

## Abstract

The steel industry is one of the most energy-intensive sectors and contributes nearly 30% of global industrial CO<sub>2</sub> emissions [1]. A promising strategy to mitigate this impact is to replace conventional carbon-based gaseous reagents with hydrogen via direct reduction. This reaction process takes place in the shaft furnace, which operates at temperatures up to 1000°C and gas pressures of 1-2 bar. Inside the furnace, gaseous reactants flow counter-current to the solid phase, composed of pellets or sinters containing oxidized iron forms. Despite its potential, the transition to hydrogen-based reduction still lacks comprehensive predictive models capable of describing the coupled thermodynamics, reaction kinetics, fluid dynamics, and solid mechanics of the system. The solid phase plays a decisive role, since its mechanical and physicochemical properties strongly influence overall process efficiency. In addition, the material undergoes progressive transformations driven by operating conditions such as temperature gradients and mechanical load, as well as by the chemical reduction itself. These transformations can induce softening, cohesion, and agglomeration, making it essential to quantify such phenomena and to understand the frictional interactions between iron oxide particles. Accurate characterization of these effects is fundamental to ensuring efficient solid phase movement and complete conversion, while preventing operational instabilities that could compromise process performance and efficiency.

The behaviour of iron oxides and pellets has long been a subject of scientific investigation. Numerous studies have examined the reduction of iron ores in blast furnaces, yet most focus on isolated aspects rather than capturing the full sequence of phenomena occurring during reduction. For instance, Lan et al. [2] analysed the fluidity of cement at temperatures up to 850 °C, while Maarup et al. [3] investigated the softening and melting of iron ores at 1500 °C. Xiao et al. [4] explored the effect of varying hydrogen fractions (0%, 5%, 10%, 15%) in blast furnaces, concentrating on the softening–melting zone between 1200 °C and 1500 °C, and demonstrated that hydrogen accelerated reduction and improved efficiency. Although these contributions provide valuable insights, they remain constrained to specific conditions and do not encompass the broader range of operating variables relevant to industrial practice. Advancing predictive models for hydrogen-based direct reduction, therefore, requires a deeper understanding of solid behaviour under process conditions. This task is hindered by two major limitations: laboratory-scale

equipment cannot replicate the extreme operating environment of shaft furnaces, and conventional methods are inadequate for studying coarse particles such as pellets. An illustrative case is the work of Tomasetta et al. [5], who investigated the influence of temperature on the flow properties of fine powders using a modified Schulze annular shear cell. Their experiments, conducted on fluid cracking catalyst powder, corundum, and fly ash with mean particle sizes of 70  $\mu\text{m}$ , 23  $\mu\text{m}$ , and 10  $\mu\text{m}$ , respectively, covered a temperature range from ambient to 500 °C. While this research underscores the importance of precise temperature control in optimizing powder flow, the particle sizes and thermal conditions examined are clearly different from those encountered in direct reduction processes, highlighting the need for dedicated methodologies tailored to industrially relevant scales.

The objective of this work is to reproduce, at laboratory scale, the conditions in the DR shaft furnace experienced by the solid phase during processing, namely temperatures approaching 1000 °C and maximum estimated normal stresses on the order of 800 kPa, within highly reactive environments. To achieve this, an analysis protocol tailored to the particle dimensions was defined, enabling the measurement of the flow behaviour of iron ore pellets under representative operating conditions. This approach enables investigation of how pellets respond to combined thermal, mechanical loads and chemical reactions, thereby taking the first steps towards bridging the existing theoretical and practical gaps in the characterization of granular solids under harsh conditions.

To address these challenges, a dedicated prototype was designed and constructed. The device integrates a shear cell capable of operating under conditions comparable to those occurring in commercial reduction equipment. In particular, able to apply controlled normal stresses up to 800 kPa and reach temperatures as high as 1000 °C. Its development required several essential steps: the careful selection of building materials resistant to hydrogen attack; the design and integration of mechanical components using SolidWorks; the definition and incorporation of a sensor system within the structure; the implementation of LabView-based code for data acquisition, processing, and interaction with the prototype; and, finally, the calibration and validation of the acquired data.

