   |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 1,48   | 1,11   |
| MgO                            | 1,48   | 0,68   |
| MnT                            | 0,74   | 0,28   |
| P                              | 0,046  | 0,047  |
| FeO                            | 6,05   | -      |
| PPC                            | -      | 0,10   |
| TiO <sub>2</sub>               | 0,108  | 0,13   |
| Na <sub>2</sub> O              | 0,008  | -      |
| ZnO                            | 0,002  | -      |
| K <sub>2</sub> O               | 0,036  | -      |
| Basicidade                     | 1,53   | 0,35   |

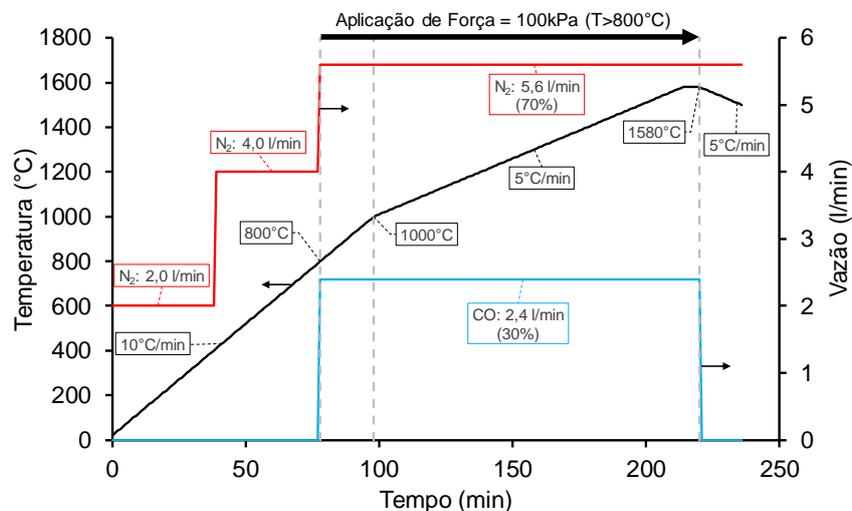
### 2.2 Ensaios de Amolecimento e Fusão

Para verificar as propriedades à alta temperatura das cargas ferrosas, ensaios de amolecimento e fusão foram realizados utilizando o forno apresentado na Figura 1a, localizado no Laboratório de Processos Siderúrgicos da Universidade Federal de Minas Gerais. Nesses ensaios as matérias-primas ferrosas foram inseridas em um cadinho de grafite com diâmetro interno de 48mm entre camadas de coque metalúrgico, conforme a Figura 1b. No leito montado, a espessura das camadas de coque e de carga ferrosa foram de 20 e 40 mm, respectivamente. Tanto o coque quanto a carga ferrosa foram utilizados com granulometria entre 10 e 12,5 mm.



**Figura 1.** (a) Forno de Amolecimento e Fusão e (b) montagem do cadinho.

Um diagrama ilustrativo das condições de teste pode ser observado na Figura 2. Inicialmente o forno foi aquecido até a temperatura de 800°C a uma taxa de 10°C/min em atmosfera inerte de Nitrogênio (N<sub>2</sub>). Ao atingir essa temperatura, a composição dos gases de entrada foi alterada para 70% de N<sub>2</sub> e 30% de CO a uma vazão de 8l/min. Além disso, a partir da temperatura de 800°C, uma carga mecânica de aproximadamente 100kPa foi exercida sobre o leito de amostra. Por fim, acima de 1000°C, a taxa de aquecimento foi reduzida para 5°C/min até atingir a marca de 1580°C, permanecendo nessa temperatura por um patamar de 5 minutos.



