

UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS

Programa de Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica, Materiais e de Minas

Dissertação de Mestrado

**ADIÇÃO DE ÓLEO PARA AUMENTO DA DENSIDADE DE CARGA DE CARVÕES NA  
COQUERIA**

Autor: Diego Canez Fernandes

Orientador: Prof. Dr. Maurício Covcevich Bagatini

Maio 2019

UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS

Programa de Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica, Materiais e de Minas

Diego Canez Fernandes

Adição de óleo para aumento da densidade de carga de carvões na coqueria

Dissertação de Mestrado apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica, Materiais e de Minas da Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, como requisito para obtenção do Grau de Mestre em Engenharia Metalúrgica, Materiais e de Minas.

Área de Concentração: Metalurgia Extrativa

Orientador: Maurício Covcevich Bagatini

Belo Horizonte

Universidade Federal de Minas Gerais

Escola de Engenharia

2019

F363a	<p>Fernandes, Diego Canez. Adição de óleo para aumento da densidade de carga de carvões na coqueria [recurso eletrônico] / Diego Canez Fernandes. – 2019. 1 recurso online (63 f. : il., color.) : pdf.</p> <p>Orientador: Maurício Covceovich Bagatini.</p> <p>Dissertação (mestrado) - Universidade Federal de Minas Gerais, Escola de Engenharia.</p> <p>Bibliografia: f. 60-63.</p> <p>1. Engenharia metalúrgica - Teses. 2. Metalurgia extrativa - Teses. 3. Materiais granulados - Teses. 4. Umidade - Teses. 5. Coque - Indústria - Teses. I. Bagatini, Maurício Covceovich. II. Universidade Federal de Minas Gerais. Escola de Engenharia. III. Título.</p> <p style="text-align: right;">CDU:669(043)</p>
-------	---

## AGRADECIMENTOS

O autor agradece a todos aqueles que, direta ou indiretamente, colaboraram na preparação deste trabalho.

A minha esposa e filha, pela paciência, compreensão e apoio incondicional durante todo período de realização deste trabalho.

Aos meus pais, que sempre me incentivaram.

Agradeço à Usiminas, através da Gerência Geral de Redução, pela oportunidade de realizar este trabalho, acreditando que o “conhecimento” é um dos pilares para o sucesso e desenvolvimento da empresa.

À UFMG, por parte do Departamento de Engenharia Metalúrgica e de Materiais, pelo conhecimento transmitido e recursos que viabilizaram a elaboração deste trabalho.

Ao professor Maurício Bagatini pelas orientações e conselhos, que foram essenciais para a conclusão deste trabalho.

À equipe do Laboratório de Coqueificação do Centro de Pesquisa da Usiminas que foram imprescindíveis para a condução das atividades laboratoriais realizadas nesta dissertação.

Ao pesquisador Henriquison Botrell Reis por todo o suporte, conhecimento compartilhado e co-orientação.

Aos amigos da Gerência Técnica de Redução da área de coquerias, pelo companheirismo, apoio e incentivo durante a realização desse trabalho.

## SUMÁRIO

<b>LISTA DE FIGURAS .....</b>	<b>VI</b>
<b>LISTA DE TABELAS .....</b>	<b>IX</b>
<b>RESUMO .....</b>	<b>XI</b>
<b>ABSTRACT .....</b>	<b>XII</b>
<b>1. INTRODUÇÃO .....</b>	<b>1</b>
<b>2. OBJETIVOS.....</b>	<b>3</b>
<b>3. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA.....</b>	<b>4</b>
3.1. O alto-forno e as funções do coque .....	4
3.2. Origem e formação do carvão.....	6
3.2.1. Classificação do carvão .....	8
3.2.2. Misturas de Carvões.....	9
3.3. Processo de Coqueificação .....	10
3.4. Produção Industrial de Coque.....	12
3.5. Avaliação das propriedades do coque para alto-forno .....	17
3.6. Densidade de Carga.....	20
3.6.1. Efeito da granulometria do carvão .....	21
3.6.2. Efeito da umidade do Carvão.....	23
3.6.3. Métodos de Adensamento .....	25
<b>4. MATERIAIS E MÉTODOS .....</b>	<b>36</b>
4.1. Preparação do carvão.....	36
4.2. Características do carvão e óleo.....	38
4.3. Níveis dos parâmetros testados.....	39
4.4. Determinação da densidade de carga .....	41
4.5. Fabricação do coque piloto .....	42
4.6. Determinação do tempo líquido de coqueificação .....	44
4.7. Caracterização da qualidade do coque.....	45
<b>5. RESULTADOS E DISCUSSÃO .....</b>	<b>47</b>
5.1. Avaliação da influência da granulometria, umidade e adição de óleo na densidade de carga .....	47
5.2. Efeito da densidade de carga na qualidade do coque.....	51
5.3. Avaliação do tempo líquido de coqueificação .....	56
<b>6. CONCLUSÕES .....</b>	<b>58</b>

<b>7. SUGESTÃO PARA TRABALHOS FUTUROS.....</b>	<b>59</b>
<b>8. REFERÊNCIA BIBLIOGRÁFICAS.....</b>	<b>60</b>

## LISTA DE FIGURAS

Figura 3.1: Esquema da região interna do alto-forno, mostrando suas diversas zonas (FLORES, 2014).....	5
Figura 3.2: Estagio da formação de carvão (COSTA et al., 2015).....	7
Figura 3.3: Evolução do <i>rank</i> ao longo da carbonização (COSTA et al., 2015). ....	7
Figura 3.4: Micrografias dos macerais mais representativos de carvão betuminoso (ULHOA, 2011).....	8
Figura 3.5: Esquema dos principais tipos de reações que ocorrem na fase plástica (COSTA et al., 2015). ....	11
Figura 3.6: Comportamento da carga algumas horas após o início (a) e final do processo (b) de coqueificação (ULHOA, 2011). ....	12
Figura 3.7: Desenho esquemático de uma coqueria <i>by-products</i> (COSTA et al., 2015). ....	13
Figura 3.8: Desenho esquemático de uma coqueria <i>Heat Recovery</i> (SILVA, 2008). ....	13
Figura 3.9: Perfis de temperatura da massa de carvão enfiada em diversos momentos da coqueificação (COSTA et al., 2005). ....	14
Figura 3.10: Processo de produção de coque (MARQUES, 2008). ....	16
Figura 3.11: Relação entre temperatura do gás bruto e outros parâmetros da produção de gás (ULHOA, 2011).....	17
Figura 3.12: Aspecto microscópico da carga normal (a) e de carga densificada (b) (ULHOA, 2011).....	20
Figura 3.13: Influência da densidade na qualidade do coque (adaptado de LEIBROCK, 1983).....	21
Figura 3.14: Curva densidade versus malha (SILVA, 2011). ....	22
Figura 3.15: Efeito da divisão de uma partícula em sua área de superfície e formação de vazios (CARIAS, 2018).....	22
Figura 3.16: Influência do superfino na densidade da mistura (SILVA, 2011).....	23
Figura 3.17: Influência da umidade da mistura de carvões na densidade aparente para varias granulometrias de carvão: (1) 0–35 mm; (2) 0–20 mm; (3), 0–10 mm; (4) 0–3 mm. DAS et al., 2013).....	24
Figura 3.18: Efeito da substituição e compactação sobre a densidade de mistura (CARIAS, 2018).....	24
Figura 3.19: Esquema com os equipamentos para processo de <i>Stamp Charging</i> . Para 1- Refratário, 2– SCP ( <i>Stamp-Charging-Pushing</i> ), 3- Silo de carvão, 4- Unidades para realizar	

o stamping, 5- Bolo de coque, 6- CGT ( <i>Charging Gas Transfer</i> ) carro, 7- Guia para o carro de coque e para realização do têmpera, 8- Torre de têmpera (ALVES, 2011 apud Rejdak & Wasielewski, 2014).	25
Figura 3.20: Carga preparada pelo método <i>stamp charging</i> . (MADIAS e CÓRDOVA, 2013).	26
Figura 3.21: Exemplo de briquetes de carvão mineral (OLIVEIRA, 2017).	26
Figura 3.22: Fluxograma da utilização parcial de briquetes na mistura da carga de carvões para produção de coque (OLIVEIRA, 2017).	27
Figura 3.23: Representação esquemática de um tensoativo (ROSSI, 2006).	28
Figura 3.24: Representação esquemática da superfície do carvão (NKOLELE, 2004).	28
Figura 3.25: Representação do surfactante na superfície do carvão (NKOLELE, (2004)).	29
Figura 3.26: Efeito da adição de óleo na densidade com variação da granulometria do carvão (a) e do teor de umidade (b) (FRAHLICHOVA, 2010).	29
Figura 3.27: Efeito do óleo na densidade de carvão (LEEDER, 2014).	30
Figura 3.28: Efeito da umidade da mistura na taxa de adição de óleo e densidade de carga (KERKKONEN, 2005).	30
Figura 3.29: Efeito da granulometria da mistura na taxa de adição de óleo e na densidade de carga (KERKKONEN, 2005).	31
Figura 3.30: Efeito da adição de óleo residual de laminação na densidade de uma mistura de carvão (adaptado de ALVAREZ et al., 1998).	31
Figura 3.31: Eficiência da adição de óleo diesel por nível de umidade (SABADINI et al., 2013).	32
Figura 3.32: Aumento da carga do forno piloto em função da adição de óleo diesel (SABADINI et al., 2013).	33
Figura 3.33: Aumento da carga por forno em função da adição de óleo diesel (SABADINI et al., 2013).	33
Figura 3.34: Elevação do DI15/150 da Coqueria n <sup>o</sup> 3 em função da adição de óleo diesel (SABADINI et al., 2013).	34
Figura 3.35: a) Contenção da pressão do gás interno carvão baixo rank e baixo poder coqueificante e b) efeito da densidade sobre a pressão interna do gás (adaptado de NOMURA et al., 2004).	35
Figura 4.1: Fluxograma das principais atividades realizadas no trabalho.	36
Figura 4.2: Quarteamento da amostra.	37
Figura 4.3: Representação da elaboração das subamostras pelo método de coleta de incrementos (MCI).	37

Figura 4.4: Misturador de carvão.....	38
Figura 4.5: Distribuição granulométrica do carvão.....	39
Figura 4.6: Caixa metálica utilizada para os testes.....	41
Figura 4.7: Realização do teste de densidade de carga.....	42
Figura 4.8: Forno piloto para ensaio de coqueificação (CP&D Usiminas).....	43
Figura 4.9: Esquema mostrando a separação do bloco de coque em regiões.....	44
Figura 4.10: Curva típica de temperatura x tempo obtida do ensaio de coqueificação em forno piloto (Laboratório do Centro de Pesquisa e Desenvolvimento da Usiminas).....	45
Figura 4.11: Representação esquemática do tambor do ensaio de DI (ULHOA, 2011). ....	46
Figura 4.12: Representação esquemática dos ensaios de resistência estrutural do coque (CRI/CSR) (ULHOA, 2011).....	46
Figura 4.13: Distribuição granulométrica das 3 faixas preparadas (82%, 85% e 88% < 2,83mm).....	41
Figura 5.1: Efeito da adição de óleo na densidade para diferentes umidades e granulometrias do carvão (%<2,83mm).....	48
Figura 5.2: Efeito da umidade do carvão na densidade para as diferentes granulometrias. ....	49
Figura 5.3: Efeito da granulometria na densidade para diferentes umidades do carvão. ....	50
Figura 5.4: DI em função da adição de óleo (a) e densidade (b) .....	53
Figura 5.5: CRI em função da adição de óleo (a) e densidade (b).....	54
Figura 5.6: CSR em função da adição de óleo (a) e densidade (b) .....	55
Figura 5.7: Relação entre índices CRI e CSR. ....	55
Figura 5.8: Tempo de Coqueificação em função da adição de óleo para os 3 níveis de granulometria. ....	56
Figura 5.9: Influência da densidade de carga no tempo líquido.....	57

**LISTA DE TABELAS**

Tabela 3.1: Classificação dos carvões conforme ASTM (COSTA et al., 2015). .....	9
Tabela 3.2: Características dos testes de tamboramento Micum tradicional e JIS (REIS, 1999). .....	18
Tabela 3.3: Distribuição granulométrica de uma mistura de carvões .....	22
Tabela 4.1: Características químicas, reológicas e petrográficas do carvão mineral .....	39
Tabela 4.2 Planejamento dos testes de densidade .....	40
Tabela 5.1: Resultados dos testes de densidade de carga.....	47
Tabela 5.2: Dados para realização dos enforamentos em forno piloto. ....	51
Tabela 5.3: Resultados de qualidade do coque. ....	52

## LISTA DE ABREVIATURAS

ASTM = American Society for Testing and Materials

COG = Coke Oven Gas

CP&D = Centro de Pesquisa e Desenvolvimento da Usiminas

CRI = Coke Reactivity Index

CSR = Coke Strength after Reaction of CO<sub>2</sub>

DDPM = divisão dial por minuto

DI = Drum Index

IRSID - Institut de recherche de la sidérurgie

JIS = Japanese Industrial Standarts

NSC = Nippon Steel Corporation

MICUM = Mission Interalliée de Controle des Usines e des Mines

## RESUMO

As técnicas que visam aumentar a densidade de mistura de carvões para uso nas coquearias contribuem para redução dos custos das misturas de carvões, pois possibilitam a utilização de carvões com menor poder coqueificante e de menor preço. Além disso, podem melhorar a resistência mecânica e a densidade do coque, o que contribui para a redução do *coke rate* em alto-forno. A adição de óleo na mistura de carvões eleva a densidade de carga reduzindo a tensão superficial da água, permitindo uma maior aproximação entre as partículas de carvão e assim, favorecendo o contato efetivo durante a fase plástica e produzindo um coque mais resistente. Esse trabalho apresenta um estudo dos efeitos da adição de óleo na densidade de carga em diferentes condições de granulometria e umidade de um carvão para uso na produção de coque metalúrgico. Foi avaliada também a influência da adição de óleo na qualidade do coque e no tempo de coqueificação em forno piloto. Foram realizados testes de densidade em três níveis de adição de óleo (1,0 l/t, 1,5 l/t e 2,0 l/t), umidade (8%, 10% e 12%) e granulometria (82%, 85% e 88% < 2,83mm). Posteriormente, produziu-se coque em escala piloto e o mesmo foi submetido a avaliação quanto a reatividade e resistência mecânica. O tempo de coqueificação foi avaliado através da evolução da temperatura, medida pelo um termopar instalado no centro da carga, durante todo processo de coqueificação. Os resultados mostraram que a adição de óleo no carvão eleva a densidade de carga enquanto que, com o aumento da umidade e da fração < 2,83mm a densidade é reduzida. O maior valor de densidade foi obtido com umidade de 8%, granulometria de 82% < 2,83mm e adição de 2,0 l/t de óleo. A resistência do coque, tanto DI quanto CSR, aumentou com o aumento da densidade, demonstrando a efetividade da adição de óleo no carvão. Contudo, com o aumento da densidade de carga observou-se maiores tempos de coqueificação.

Palavras-chave: Adição de óleo, Densidade, Granulometria, Umidade, Qualidade do coque.

## ABSTRACT

The techniques that aim the bulk density of coals mix increase for use in the coking plants contribute to the reduction of coals blend cost, since they enable the use of poor caking coals and lower price. In addition, they can improve the coke strength, which contributes to the coke rate reduction in the blast furnace. The oil addition in the coal mix increases the bulk density by reducing the surface tension of water and allowing a better approximation between the coal particles, favoring the effective contact during the plastic phase and producing a more resistant coke. This work presents a study of the oil addition effect on the bulk density under different coal particle size and moisture. The oil addition influence on coke quality and coking time in the pilot coke oven was also evaluated. Bulk density tests were performed at three levels of oil addition (1.0 l/t, 1.5 l/t and 2.0 l/t), moisture (8%, 10% and 12%) and particle size (82%, 85% and 88% < 2.83mm). Subsequently, on pilot-scale, coke was produced and submitted to reactivity and mechanical resistance tests. The coking time was measured through a thermocouple installed in the coal center during the entire coking process. The results showed that the gradual oil addition promoted an increase on bulk density while rising coal moisture and reducing particle size caused its decrease. The highest bulk density value was obtained with moisture 8%, particle size 82% <2.83mm and oil addition of 2.0 l/t. The coke strength (DI and CSR) was improved with the bulk density increase, showing the feasibility of this technique. However, with increasing bulk density, longer coking times were observed.

Keywords: Oil addition, Bulk density, Particle size, Moisture, Coke quality.

## 1. INTRODUÇÃO

O coque tem um grande impacto no custo do ferro-gusa e suas propriedades desempenham um papel importante no processo de alto-forno. A otimização da produção e uso do coque é crucial para a competitividade e sustentabilidade das usinas siderúrgicas, especialmente no Brasil, onde o carvão metalúrgico é importado.

Ampliar a utilização de carvões *soft*, de menor preço, e reduzir a participação dos carvões *hard*, maior preço, é um caminho para redução do custo e vem sendo estudada nas últimas décadas. Em contrapartida, a qualidade do coque é cada vez mais exigida no processo de produção de gusa em alto-forno e é normalmente avaliada a partir de propriedades como resistência mecânica a frio (DI), granulometria, porosidade, reatividade com CO<sub>2</sub> (CRI) e resistência após reação com CO<sub>2</sub> (CSR). Um coque de boa qualidade é capaz de garantir a alta produtividade de um alto-forno mantendo baixo seu *coke rate* (taxa de consumo de coque por tonelada de ferro-gusa produzido), o que por sua vez tem grande impacto nos custos desse processo.

A qualidade do coque, especialmente a resistência, é governada pela densidade de carga (KUMAR et al., 2007). Sabe-se que o aumento da densidade de carga resulta em uma maior proximidade das partículas de carvão durante a coqueificação, levando a uma forte ligação interpartículas no coque (ULHOA, 2011; KUMAR, 2007). Além disso, o coque produzido a partir de misturas com maiores densidades é menos poroso, o que é benéfico para sua resistência mecânica (LOISON et al., 1989). A utilização de técnicas de adensamento como a pré-secagem do carvão (KATO, 2006; NOMURA, 2004), *stamp charging* (MADIAS e CORDOVA, 2013), briquetagem parcial (OLIVEIRA, 2017) e adição de óleo (KERKKONEN, 2005; FRAHLICHOVÁ et al., 2010; Sabadini et al., 2013) possibilita o aumento da produtividade, aumento da qualidade e redução do custo de produção.

Fatores como umidade e a granulometria dos carvões influenciam fortemente os processos de adensamento. Em geral, reduzindo o tamanho da partícula do carvão, há um decréscimo da densidade de carga e a magnitude desse efeito está relacionada à umidade do carvão. De outro lado, um aumento do teor de umidade, inicialmente diminui a densidade e em maiores teores a densidade de carga volta a aumentar (CARIAS et al., 2018).

Na técnica de adição de óleo diesel no carvão ou mistura de carvões, os óleos, que se caracterizam por serem surfactantes, atuam na superfície da partícula de carvão reduzindo

a tensão superficial da água e permitindo uma maior aproximação entre as partículas sólidas, elevando a densidade de carga (NKOLELE, 2004).

Embora a literatura indique esse ganho de densidade devido à adição de óleo, as características do óleo e dos carvões empregados, podem influenciar de diferentes formas tanto as características de densidade de carga quanto as propriedades metalúrgicas do coque. Com o aumento da densidade de carga, deve-se estar atento às alterações quanto às suas características de interesse para uso no alto-forno e ao tempo de coqueificação. Estas mudanças devem ser controladas a fim de obter um coque com os parâmetros ideais e com maior densidade, implicando em uma maior produtividade nos fornos da coqueria.

## 2. OBJETIVOS

Este trabalho tem como objetivo geral avaliar a influência da adição de óleo sobre a densidade de carga de carvões na coqueria e propriedades metalúrgicas do coque.

Para isso, alguns objetivos específicos foram traçados:

- Identificar o efeito da adição de óleo diesel sobre a densidade de carga;
- Identificar o efeito da umidade e granulometria dos carvões sobre a densidade de carga;
- Investigar a influência da densidade de carga dos carvões sobre as propriedades metalúrgicas do coque obtido em forno piloto;
- Avaliar a influência da densidade de carga sobre o tempo de coqueificação em forno piloto.

### 3. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

#### 3.1. O alto-forno e as funções do coque

Os altos-fornos são responsáveis por aproximadamente 95% da produção de ferro primário e o mesmo prevalece em relação a outros processos em função de suas vantagens técnicas e econômicas (RIZZO, 2009). Eles são normalmente construídos como parte de uma usina siderúrgica integrada e envolvem altos investimentos. Modernos altos-fornos têm diâmetro de 14 a 15 metros e um volume de trabalho de até 4.800m<sup>3</sup> (GORDON, 2001).

O alto-forno é um reator de cuba de operação contínua que opera em regime de contracorrente para produção de ferro gusa (GORDON, 2001; FERNANDES, 2007). Como matérias-primas utiliza o sinter, o minério granulado e a pelota como carga metálica e como combustível principal é utilizado o coque metalúrgico.

As matérias-primas são carregadas pelo topo do reator e ar quente (ou ar enriquecido com oxigênio) é injetado na região inferior pelas ventaneiras com temperatura em torno de 1200°C. O oxigênio proveniente do ar injetado gaseifica o coque, produzindo o gás CO e gerando uma grande quantidade de calor. O gás segue em direção ao topo em contracorrente à descida da carga, promovendo o aquecimento, a redução e fusão da carga metálica. Também são injetados junto com o ar quente, outros combustíveis auxiliares como finos de carvão mineral (FERNANDES, 2007).

O alto-forno pode ser dividido em zonas distintas, mostradas na figura 3.1, e descritas a seguir (FERNANDES, 2007):

- zona granular, região onde toda carga se encontra no estado sólido;
- zona de amolecimento e fusão (coesiva), região onde os componentes da carga metálica e os fundentes iniciam o amolecimento e se fundem;
- zona de gotejamento, onde o metal e a escória, na forma líquida, escoam em contracorrente com gases através de uma camada de coque parcialmente reagido, localizado abaixo da zona coesiva, que fornece coque para combustão nas ventaneiras (região ativa) e para o homem-morto (região do homem-morto ou zona estagnante);
- zona de combustão (*raceway*), região em frente às ventaneiras que apresenta alta turbulência, onde ocorre a combustão do coque da zona ativa com oxigênio do ar soprado.

- zona de cadinho: Composta pelo coque empilhado do homem-morto junto com a escória e gusa depositado no fundo do reator, que serão removidos do forno.

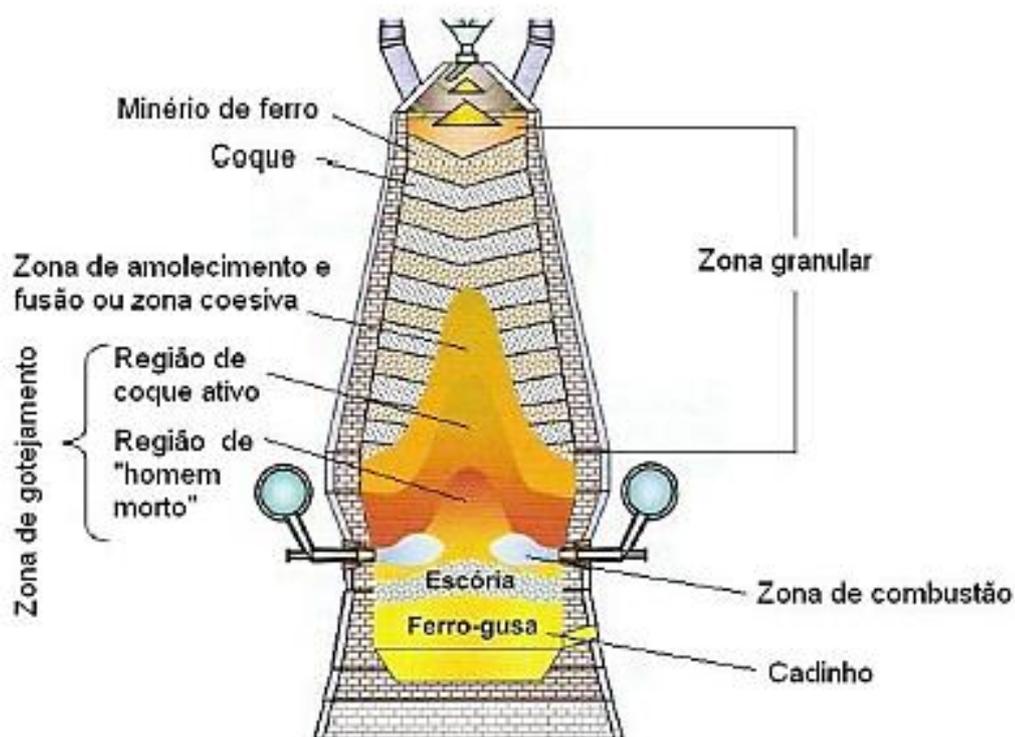


Figura 3.1: Esquema da região interna do alto-forno, mostrando suas diversas zonas (FLORES, 2014).