During the design phase of the prototype, preliminary tests were conducted at room temperature using a commercial apparatus, the Schulze rotational cell, to obtain initial information on material behaviour and to evaluate possible design options. Two types of samples were examined: monodisperse wood particles, used as a simplified model, and iron oxide pellets with diameters between 10 and 13 mm. The results obtained with the pellets guided the optimal design of the new setup, refining the shear cell geometry

and underscoring the limitations of conventional data analysis methods in deriving frictional and cohesive properties for coarse solids.

Further investigations were carried out on powders derived from the pellets, with particle sizes between 125 and 180  $\mu\text{m}$ , tested in a modified Schulze cell at elevated temperatures up to 660  $^{\circ}\text{C}$ . These initial high-temperature tests revealed the sensitivity of the solid phase to temperature, showing a marked increase in interparticle cohesion beginning at approximately 400  $^{\circ}\text{C}$ . Collectively, these preliminary studies provided critical insights for prototype development, while also highlighting the need to move beyond traditional continuum mechanics approaches towards discrete element modelling (DEM) to capture the behaviour of granular solids under harsh conditions.

Once the prototype was validated, the experimental program focused on two distinct classes of materials, both subjected to combined normal and shear loads. The first class comprised the solid materials processed in the shaft furnace, namely reduced and unreduced iron oxides, characterized by non-standard dimensions and variable densities. Due to their size, a custom protocol was defined, applying a single normal stress of 50 kPa to mitigate excessive fragmentation, while testing across a wide temperature range from 25 to 1000  $^{\circ}\text{C}$ . The mechanical data obtained with such coarse particulates cannot be adequately interpreted using traditional continuum mechanics, and were planned to be used to calibrate DEM models. Although the tests primarily yielded descriptive information on pellet behaviour under the applied stresses, these results proved essential for DEM calibration. Importantly, the experiments highlighted the decisive role of the reduction degree in governing pellet strength and integrity: microfractures and fragmentation were observed at intermediate reduction levels, whereas highly reduced pellets exhibited pronounced brittleness, potentially induced by isothermal laboratory reduction, even under relatively modest compressive stresses.

Quartz sand was selected as the second material, serving as both a standard reference medium and an ideal case study for prototype validation. Its characterization was carried out in accordance with ASTM D6773, through alternating consolidation phases with varying anomalous loads while the sample was subjected to shear stresses. The experimental data confirmed that quartz sand displays temperature-insensitive behaviour across the investigated range (25–800  $^{\circ}\text{C}$ ) under compressive stresses up to 800 kPa. The results showed remarkable consistency, with internal friction angles and cohesion values closely matching those reported in the literature. The absence of significant thermal effects demonstrated that stress transmission and failure response are governed primarily by particle geometry, packing density, and intergranular friction, rather than by temperature-induced changes in cohesion or strength. This mechanical stability and reproducibility

ensured that the influence of the apparatus and measurement protocol could be distinguished from material-specific effects, thereby validating the reliability of the experimental prototype.

Although the apparatus was conceived to withstand the aggressive action of hydrogen under extreme conditions, these capabilities have not yet been explored and will be the subject of future studies. In its current configuration, the prototype has demonstrated validity and reliability, enabling analyses with conventional approaches on standard materials while offering the versatility to adapt methodologies according to the properties of the tested solids. This flexibility opens the way to investigating new operating conditions and broadening the scope of granular material characterization.