**Figura 2.** Condições experimentais dos ensaios de amolecimento e fusão.

O comportamento à alta temperatura das amostras foi monitorado continuamente, medindo-se a altura do leito e a diferença de pressão entre os pontos de entrada e saída dos gases. Além disso, no ponto de saída dos gases foi utilizado um equipamento capaz de acompanhar a evolução da composição dos gases de saída ao longo dos experimentos, tornando possível o cálculo do grau de redução em cada estágio dos ensaios. Ao final dos ensaios (realizados em duplicata) a análise do comportamento de contração, redução e permeabilidade de cada material foi realizada.

Com o intuito de compreender os fenômenos referentes à contração do leito, incluindo a etapa de retardo de redução, ensaios interrompidos foram realizados nas

temperaturas T0% (temperatura 100°C abaixo do início de contração), T10% (temperatura onde é observada uma contração de 10% do leito) e T50% (onde é observada uma contração de 50% do leito). Nesses testes, as condições experimentais apresentadas foram mantidas até que a temperatura desejada fosse atingida, a partir da qual a carga mecânica e os gases redutores foram removidos e o resfriamento da amostra foi realizado em atmosfera de nitrogênio.

### 2.3. Caracterização Física dos Produtos Interrompidos

Para caracterizar as amostras em relação aos fenômenos de contração e retardo de redução, análises de densidade e porosidade foram realizadas para as amostras antes e após os ensaios interrompidos (T0%, T10% e T50%).

A densidade aparente e a porosidade aberta de cada amostra foram calculadas por imersão em água aplicando-se o princípio de Arquimedes<sup>[6]</sup>. A densidade aparente ( $\rho_a$ ) e a porosidade aberta ( $\phi_{aberta}$ ) das amostras foram calculadas a partir das Equações 1 e 2<sup>[7]</sup>.

$$\rho_a = \rho_{H_2O} * \frac{m_1}{m_3 - m_2} \quad (1)$$

$$\phi_{aberta} (\%) = 100 * \frac{m_3 - m_1}{m_3 - m_2} \quad (2)$$

Em que  $m_1$  é a massa da amostra ao ar,  $m_2$  é a massa da amostra imersa em água e  $m_3$  é a massa da amostra com todos os seus poros abertos preenchidos por água. Já a densidade real de cada amostra foi obtida via picnometria utilizando água como fluido de medição. Para isso, todas as amostras foram cominuídas 100% abaixo de 48  $\mu\text{m}$ . O cálculo da densidade real ( $\rho_{real}$ ) das amostras se deu por meio da Equação<sup>[7]</sup>.

$$\rho_{real} = \rho_{H_2O} * \frac{mp_2 - mp_1}{(mp_4 - mp_1) - (mp_3 - mp_2)} \quad (3)$$

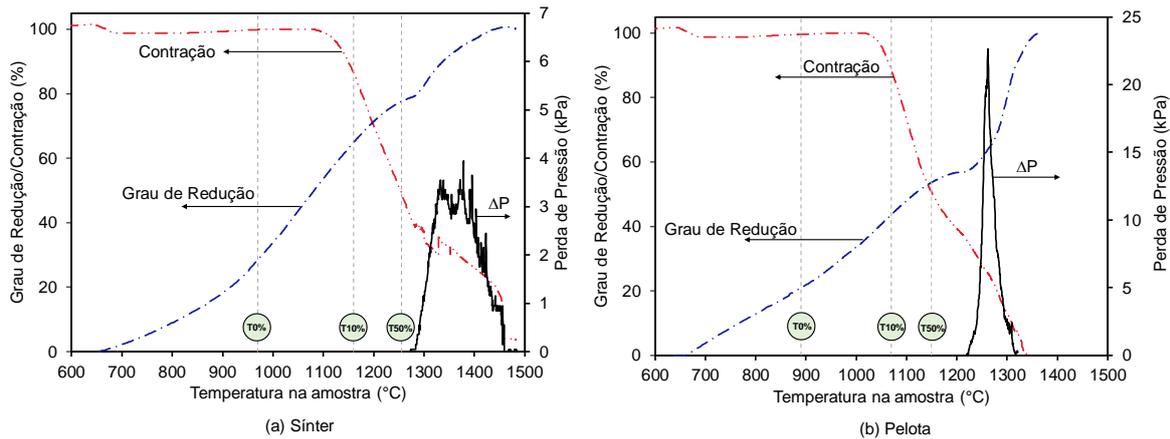
Em que  $mp_1$  é a massa do picnômetro vazio,  $mp_2$  é a massa do picnômetro contendo a amostra,  $mp_3$  é a massa do picnômetro com a amostra e preenchido por água e  $mp_4$  é a massa do picnômetro contendo apenas água.