Os produtos obtidos no processo de alto-forno são o ferro-gusa, escória, pó, lama e gás de alto-forno, sendo o ferro-gusa uma liga composta de 92% a 95% de ferro, 3,0% a 4,5% de carbono e pequenos teores de outros elementos (FERNANDES, 2007).

O coque é um dos principais insumos e tem três funções fundamentais no processo (GORDON, 2001):

- função térmica para suprir a maior parte do calor requerido pelo processo;
- função química fornecendo o carbono necessário para geração dos gases redutores dos óxidos de ferro ( $\text{CO}$  e  $\text{H}_2$ );
- função física garantindo o meio permeável para a passagem dos gases e líquidos e com muita importância nas regiões inferiores do alto-forno.

Outro papel do coque é de transferir carbono para o ferro líquido, formando o ferro-gusa com temperatura mais baixa de fusão do que o ferro puro, além de gerar energia química nas etapas posteriores de elaboração do aço na aciaria (reações de oxidação do carbono) (RIZZO, 2009).

O coque é um grande responsável pela permeabilidade no interior do alto-forno e para isso deve apresentar boa resistência durante a descida da carga, ao mesmo tempo em que sofre significativas mudanças em suas propriedades químicas e físicas. O coque de qualidade inferior degrada e diminui de tamanho devido ao seu carregamento e ao longo da sua descida no reator, até o seu consumo no cadinho. Na zona coesiva, a quantidade de finos nas janelas (nas camadas) de coque é maior, causando um fluxo de gás irregular e uma fluidização do coque nessa região. Isso leva a um aumento da resistência à passagem dos gases ascendente na zona de gotejamento, aumentando o fluxo de gás contra as paredes do alto-forno, na parte inferior da zona coesiva. Já na zona de combustão, a deterioração do coque aumenta ainda mais, diminuindo a penetração da *raceway* e aumentando o fluxo de gás contra as paredes do forno. Por fim, no cadinho, os finos e cinzas produzidos na *raceway* fazem com que o gotejamento do ferro-gusa e escória seja heterogêneo, causando vazamento irregular.

Todos esses fatores citados deixam claro que a permeabilidade no alto-forno é essencial e a qualidade do coque, quanto a resistência a degradação no interior do alto forno, são propriedades fundamentais para o coque de alto-forno (FLORES, 2014).

### **3.2. Origem e formação do carvão**

O carvão mineral é um combustível fóssil que foi originado a partir da interrupção do processo de decomposição de matéria vegetal (restos de plantas) acumuladas sob uma lâmina de água. A água estagnada impediu que bactérias e fungos fizessem o processo de decomposição da celulose. Estes depósitos sofreram soterramento e compactação provocando um aumento da temperatura e da pressão sobre a matéria orgânica. As condições de pressão e temperatura determinam a carbonização (conversão da matéria orgânica para carbono elementar) gradativa do material vegetal, que sofre mudanças físicas e químicas como a redução do teor de oxigênio e hidrogênio, do material volátil, aumento do teor de carbono e da reflectância da vitrinita (*rank*) (RIZZO, 2009; COSTA et al., 2015).

As características de cada carvão dependem das condições da deposição como paleoclima, paleogeografia, as mudanças da matéria vegetal morta, presença de sais ou

água fresca e seu pH, ações de bactérias aeróbicas e anaeróbicas e a presença de fungos e as condições geológicas (presença de bacias hidrográficas, subsidência rápida ou lenta, a proteção dos depósitos e movimentos tectônicos) (LOISON et al., 1989).

De acordo com o grau de carbonização, existem quatro estágios na formação de carvão, que se referem à transformação progressiva da turfa em linhito, carvão sub-betuminoso até antracito, conforme mostrado na figura 3.2.



Figura 3.2: Estágio da formação de carvão (COSTA et al., 2015).

À medida que a turfa vai sendo soterrada, ela sofre alterações na sua constituição físico-química com aumento progressivo do teor de carbono e redução dos voláteis ( $H_2$ ,  $CO_2$  e  $CH_4$ ). O *rank* é a medida do estágio de transformação que o carvão sofreu ao longo da carbonização (COSTA et al., 2015). A evolução do *rank* é mostrada na figura 3.3

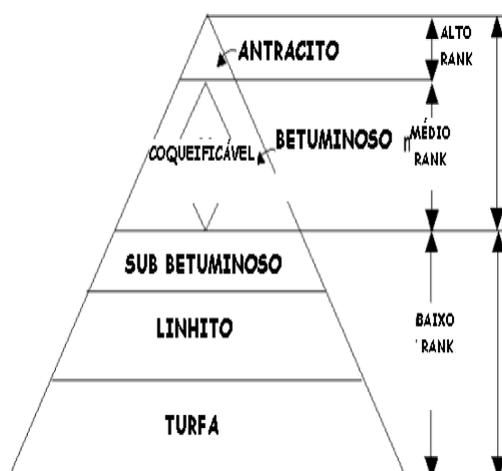


Figura 3.3: Evolução do *rank* ao longo da carbonização (COSTA et al., 2015).

O carvão é uma mistura complexa de matéria orgânica e inorgânica e quando observado em microscópico apresenta diferentes constituintes petrográficos (figura 3.4), conhecidos como macerais (semelhantes aos minerais nas rochas) e pode ser dividido em três grupos principais: vitrinita, exinita e inertinita, sendo a vitrinita o maceral, geralmente, mais predominante. Além dos macerais, o carvão é constituído por matéria mineral, sendo mais comum a argila, os carbonatos, os sulfetos e o quartzo (ULHOA, 2011). Os carvões adequados para fabricação de coque são ricos em vitrinita (65% a 85%) e pobres em inertinita (5% a 20%) (RIZZO, 2009).

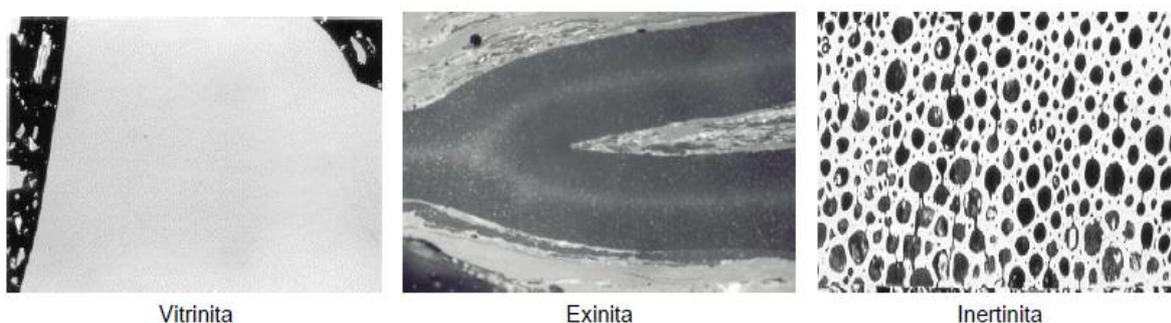


Figura 3.4: Micrografias dos macerais mais representativos de carvão betuminoso (ULHOA, 2011).

Os macerais são divididos em reativos e inertes em função do seu comportamento durante a coqueificação. Os reativos sofrem amolecimento, fusão e posterior solidificação e funcionam como aglomerantes no processo. Já os inertes não sofrem fusão e permanecem praticamente inalterados durante a coqueificação devendo ser aglomerados no processo. Os macerais reativos são a vitrinita e a exinita, e quantidade variável do grupo das inertinitas, que na maioria dos casos se comportam como inertes durante a coqueificação (ULHOA, 2011).

### 3.2.1. Classificação do carvão

Devido à grande variedade de carvões no mundo, é necessário identificá-los de acordo com algum parâmetro. Muitos países têm a sua própria classificação e a maioria é baseada em análises indicadoras de *rank* e propriedades aglutinantes do carvão. Comercialmente, a classificação americana (ASTM -388), tabela 3.1, é bastante utilizada (FLORES, 2014).

Tabela 3.1: Classificação dos carvões conforme ASTM (COSTA et al., 2015).

Classe/Grupo	Limites de Carbono Fixo (Seco e Livre de Matéria Mineral)		Limites de Matéria Volátil (Seco e Livre de Matéria Mineral)		Limites de Poder Calorífico Superior (Úmido <sup>a</sup> e Livre de Matéria Mineral)				Caráter Aglomerante
	%		%		Btu/lb		Mj/kg		
	Igual ou Maior que	Menor que	Maior que	Igual ou Menor que	Igual ou Maior que	Menor que	Igual ou Maior que	Menor que	
Antracito:									
Meta-antracito	98	...	...	2	...	...	...	...	Não Aglomerante
Antracito	92	98	2	8	...	...	...	...	
Semiantracito <sup>c</sup>	86	92	8	14	...	...	...	...	
Betuminoso:									
Baixo Volátil	78	86	14	22	...	...	...	...	Comumente Aglomerante <sup>e</sup>
Médio Volátil	69	78	22	31	...	...	...	...	
Alto Volátil A	...	69	31	...	14000 <sup>p</sup>	...	32,6	...	
Alto Volátil B	...	...	...	...	13000	14000	30,2	32,6	
Alto Volátil C	...	...	...	...	11500	13000	26,7	30,2	
					-----	-----	-----	-----	Aglomerante
Sub-betuminoso:									
A	...	...	...	...	10500	11500	24,4	26,7	Não Aglomerante
B	...	...	...	...	9500	10500	22,1	24,4	
C	...	...	...	...	8300	9500	19,3	22,1	
Linhito:									
A	...	...	...	...	6300	8300	14,7	19,3	
B	...	...	...	...	...	6300	...	14,7	

A propriedade aglomerante (aglutinante) é uma importante característica para indicar a viabilidade do carvão em se transformar em coque metalúrgico. Pela norma ASTM, esta propriedade está relacionada com a capacidade do carvão em amolecer, passar por uma fase plástica, quando aquecido acima de 400°C em atmosfera oxidante, e formar uma massa coesa após o resfriamento até a temperatura ambiente. A propriedade aglomerante também é denominada fluidez do carvão (RIZZO, 2009).

### 3.2.2. Misturas de Carvões

Devido ao alto custo dos carvões para fabricação do coque, normalmente são utilizadas misturas de carvões com diferentes tipos de carvão mineral, sendo que cada carvão contribui com diferentes propriedades e características. Por exemplo, o maior teor de enxofre em um carvão pode ser balanceado por menores teores de enxofre em outros. O somatório de suas propriedades deve possibilitar produzir um coque de boa qualidade e baixo custo (GORDON, 2001; FLORES, 2014).

A qualidade do coque produto é dependente da natureza dos carvões usados na mistura de carvões, de como os carvões foram manuseados, de como a carga foi coqueificada e de como o coque foi apagado e manuseado. A natureza dos carvões tem influência em termos de *rank*, composição de macerais e habilidade aglutinante (ULHOA, 2011).

Os carvões utilizados são normalmente divididos em quatro classes principais que são descritas a seguir.

Carvão baixo volátil (BV): apresenta matéria volátil em base seca e isenta de cinzas (MVbsic) entre 14% e 22%. Esses carvões são responsáveis por aumentar a pressão dentro dos fornos durante a coqueificação, podendo causar danos estruturais nas paredes refratárias, mas em contrapartida proporcionam um aumento da resistência mecânica do coque e devem ser utilizados com restrição.

Carvão médio volátil (MV): apresenta MVbsic entre 22% e 31%. São os carvões mais utilizados nas misturas, pois geralmente apresentam as melhores propriedades plásticas para a coqueificação.

Carvão alto volátil (AV): apresenta MVbsic entre 31% e 40%. São carvões de baixo *rank* (reflectância da vitrinita entre 0,7% e 1,1%), usualmente apresentando fluidez elevada. Podem aumentar a porosidade do coque, diminuindo sua resistência mecânica.

Carvão *Soft*: O termo *soft* é empregado para carvões com menor custo no mercado que apresentam fracas propriedades aglutinantes ou pelo menos uma propriedade fora das especificações normais de processo, tais como teor de cinzas ou enxofre.

Além dos carvões coqueificáveis BV, MV e AV, outros materiais carbonosos podem ser adicionados às misturas. Aditivos considerados reativos (alcatrão, óleo, piche, etc), aumentam a fluidez de misturas deficientes em propriedades plásticas. Outros materiais, considerados inertes (antracito, coque de petróleo, moinha de coque), atuam como elementos antifissurantes, diminuindo a contração média do coque durante a coqueificação, e conseqüentemente a formação de fissuras (FLORES, 2014; RIZZO, 2009).

### **3.3. Processo de Coqueificação**

O processo de coqueificação consiste no aquecimento progressivo em condições controladas e ausência de ar, até temperaturas da ordem de 1100°C, de uma mistura de carvões, dando origem a produtos voláteis (gases, vapores condensáveis, água, benzeno e alcatrão) e a um resíduo sólido, poroso e resistente, rico em carbono, denominado coque (ULHOA, 2011).

O processo de pirólise do carvão passa por várias etapas que podem ser divididas em três principais (ULHOA, 2011; COSTA et al., 2015):

- até 350°C, quando há a vaporização da umidade e o início da desvolatilização, tendo o alcatrão com principal produto volátil;

- entre 350 e 550°C, chamada de fase plástica quando são liberados os voláteis primários, compostos principalmente de alcatrão, além de  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{C}_2\text{H}_6$ ,  $\text{CH}_4$  e  $\text{H}_2\text{O}$ . Nesta fase é formada uma pasta que vai envolvendo as partes ainda sólidas, muitas diluídas pelo líquido formado;

- entre 550 e 1000°C, quando são liberados os voláteis terciários, compostos, principalmente de  $\text{H}_2$ , além de hidrocarbonetos gasosos saturados e insaturados. Nesta fase, a pasta começa a endurecer, a contrair e a trincar, formando o semicoque e depois o coque.

Segundo LOISON et al. (1989), as reações que ocorrem durante a fase plástica são divididas em, basicamente, dois tipos:

- reações de craqueamento: onde ocorre o rompimento das ligações C-C produzindo polímeros menores do que o do carvão e em grande parte em estado líquido nessas temperaturas. A saturação de dois radicais formados pelo rompimento das ligações C-C necessitam de hidrogênio, que será fornecido pelo segundo tipo de reação;

- reação de condensação e aromatização: há formação de cadeias aromáticas mais longas com anéis saturados, ocorrendo também a desidrogenização dos anéis saturados e a recombinação de grupos aromáticos com outros. Estas reações liberam hidrogênio e formam o resíduo de carbono sólido (COSTA et al., 2005). Na figura 3.5, são mostrados os dois tipos de reações citadas acima.

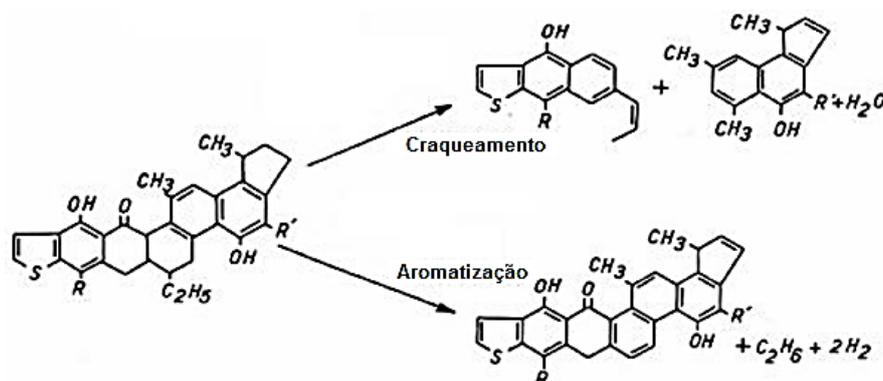


Figura 3.5: Esquema dos principais tipos de reações que ocorrem na fase plástica (COSTA et al., 2015).

A última etapa do processo de coqueificação é a solidificação, que começa acima de 500°C. Nessa etapa ocorrem as volatilizações finais e a formação do semicoque, com aumento da geração de hidrogênio e a redução da geração de metano. A temperatura aumenta gradativamente e o semicoque se transforma no coque a uma temperatura de 950°C a 1.000°C. O bolo de coque, no processo industrial, ainda fica dentro do forno por um tempo,

após a formação do coque, para homogeneizar a temperatura da massa como um todo e, com isso, equalizar as propriedades físicas e metalúrgicas do coque (COSTA et al., 2015).

Ao final do processo de coqueificação, tem-se um bloco monolítico de coque (apresentando uma retração lateral na direção horizontal do forno e uma contração vertical na direção da altura do forno). Esse bloco monolítico é composto de pedaços de coque encaixados uns aos outros e durante o desenformamento da massa de coque, esse bloco monolítico se desfaz e ao cair no vagão de extinção e já se apresenta sob a forma de partículas unitárias de coque (ULHOA, 2011). A Figura 3.6 mostra as diversas fases durante a coqueificação até a formação do coque.

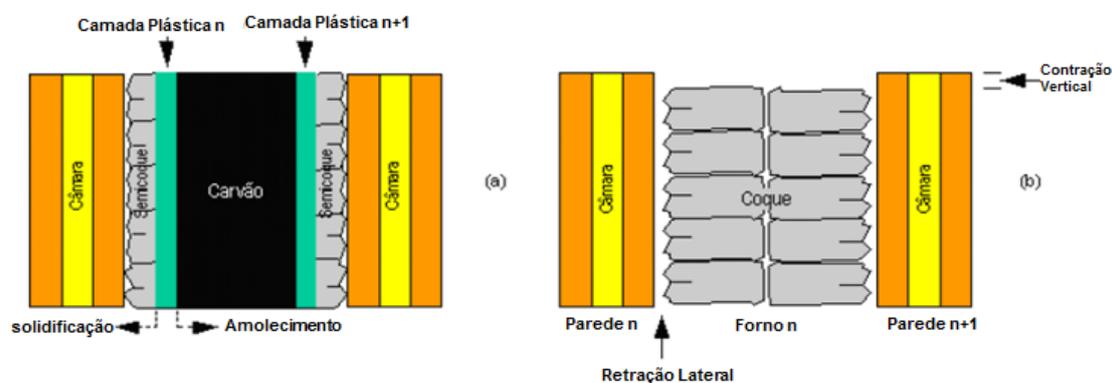


Figura 3.6: Comportamento da carga algumas horas após o início (a) e final do processo (b) de coqueificação (ULHOA, 2011).

### 3.4. Produção Industrial de Coque

As plantas de produção de coque mais utilizadas atualmente podem ser divididas em 2 tipos, *by-products* (ou convencional, com recuperação de subprodutos) e *heat recovery*. As *by-products* geram o gás de coqueria (*coke oven gas* - COG) e os mesmos são destinados a unidades carboquímicas, onde esse gás é limpo para ser utilizado nos processos siderúrgicos e na própria coqueria. Nas plantas *Heat Recovery*, os gases não são reaproveitados. Essas baterias utilizam o calor da queima dos gases gerados na coqueificação para seu próprio processo de coqueificação e os fumos gerados dessa queima são utilizados para produção de energia elétrica e posteriormente tratados e emitidos na atmosfera (COSTA et al., 2015). As figuras 3.7 e 3.8 mostram os dois tipos de plantas.

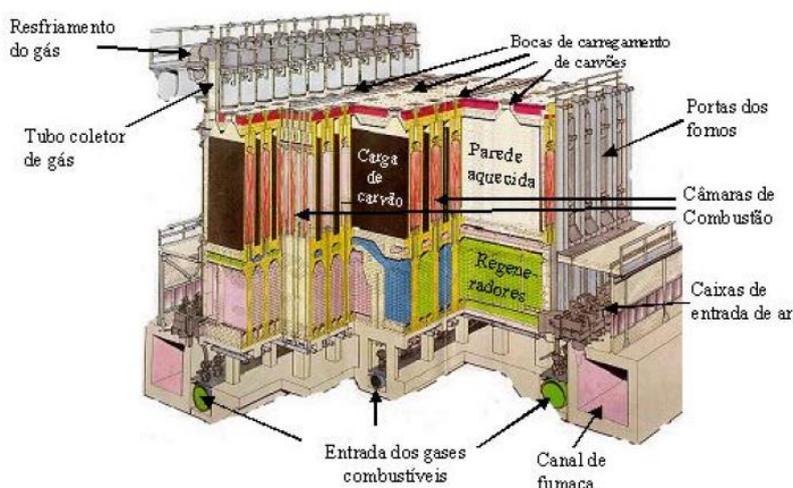


Figura 3.7: Desenho esquemático de uma coqueria *by-products* (COSTA et al., 2015).

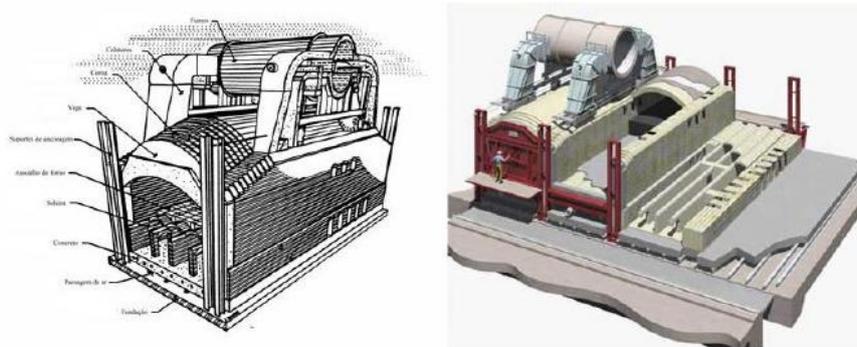


Figura 3.8: Desenho esquemático de uma coqueria *Heat Recovery* (SILVA, 2008).

Uma bateria de fornos de coque *by-products* é constituída de fornos ou câmaras verticais geralmente de 11 a 15 metros de comprimento, 3 a 7 metros de altura e 0,2 a 0,55 metros de largura. Cada forno recebe uma carga útil de 24 a 30 toneladas de carvão. Suas paredes são construídas de tijolos refratários e aquecidas por um gás combustível (gás de coqueria ou gás misto) (RIZZO, 2009).

A dinâmica da transferência de calor durante a coqueificação ocorre pela forma de condução, convecção e radiação (LOISON, 1989). Um fluxo constante de calor é fornecido a parede de aquecimento, e essa dinâmica de transferência de calor varia ao longo da largura do forno, pois a condutividade da massa de carvão é diferente da condutividade da fase plástica e que também é diferente da condutividade do semicoque. Como há um deslocamento da camada plástica e as espessuras de cada camada (carvão, fase plástica e semicoque) variam com o tempo, há também uma variação da taxa de transferência de calor (ULHOA, 2011; COSTA, 2015). Na figura 3.9 é mostrado um gráfico de distribuição de

temperatura ao longo da largura do forno durante as diversas fases do processo de coqueificação.

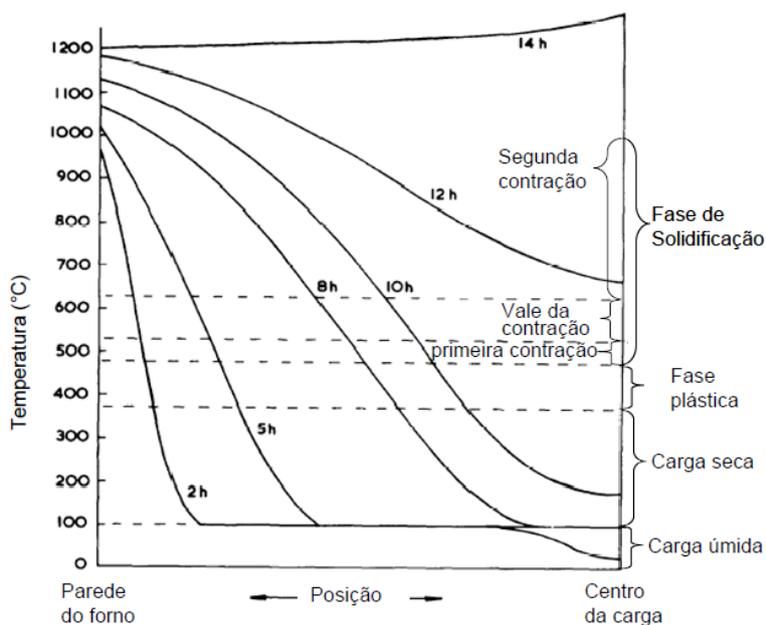


Figura 3.9: Perfis de temperatura da massa de carvão enfiada em diversos momentos da coqueificação (COSTA et al., 2005).