## Abstract

L'industria dell'acciaio è uno dei settori più energivori e contribuisce a quasi il 30% delle emissioni globali di CO<sub>2</sub> industriale [1]. Una strategia promettente per mitigare questo impatto consiste nel sostituire i tradizionali reagenti gassosi a base carboniosa con idrogeno tramite riduzione diretta. Questo processo avviene nel forno a pozzo, che opera a temperature fino a 1000 °C e pressioni dei gas comprese tra 1 e 2 bar. All'interno del forno, i reagenti gassosi scorrono in controcorrente rispetto alla fase solida, costituita da pellet o sinter contenenti forme ossidate di ferro. Nonostante il suo potenziale, la transizione verso la riduzione a base di idrogeno manca ancora di modelli predittivi completi in grado di descrivere la termodinamica, la cinetica di reazione, la fluidodinamica e la meccanica del solido in modo accoppiato. La fase solida svolge un ruolo decisivo, poiché le sue proprietà meccaniche e fisico-chimiche influenzano fortemente l'efficienza complessiva del processo. Inoltre, il materiale subisce trasformazioni progressive indotte dalle condizioni operative, come gradienti di temperatura e carichi meccanici, oltre che dalla stessa riduzione chimica. Tali trasformazioni possono generare rammollimento, coesione e agglomerazione, rendendo essenziale quantificare questi fenomeni e comprendere le interazioni d'attrito tra particelle di ossido di ferro. Una caratterizzazione accurata di tali effetti è fondamentale per garantire un movimento efficiente della fase solida e una conversione completa, evitando instabilità operative che potrebbero compromettere prestazioni ed efficienza del processo.

Il comportamento degli ossidi di ferro e dei pellet è da tempo oggetto di indagine scientifica. Numerosi studi hanno esaminato la riduzione dei minerali di ferro negli altiforni, ma la maggior parte si concentra su aspetti isolati, senza cogliere l'intera sequenza di fenomeni che si verificano durante la riduzione. Ad esempio, Lan et al. [2] hanno analizzato la fluidità del cemento a temperature fino a 850 °C, mentre Maarup et al. [3] hanno studiato il rammollimento e la fusione dei minerali di ferro a 1500 °C. Xiao et al. [4] hanno esplorato l'effetto di diverse frazioni di idrogeno (0%, 5%, 10%, 15%) negli altiforni, concentrandosi sulla zona di rammollimento-fusione tra 1200 °C e 1500 °C, dimostrando che l'idrogeno accelera la riduzione e migliora l'efficienza. Sebbene questi contributi forniscano indicazioni preziose, restano limitati a condizioni specifiche e non coprono l'ampio spettro di variabili operative rilevanti per la pratica industriale. Avanzare nello sviluppo di modelli predittivi per la riduzione diretta a idrogeno richiede

quindi una comprensione più approfondita del comportamento del solido in condizioni di processo. Questo obiettivo è ostacolato da due limitazioni principali: le apparecchiature da laboratorio non possono replicare l'ambiente operativo estremo dei forni a pozzo, e i metodi convenzionali non sono adeguati a studiare particelle grossolane come i pellet. Un caso illustrativo è il lavoro di Tomasetta et al. [5], che hanno investigato l'influenza della temperatura sulle proprietà di flusso di polveri fini utilizzando una cella di taglio anulare Schulze modificata. I loro esperimenti, condotti su polveri FCC, corindone e ceneri volanti con dimensioni medie di 70  $\mu\text{m}$ , 23  $\mu\text{m}$  e 10  $\mu\text{m}$ , rispettivamente, hanno coperto un intervallo termico dall'ambiente a 500 °C. Sebbene questo studio evidenzi l'importanza del controllo termico nel comportamento di flusso delle polveri, le dimensioni delle particelle e le condizioni termiche analizzate sono chiaramente diverse da quelle tipiche dei processi di riduzione diretta, sottolineando la necessità di metodologie dedicate e adattate a scale industriali.

L'obiettivo di questo lavoro è riprodurre, su scala di laboratorio, le condizioni del forno DR sperimentate dalla fase solida durante il processo, ovvero temperature prossime ai 1000 °C e tensioni normali massime stimate dell'ordine di 800 kPa, all'interno di ambienti altamente reattivi. Per raggiungere questo scopo è stato definito un protocollo di analisi adattato alle dimensioni delle particelle, che consente di misurare il comportamento di flusso dei pellet di minerale di ferro in condizioni operative rappresentative. Questo approccio permette di indagare come i pellet rispondano alla combinazione di carichi termici, meccanici e reazioni chimiche, compiendo così i primi passi verso il superamento dei limiti teorici e pratici nella caratterizzazione dei solidi granulari in condizioni estreme.