Com o resultado da densidade real, a porosidade total ( $\phi_{total}$ ) foi calculada por meio da Equação 4. A porosidade fechada ( $\phi_{fechada}$ ) é o resultado da diferença entre a porosidade aberta e a porosidade total<sup>[7]</sup>.

$$\phi_{total} (\%) = 100 * \left( 1 - \frac{\rho_a}{\rho_{real}} \right) \quad (4)$$

## 3 Resultados e Discussão

As curvas de contração, perda de pressão e grau de redução, obtidas dos ensaios completos de amolecimento e fusão para o sinter e para a pelota são mostradas na Figura 3a e 3b, respectivamente. Os perfis obtidos condizem com o comportamento esperado para esses materiais pela literatura <sup>[8]</sup>.

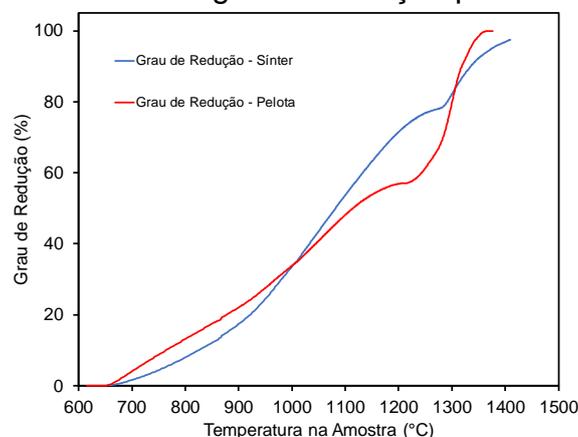


**Figura 3.** Curvas de contração, grau de redução e perda de pressão para (a) Sínter e (b) Pelota.

A partir dessas curvas, foram definidos os pontos de interrupção dos ensaios, indicados pelas linhas verticais tracejadas na Figura 3, os quais foram definidos com base nos diferentes níveis de contração e grau de redução de cada material. Portanto, para o sinter, essas temperaturas foram de 970 (T0%), 1160 (T10%) e 1255°C (T50%), enquanto para a pelota: 890 (T0%), 1070 (T10%) e 1150°C (T50%). É possível observar que a temperatura de início de amolecimento (onde a contração do leito tem início) do sinter (1080°C) é superior à da pelota (1000°C). Também para o sinter, observa-se que a temperatura onde se inicia a perda de pressão é maior, embora o pico de pressão (~4kPa) tenha menor intensidade quando comparado ao da pelota (~22kPa). Na curva do grau de redução é possível observar para ambas as matérias-primas uma mudança na inclinação próxima à temperatura T50%. Essa mudança caracteriza o fenômeno de retardo de redução, o qual foi observado para o sinter e de forma mais acentuada para a pelota. Com o aumento de temperatura a partir de T50% é observado, para o sinter em 1280°C e para a pelota em 1220°C, um rápido aumento do grau de redução acompanhado de um aumento da perda de pressão. Nesse momento ocorre a exsudação da escória formada no interior das partículas que, ao preencherem os espaços vazios entre as partículas do leito, dificultam o escoamento gasoso e promovem o aumento na perda de pressão.

### 3.1 Grau e Taxa de Redução

A Figura 4 destaca os resultados de grau de redução para o sinter e para a pelota.