A fabricação de coque das baterias *by-products* compreende os seguintes processos (figura 3.10) (MARQUES, 2008; COSTA et al., 2015):

- enfiamento da mistura de carvões na câmara de coqueificação ou forno;
- nivelamento;
- coqueificação da mistura de carvões enfiada;
- desenfornamento do coque formado;
- extinção ou resfriamento do coque incandescente desenfornado;
- envio do coque para os altos-fornos ou para o pátio de estocagem;
- recolhimento dos gases gerados durante a coqueificação.

Cada processo será descrito a seguir.

Enfiamento da mistura de carvões: o carro de carregamento recebe a mistura de carvões de silos e faz a transferência de uma quantidade pesada de mistura para dentro dos fornos

por gravidade ou outro sistema de alimentação (mesas rotativas ou parafusos alimentadores) para dentro dos fornos (etapas 1 e 2 - figura 3.10);

Nivelamento: a operação é realizada pela máquina desenfordadora, que possui uma barra de metal que é introduzida, através de uma portinhola localizada na parte superior da porta do forno, com o objetivo de tornar a parte superior da carga enforada retilínea, além de criar uma zona livre para saída dos gases (etapa 3 - figura 3.10);

Coqueificação: depois da carga carregada dentro forno, cujas paredes estão entre 1000 a 1100°C, a mistura de carvões começa a sofrer o processo de coqueificação, conforme relatado anteriormente. A coqueificação irá ocorrer entre 15 a 24 horas, dependendo da temperatura média da parede e largura do forno. O tempo entre o momento do enforamento e o momento do desenforamento é chamado de tempo bruto de coqueificação (TB). O tempo entre o enforamento até o momento que toda mistura de carvão se transformou em coque é chamado de tempo de coqueificação (TL). Para garantir que toda massa de coque tenha uma qualidade mais homogênea possível, é necessário dar uma tempo extra de permanência da massa de coque no forno, esse tempo extra é chamado de tempo de supercoqueificação (TS), ou *stay time*. Logo, o tempo bruto compreende a soma do tempo de coqueificação mais o tempo de supercoqueificação.

Desenforamento: a retirada da carga coqueificada de dentro do forno é realizada pela máquina desenfordadora através da ação mecânica de um embolo que “empurra” a carga para fora do forno. A carga passa por uma grade que direciona a massa para o vagão de extinção. A máquina móvel que possui essa grade é a guia de coque (etapas 4 e 5 – figura 3.10).

Extinção ou resfriamento do coque incandescente desenforado: o coque sai dos fornos com temperaturas da ordem de 1100°C e para possibilitar o manuseio do material, o vagão é levado por uma locomotiva até a torre de extinção, onde a massa de coque incandescente é submetida a um banho controlado com água. Com isso tem-se a redução da temperatura do coque para valores da ordem de 60°C. O coque pode ser extinto também por um processo chamado CDQ (*coke dry quenching*) que significa apagamento a seco do coque. Esse sistema utiliza nitrogênio para o resfriamento do coque e o calor desse gás é reaproveitado para geração de energia elétrica.

Envio: o coque extinto é descarregado por gravidade numa rampa de concreto, aproveitando o fundo inclinado do vagão. Da rampa, o material chega ao sistema de correias transportadoras, que enviam o coque até os silos dos altos-fornos.

Recolhimento dos gases: O gás produzido durante o processo de coqueificação dos carvões é conduzido pela zona livre na parte superior do forno até uma de suas extremidades com uma temperatura na ordem de 600 a 700°C, e ao passar pelo tubo de ascensão, que está localizado em uma das extremidades do forno no sentido da saída dos gases, este gás é submetido a um jato de licor amoniacal, que faz o seu resfriamento a um nível de 80°C. Este tubo é interligado com uma tubulação de gás (tubo coletor) que recebe o gás dos demais fornos da bateria, geralmente de metade da bateria ou a bateria toda. Os gases e os condensados são enviados para a unidade carboquímica.

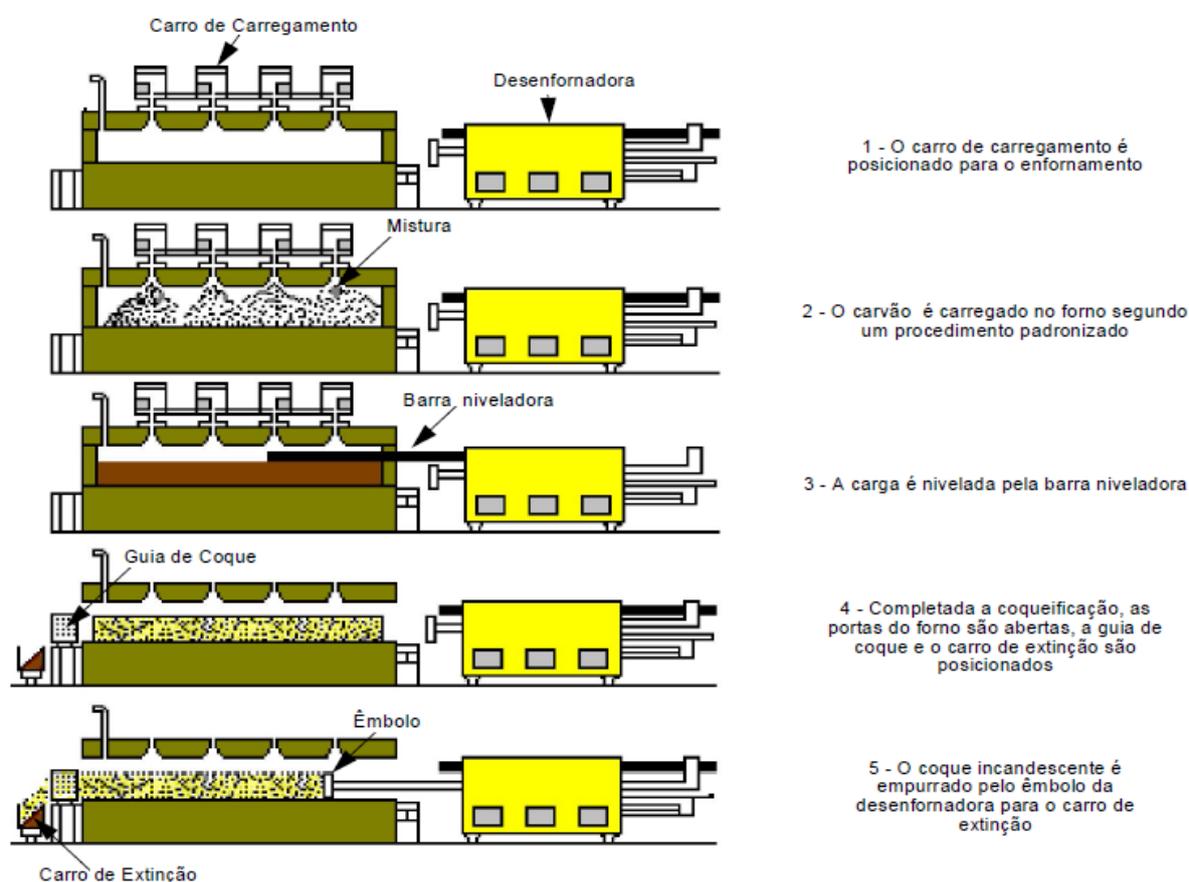


Figura 3.10: Processo de produção de coque (MARQUES, 2008).

O controle do tempo de coqueificação é muito importante para o processo de produção do coque, pois é partir dele e da temperatura das câmaras, que se faz o controle do fluxo de calor para aquecimento dos fornos. A determinação de quando a massa de coque está coqueificada pode ser feita através de inspeção visual da coloração do gás gerado (uma fumaça mais branca para transparente indica o final do processo de coqueificação) e através da temperatura do gás produzido. Neste último, o monitoramento da temperatura do gás é feito através de termopares no tubo de ascensão, essa temperatura atinge um valor

máximo (chamado de  $T_{\text{máx}}$ ) no final da coqueificação e depois cai. Esse pico é reconhecido como característico do estágio final do processo e coincide com o encontro das camadas plásticas no centro da carga. Nesse momento, grandes quantidades de gás são geradas, o teor de hidrogênio ( $H_2$ ) aumenta de maneira acentuada e o de metano ( $CH_4$ ) diminui até atingir seu valor final (ULHOA, 2011), ver figura 3.11.

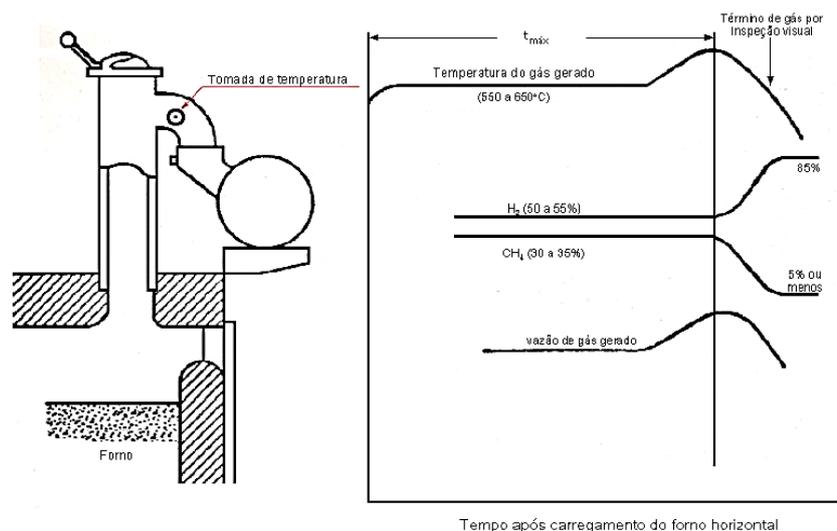


Figura 3.11: Relação entre temperatura do gás bruto e outros parâmetros da produção de gás (ULHOA, 2011).

### 3.5. Avaliação das propriedades do coque para alto-forno

Para cumprir suas funções no alto-forno, o coque deve apresentar determinadas propriedades químicas e físicas. Essas propriedades irão depender, fundamentalmente, da qualidade dos carvões utilizados para a obtenção do coque, das condições operacionais de preparação e das baterias de coqueificação (LOISON et al., 1989).

Em geral o coque deve apresentar um tamanho médio alto e uma faixa de tamanho estreita, isso ajuda a manter uma fração de vazios estável no alto-forno, permitindo o fluxo ascendente de gases, e descendentes de ferro fundido e escória, melhorando assim a produtividade do alto-forno (VALIA, 2014; GORDON, 2001; DIEZ et al., 2002). Além disso, o coque deve suportar esforços estruturais (solicitações mecânicas, impacto e/ou abrasão) a que será submetido sem apresentar fragmentação excessiva. No alto-forno, particularmente na metade inferior do forno, a estrutura do coque torna-se porosa e progressivamente mais fraca, devido a gaseificação por  $CO_2$ , onde o coque reduz o  $CO_2$  e  $H_2O$  para  $CO$  e  $H_2$ . Como resultado, a força e a estabilidade da estrutura de coque após a reação com  $CO_2$  em alta temperatura é um parâmetro importante (GORDON, 2001; RIZZO, 2009).

A medição das propriedades físicas ajuda a determinar o comportamento do coque dentro e fora do alto-forno. Em termos de resistência do coque, a resistência mecânica do coque a frio e a resistência do coque após reação com  $\text{CO}_2$  são os principais parâmetros (VALIA, 2014; GORDON, 2001). A resistência mecânica a frio mostra a capacidade do coque em resistir à quebra em temperatura ambiente e reflete o comportamento do coque fora do alto-forno e na parte superior do mesmo. Já a resistência após reação com  $\text{CO}_2$  tem como objetivo identificar a perda de resistência e redução de tamanho do coque após reagir com  $\text{CO}_2$ , em outras palavras, mede a susceptibilidade do coque em se fragmentar em partículas menores no contato com ambiente contendo  $\text{CO}$  e  $\text{CO}_2$  em regiões de alta temperatura no interior do alto-forno (RIZZO, 2009).

Para mensurar a resistência mecânica a frio do coque, testes de tamboramento, em que a quebra das partículas se dá por esse tipo de esforço, são usados na determinação da resistência do coque de alto-forno (tabela 3.2). Dois tipos de parâmetros são usados para expressar seus resultados, sendo um que considera a quantidade de finos produzidos (passante em uma determinada malha) e que corresponde à resistência à abrasão e outro expressando a quantidade de coque graúdo (retido) remanescente do tamboramento, indicando a resistência ao impacto (REIS, 1999).

Tabela 3.2: Características dos testes de tamboramento Micum tradicional e JIS (REIS, 1999).

Tambor	Micum	1/2 Micum	JIS K2151
Granulometria do coque (mm)	>60	>60	>25
Peso de coque(kg)	50	25	10
Dimensões do tambor (m)	1,0 x 1,0	0,5 x 1,0	1,5 x 1,5
Velocidade de rotação (rpm)	25	25	15
Total de revoluções	100	100	150
Malhas (mm)	60, 40 e 10	60, 40 e 10	50, 25 e 15
Furo das malhas	Redondo	Redondo	Quadrado
Expressão dos resultados	$M_{40}$ e $M_{10}$	$M_{40}$ e $M_{10}$	DI 15-150

O teste de tamboramento da norma JIS K2151 é bastante usado e o índice que expressa os resultados é o  $DI_{15-150}$ , que equivale ao retido na malha de 15mm após tamboramento. Valores de  $DI_{15-150}$  acima de 83 a 85% são típicos de metas objetivadas em usinas siderúrgicas.

O teste tradicional de tamboramento Micum (*Mission Interalliée de Controle des Usines e des Mines*) é ainda aplicado. Ele pode ser realizado em tambor de 1 metro ou de 1/2 metro de comprimento e tem como expressão de resultados o  $M_{40}$  (retido na malha de 40mm) e o  $M_{10}$  (passante na malha de 10mm) (REIS, 1999).

Um teste equivalente ao MICUM é o teste IRSID (*Institut de recherche de la sidérurgie*), onde amostra é submetida a 500 rotações no tambor, sendo 100 rotações no MICUM, o que representa condições mais severas. De forma semelhante, a proporção retida em uma peneira de 10mm é referida como índice I10 e I40 a retida em uma peneira de 40mm como I40 (GORDON, 2001).

Quanto à resistência do coque após reação com  $\text{CO}_2$ , muitos estudos já foram realizados para avaliar o potencial químico e o de degradação do coque dentro do alto-forno, mas os testes mais utilizados hoje em dia são os testes *Coke Reactivity Index* (CRI) e o *Coke Strength after Reaction* (CSR). Ambos os testes foram desenvolvidos pela Nippon Steel Corporation (NSC) no Japão, se tornando os métodos mais usados para avaliar o efeito da reação de *solution loss* (equação 3.1) no coque (Hilding et al., 2005 *apud* Alves, 2017). A análise de CRI determina a reatividade do coque de acordo com a reação citada, enquanto o CSR determina a resistência mecânica do mesmo após a reação. Valores de CRI abaixo de 24% e CSR acima de 65,5 a 67% são típicos de metas objetivadas em siderúrgicas (RIZZO, 2009).



Com relação às propriedades químicas, as mais importantes são a umidade, o carbono fixo, a cinza, o enxofre, o fósforo e os álcalis. O carbono fixo é a porção de combustível do coque; quanto maior o carbono fixo, maior o poder calorífico do coque. Os outros componentes, como umidade, cinza, enxofre, fósforo e álcalis são indesejáveis, pois têm efeitos adversos sobre as necessidades de energia, operação do alto-forno, qualidade do ferro-gusa, e/ou revestimento refratário (VALIA, 2014).

O teor de umidade é consequência direta do processo de apagamento do coque, com alguma dependência do tamanho. O teor de umidade do coque varia de 1% a 6% em peso máximo e os valores comuns estão na faixa de 3% a 4% em peso. De outras propriedades químicas, o enxofre e a cinza (teor e química) são de grande importância, pois à medida que aumentam, a produtividade no alto-forno diminui. A cinza do coque influencia no volume e na composição da escória. A experiência industrial indica que um aumento de 1% em peso de cinza no coque reduz a produção de ferro-gusa em 2% ou 3% em peso. Valores superiores a 10% em peso podem ser satisfatórios, mas apenas se a composição das cinzas for aceitável (DIEZ et al., 2002).

### 3.6. Densidade de Carga

Para uma maior produtividade dos altos-fornos, a qualidade do coque é essencial e para produzir coque com qualidade é necessária a utilização de carvões com bom poder coqueificante. Por outro lado, há a necessidade de reduzir o custo do coque, que é impactado principalmente pelo custo da mistura de carvões.

Um das alternativas para reduzir o custo do coque é a utilização de carvões de baixo poder coqueificante, os *soft coking coal* ou *non-coking coal*, sem acarretar perdas significantes na qualidade. Para isso, métodos para aumento da densidade da mistura de carvões possibilitam a utilização desses tipos de carvões em maior proporção (SILVA, 2008).

A densidade de carga (*bulk density*) é a densidade do material incluindo poros e vazios interpartículas. Fisicamente, está ligada à maior ou menor proximidade entre as partículas na carga e, quanto maior a densidade, mais estreito é o contato entre as mesmas, proporcionando o melhor aproveitamento da habilidade aglutinante dessas partículas. No contexto da coqueificação no forno, a densidade de carga pode ser vista como uma medida da distância entre as partículas de carvão no seu interior, sendo essa distância de maior importância para a ligação entre as partículas durante o processo de coqueificação e que quanto menor essa distância, ou seja, quanto maior a densidade de carga, melhor em termos de qualidade do coque, pois mais fortes são as ligações interpartículas, e menor a necessidade da habilidade aglutinante do carvão (ULHOA, 2011). A figura 3.12 mostra um exemplo do comportamento das partículas de carvão com o processo de adensamento.

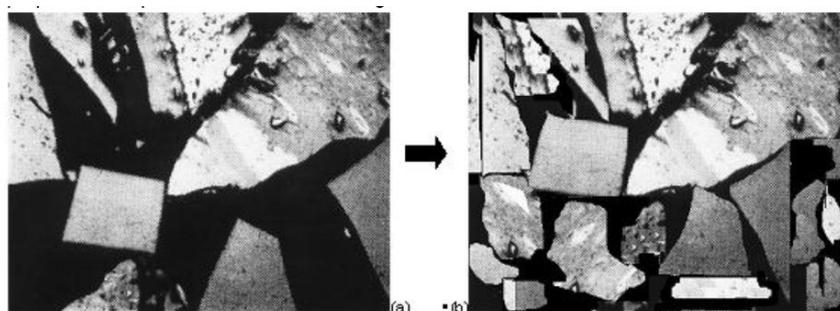


Figura 3.12: Aspecto microscópico da carga normal (a) e de carga densificada (b) (ULHOA, 2011).

LEIBROCK (1983) avaliou o efeito do aumento da densidade de carga na abrasão e resistência mecânica do coque para uma mistura de carvão, contendo carvões alto e baixo voláteis, conforme mostrado na figura 3.13.

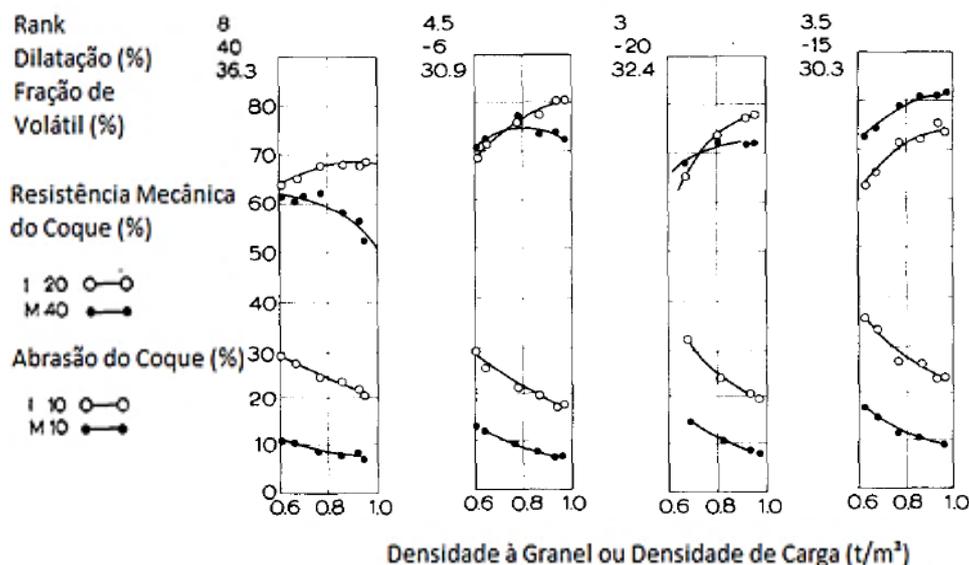


Figura 3.13: Influência da densidade na qualidade do coque (adaptado de LEIBROCK, 1983).

Para todas as misturas os índices de resistência a abrasão  $M_{10}$  e  $I_{10}$  e o índice de resistência mecânica  $I_{20}$  mostraram melhora com o aumento da densidade, o que indica um aumento da qualidade do coque. O índice de resistência ao impacto e abrasão  $M_{40}$  não apresentou essa tendência e somente a partir de certa adição de baixo voláteis houve melhora. Isso se deve ao fato de que na coqueificação de carvões com alto poder coqueificante o aumento da densidade provoca um aumento na fissuração causando um descréscimo do  $M_{40}$ . Com a adição de carvões baixo voláteis a fissuração diminui e após um valor ótimo, o  $M_{40}$  tende a aumentar com a elevação da densidade.

### 3.6.1. Efeito da granulometria do carvão

A britagem do carvão é essencial para a homogeneização da carga em relação ao conteúdo de materiais reativos e inertes. O objetivo principal é assegurar a diferença mínima entre diferentes frações de tamanho em termos de cinzas, propriedades aglutinantes, etc. Maior finura da mistura melhora a distribuição de partículas reativas, mas em paralelo aumenta a área superficial e com isso a necessidade de maior poder aglomerante dos reativos. Outro impacto é a redução da densidade aparente (SAHOO et al., 2016).

No trabalho de SILVA (2011), foram realizados experimentos de caracterização química, física e de densidade das faixas granulométricas de uma mistura. As quantidades retidas em cada faixa granulométrica após o peneiramento estão mostradas na Tabela 3.3.

Tabela 3.3: Distribuição granulométrica de uma mistura de carvões

Malhas (mm)	4	2,8	1,41	0,5	0,25	0,15	<0,15
% Mistura	12,1	7,2	15,9	22,8	14,7	9,4	17,9

Os resultados de densidade a granel são mostrados na figura 3.14. Observa-se que cada faixa apresentou um valor de densidade específica e com a redução da granulometria, a densidade diminui devido aumento da fração de vazios no material (SILVA, 2011).

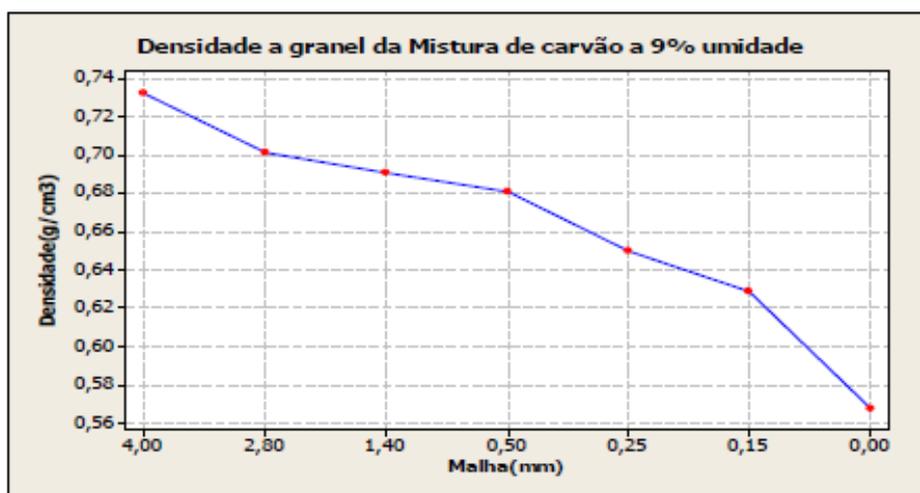


Figura 3.14: Curva densidade versus malha (SILVA, 2011).