**Figura 4.** Grau de Redução para sinter e pelota.

É possível observar que a redução de ambas as amostras teve início em 650°C. Para o sínter, a taxa de redução foi relativamente estável até a temperatura de 1150°C, sendo que, a partir dessa temperatura, a taxa de redução diminuiu, marcando o início do retardo de redução. Em seguida, logo após a taxa de redução ter atingido um mínimo (menor inclinação do grau de redução), a taxa de redução aumentou subitamente em torno de 1280°C. Esse aumento se deve, como explica Bakker<sup>[2]</sup>, à ruptura da casca metálica, fazendo com que a fase líquida, antes no interior das partículas, passe a ocupar os espaços vazios no leito, permitindo que esse seja reduzido pelo contato com os gases redutores e o coque.

Em relação a pelota, a curva de redução dessa amostra teve um perfil semelhante à do sínter até cerca de 1000°C. Contudo, a partir dessa temperatura é possível observar um maior grau de redução do sínter comparativamente à pelota, fato esse que fica ainda mais pronunciado a partir da temperatura de 1100°C. A partir dessa temperatura foi observada uma rápida diminuição na taxa de redução da pelota, retardo, o qual foi significativamente maior que o do sínter. Quanto às temperaturas de início do fenômeno de retardo de redução, esse começou para a pelota em torno de 1090°C em comparação com o início do sínter em 1160°C. Após temperatura de 1220°C, a exsudação da pelota ocorreu, causando assim um rápido aumento na taxa de redução.

### 3.2 Ensaios Interrompidos

A Figura 5 apresenta as imagens das partículas de sínter e pelota *in-natura* e das amostras interrompidas em diferentes temperaturas, as quais estão relacionadas a estágios de contração distintos. Nos leitos ensaiados até a T0% (Figuras 5b e 5f) não se observou a sinterização das partículas, e no caso da pelota houve a geração de finos. As partículas dos leitos submetidos até 10% de contração (T10%), Figuras 5c e 5g, apresentaram sinterização e no caso das pelotas foi possível observar a formação de trincas na superfície. Segundo a literatura<sup>[9]</sup>, essas trincas podem estar relacionadas ao surgimento de tensões internas devido à mudança de fase dos óxidos de ferro e à exposição das pelotas a gradientes térmicos durante a redução. A contração do leito e deformação das partículas é visível, principalmente para as temperaturas T50% (Figuras 5d e 5h), onde também pode ser observado um certo grau de metalização das partículas.