Segundo CARIAS (2018), quando as partículas de carvão são divididas, a área de superfície total e o número de espaços vazios entre as partículas aumentam (figura 3.15) aumentando o volume ocupado pela massa de carvão e assim diminuindo a densidade.

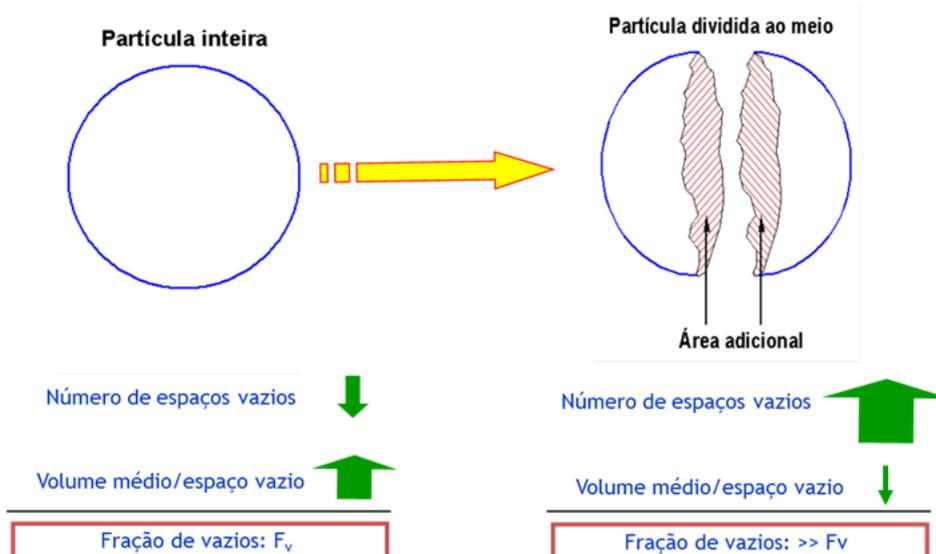


Figura 3.15: Efeito da divisão de uma partícula em sua área de superfície e formação de vazios (CARIAS, 2018).

SILVA (2011) também realizou experimentos a fim de avaliar a influência da quantidade de superfinos (< 0,15mm) na densidade de carga. O resultado é mostrado a seguir na figura 3.16.

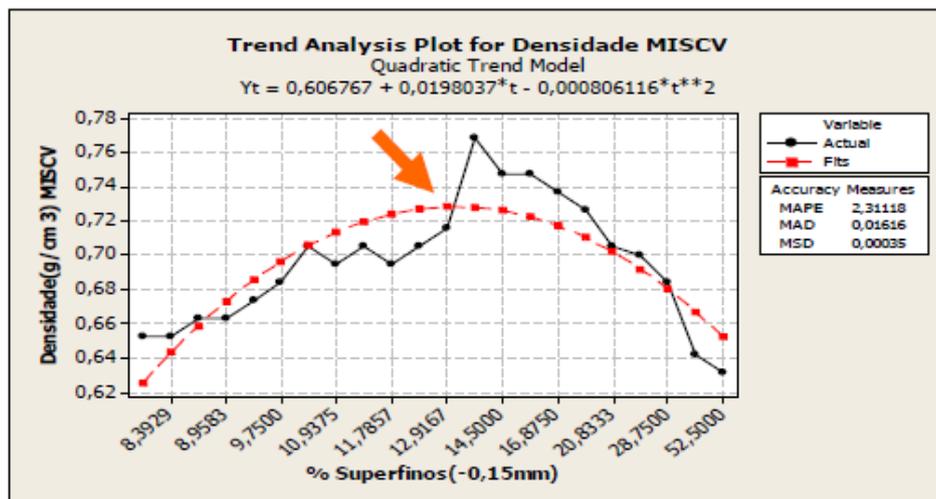


Figura 3.16: Influência do superfino na densidade da mistura (SILVA, 2011).

Pode-se concluir que a adição de até 13% em massa de superfinos contribuiu para o aumento da densidade. O material fino ocupa os interstícios existentes entre as partículas maiores, diminuindo a fração de vazios da carga e, portanto, aumentando a densidade da mistura. Provavelmente, acima de 13% tem-se uma saturação em superfinos e, portanto, um efeito negativo na densidade, uma vez que ocorre a formação de camadas ou zonas de alta concentração de superfinos fora dos interstícios já saturados (SILVA, 2011).

### 3.6.2. Efeito da umidade do Carvão

A umidade afeta a densidade por aumentar a distância entre uma partícula em função da sua tensão superficial. Quanto maior área superficial (mistura mais fina) maior será a influência da umidade na densidade da mistura de carvões. A figura 3.17 mostra que um aumento da umidade reduz a densidade à um valor mínimo e depois começa a aumentar, dependendo da granulometria do carvão. A inversão da influência da umidade acontece para umidades mais altas, uma vez que a propriedade da água de facilitar o escorregamento das partículas uma nas outras passa a ser mais determinante para a densidade do que o afastamento pela tensão superficial (COSTA et al., 2005; DAS et al., 2003).

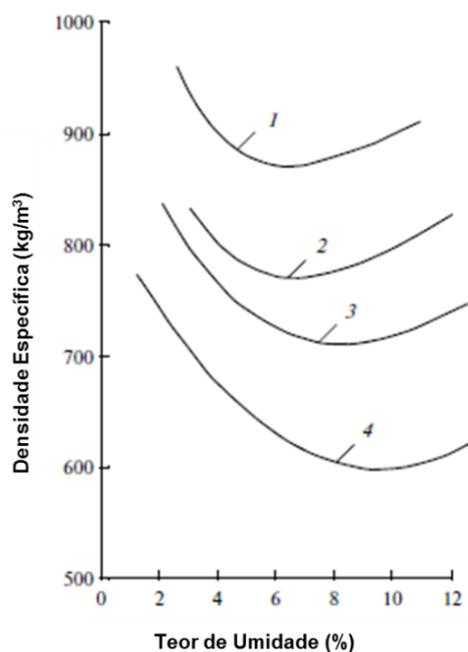


Figura 3.17: Influência da umidade da mistura de carvões na densidade aparente para varias granulometrias de carvão: (1) 0–35 mm; (2) 0–20 mm; (3), 0–10 mm; (4) 0–3 mm. DAS et al., 2013).

Segundo CARIAS (2018), até determinado teor de umidade, a água repele as partículas de carvão devido ao seu comportamento hidrofóbico, aumentando a distância entre as partículas e, conseqüentemente, diminuindo a densidade. Por outro lado, o excesso de umidade promove a aglomeração das partículas de carvão, com a água atuando como ligante, formando pseudopartículas e reduzindo a distância entre as partículas, promovendo um leve aumento da densidade, figura 3.18.

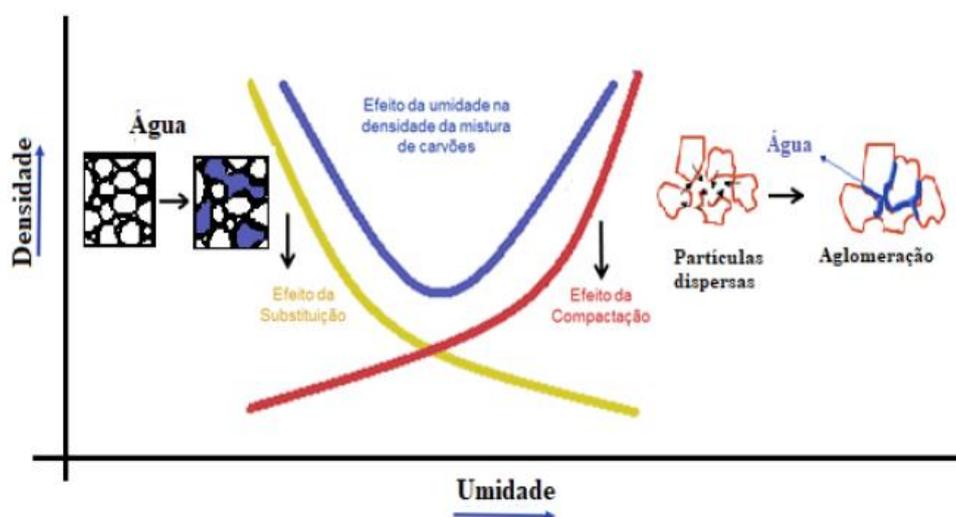


Figura 3.18: Efeito da substituição e compactação sobre a densidade de mistura (CARIAS, 2018).

Uma densidade específica uniforme do carvão carregado nos fornos resulta em uma resistência uniforme da massa de coque do forno, para isto a umidade do carvão deve ser também uniforme ou óleo deve ser adicionado visando compensar estas variações (DAS et al., 2013).

### 3.6.3. Métodos de Adensamento

Alguns métodos de adensamento muito utilizados são o processos de *stamp charging*, briquetagem e adição de óleo na mistura de carvões. Esses métodos serão descritos a seguir

#### **Stamp Charging**

A técnica de *stamp charging* foi criada inicialmente com a intenção de usar carvões pobres com alto teor de voláteis em sua estrutura. Basicamente, a técnica consiste na preparação da mistura de carvões em uma caixa metálica, seguido de uma prensagem e introdução no forno para obtenção do coque (figura 3.19 e 3.20). A maior densidade obtida implica num coque de melhor qualidade quando comparada ao carregamento normal e pode-se utilizar carvões de baixo poder coqueificante (MADIAS e CORDOVA, 2013).

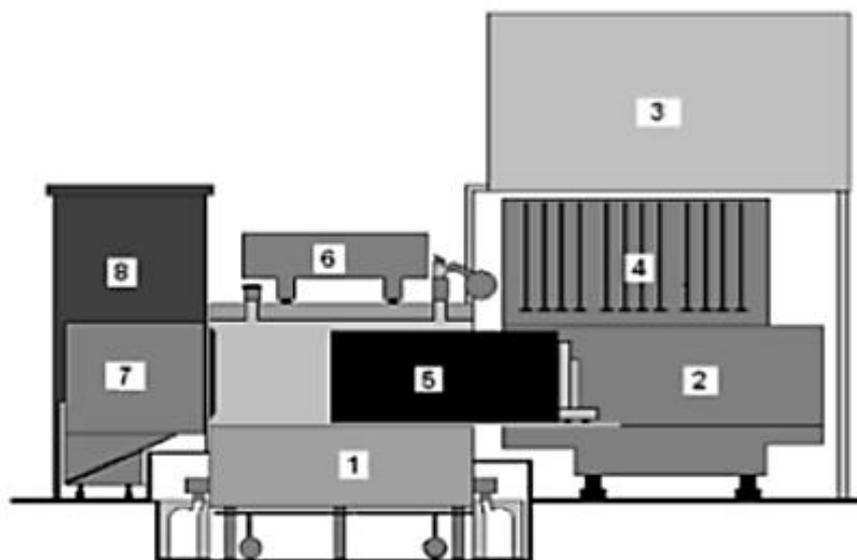


Figura 3.19: Esquema com os equipamentos para processo de *Stamp Charging*. Para 1- Refratário, 2- SCP (*Stamp-Charging-Pushing*), 3- Silo de carvão, 4- Unidades para realizar o stamping, 5- Bolo de coque, 6- CGT (*Charging Gas Transfer*) carro, 7- Guia para o carro de coque e para realização do têmpera, 8- Torre de têmpera (ALVES, 2011 apud Rejdak & Wasielewski, 2014).

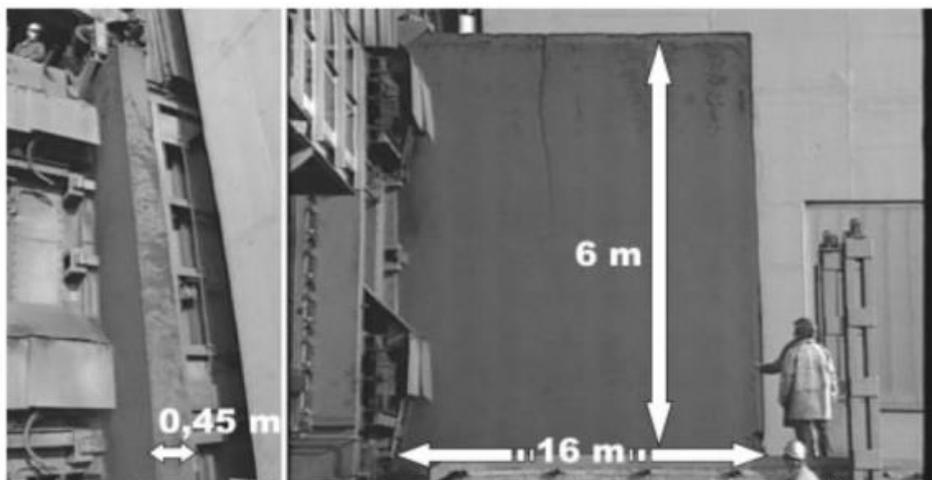


Figura 3.20: Carga preparada pelo método *stamp charging*. (MADIAS e CÓRDOVA, 2013).

Este método permite o carregamento de grandes quantidades de carvão com densidade de carga em torno de  $1100\text{kg/m}^3$  (base úmida), enquanto que para carregamentos convencionais de carga este valor é da ordem de  $800\text{kg/m}^3$  (NASCIMENTO, 2016).

### ***Uso de Briquetes***

A briquetagem é um processo de aglomeração que consiste na aglomeração de partículas finas, com ou sem adição de aglutinante, por meio de pressão, obtendo um produto compactado, com forma, tamanho e parâmetros mecânicos adequados. Os processos de briquetagem que podem ser utilizados para este fim são por extrusão contínua em máquinas do tipo maromba, em prensas hidráulicas e em prensa de rolos, sendo o último, o mais utilizado para este processo (LUZ, 2010).

Os briquetes (figura 3.21) são fabricados em diferentes formatos e tamanhos e essas variáveis influenciam diretamente em suas propriedades físicas. Os formatos podem ser do tipo retangular, cilíndricos, elipsóides, que também são conhecidos como travesseiro, entre outros (NASCIMENTO, 2016).



Figura 3.21: Exemplo de briquetes de carvão mineral (OLIVEIRA, 2017).

Os briquetes são adicionados junto a mistura de carvão e carregados no forno. Um limite máximo de 30% de briquetes na carga de carvão, no forno de coqueria, é considerado como ponto ótimo, sendo que acima disso pode gerar danos às paredes dos fornos devido ao aumento da pressão de coqueificação (OLIVEIRA, 2017). A figura 3.22, mostra um fluxograma de produção de coque metalúrgico através da inserção de briquetes na carga.

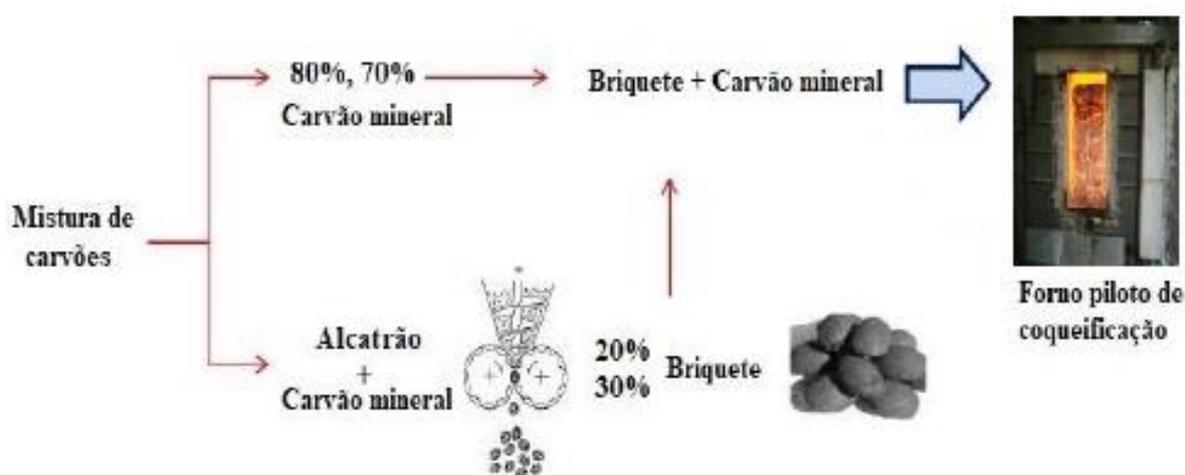


Figura 3.22: Fluxograma da utilização parcial de briquetes na mistura da carga de carvões para produção de coque (OLIVEIRA, 2017).

O processo de briquetagem pode elevar a densidade em torno de 15%, comparada ao carregamento convencional (LEIBROCK, 1983).

### **Adição de óleo**

Nesta técnica, óleo é adicionado na mistura de carvões, onde atua como uma substância tensoativa ou surfactante, proporcionando aumento da densidade. Os surfactantes são materiais que podem reduzir a tensão superficial da água em baixas concentrações e, devido à estrutura de suas moléculas apresentam duas regiões distintas: uma apolar, que é hidrofóbica (hidrocarbonetos de cadeia longa), e outra polar ou iônica, que é hidrofílica (NKOLELE, 2004), conforme ilustrado na figura 3.23. De acordo com suas características, os tensoativos atuam como os detergentes, agentes emulsificantes, dispersantes ou solubilizantes, sendo amplamente utilizados como inibidores de corrosão na indústria de petróleo, bem como nas áreas biológica e farmacológica (nanoformulações do tipo microemulsão) (ROSSI, 2006).

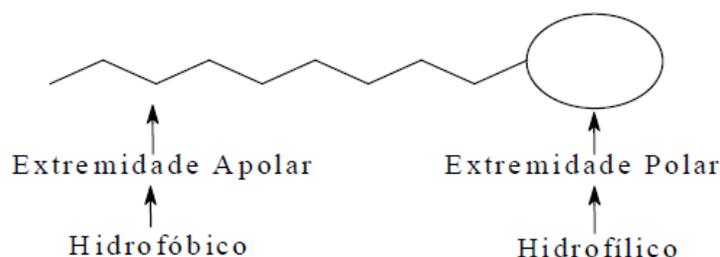


Figura 3.23: Representação esquemática de um tensoativo (ROSSI, 2006).

Os surfactantes alteram a região de superfície, modificando as forças nos limites de fase. Quando dissolvidos em água, suas moléculas tendem a arranjar-se de modo a minimizar a repulsão entre os grupos hidrofóbicos e a água. Eles diminuem a tensão superficial alinhando-se ao longo da interface água-ar. A parte polar adere à fase aquosa e a parte apolar hidrofóbica fica voltada para o ar, para longe da água. Na maior parte da água eles formam aglomerados, chamados micelas, com a extremidade apolar apontando para o centro e a extremidade polar em direção ao lado oposto. Se entrarem em contato com uma superfície sólida, as moléculas de surfactante adsorvem nessa superfície e sua orientação vai depender se a mesma é hidrofílica ou hidrofóbica. Com isso, os surfactantes mudam a natureza da superfície sólida, que pode ser quantificada pela alteração do ângulo de contato  $\theta$ .

A superfície do carvão é considerada como hidrofóbica, isto é, repelente a água. Uma gota de água em uma superfície de carvão apresentaria um alto ângulo de contato  $\theta$ , como indicado na Figura 3.24. Se um surfactante for adicionado, torna a superfície menos hidrofóbica, fazendo com que a gota de água se espalhe na superfície, com menor  $\theta$ , como mostrado figura 3.25. Isto pode ser facilmente observado pela aplicação de detergente em uma placa com gordura, que em vez de formar distintas gotas esféricas, a água desenvolve um filme contínuo espalhado por toda a superfície da placa. Este efeito permite uma maior aproximação entre as partículas de carvão, reduzindo o seu ângulo de acomodação (ou repouso) e elevando a densidade (NKOLELE, 2004).

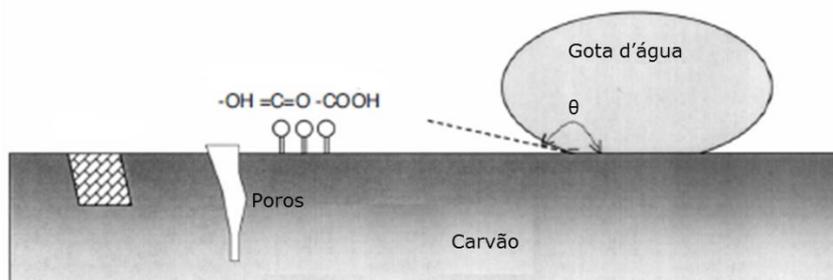


Figura 3.24: Representação esquemática da superfície do carvão (NKOLELE, 2004).

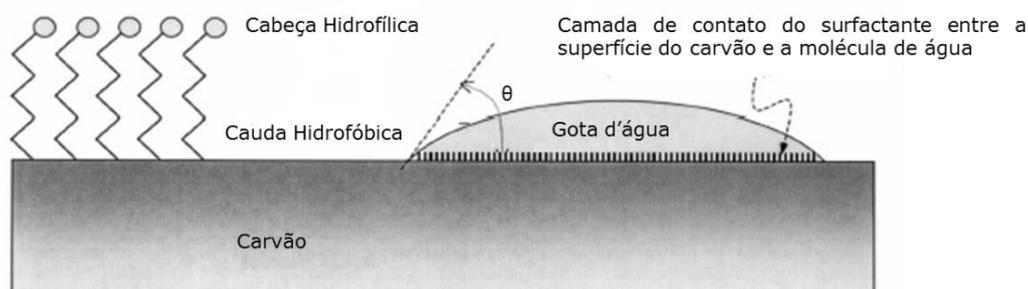


Figura 3.25: Representação do surfactante na superfície do carvão (NKOLELE, (2004)).

FRAHLICHOVA et al.(2010), realizaram estudos visando aumento da densidade de carregamento de carvão utilizando um óleo diesel como agente surfactante. Foi medida a densidade aparente após adição gradual de óleo combustível na proporções de 0,10%; 0,15%; 0,20%, 0,25% e 0,40% do peso da carga. Para avaliar o efeito da granulometria foram realizados testes com três faixas granulométricas sendo 75%, 82,9% e 95% abaixo de 3mm. Para avaliar a influência da umidade, misturas com quatro teores de umidade foram preparadas com a mesma granulometria (82,9% abaixo de 3mm), sendo estas de 7%, 8%, 9% e 10%. Os resultados são mostrados na figura 3.26.

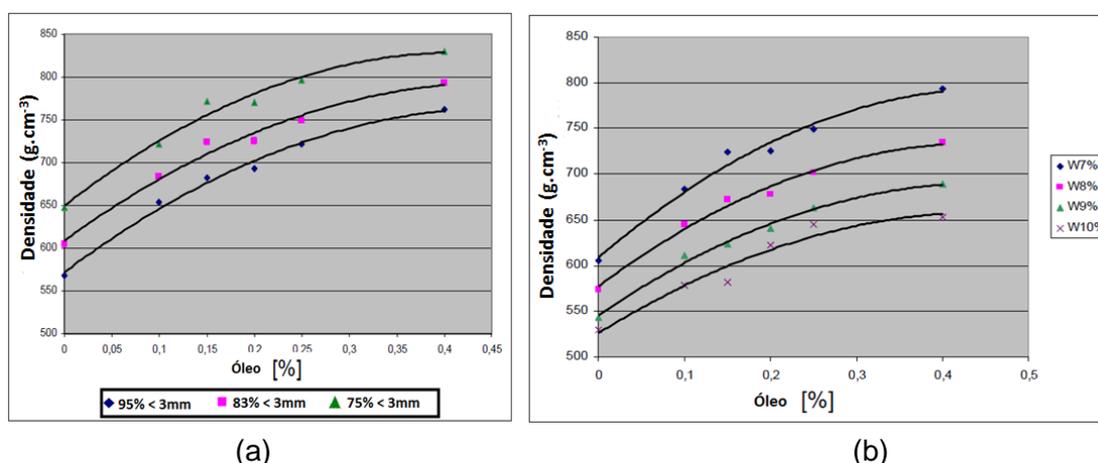


Figura 3.26: Efeito da adição de óleo na densidade com variação da granulometria do carvão (a) e do teor de umidade (b) (FRAHLICHOVA, 2010).

Conforme mostrado na figura 3.26, a adição de óleo promove um aumento da densidade, sendo que este efeito é maior quanto menor a umidade e menor fração <2,83mm. Segundo o autor, a redução da densidade de carga com o aumento do teor de umidade é devido a tensão superficial da água na superfície de contato dos grãos de carvão, sendo que este efeito aumenta com a menor granulometria da mistura (maior fração < 2,83mm). A adição de surfactante reduz essa tensão superficial e o ângulo de acomodação dos grãos de carvão possibilitando aumento da densidade.

Segundo LEEDER et al.(2014), quando a umidade do carvão torna-se excessiva (acima de 10%) o efeito do óleo na densidade aparente perde eficácia, conforme mostrado na figura 3.27.

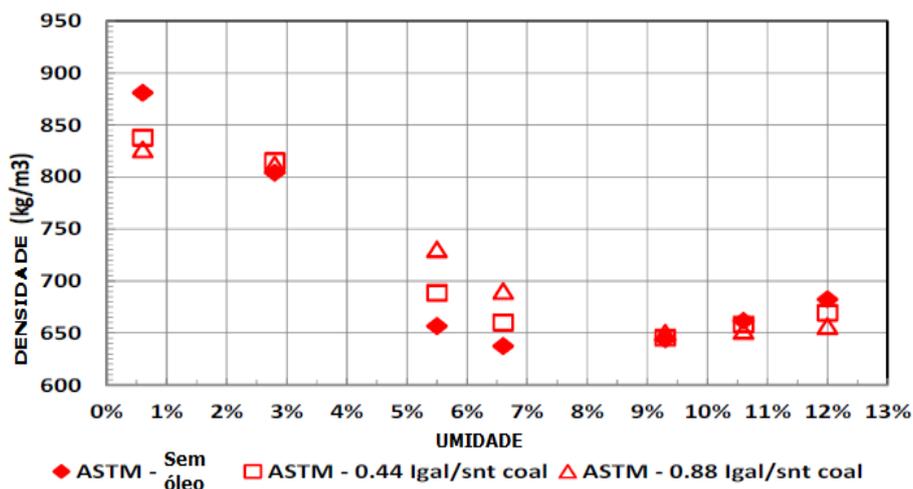


Figura 3.27: Efeito do óleo na densidade de carvão (LEEDER, 2014).

No trabalho de KERKKONEN (2005), a adição de 0,1% de óleo na mistura de carvão tem um efeito positivo de  $20\text{kg/m}^3$  a  $30\text{kg/m}^3$  na densidade de carga para umidades de 7% a 8%. Esse efeito cai de maneira significativa com o aumento de umidade. Com a umidade da mistura entre 9% e 10%, a adição de 0,1% de óleo não tem efeito importante sobre a densidade de carga, enquanto que adição de 0,2% apresentou um ligeiro aumento de densidade de carga, conforme mostrado na figura 3.28.

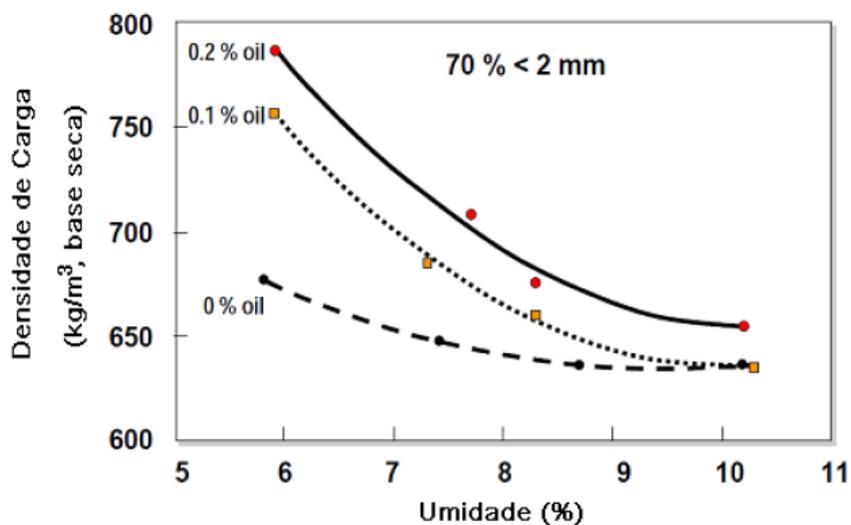


Figura 3.28: Efeito da umidade da mistura na taxa de adição de óleo e densidade de carga (KERKKONEN, 2005).

A densidade aparente da mistura varia em função da granulometria e o efeito do óleo é mais limitado para misturas mais grossas (KERKKONEN, 2005). O efeito da granulometria é mostrado na figura 3.29.

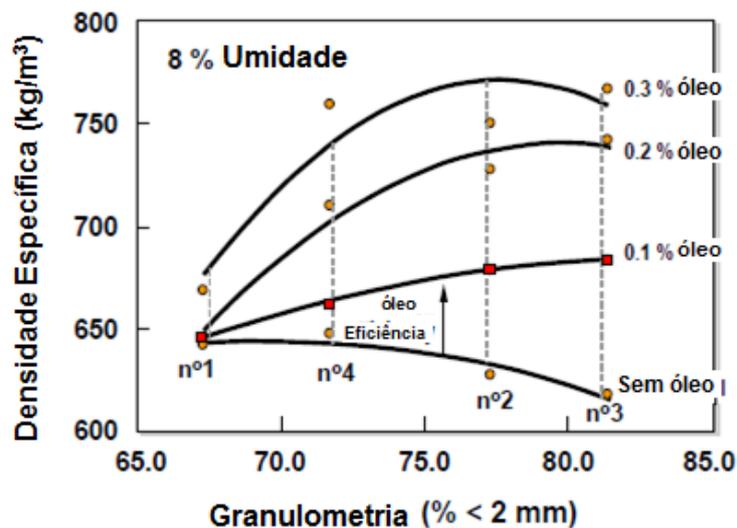


Figura 3.29: Efeito da granulometria da mistura na taxa de adição de óleo e na densidade de carga (KERKKONEN, 2005).

Em estudos desenvolvidos por ALVAREZ et al.(1998), foi avaliada a adição de óleo residual de lubrificação de laminação em uma mistura de carvão. Foram realizados testes semi-industriais em um forno de 6 toneladas cuja adição de óleo foi realizada em três níveis: sem óleo (0,0%), 0,5% e 1,0% em massa. Os resultados são mostrados na figura 3.30.

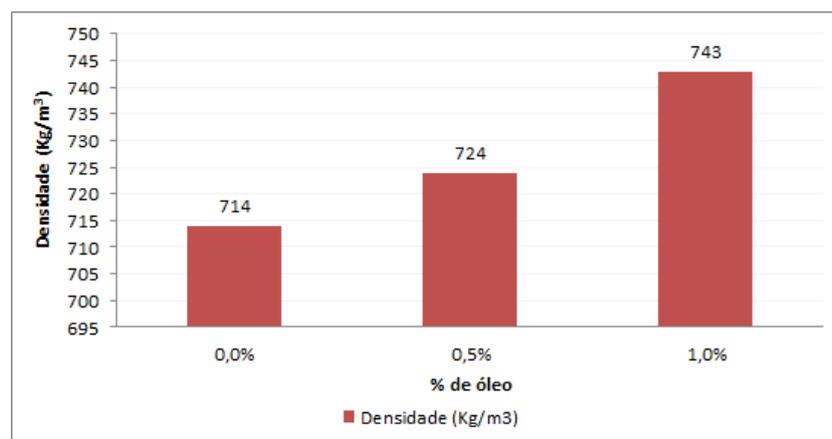


Figura 3.30: Efeito da adição de óleo residual de laminação na densidade de uma mistura de carvão (adaptado de ALVAREZ et al., 1998).

Os resultados desse estudo mostraram um aumento da densidade em torno de 4,0%.

O aumento da densidade, além de elevar a carga por forno, resultando em ganho de produtividade, proporciona ganhos de resistência mecânica do coque ( $DI_{15-150}$  e CSR) (ULHOA, 2011).

Coques produzidos com algum processo de densificação tendem a apresentar uma porosidade menor quando comparados a um coque com densidade menor (Loison et al., 1989). A partir deste conceito pode-se concluir que o coque produzido com misturas de alta densidade tende a apresentar uma menor reatividade no alto-forno, portanto deve se encontrar um valor ótimo na relação porosidade/densidade, pois, tanto uma alta quanto uma baixa reatividade são indesejáveis para o processo de produção do gusa (Alves, 2017).

SABADINI et al.(2013), realizaram testes em laboratório e em escala industrial utilizando óleo diesel comum (classe S500) na mistura de carvões. Em laboratório foram realizados os ensaios de densidade em sete níveis distintos, variando o percentual de umidade da mistura entre 8,0% e 14,0% e mantendo constante a granulometria da mistura. Em cada nível foram realizados testes com e sem a adição de óleo diesel. A adição de óleo diesel foi de 1,5 litros por tonelada de carvão em base úmida (l/t) e os resultados destes testes são mostrados na figura 3.31.

Foi observado o aumento de densidade de carga, através da adição de óleo diesel, entre 8,0% a 10,5% de umidade. A partir 11,2% de umidade, as misturas sem óleo apresentaram maiores índices de densidade de carga.

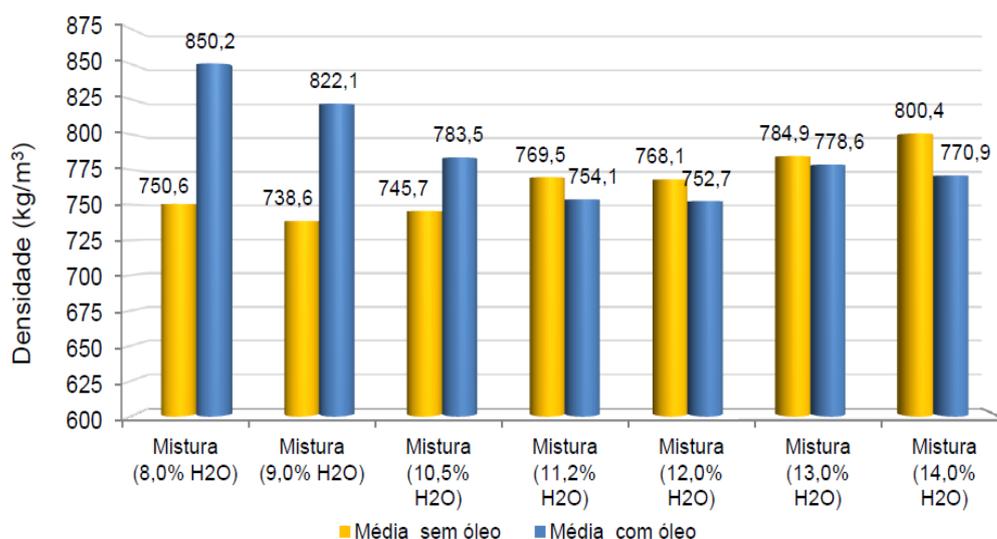


Figura 3.31: Eficiência da adição de óleo diesel por nível de umidade (SABADINI et al., 2013).

Também foram realizados testes variando o volume de óleo adicionado em 4 níveis sendo 1,0 l/t, 1,5 l/t, 2,0 l/t e 2,5 l/t, e com o teor de umidade da mistura em 6%, conforme mostrado na figura 3.32.

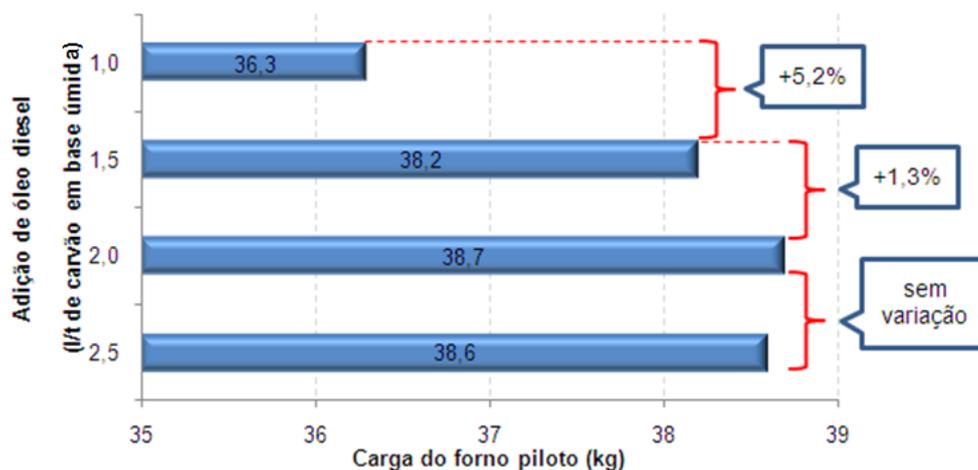


Figura 3.32: Aumento da carga do forno piloto em função da adição de óleo diesel (SABADINI et al., 2013).

Foi obtido um aumento de até 5,2% em peso, considerando o aumento de 1,0 l/t para 1,5 l/t de óleo diesel adicionado na mistura. A mesma tendência de aumento foi observada de 1,5 l/t para 2,0 l/t, porém menos acentuada, com ganho de 1,3% em peso. O aumento de 2,0 l/t para 2,5 l/t, não mostrou ganho em elevação de carga.

Em testes industriais realizados na Coqueria nº 03 da Usiminas, foram obtidos ganhos em carga por forno e qualidade do coque ( $DI_{15-150}$ ), conforme mostrado nas figuras 3.33 e 3.34.

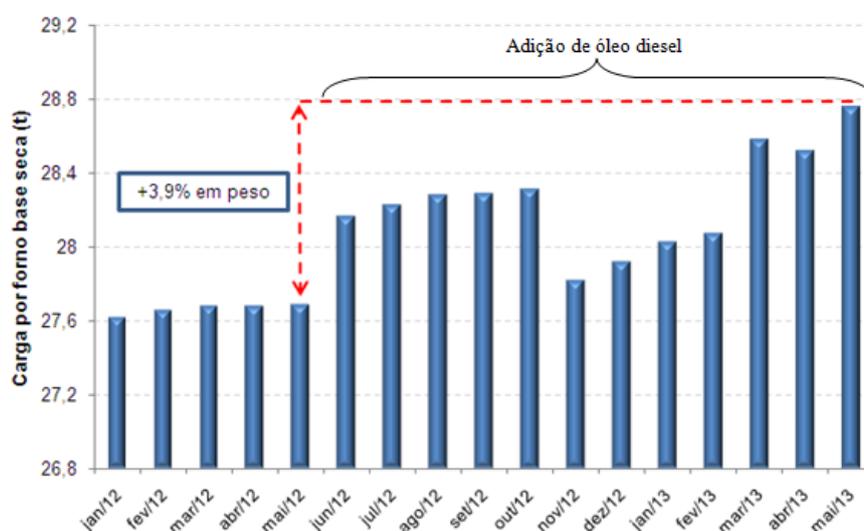


Figura 3.33: Aumento da carga por forno em função da adição de óleo diesel (SABADINI et al., 2013).

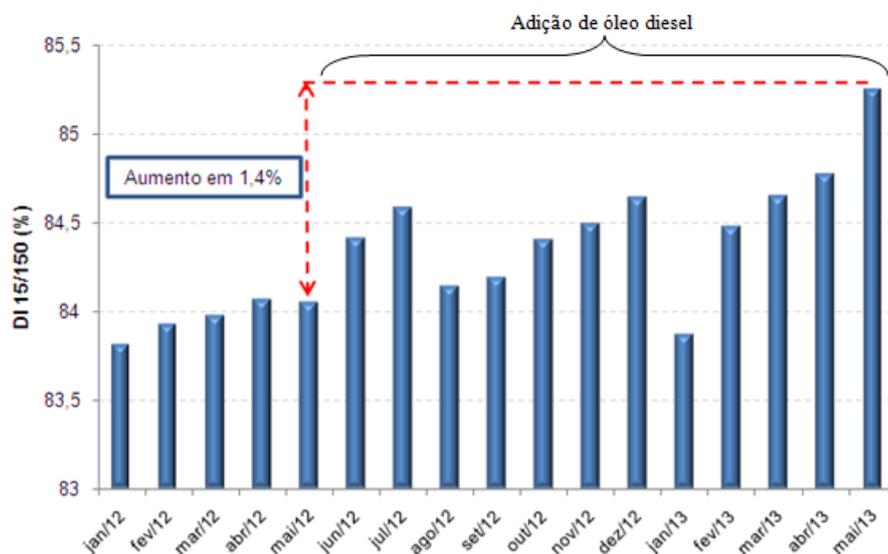


Figura 3.34: Elevação do DI15/150 da Coqueria n° 3 em função da adição de óleo diesel (SABADINI et al., 2013).

Houve elevação de aproximadamente 3,9% em peso (média por forno) no período avaliado, sendo que no período de novembro de 2012 a fevereiro de 2013, houve redução da carga por forno em função da elevação da umidade da mistura de carvões (período de chuvas). Com relação a qualidade do coque ( $DI_{15/150}$ ) houve uma melhora desse parâmetro, com elevação de até 1,4%.

De uma maneira resumida, o uso das tecnologias citadas requer cuidados especiais, pois o aumento excessivo da densidade pode causar um aumento da pressão de coqueificação nos fornos de coque. Isso ocorre devido à evolução da matéria volátil que expande a camada plástica e exerce uma força sobre a parede do forno causando um aumento da força durante o desenformamento da massa de coque, com consequentes danos às paredes dos fornos (DAS et al., 2013). Segundo NOMURA (2004), é possível controlar a pressão de expansão do carvão a um baixo nível e produzir coque com alta resistência, pelo incremento de carvões de baixo rank e baixo poder coqueificante no mix de carvões (em quantidades adequadas).

Carvões de baixo rank começam a se fundir em temperaturas mais baixas que carvões de alto rank, assim, enquanto carvões de alto rank se amolecem e se fundem, o carvão de baixo rank já se resolidificou servindo como caminho para o gás proveniente da zona de amolecimento e fusão do carvão alto rank, com alta pressão de coqueificação

Na Figura 3.35 é mostrado o processo do aumento da pressão interna com o aumento da densidade, e por outro lado, a redução da pressão a medida que a proporção de carvão soft na mistura aumenta (NOMURA et al. 2004).

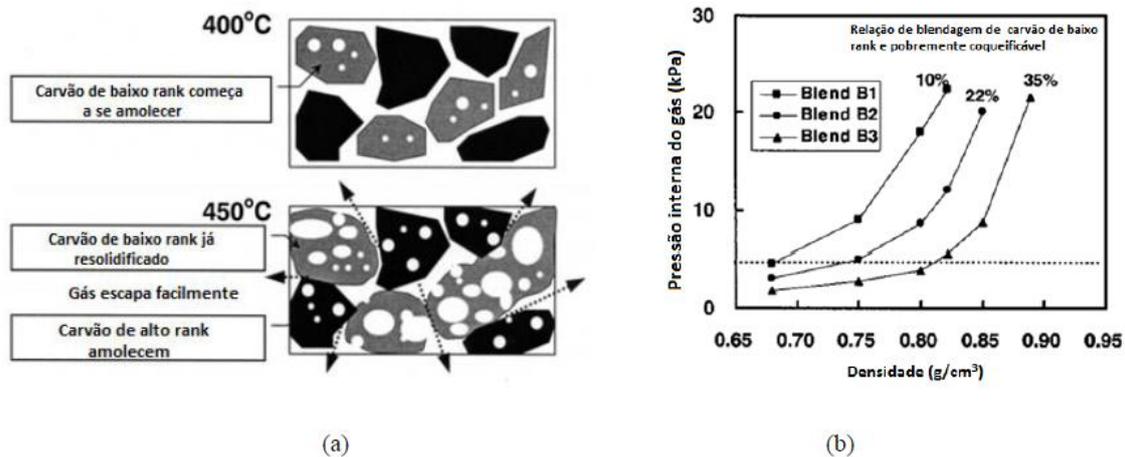


Figura 3.35: a) Contenção da pressão do gás interno carvão baixo rank e baixo poder coqueificante e b) efeito da densidade sobre a pressão interna do gás (adaptado de NOMURA et al., 2004).

## 4. MATERIAIS E MÉTODOS

De acordo com o objetivo, o estudo foi dividido em duas etapas: (i) avaliação da influência da granulometria, umidade e adição de óleo na densidade de carga, e (ii) avaliação da variação de densidade na qualidade do coque e no tempo líquido de coqueificação.

A sequência das atividades desenvolvidas nesse estudo é mostrada esquematicamente na figura 4.1.

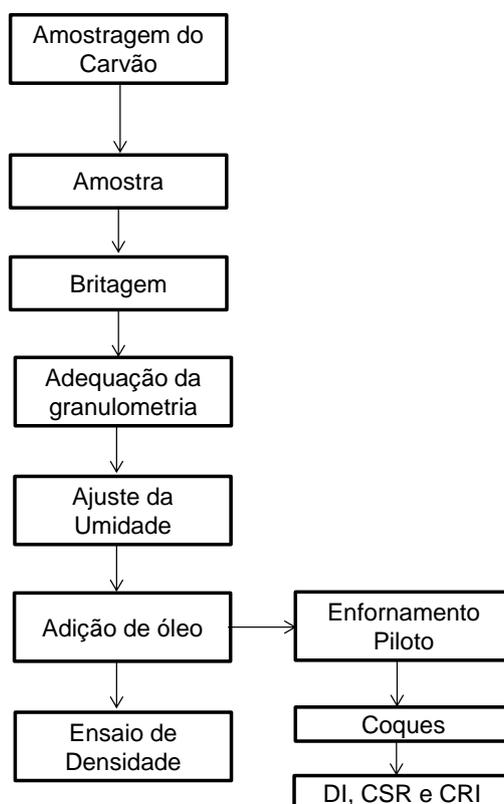


Figura 4.1: Fluxograma das principais atividades realizadas no trabalho.

### 4.1. Preparação do carvão

A amostra de carvão individual foi coletada em pilha estocada no pátio de carvões, onde foram coletados incrementos em pontos distintos, com altura mínima de 1,5 metros de altura (evitando a segregação que ocorre na “saia da pilha”). A quantidade coletada foi em torno de quatro toneladas (4,0t). Nessa etapa foram utilizados equipamentos auxiliares do tipo retroescavadeira e caminhão para coleta e envio da amostra ao Centro de Pesquisa e Desenvolvimento da Usiminas (CP&D).

Após a amostragem na área industrial, o material foi encaminhado ao laboratório de redução do CP&D da Usiminas. Antes da estocagem, o material foi homogeneizado sobre piso de concreto, com auxílio de uma mini carregadeira e armazenado em silos.

Para análises de caracterização química e física, o carvão mineral coletado foi submetido à etapa de quarteamento (figura 4.2) para coleta de incrementos, formando uma amostra. Foi utilizado o método de coleta de incrementos, MCI, em que foi formada uma pilha retangular nivelada, com altura mínima de 10cm, onde a superfície foi dividida em 20 regiões de mesma área sendo traçadas três paralelas no sentido longitudinal e quatro no sentido transversal, conforme mostrado na figura 4.3.



Figura 4.2: Quarteamento da amostra.

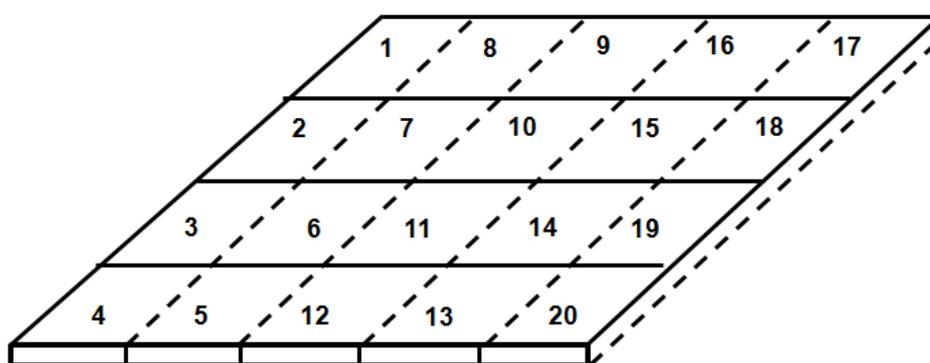


Figura 4.3: Representação da elaboração das subamostras pelo método de coleta de incrementos (MCI).

É importante frisar que para esse tipo de estudo, além da atenção na etapa de amostragem, foram necessários cuidados especiais no posterior manuseio das amostras, em que se busca a utilização de um material o mais homogêneo possível, principalmente em termos de

distribuição granulométrica ao longo de toda a amostra. Além disso, cuidados foram tomados para que as amostras não sofressem exposição excessiva às condições de oxidação.

A preparação das amostras para realização dos ensaios de densidade de carga e enforamento piloto consistiu em primeiramente adequar a granulometria do carvão através de britagem em um britador de impacto. A seguir o carvão foi direcionado a um misturador (figura 4.4) para homogeneização. Nessa fase, coletou-se 100g de amostra, a qual foi aquecida em estufa a 120°C por um período de 30 minutos a fim de verificar a umidade inicial.