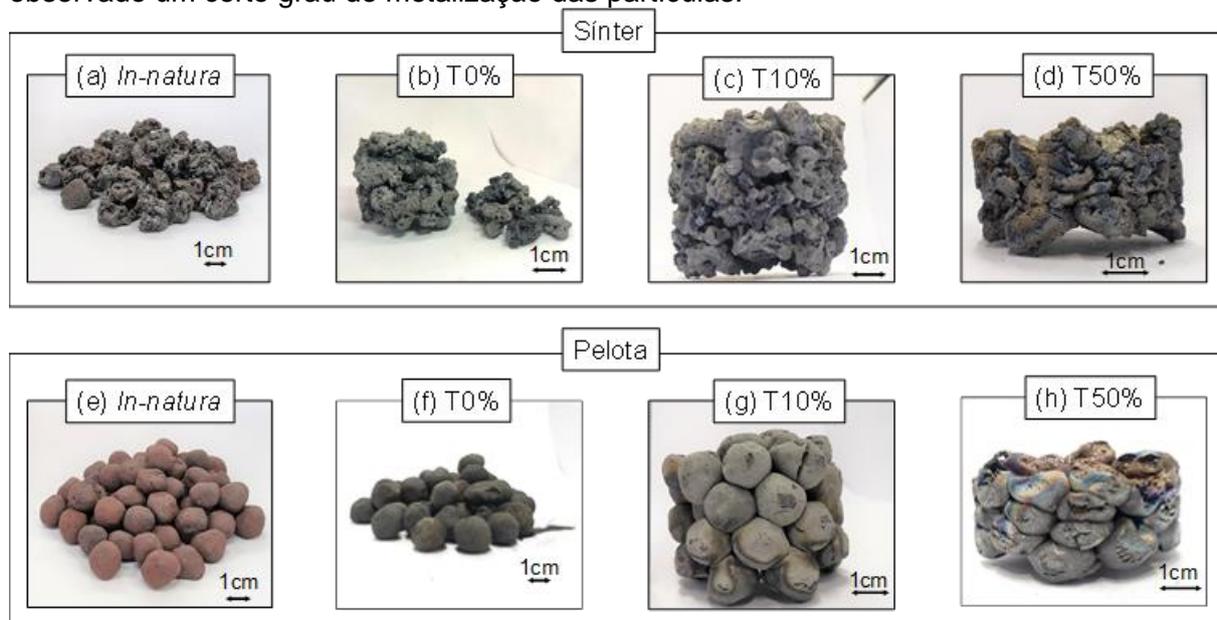
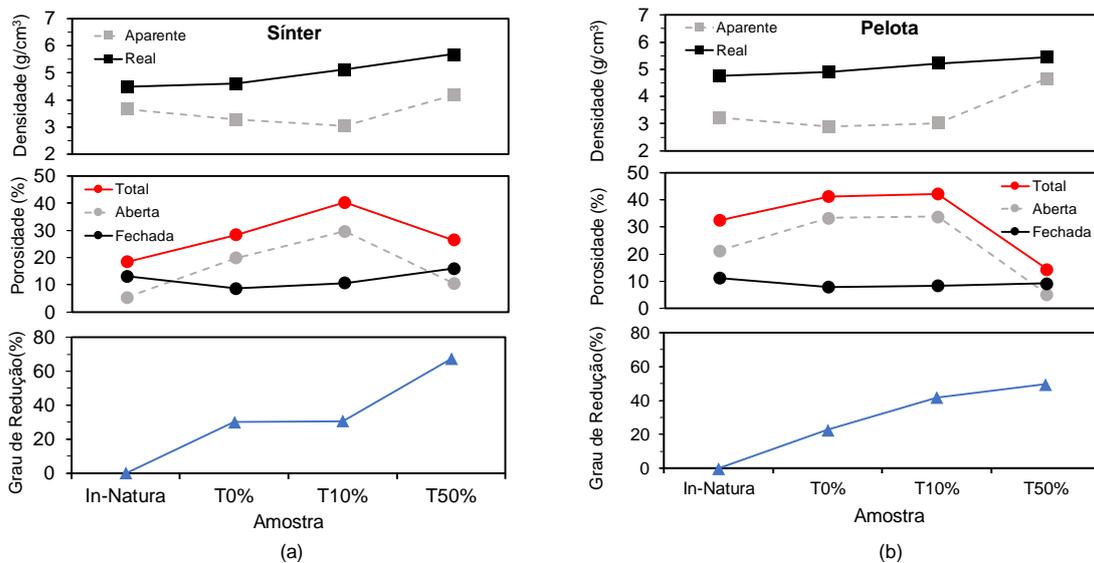


Figura 5. Leitos provenientes dos ensaios interrompidos.

Os resultados de densidade (aparente e real) e de porosidade (aberta, fechada e total), para as amostras *in-natura* e aquelas obtidas nos ensaios interrompidos são apresentados na Tabela 2. Na Figura 6 é feita uma comparação entre os dados mostrados na tabela e o grau de redução referente a cada amostra do ensaio interrompido.