Posteriormente, adicionou-se água, utilizando uma proveta graduada para ajuste de umidade e a mistura úmida foi submetida ao misturamento por 5 minutos. Por último, foi adicionado o óleo, também utilizando uma proveta graduada, e a massa de carvão foi novamente homogeneizada no misturador durante 5 minutos.



#### Características

- Marca: Arno S.A.
- Motor trifásico
  - ✓ Voltagem: 220 V – 380 V
  - ✓ Potência: 5 cv
  - ✓ rotação: 1710 rpm
- Regime: contínuo
- Diâmetro interno: 1,18m
- Capacidade: 120 kg de carvão

Figura 4.4: Misturador de carvão.

## 4.2. Características do carvão e óleo

O carvão utilizado no estudo é do tipo médio volátil coqueificável de origem canadense, que é usualmente utilizado nas coquearias para produção de coque para alto-forno.

A análise granulométrica do carvão é mostrada na figura 4.5 (ASTM – D 4749).

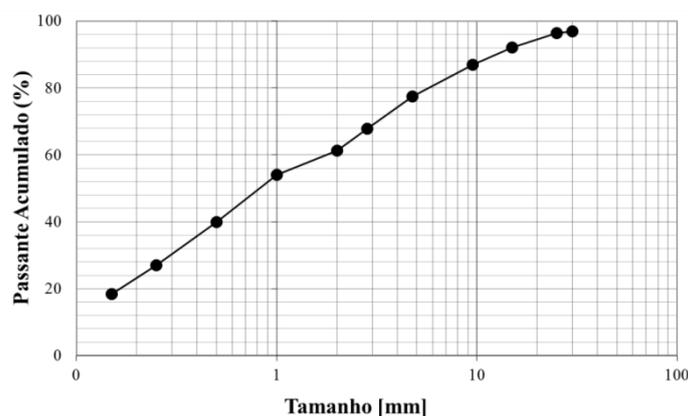


Figura 4.5: Distribuição granulométrica do carvão

A tabela 4.1 apresenta as principais propriedades químicas, reológicas (propriedades plásticas, ou seja, aglutinantes e coqueificantes) e petrográficas (*rank*) do carvão utilizado nos testes.

Tabela 4.1: Características químicas, reológicas e petrográficas do carvão mineral

Parâmetro	Valor
Cinza (%)	9,1
Matéria volátil (%)	24,6
Carbono Fixo (%)	66,3
Reativos (%)	68,9
Inertes (%)	31,1
Fluidez máxima (log ddpm)	2,1
Reflectância (%)	1,2

O óleo utilizado foi o diesel comum S-500 (teor máximo de enxofre de 500 p.p.m), com viscosidade de 2,0 a 5,0 centistokes à 40°C, com ponto de fulgor de 38°C e densidade relativa de 815 a 865 kg/cm<sup>3</sup>.

### 4.3. Níveis dos parâmetros testados

Atualmente no Brasil, as empresas não possuem tecnologia de secagem de carvão para fabricação do coque metalúrgico, portanto o teor de umidade da mistura a ser enformada fica condicionado às condições climáticas de cada região. Particularmente na Usiminas, em Ipatinga, a umidade da mistura situa-se em torno 8% podendo chegar até 12% em períodos chuvosos (novembro a fevereiro). Em relação à granulometria, a faixa de controle utilizada na Usiminas é de 82%±3% < 2,83mm. Neste contexto, foram selecionados os níveis de umidade e granulometria do carvão normalmente praticados na área industrial. Já os níveis

de adição de óleo foram baseados em estudos realizados na Usiminas por SABADINI et al.(2013), onde foram realizados testes industriais com a utilização de 1,5l/t na mistura.

Visando identificar o efeito da granulometria, do teor de umidade e da adição de óleo na densidade de carga do carvão, diferentes níveis para esses três parâmetros foram testados, conforme apresentado na tabela 4.2.

Tabela 4.2 Planejamento dos testes de densidade

Ensaio	Dosagem de Óleo (l/t)			Umidade (%)			< 2,83mm (%)			
	1,0	1,5	2,0	8	10	12	82	85	88	
1	s/ óleo			x				x		
2					x				x	
3						x			x	
4	x			x				x		
5	x				x			x		
6	x					x		x		
7		x		x				x		
8		x			x			x		
9		x				x		x		
10			x	x				x		
11			x		x			x		
12			x			x		x		
13	s/ óleo			x			x			
14					x			x		
15						x			x	
16	x			x			x			
17	x				x		x			
18	x					x	x			
19		x		x			x			
20		x			x		x			
21		x				x	x			
22			x	x			x			
23			x		x		x			
24			x			x	x			
25	s/ óleo			x					x	
26					x					x
27						x				x
28	x			x				x		
29	x				x			x		
30	x					x		x		
31		x		x				x		
32		x			x			x		
33		x				x		x		
34			x	x				x		
35			x		x			x		
36			x			x		x		

A distribuição granulométrica do carvão nos 3 níveis de britagem utilizados (82%, 85% e 88% < 2,83mm) são mostradas na figura 4.13.

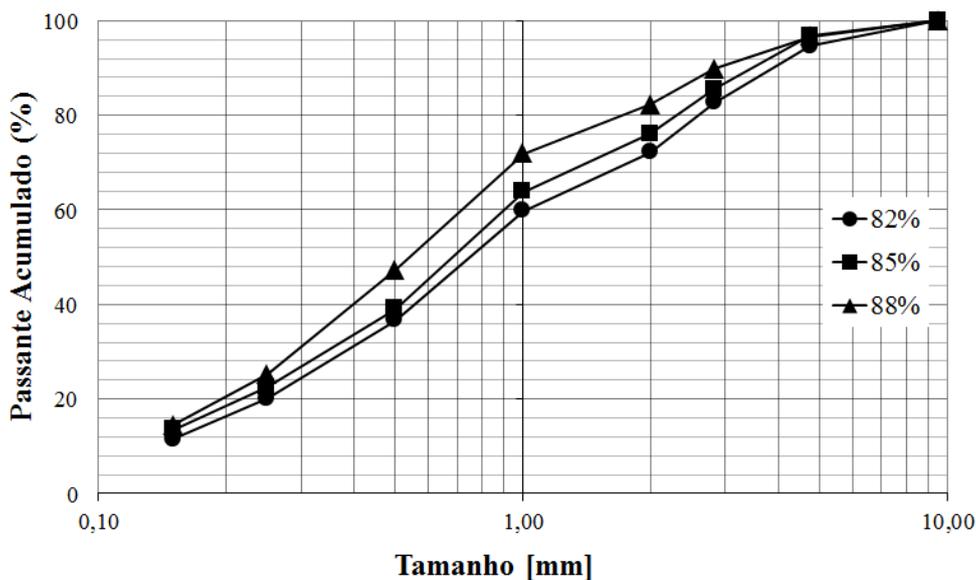


Figura 4.6: Distribuição granulométrica das 3 faixas preparadas (82%, 85% e 88% < 2,83mm).

#### 4.4. Determinação da densidade de carga

Para determinar a densidade de carga (*bulk density*), uma amostra de carvão preparada (com óleo e umidade) de 50kg foi colocada em um silo metálico e elevada a uma altura de 3 metros com auxílio de uma talha elétrica. Após atingir essa altura a comporta inferior do silo foi aberta e assim o material foi submetido a queda livre sendo conduzido por um cone de plástico até uma caixa metálica com as dimensões apresentadas na figura 4.6, cujo volume é  $0,03564\text{m}^3$ . A seguir, o material foi nivelado na caixa e pesado em uma balança eletrônica. A figura 4.7 mostra a sequência do teste.

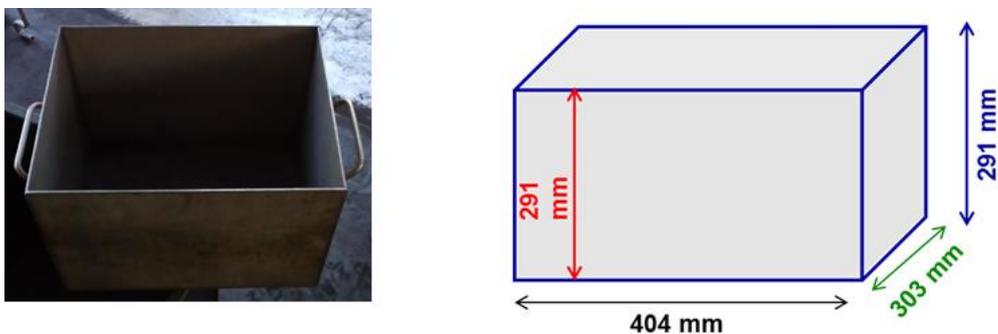


Figura 4.7: Caixa metálica utilizada para os testes.

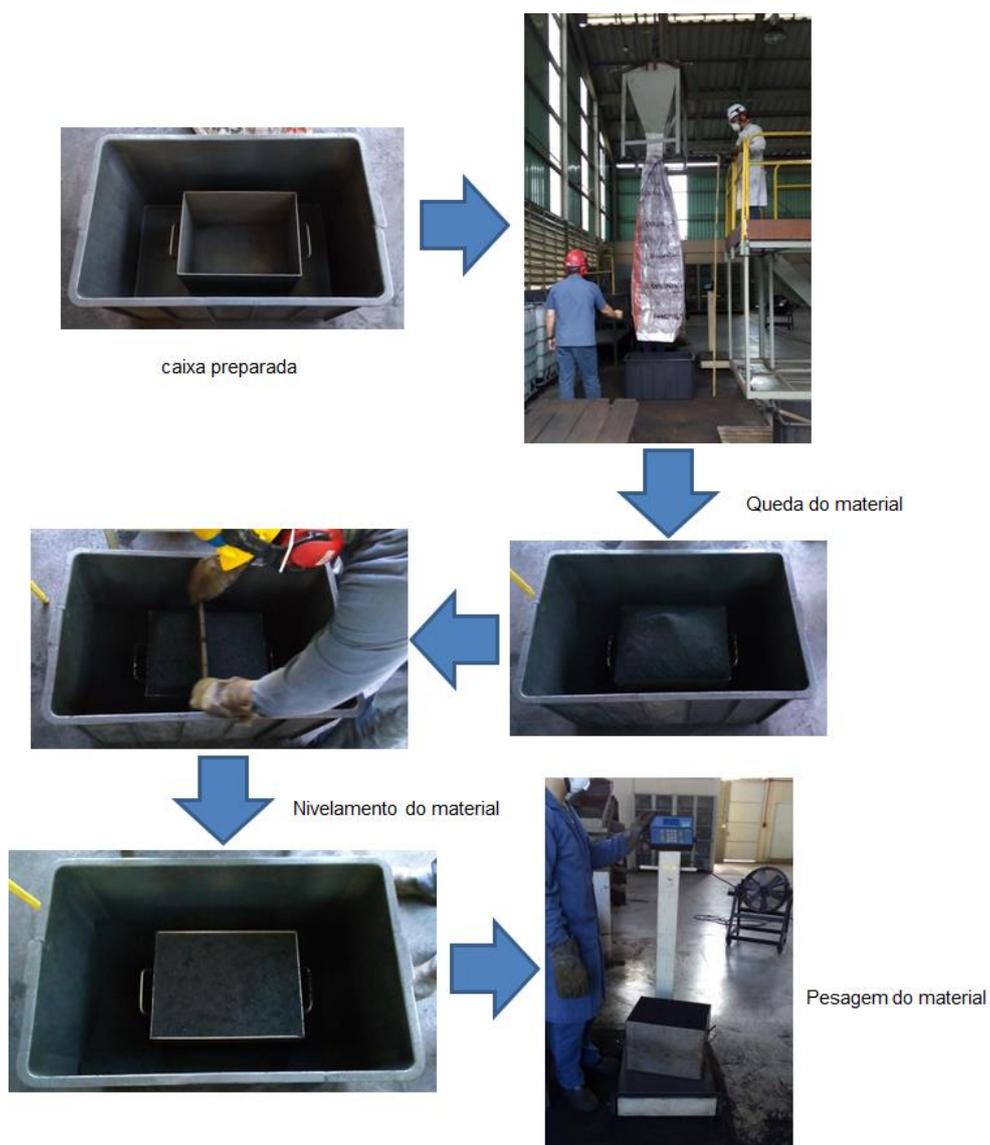


Figura 4.8: Realização do teste de densidade de carga.

Os testes foram realizados em duplicata e caso a diferença entre os resultados fosse superior a  $9,6\text{kg/m}^3$ , que é o valor de variabilidade aceitável entre dois testes (limite de repetitividade) encontrado durante o desenvolvimento do ensaio, um novo teste deveria ser realizado. O resultado de densidade de carga é a razão da média das massas concentradas na caixa, medidas nos 2 testes, pelo volume da caixa

#### 4.5. Fabricação do coque piloto

Com o objetivo de avaliar o efeito da adição de óleo na qualidade metalúrgica do coque, foram produzidos coques no forno piloto de coqueificação do CP&D Usiminas. O equipamento é mostrado na figura 4.8 e as suas características são descritas a seguir:

- Distância entre paredes externas: 460 mm;
- Distância entre paredes internas (de aquecimento): 300 mm;
- Altura da câmara de coqueificação: 400 mm;
- Volume útil da câmara de coqueificação: 0,0552m<sup>3</sup>.
- Aquecimento: elétrico;
- Elemento de aquecimento: resistência tipo Kanthal (diâmetro 3mm e 8 ohms);
- Temperatura das paredes de aquecimento (nominal): 1.000°C;
- Temperatura das paredes de aquecimento (máximo): 1.050°C.

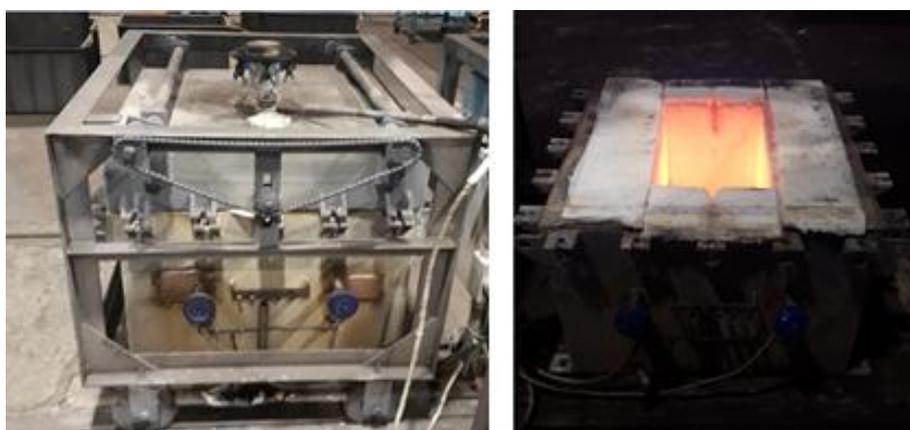


Figura 4.9: Forno piloto para ensaio de coqueificação (CP&D Usiminas).

O enforamento do carvão consiste, conforme procedimento adotado na Usiminas, em preparar 34kg de material dividido em quatro partes iguais de 8,5kg. Cada parte é colocada manualmente numa caixa metálica (largura: 250mm; 440mm de comprimento e 360mm de altura), sendo compactada de maneira constante até o preenchimento total da caixa. Posteriormente, o carvão é inserido no forno piloto com temperatura de 1.000°C nas paredes. A coqueificação é obtida quando a temperatura no centro da carga atinge 950°C (tempo líquido), sendo que o coque permanece no forno em torno de 9 horas (tempo bruto). Ao término desse período, a caixa metálica contendo o coque produzido, é encaminhada para a etapa de extinção com água (cerca de 5 minutos). Posteriormente, o coque permanece na estação de extinção, por no mínimo mais uma hora, no intuito de remover o excesso de água retida na caixa metálica e garantir que o mesmo esteja a temperatura ambiente.

O bloco de coque é separado manualmente, de acordo com as regiões denominadas de A, B e C e D, mostradas na figura 4.9. Para realização dos testes de resistência mecânica são utilizados os coques produzidos da região A (cerca de 13kg), eliminando a influência das paredes do forno. A partir dessa separação, o material da região A é colocado em uma

bandeja metálica e direcionado para estufa, previamente aquecida a 120°C, e mantido por um período de nove horas para sua secagem total.

O coque seco é submetido a 3 quedas na máquina *Shatter Test* que possui uma altura de 2 metros, totalizando 6 metros de queda. Essa etapa é necessária para estabilização do coque piloto e, portanto, é realizada em condição similar à coqueria industrial, na região da rampa de coque.

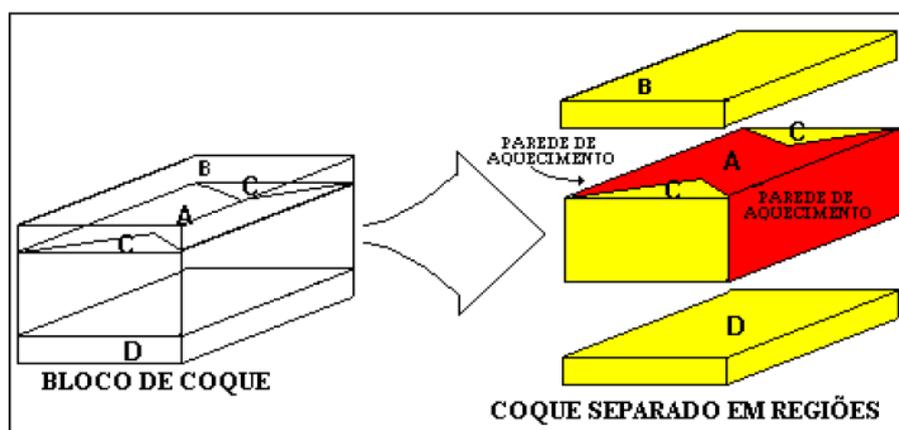


Figura 4.10: Esquema mostrando a separação do bloco de coque em regiões.

Como a massa de carvão obtida em cada teste de densidade foi inferior a 34kg, que é a massa mínima para obter quantidade de coque para os ensaios de DI, CRI e CSR, foi necessário fazer uma adequação na preparação da carga, mantendo o mesmo volume da caixa. Basicamente, essa adequação da metodologia consiste em: (i) determinar no teste de densidade o ganho obtido com adição de óleo em relação ao nível sem óleo e (ii) aplicar esse ganho na massa utilizada no enforamento padrão (34kg). Como exemplo, um aumento de 5% na densidade equivaleria a um enforamento com massa de 35,7kg. Essa metodologia foi utilizada para todas as condições de enforamento.

Para os ensaios, apenas algumas condições foram submetidas à coqueificação piloto, sendo um total de 12 enforamentos, onde variou-se a granulometria (82%, 85% e 88% < 2,83 mm) e adição de óleo diesel (sem óleo, 1,0l/t, 1,5l/t, 2,0l/t), mas com teor de umidade mantido em 8%.

#### 4.6. Determinação do tempo líquido de coqueificação

Durante a coqueificação no forno piloto, a temperatura no centro da carga foi monitorada por termopar inserido no centro da carga e, com o uso de um supervisor, a variação de

temperatura no centro da carga foi registrada durante todo o período de coqueificação. Esses dados permitiram identificar o tempo líquido de coqueificação, que é o tempo em que a temperatura leva para atingir 950°C, uma vez que a partir desse ponto praticamente a temperatura não varia. A figura 4.10 mostra uma curva típica do enforamento piloto.

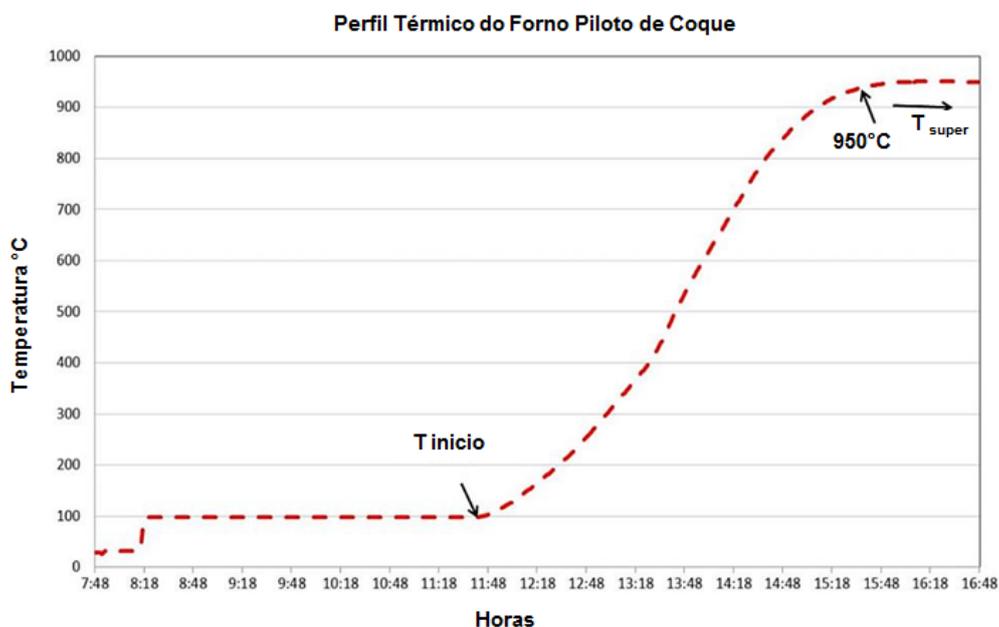


Figura 4.11: Curva típica de temperatura x tempo obtida do ensaio de coqueificação em forno piloto (Laboratório do Centro de Pesquisa e Desenvolvimento da Usiminas).

#### 4.7. Caracterização do coque

A qualidade do coque foi avaliada por meio dos índices de resistência mecânica ( $DI_{15-150}$  - norma JIS K2151), reatividade (CRI - norma ASTM D5341) e resistência após reação (CSR - norma ASTM D5341).

O ensaio de  $DI_{15-150}$  consiste em compor 10kg da amostra de coque (granulometria > 25mm) num tambor rotativo padronizado (figura 4.11), empregando 150 rotações a 1rpm. Após as revoluções, a amostra é retirada e peneirada e o somatório da percentagem retida das frações superiores a 15mm determinam o resultado do teste (identificação  $DI_{15-150}$ , ou simplesmente DI).

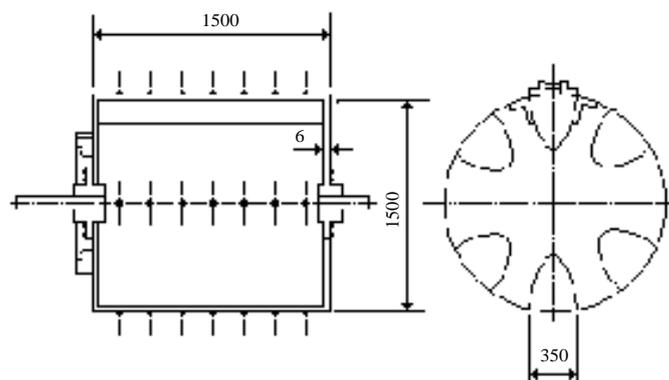


Figura 4.12: Representação esquemática do tambor do ensaio de DI (ULHOA, 2011).

A reatividade e a resistência após reação são avaliadas pelos ensaios de CRI (índice de reatividade do coque) e CSR (índice de resistência após a reação ao  $\text{CO}_2$ ), respectivamente. Basicamente, a metodologia consiste em colocar uma amostra de 200g de coque (granulometria de 19mm a 21mm) em um forno a 1100 C, inicialmente em atmosfera de nitrogênio ( $\text{N}_2$ ) por 30 minutos e, em seguida, em atmosfera de gás dióxido de carbono ( $\text{CO}_2$ ) durante 120 minutos. Após esse tempo, a amostra é resfriada com nitrogênio, pesada e a diferença de peso (percentual) gera o índice CRI. Em seguida a amostra é colocada em um tambor do tipo I e submetida a 600 revoluções a 20rpm. No final essa amostra é peneirada e a parcela retida na peneira de 9,52mm gera o índice CSR. Uma representação esquemática dos ensaios é apresentada na figura 4.12.

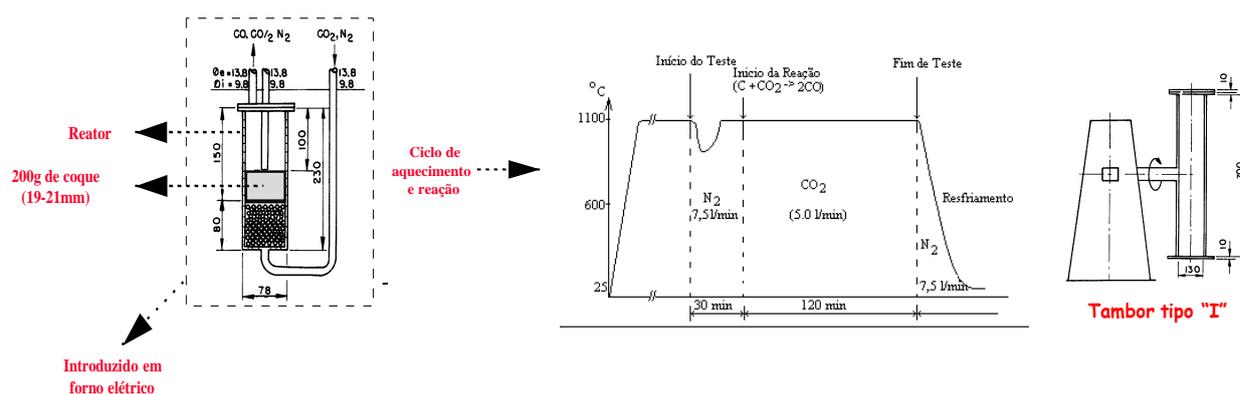


Figura 4.13: Representação esquemática dos ensaios de resistência estrutural do coque (CRI/CSR) (ULHOA, 2011).

## 5. RESULTADOS E DISCUSSÃO

### 5.1. Avaliação da influência da granulometria, umidade e adição de óleo na densidade de carga

Observa-se na tabela 5.1, os resultados obtidos nos ensaios de densidade para os diferentes níveis de umidade (8%, 10% e 12%), granulometria (82%, 85% e 88% < 2,83mm) e adição de óleo (sem óleo, 1,0 l/t; 1,5 l/t e 2,0 l/t). O maior valor de densidade foi 862,2kg/m<sup>3</sup>, valor superior aos relatados na literatura relacionada à adição de óleo, considerando o mesmo teor de umidade (8%). Já o menor valor foi de 708,1kg/m<sup>3</sup>.

Tabela 5.1: Resultados dos testes de densidade de carga

Granulometria (<2,83mm)	Umidade 8%				Umidade 10%				Umidade 12%			
	Adição de óleo (L/t)				Adição de óleo (L/t)				Adição de óleo (L/t)			
	sem óleo	1.0	1.5	2.0	sem óleo	1.0	1.5	2.0	sem óleo	1.0	1.5	2.0
82%	726,3	769,6	800,5	862,2	736,4	758,1	763,5	807,0	727,4	734,4	742,1	741,4
85%	728,3	745,1	770,6	795,0	728,4	733,9	753,6	756,9	730,2	723,2	749,2	750,6
88%	708,1	744,7	778,6	806,1	732,7	739,8	760,5	779,5	732,3	739,6	740,0	742,1

Na figura 5.1 é mostrado o efeito da adição de óleo sobre a densidade de carga, para os três níveis de umidade e granulometria avaliados. Em geral, os resultados mostraram que a densidade de carga aumenta com o aumento da adição de óleo diesel.

Tais resultados estão de acordo com trabalhos encontrados na literatura (FRAHLICHOVA, 2010; LEEDER, 2014; KERKKONEN, 2005; ALVAREZ et al.; 1998; SABADINI et al. 2013). De acordo com esses especialistas, a elevação da densidade com a adição de óleo diesel é atribuída à concentração do surfactante (óleo diesel) no filme de água que envolve as partículas, diminuindo a tensão superficial da água e melhorando o contato entre elas.

Contudo, essa tendência foi mais significativa para os menores níveis de umidade e maior granulometria do carvão.

Observou-se ainda que, independente das faixas granulométricas avaliadas, o máximo de densidade ocorreu em condições de maior adição de óleo (2,0l/t) e menor umidade do carvão (8%). Destaca-se que a densidade máxima (862,2kg/m<sup>3</sup>) foi obtida para o nível de granulometria 82% < 2,83 mm, 8% de umidade e adição de óleo de 2,0l/t, que corresponde ao aumento de 18,7% em relação à densidade sem óleo. Para os níveis de 85% < 2,83mm e

88% < 2,83mm, para mesma adição de óleo e umidade, foram obtidos ganhos de 9,2% e 13,9%, respectivamente.

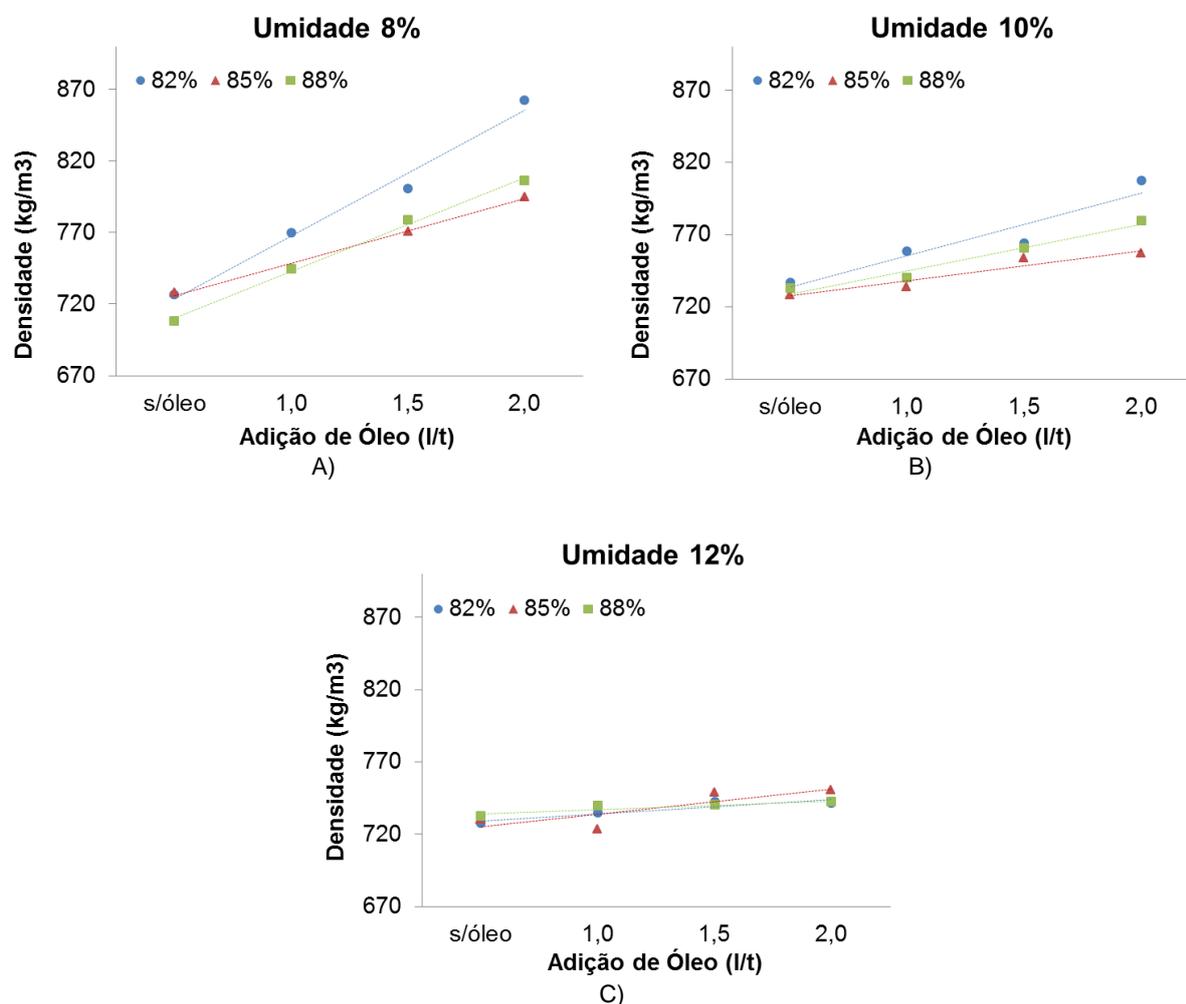


Figura 5.1: Efeito da adição de óleo na densidade para diferentes umidades e granulometrias do carvão (<2,83mm).

A seguir, os mesmos dados são colocados nos gráficos da figura 5.2, contudo, busca-se dar um maior enfoque ao efeito do óleo e umidade sobre o carvão, com diferentes níveis de granulometria. Nota-se que em todos os níveis de granulometria, as curvas mostram uma tendência de redução de densidade com o aumento de umidade. Esse efeito pode ser explicado pela repulsão das partículas de carvão (hidrofóbicas) pela água, citada por CARIAS (2018). Os resultados estão de acordo com a literatura (NOMURA, 2004; FRAHLICHOVA, 2010; CARIAS, 2018) onde esses especialistas ainda enfatizam que a continuidade do aumento da umidade provoca uma tendência de elevação da densidade. Contudo, não foi observada tal tendência para os teores de umidades testados neste trabalho.

Nota-se que para teores de até 10% de umidade foi possível obter ganhos de densidade com o aumento da adição de óleo. Já para o nível com 12% de umidade não houve variação significativa de densidade quando aumentou-se a quantidade de óleo adicionada.

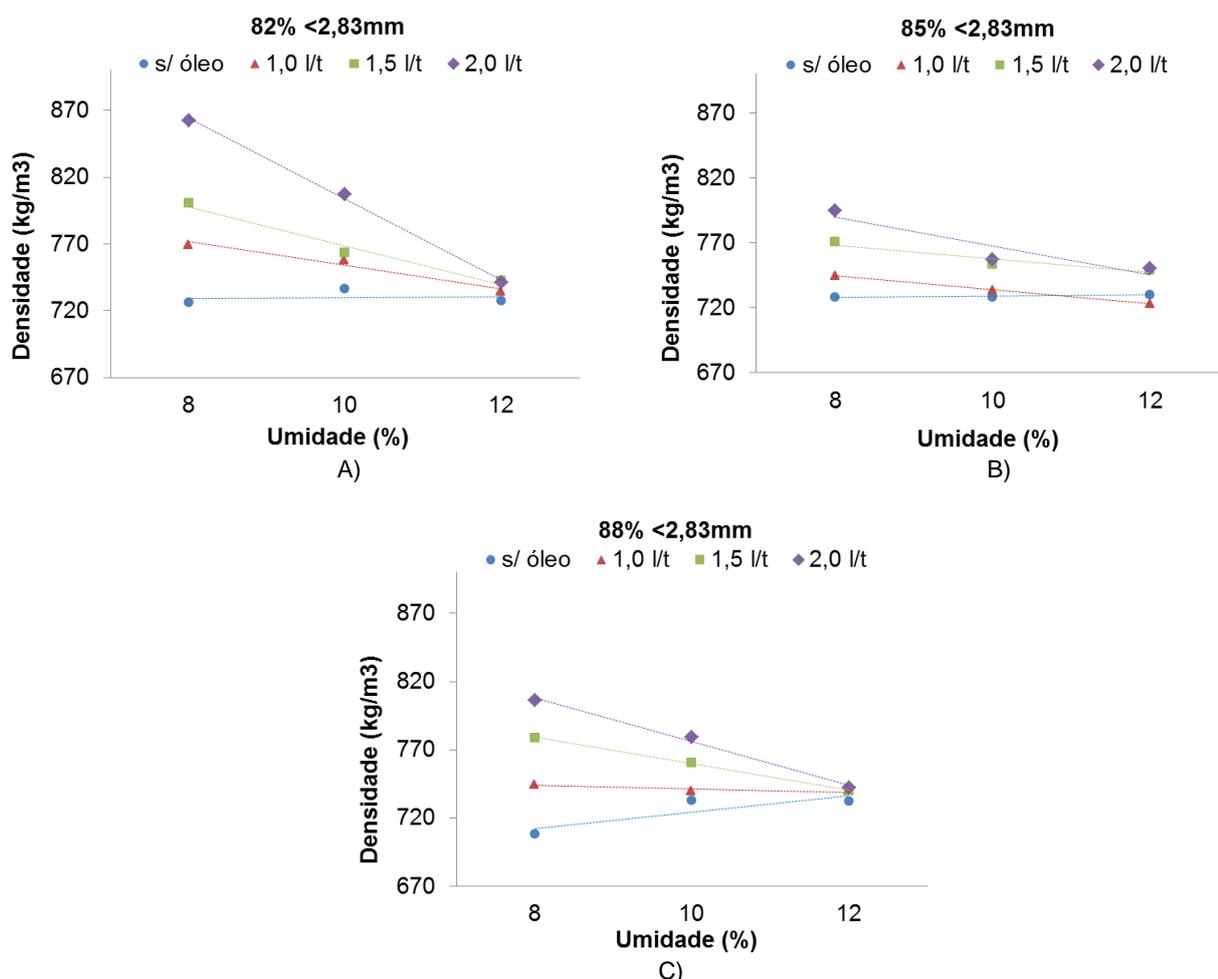


Figura 5.2: Efeito da umidade do carvão na densidade para as diferentes granulometrias.

Na figura 5.3 é apresentado, em maiores detalhes, o efeito do óleo e granulometria na densidade com diferentes níveis de umidade. De uma maneira geral, os resultados mostram que a densidade diminui à medida que ocorre o afinamento do carvão (82% para 88% < 2,83 mm). Isso é explicado pelo aumento da fração de vazios entre as partículas (CARIAS, 2018).

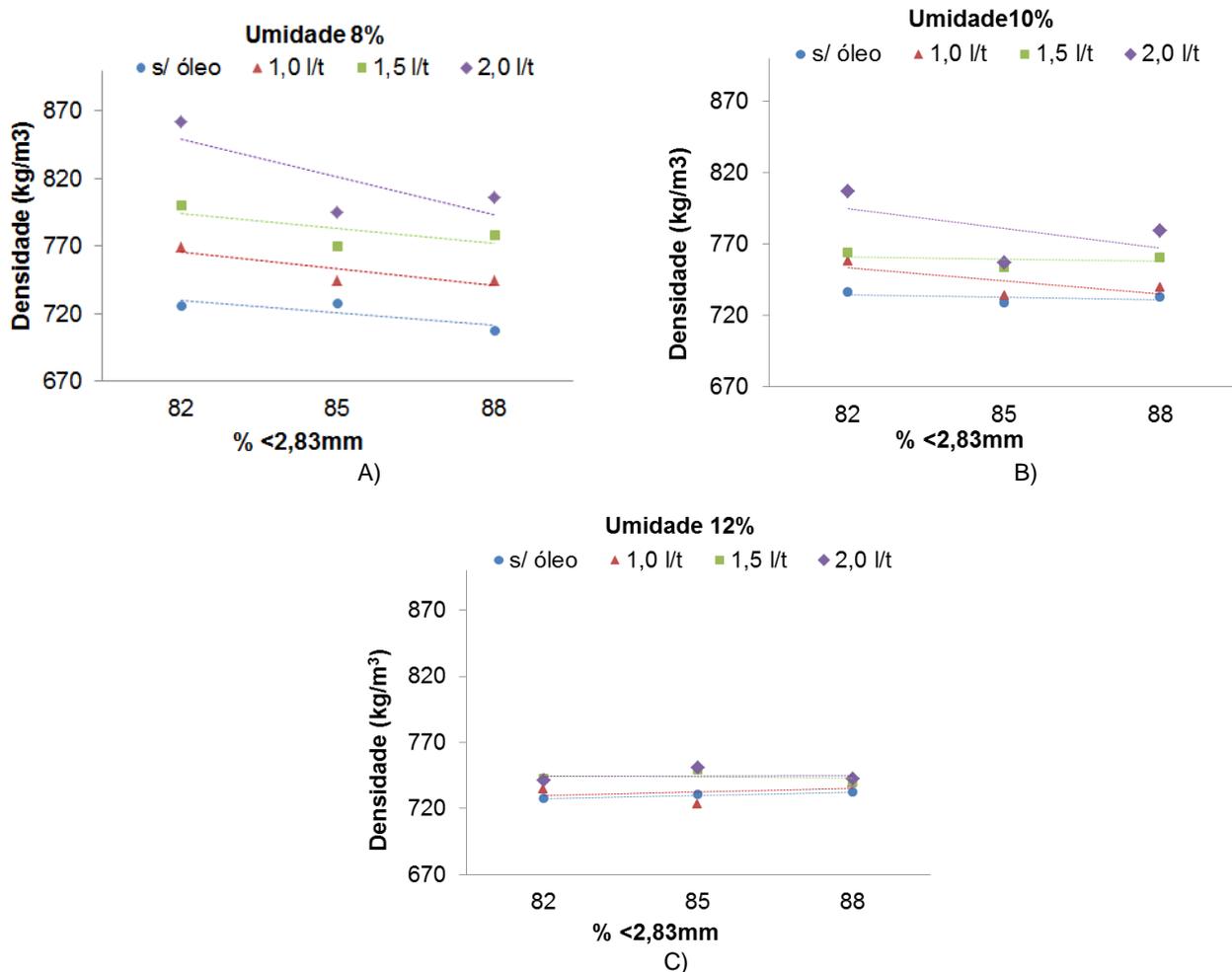


Figura 5.3: Efeito da granulometria na densidade para diferentes umidades do carvão.

Contudo, quando avalia-se a adição de óleo para as três faixas granulométricas testadas, na maioria dos casos, a redução da densidade passa por um valor mínimo na faixa de 85% < 2,83 mm e depois volta a subir. Esse ligeiro aumento da densidade pode ser atribuído ao efeito do maior empacotamento das partículas de carvão relacionado à distribuição de tamanhos e ocupação dos vazios por partículas mais finas, proporcionada pela redução da tensão superficial da água, quando é adicionado óleo no carvão, visto que, para o carvão sem adição de óleo não foi percebido esse efeito. KERKKONEN (2005) observa um efeito similar a este caso, em que a partir da adição de óleo no carvão, há uma tendência de elevação da densidade com o afinamento do carvão.

Observa-se ainda que para todos os níveis de granulometria, a densidade aumenta conforme eleva-se a adição de óleo, e é mais explícito no caso de umidade a 8%. Conforme aumenta-se a umidade, a variação entre os resultados se torna menos expressiva e, em 12% (figura 5.3(c)), não foi observada variação significativa.

Assim, o melhor cenário para uso da adição de óleo, seria trabalhar com misturas de carvões contendo 8% de umidade e granulometria de 82% < 2,83mm, que são condições de uso industrial.

Para se obter uma máxima eficiência da técnica de adição de óleo, um controle do nível de britagem do carvão deve ser realizado, visando manter a granulometria dos carvões em níveis adequados. Além disso, as condições de estocagem do carvão também devem ser adequadas, visando minimizar o efeito de chuvas na umidade. Porém, caso o teor de umidade seja maior que 10%, a adição de óleo deve ser reavaliada uma vez que o ganho obtido nessa condição é muito baixo, impactando no rendimento do processo.

## 5.2. Efeito da densidade de carga na qualidade do coque

As condições dos enforamentos realizados foram definidas considerando o menor valor de umidade (8%), que está muito próxima dos valores praticados pela Usiminas de Ipatinga na maior parte do ano. Além disso, para esta condição foram obtidos maiores valores de densidade de carga, e conforme visto no item 5.1, para umidades de 10% e 12%, o efeito da densidade foi menos significativo.

Os dados onde mostram as condições dos 12 enforamentos, preparados conforme relatado no item 4.4, são apresentados na tabela 5.2.

Tabela 5.2: Dados para realização da coqueificação em forno piloto.

Granulometria (<2,83mm)	Adição de Óleo (l/t)	Densidade obtida nos testes (kg/m <sup>3</sup> )	Ganho de densidade em relação ao nível sem óleo (%)	Densidade corrigida para teste em forno piloto (kg/m <sup>3</sup> )	Massa de cavão para teste em forno piloto (kg)
82%	Sem óleo	726,29	-	858,59	34,00
	1,0	769,64	6,0	909,84	36,03
	1,5	800,51	10,2	946,32	37,47
	2,0	862,23	18,7	1019,30	40,36
85%	Sem óleo	728,25	-	858,59	34,00
	1,0	745,09	2,3	878,44	34,79
	1,5	770,62	5,8	908,54	35,98
	2,0	795,03	9,2	937,32	37,12
88%	Sem óleo	708,05	-	858,59	34,00
	1,0	744,67	5,2	902,99	35,76
	1,5	778,62	10,0	944,16	37,39
	2,0	806,12	13,9	977,51	38,71

Os resultados referentes às propriedades metalúrgicas do coque produzido no forno piloto são exibidos na tabela 5.3.

Tabela 5.3: Resultados de qualidade do coque.

Granulometria (<2,83mm)	Adição de Óleo (l/t)	Densidade obtida nos testes (kg/m <sup>3</sup> )	DI (%)	CSR (%)	CRI (%)
82%	sem óleo	726,29	76,70	54,47	29,70
	1,0	769,64	79,45	55,00	29,78
	1,5	800,51	82,30	61,70	27,39
	2,0	862,23	82,60	63,18	26,15
85%	sem óleo	728,25	80,00	57,89	27,57
	1,0	745,09	80,50	56,77	29,56
	1,5	770,62	81,00	58,01	28,60
	2,0	795,03	81,55	58,71	29,00
88%	sem óleo	708,05	79,00	52,80	29,53
	1,0	744,67	78,95	56,41	29,90
	1,5	778,62	80,10	55,72	29,21
	2,0	806,12	81,00	59,57	29,10

Os valores obtidos estão abaixo dos praticados na siderurgia, mas ressalta-se que, foi utilizado apenas um único tipo de carvão nos testes, e que normalmente na indústria, é utilizada uma mistura de carvões com diferentes propriedades a fim de se obter a qualidade do coque desejada. A utilização de apenas um carvão foi pelos seguintes aspectos: (i) tratar-se de um carvão com boas propriedades aglutinantes/coqueificantes e qualidade do coque piloto, semelhante ao de misturas de carvões utilizado nas coquearias; (ii) permitir avaliar isoladamente o efeito da variação de granulometria (82%, 85% e 88% < 2,83mm), pois com a utilização de mistura de carvões, dependendo do seu tipo e quantidade de inertes, requer maior ou menor ajuste da fração < 2,83 mm, o que poderia inviabilizar o ajuste preciso das frações granulométricas avaliadas; (iii) menor interferência de variáveis que poderiam interagir entre si, o que provavelmente afetaria os resultados de densidade de carga e/ou de qualidade do coque.

Conforme mostrado na figura 5.4, a adição de óleo no carvão e, conseqüentemente, o aumento da densidade, promove um efeito significativo na melhoria do DI, quando comparado com níveis sem adição de óleo. Nota-se ainda que, com a elevação da quantidade de óleo adicionada, associada ao engrossamento da granulometria (saindo de 88% para 82% < 2,83 mm), melhores resultados na resistência mecânica (DI) foram obtidos. Isso ocorre devido a maior densidade de carga obtida, cujo efeito é uma maior aproximação

das partículas de carvão que garantem um contato efetivo durante a fase plástica, produzindo um coque mais resistente.

Quanto à resistência mecânica a frio do coque (DI), os resultados mostram que sem adição de óleo o afinamento do carvão, tende a aumentar o DI. A redução da granulometria de 82% para 85% < 2,83mm promoveu um aumento de 4,3% sobre o DI e de 82% para 88 < 2,83mm o aumento foi de 3,0%.

Esses resultados estão de acordo com a literatura (CARIAS, 2018; ULHOA, 2011), em que cita que o decréscimo da granulometria reduz o tamanho das partículas dos constituintes inertes (macerais e matéria mineral), os quais vão diminuir os possíveis pontos de nucleação de trincas no coque (menos fissuras) que contribuem para redução de sua resistência mecânica.

Os perfis das curvas obtidas com 85% e 88% < 2,83mm foram similares, com valores de DI ligeiramente superiores com 85% < 2,83mm. No caso de 82% < 2,83mm, houve um aumento mais brusco do DI elevando a adição de óleo até 1,5 l/t. Contudo, quando eleva-se a adição de óleo de 1,5 l/t para 2,0 l/t, já não há variação significativa no DI.

O maior resultado de DI foi de 82,60%, obtido com adição de 2,0l/t e 82% < 2,83 mm (maior densidade), com ganho de 7,7% em relação ao coque obtido sem adição de óleo na carga. Para os níveis de 85% < 2,83mm e 88% < 2,83mm, na mesma condição, foram obtidos ganhos de 1,9% e 2,5% no DI, respectivamente, em comparação ao nível sem óleo.

Na figura 5.4(b), é exibida a relação do DI com densidade de carga, de modo geral a correlação foi satisfatória, mostrando que o aumento do DI é proporcional a elevação da densidade de carga.