**Tabela 2.** Densidades (aparente e real) e porosidade (aberta, fechada e total) dos leitos de sínter e pelota.

| Amostra | Teste     | T(°C) | $\rho_a$ (g/cm <sup>3</sup> ) | $\rho_{real}$ (g/cm <sup>3</sup> ) | $\phi_{aberta}$ (%) | $\phi_{fechada}$ (%) | $\phi_{total}$ (%) |
|---------|-----------|-------|-------------------------------|------------------------------------|---------------------|----------------------|--------------------|
| Sínter  | In-Natura | 25    | 3,7                           | 4,5                                | 5,3                 | 13,1                 | 18,4               |
|         | T0%       | 970   | 3,3                           | 4,6                                | 19,8                | 8,6                  | 28,4               |
|         | T10%      | 1160  | 3,1                           | 5,1                                | 29,6                | 10,6                 | 40,3               |
|         | T50%      | 1255  | 4,2                           | 5,7                                | 10,5                | 16,0                 | 26,5               |
| Pelota  | In-Natura | 25    | 3,2                           | 4,8                                | 21,2                | 11,3                 | 32,5               |
|         | T0%       | 890   | 2,9                           | 4,9                                | 33,3                | 7,9                  | 41,2               |
|         | T10%      | 1070  | 3,0                           | 5,2                                | 33,8                | 8,4                  | 42,2               |
|         | T50%      | 1150  | 4,7                           | 5,4                                | 5,2                 | 9,2                  | 14,4               |



**Figura 6.** Avanço de densidade, porosidade e grau de redução para (a) Sínter e (b) Pelota.

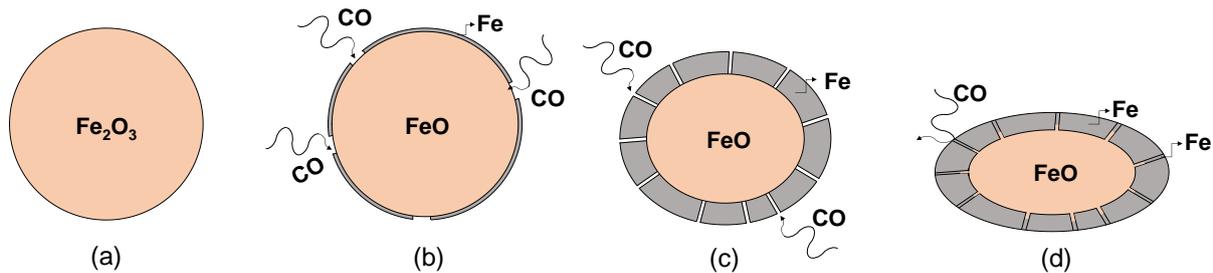
Para as duas amostras foi observado um aumento na densidade real dos leitos de partículas com o decorrer do teste, o que provavelmente está relacionado à formação de ferro metálico a partir da saída de oxigênio da amostra.

Para o sínter, até a temperatura T10% (1160°C) foi observada uma ligeira diminuição da densidade aparente do leito, acompanhada de um aumento da porosidade aberta. Em seguida, na temperatura T50% (1255°C) foi observado um aumento na densidade aparente acompanhado de uma diminuição na porosidade aberta de 29,6 para 10,5%. Esse resultado está de acordo com os encontrados por Shigaki et al.<sup>[5]</sup> onde verificou-se que na faixa de temperatura da amostra T50% (dentro do intervalo de retardo de redução), houve uma diminuição significativa da porosidade aberta da amostra.

Um fenômeno semelhante é verificado para as pelotas (Figura 6b). À medida que ocorre a redução, a porosidade aberta aumenta, provavelmente, como verificado por

Shigaki<sup>[5]</sup>, devido ao aumento do número de poros pequenos (menores que  $4\mu\text{m}$ ) na amostra em razão da redução de wüstita para ferro metálico. Ainda segundo Shigaki<sup>[5]</sup>, com o prosseguimento do aumento de temperatura, pode ocorrer a sinterização da casca metálica na presença de escória líquida oriunda do núcleo de wüstita, causando uma redução significativa na porosidade (de 34 para 5%) e, como observado na figura 6b, um aumento da densidade aparente do leito a partir de T10% ( $1070^\circ\text{C}$ ). É também nesse momento onde o retardo de redução se torna mais pronunciado.