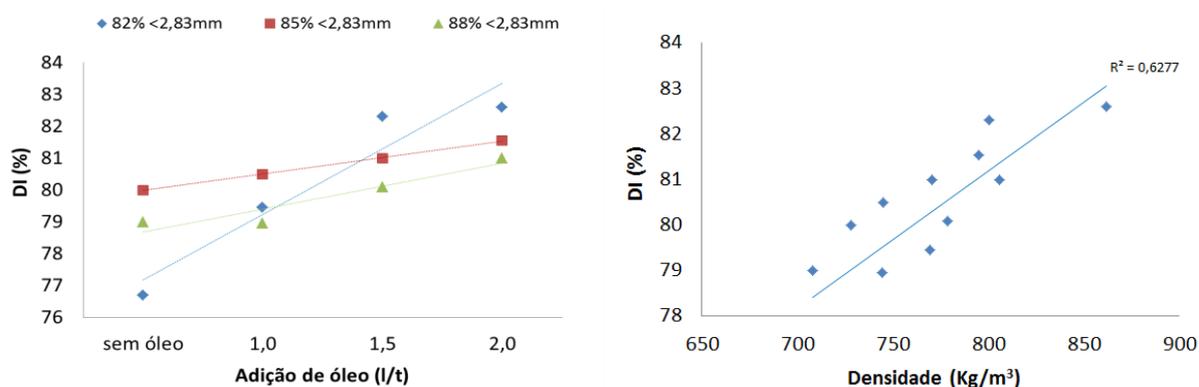


Figura 5.4: DI em função da adição de óleo (a) e densidade (b)

Quanto aos resultados de reatividade (CRI), observa-se (figura 5.5) que o CRI diminui com o aumento da densidade de carga. Para 82% < 2,83mm com adição de 2,0l/t de óleo, houve uma redução de aproximadamente 12% do CRI comparado à condição sem óleo.

Para a resistência após reação (CSR), a figura 5.6 mostra que os resultados de CSR estão em coerência com os resultados de CRI, mostrando um aumento do CSR com a elevação da densidade de carga. Nota-se também, que a variação do CSR ocorre de maneira semelhante à obtida na resistência mecânica (DI) e que os melhores resultados de CSR foram obtidos para os níveis de maiores valores de densidade, ou seja, maior adição de óleo e granulometria mais grossa. Com granulometria de 82% < 2,83mm e adição de 2,0l/t foi obtido ganho de 16% sobre o CSR em relação ao carvão sem adição de óleo. Nos níveis de 85% < 2,83mm e 88% < 2,83mm, para mesma condição, foram obtidos ganhos de 1,4% e 12,8%, respectivamente.

De acordo com a literatura (LOISON, 1989; MHLWAZI, 2013; CARIAS, 2018), a maior densidade de carga aumenta a proximidade das partículas e a interação entre as mesmas no estágio plástico, produzindo um coque de menor porosidade e menor superfície específica disponível para reação com  $\text{CO}_2$  (*solution-loss*) levando a uma menor reatividade do coque e, conseqüentemente, elevando a resistência do coque após a reação ao  $\text{CO}_2$ .

Foi observado ainda, que para o nível de granulometria de 85% < 2,83mm, não houve variações significativas nos resultados de CRI e CSR. Esse comportamento pode estar relacionado a algum erro de ensaio, pois o  $R^2$  da curva do CSR é alto e do CRI é baixo.

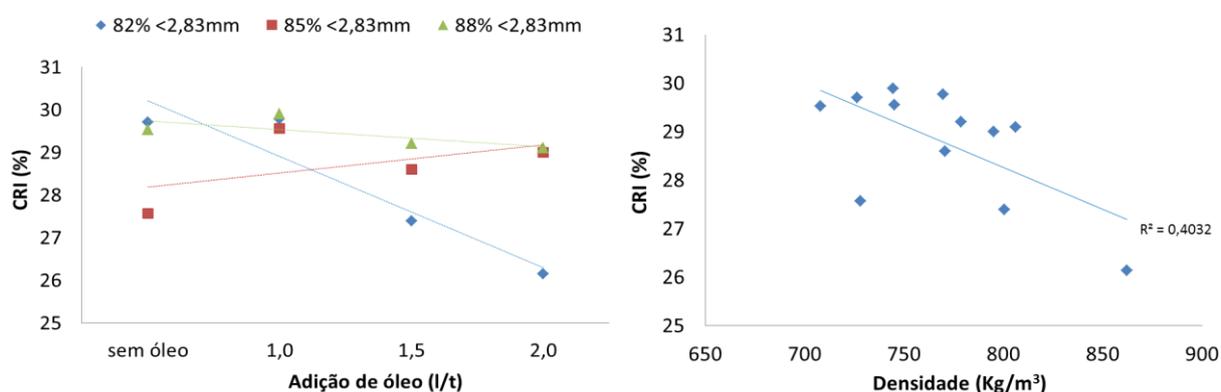


Figura 5.5: CRI em função da adição de óleo (a) e densidade (b)

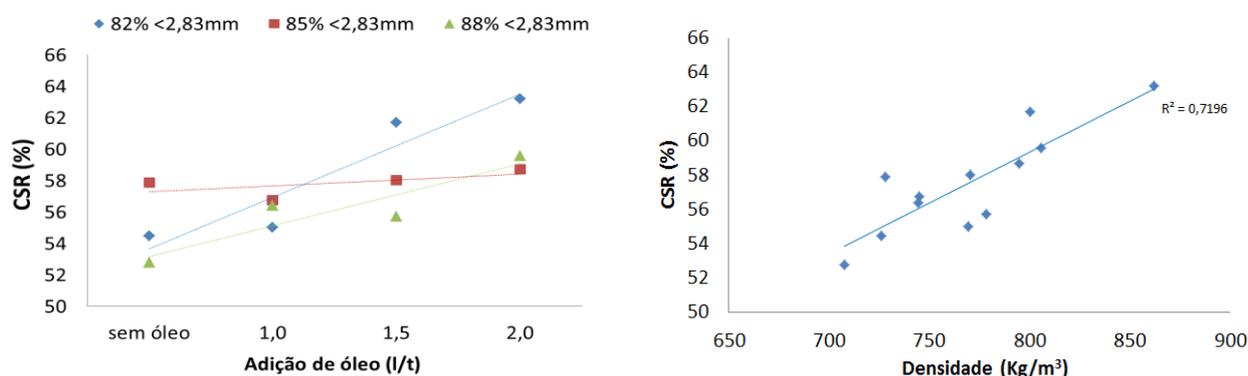


Figura 5.6: CSR em função da adição de óleo (a) e densidade (b)

Os índices de CRI e CSR devem apresentar uma boa correlação, indicando o efeito da gaseificação do coque sobre a resistência mecânica após a reação (DIEZ et al., 2002). Na figura 5.7 é apresentada a correlação entre CRI e CSR obtidas nos ensaios. Pode-se dizer que há uma boa correlação ( $R^2 = 0,69$ ), considerando o número de testes realizados (12 testes).

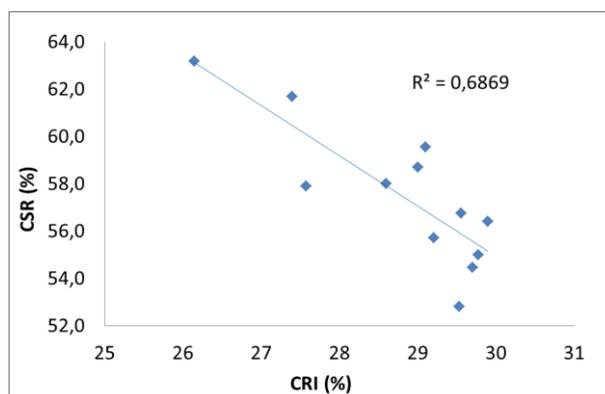


Figura 5.7: Relação entre índices CRI e CSR.

No geral, os testes comprovam que a técnica de adição de óleo promove uma melhor qualidade do coque, porém, a aplicação dessa técnica deve ser acompanhada de um controle eficiente de britagem, visando maximizar os ganhos de densidade de carga.

Considerando que os resultados sejam similares em mistura de carvões, o aumento da densidade possibilita a utilização de carvões de qualidade inferior (piores propriedades coqueificantes) em maiores proporções na mistura de carvões para coquearias, sem acarretar perdas significativas na qualidade do coque. Além disso, um coque de maior qualidade contribui para uma melhor operação do alto-forno em função da melhora da sua permeabilidade aos gases e líquidos, e por consequência, espera-se um aumento da produtividade e redução de *coke rate*.

### 5.3. Avaliação do tempo líquido de coqueificação

Na figura 5.8 é mostrado o tempo líquido de coqueificação obtido nos enforamentos pilotos. Para obtenção de tais valores, foi considerado o tempo em que o carvão levou para atingir a temperatura de 950°C no centro da carga (tempo líquido). Os resultados demonstram que o aumento da adição de óleo e, conseqüentemente, o aumento da densidade, eleva o tempo de coqueificação. Alguns especialistas comentam a respeito desse impacto na produção de coque (LOISON, 1989; NASCIMENTO, 2016; CARIAS, 2018), pois ao elevar a densidade, aumenta-se a quantidade de carvão enforada, e mantendo-se a mesma taxa de aquecimento, um maior tempo é necessário para aquecer essa massa de carvão.

Para adição de 2,0l/t com 82% < 2,83mm, houve um aumento de até 64 minutos no tempo de coqueificação, em relação a condição sem óleo. Para a menor granulometria (88% < 2,83mm) e mesma adição de óleo o aumento foi de 47 minutos.

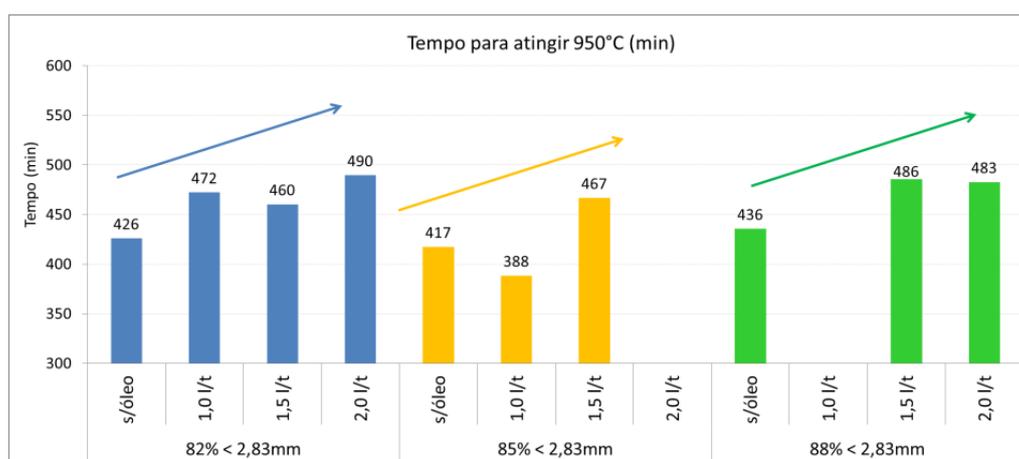


Figura 5.8: Tempo de Coqueificação em função da adição de óleo para os 3 níveis de granulometria.

Por alguma anomalia do sistema de medição de temperatura durante o processo, os enforamentos com 85% < 2,83mm e adição de óleo de 2,0l/t e 88% < 2,83mm com 1,0l/t não tiveram seus tempos de coqueificação aferidos.

A influência da densidade de carga sobre o tempo líquido de coqueificação é mostrada na figura 5.9. Nota-se que, o aumento do tempo líquido é proporcional à elevação da densidade de carga. Segundo ISLER (2012), conforme citado por CARIAS (2018), a elevação da densidade teria impacto positivo na produtividade, caso a temperatura da coqueria também fosse aumentada, desde que a taxa de aquecimento fosse mantida constante.

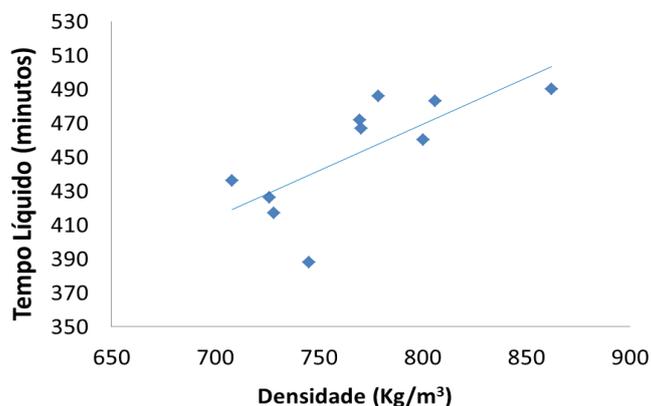


Figura 5.9: Influência da densidade de carga no tempo líquido.

Em linhas gerais os resultados mostraram que a adição gradativa de óleo no carvão promoveu aumento da densidade, enquanto a elevação da umidade do carvão e a redução de sua granulometria (<2,83mm) provocou redução da mesma. A qualidade do coque, quanto a resistência mecânica (DI e CSR), melhorou com a elevação da densidade, mostrando a viabilidade do uso dessa técnica. Maiores tempos de coqueificação foram obtidos com o aumento da densidade de carga, mostrando que, para garantir o ganho de produtividade, medidas devem ser tomadas visando reduzir o tempo de coqueificação, como por exemplo, aumentar a temperatura de trabalho das coquearias.

Neste trabalho não foi avaliado o efeito do aumento da densidade na pressão de coqueificação. Avaliar esse efeito é também de grande relevância quando se busca empregar esse tipo de técnica em escala industrial, visando a não comprometer a estrutura refratária dos fornos.

## 6. CONCLUSÕES

Para as condições testadas no presente trabalho, observou-se uma nítida influência da adição de óleo sobre a densidade de carga. Os resultados mostraram que o aumento da adição de óleo eleva a densidade de carga. De outro lado, o aumento do teor de umidade e o afinamento da granulometria do carvão promove redução da densidade de carga.

Observou-se nesse trabalho que a adição de óleo contribuiu para o aumento da densidade de carga do carvão com até 10% de umidade. Para valores de umidade de 12% não foram observadas alterações significativas de densidade de carga para todas as proporções de óleo testadas.

Em termos de granulometria, os resultados demonstraram que, dentro das condições testadas, quanto maior a granulometria do carvão, maior é a densidade de carga. Contudo, para todas as granulometrias testadas, a adição de óleo contribuiu para o aumento da densidade de carga, exceto para os casos em que o carvão foi testado com 12% de umidade.

A partir dos ensaios de coqueificação em forno piloto, verificou-se que o aumento da densidade ocasionou uma tendência de aumento de qualidade do coque em termos de DI, CRI e CSR. Para a condição de maior densidade (82% < 2,83mm, 8% de umidade, adição de óleo de 2l/t) foram obtidos ganhos de até 7,7% no DI, 16% no CSR e redução de 12% no CRI. De outro lado, os resultados experimentais em forno piloto também indicaram um aumento do tempo de coqueificação quando se tem maiores densidades de carga.

Destaca-se que o valor máximo de densidade de carga ( $862,2 \text{ kg/m}^3$ ) foi obtido na condição de maior adição de óleo (2,0 l/t), menor fração de partículas com tamanho inferior a 2,83mm (82%) e menor umidade do carvão (8%). Este valor corresponde ao aumento de 18,7% em relação à condição sem adição de óleo.

Do ponto de vista técnico, a adição de óleo demonstrou ser uma alternativa para o aumento da densidade de carga, possibilitando o carregamento de maiores quantidades de carvão por enformamento e contribuindo ainda para o aumento da qualidade do coque. Contudo, o controle da granulometria, umidade do carvão e tempo de coqueificação são necessários visando maximizar os ganhos.

## **7. SUGESTÃO PARA TRABALHOS FUTUROS**

Sugere-se avaliar a influência de diferentes óleos de descarte disponíveis na indústria, como óleos residuais de laminações, na densidade de carga visando à possibilidade de sua reutilização.

Estudos que avaliem a dosagem ideal de óleo em função da granulometria do carvão, visando otimizar sua utilização, no que tange ao aumento da densidade e adequados valores de DI, CRI e CSR.

Realizar os mesmos testes utilizando misturas de carvões praticadas na indústria.

## 8. REFERÊNCIA BIBLIOGRÁFICAS

1. ALVAREZ, R.; DÍEZ, M.A; BARRIOCANAL, C.; CANGA, C.S.; VERDURAS, J.L. Use of Waste Lubricant Oil from Steel Rolling Mills in the Coking Process. ISIJ Internacional, Vol. 38, No.1, pp. 23-77, 1998.
2. ASTM D 4749: Standard Test Method for Performing the Sieve Analysis of Coal and Designating Coal Size. 2002.
3. ASTM D5341-05. Standard Test Method for Measuring Coke Reactivity Index (CRI) and Coke Strength after Reaction (CSR). (Reaprovada). p.1-4, 2004b.
4. CARIAS, M.C; Braga, E.M.H, Silva, G.L.R; Amaral, R. C. V.; Assis, P. S.; Lemos, L. R. Efeito do Tamanho de Partícula e da Umidade sobre a Densidade de Mistura de Carvão e seu Impacto sobre a Qualidade do Coque, p. 45-56. In: 48º Seminário de Redução de Minérios e Matérias-primas, São Paulo, 2018.
5. COSTA, L.C et al. Carvão Aplicado à Fabricação de Coque de Alto-Forno. ABM 2015. Material de treinamento.
6. DAS, S. K.; NANDY, A. S.; PAUL, A.; SAHOO, B. K.; CHAKRABORTY, B.; DAS, A. Coal blend moisture – A boon or bane in cokemaking?; Coke and Chemistry, v. 56, n. 4, pp.126-136, 2013.
7. DIEZ, M.A; ALVARES, R.; BARRIOCANAL, C.; Coal for Metallurgical Coke Production Predictions of Coke Quality and Future Requirements for Coke Making. International Journal of Coal Geology Vol. 50, pp. 389–412, Elsevier, 2002.
8. FERNANDES, M.V. Efeito do Tipo de Carvão Injetado nas Ventaneiras do Alto-Forno no Consumo de Combustíveis (Fuel-Rate). Belo Horizonte: Escola de Engenharia da UFMG, 2007. 51p. (Dissertação de Mestrado em Engenharia Metalúrgica)
9. FLORES, I. V. Avaliação da Influência do Tamanho de Partícula sobre as Propriedades de Carvões Coqueificáveis e de Coques Produzidos em Escala de Laboratório. Porto Alegre: Universidade Federal do Rio Grande do Sul. 2014.165 p. (Dissertação de Mestrado em Engenharia de Minas, Metalúrgica e Materiais).

10. FRAHLICHOVÁ, M.; KUCKOVÁ, A.J.; FINDORÁK, R. – Possibilities of Increasing Coal Charge Density by Adding Fuel Oil. ISSN (1897 – 3310) Volume 10, ISSUE Special 1/2010 377-380, 2010.
11. GORDON, R.C. Metallurgical Coke Production. 1<sup>nd</sup> ed. London. IEA Greenhouse Gas R & D Programme, 2001. 88 p.
12. JIS K2151, 2004. Coke – testing methods. Japanese Industrial Standard.
13. KATO, K.; YAMAMURA, Y.; NAKASHIMA, Y. Development of Dry-cleaned and Agglomerated Pre-compaction System (DAPS) for Metallurgical Cokemaking, Nippon Steel Technical Report, n. 94, p. 42-46, 2006.
14. KERKKONEN, O. Oil Addition to the Coal Blend at the Ruukki Coking Plant, ECIC European Coke and Ironmaking Congress, 5, p. 1-11; 2005.
15. KUMAR,P.P; VINOOU, D.S.; YADAV, U.S.; GHOSH, S.; LAL, J.P.N. Optimisation of coal blend and bulk density for coke ovens by vibrocompacting technique non-recovery ovens. Ironmaking & Steelmaking, 34:5, 431-436, DOI: 10.1179/174328107X155376 Ironmaking & Steelmaking, 2007.
16. LEEDER, R.; TODOSCHUK, T.; GRANSDEN, J.; GIROUX, L, NG, K. W. Coal Stockpile Moisture and Cokemaking, Aistech, p. 357-365, 2014.
17. LEIBROCK, K.; PETAK, H. Coke Production from Low-Coking Coal Blends by Densification, Fuel Processing Technology, Amsterdam, Holanda, p. 91-107, 1983.
18. LOISON, R. et al. Coke Quality and Production. 2<sup>nd</sup> Ed. Paris: Butterworth, 1989, 572p.
19. LUZ, A. B. D.; SAMPAIO, J. A.; FRANÇA, S. C. A. Tratamento de Minérios. 5<sup>nd</sup>. ed. Rio de Janeiro: CETEM/CNPq, 2010, 963p.
20. MADIAS, J., CÓRDOVA, M. A Review on Stamped Charging of Coals. 43<sup>o</sup> Ironmaking and Raw Materials Seminar, Belo Horizonte, p. 30-43, 2013.
21. MARQUES, E.M. Avaliação da Influência do Tempo de Estocagem em Pilhas na Qualidade de Carvões Metalúrgicos. Belo Horizonte: Escola de Engenharia da UFMG, 2008. 113 p. (Dissertação de Mestrado em Engenharia Metalúrgica).

22. MHLWAZI, S. N.; Kruse, R.; MASTALERZ, M.; BISH, D.L. Impact of Oven Bulk Density and Coking Rate on Stamp-Charged Metallurgical Coke Structural Properties, *Energy&Fuels*, 27, p. 7876 - 7884, 2013.
23. NASCIMENTO, L.M. Simulação Física a Frio da Densificação da Mistura de Carvões em Coqueria via Vibração Mecânica. Ouro Preto, Universidade Federal de Ouro Preto, 2016. 69 p. (Dissertação de Mestrado em Engenharia Metalúrgica).
24. NKOLELE, A. Investigations into the reduction of moisture in fine coal by plant tests with surfactants. *The Journal of The South African Institute of Mining and Metallurgy*, P 171 - 176, 2004.
25. NOMURA, S.; ARIMA, T; KATO, K. Coal Blending Theory for Dry Coal Charging, *Fuel*, ISSN: 0016-2361, Vol: 83, p. 1771-1777, 2004.
26. OLIVEIRA, R.S. Produção de Coque Metalúrgico Através da Utilização Parcial de Briquetes de Carvão Mineral, Ouro Preto: Universidade Federal de Ouro Preto. 2017. 104 p. (Dissertação de Mestrado em Engenharia Metalúrgica).
27. REIS, H. B.; ULHOA, M. B. Qualidade de Coque de Alto-Forno, Contribuição Técnica ao 30º Seminário de Redução de Minério de Ferro da ABM, 1999.
28. ROSSI, C. G. F. T.; DANTAS, T. N. de C.; NETO, A. A. D.; MACIEL, M. A.M. Tensoativos: uma abordagem básica e perspectivas para aplicabilidade industrial. *Revista Universidade Rural, Série Ciências Exatas e da Terra, Seropédica*, Rio de Janeiro: EDUR, v. 25, n.1-2, p. 73-85, 2006.
29. SABADINI, M. B.; FERNANDES, D. C.; REIS, H. M. B. Adição de Óleo na Mistura de Carvões para Fabricação de Coque na Usiminas Ipatinga. Contribuição Técnica ao 43º Seminário de Redução de Minério de Ferro e Matérias-Primas. ABM, Belo Horizonte, 2013.
30. SAHOO, S. K. DAS, ASHUTOSH GUPTA, P. K. PANKA & M. P. REDDY. New Coal Preparation Scheme to Improve Coke Quality, NCMM, 2016.
31. SILVA, G.L.R; DESTRO, E.; MARINHO, G.M; ASSIS; P.A. Caracterização Química, Física e Metalúrgica das Frações Granulométricas da Mistura de Carvão da Gerdau Açominas. In: Seminário de Carvão, 1º. Gramado, 2011.

32. SILVA, O.J. Caracterização Tecnológica de Carvões para Coqueria. Ouro Preto: Universidade Federal de Ouro Preto. 2008. 74 p. (Dissertação de Mestrado em Engenharia Metalúrgica)
33. ULHOA, M.B. Carvão Aplicado à Fabricação de Coque de Alto-Forno. Coal & Coke e-Mentoring LTDA. 2011. 123 p.(Material de treinamento).
34. VALIA, H.S; American Iron and Steel Institute, 2014 – [acci.org](http://acci.org)
35. YU, A.B.; Zou, R.R; Standish, N.; Lu, Y. and Wang, J.M. Bulk density of coal: Effect of particle size distribution, moisture content and oil addition. Iron making conference proceedings, 1998.