A Figura 7 é um desenho esquemático da possível evolução da estrutura das partículas em cada teste realizado nesse estudo: (a) *In-natura*, (b) T0%, (c) T10% e (d) T50%.



**Figura 7.** Esquema das estruturas observadas em cada teste: (a) *In-natura*, (b) T0%, (c) T10% e (d) T50%.

Na Figura, de (a) até (c), conforme o aumento do grau de redução, é esperado que ocorra um aumento na espessura da casca de ferro metálico formada e um aumento da porosidade. Até que, com a formação de líquido retido no interior dessa casca, a carga mecânica exercida e o aumento de temperatura favorecem a migração do líquido formado para os poros da casca. Ao penetrar nesses poros, esse líquido (escória rica em  $\text{FeO}$ ) é reduzido (d), e um aumento de densidade aparente é observado. Nesse momento, a penetração dos gases redutores no interior do aglomerado é dificultada, causando uma diminuição na taxa de redução.

#### 4 CONCLUSÕES

A partir da realização dos ensaios de amolecimento e fusão e análise dos dados obtidos foi possível concluir que:

- (1) A partir de determinada temperatura ( $1150^\circ\text{C}$  para o sinter e  $1080^\circ\text{C}$  para as pelotas) a taxa de redução sofre uma diminuição, caracterizando o início do retardo de redução;
- (2) O retardo de redução aconteceu para as duas matérias-primas estudadas, e comparativamente manifestou-se de maneira mais intensa para as pelotas do que para o sinter;
- (3) Qualitativamente, observou-se uma redução da porosidade aberta de ambas as amostras, aproximadamente 65% para o sinter e 85% para a pelota, entre as temperaturas de interrupção T10% e T50%, as quais verificam a condição das cargas antes e durante o estágio de retardo de redução.

## REFERÊNCIAS

- 1 KAUSHIK, P., FRUEHAN, R. J. Mixed burden softening and melting phenomena in blast furnace operation Part 2–Mechanism of softening and melting and impact on cohesive zone. *Ironmaking & steelmaking*, v. 33, n. 6, p. 520-528, 2006.
- 2 BAKKER, T., HEEREMA, R. H. Determination of the fundamental mechanisms underlying softening and melting of blast furnace burden materials. 2nd International Congress on the Science and Technology of Ironmaking and 57th Ironmaking Conference. 1998. p. 1597-1608.
- 3 BAKKER, T., Softening in the blast furnace process: local melt formation as the trigger for softening of ironbearing burden materials. 1999.
- 4 TOKUTAKE, N., HASEGAWA, N., SUGIYAMA, T., KUWANA, M., Improvement of Reduction Retardation for Fluxed Pellets. SME Annual Meeting, 1989.
- 5 SHIGAKI, I., SHIROUCHI, S., TOKUTAKE, K., & HASEGAWA, N. Study and Improvement of Reduction and Melt-down Properties of Pellets. *ISIJ International*, 30(3), 199-207, 1990.
- 6 JURSOVA, S., PUSTEJOVSKA, P., & BROZOVA, S. Study on reducibility and porosity of metallurgical sinter. *Alexandria engineering journal*, 57(3), 1657-1664, 2018.
- 7 GUPTA, R. C. Theory and laboratory experiments in ferrous metallurgy. PHI Learning Pvt. Ltd., 2009.
- 8 NISHIMURA, T., HIGUCHI, K., NAITO, M., & KUNITOMO, K. (2011). Evaluation of softening, shrinking and melting reduction behavior of raw materials for blast furnace. *ISIJ international*, 51(8), 1316-1321.
- 9 HUANG, Z., YI, L., & JIANG, T. Mechanisms of strength decrease in the initial reduction of iron ore oxide pellets. *Powder Technology*, 221, 284-291, 2012.