Per affrontare queste sfide è stato progettato e costruito un prototipo dedicato. Il dispositivo integra una cella di taglio in grado di operare in condizioni comparabili a quelle presenti negli impianti industriali di riduzione. In particolare, può applicare tensioni normali controllate fino a 800 kPa e raggiungere temperature fino a 1000 °C. Il suo sviluppo ha richiesto diverse fasi essenziali: la selezione accurata di materiali resistenti all'attacco dell'idrogeno; la progettazione e integrazione dei componenti meccanici tramite SolidWorks; la definizione e l'inserimento di un sistema di sensori nella struttura; l'implementazione di un codice basato su LabView per acquisizione, elaborazione e gestione dei dati; e infine la calibrazione e validazione delle misure.

Durante la fase di progettazione del prototipo, sono stati condotti test preliminari a temperatura ambiente utilizzando un'apparecchiatura commerciale, la cella rotazionale di Schulze, per ottenere informazioni iniziali sul comportamento dei materiali e valutare possibili soluzioni progettuali. Sono stati esaminati due tipi di campioni: particelle monodisperse di legno,

utilizzate come modello semplificato, e pellet di ossido di ferro con diametri compresi tra 10 e 13 mm. I risultati ottenuti con i pellet hanno guidato la progettazione ottimale del nuovo setup, affinando la geometria della cella di taglio e mettendo in evidenza i limiti dei metodi convenzionali nell'estrarre proprietà di attrito e coesione per solidi grossolani.

Ulteriori indagini sono state condotte su polveri derivate dai pellet, con dimensioni comprese tra 125 e 180  $\mu\text{m}$ , testate in una cella Schulze modificata a temperature elevate fino a 660 °C. Questi primi test ad alta temperatura hanno rivelato la sensibilità della fase solida alla temperatura, mostrando un marcato aumento della coesione interparticellare a partire da circa 400 °C. Nel complesso, tali studi preliminari hanno fornito indicazioni fondamentali per lo sviluppo del prototipo, evidenziando al contempo la necessità di superare gli approcci basati sulla meccanica dei continui a favore della modellazione a elementi discreti (DEM) per descrivere il comportamento dei solidi granulari in condizioni estreme.

Una volta validato il prototipo, il programma sperimentale si è concentrato su due classi distinte di materiali, entrambi sottoposti a combinazioni di carichi normali e di taglio. La prima classe comprendeva i materiali solidi processati nel forno a pozzo, ovvero ossidi di ferro ridotti e non ridotti, caratterizzati da dimensioni non standard e densità variabili. A causa delle loro dimensioni, è stato definito un protocollo personalizzato, applicando una singola tensione normale di 50 kPa per evitare eccessiva frammentazione, e testando su un ampio intervallo termico da 25 a 1000 °C. I dati meccanici ottenuti con particelle così grossolane non possono essere interpretati adeguatamente tramite la meccanica dei continui e sono stati destinati alla calibrazione di modelli DEM. Sebbene i test abbiano fornito principalmente informazioni descrittive sul comportamento dei pellet sotto i carichi applicati, tali risultati si sono rivelati essenziali per la calibrazione DEM. In particolare, gli esperimenti hanno evidenziato il ruolo decisivo del grado di riduzione nel determinare resistenza e integrità dei pellet: microfratture e frammentazione sono state osservate a livelli intermedi di riduzione, mentre pellet fortemente ridotti hanno mostrato una marcata fragilità, potenzialmente indotta dalla riduzione isoterma di laboratorio, anche sotto tensioni compressive relativamente modeste.

La sabbia di quarzo è stata selezionata come secondo materiale, fungendo sia da mezzo di riferimento standard sia da caso ideale per la validazione del prototipo. La sua caratterizzazione è stata condotta secondo ASTM D6773, attraverso fasi alternate di consolidamento con carichi anomali variabili mentre il campione era sottoposto a sforzi di taglio. I dati sperimentali hanno confermato che la sabbia di quarzo presenta un comportamento insensibile alla temperatura nell'intervallo investigato (25–800 °C) sotto tensioni compressive fino a 800 kPa. I risultati hanno mostrato una notevole coerenza,

con angoli di attrito interno e valori di coesione molto vicini a quelli riportati in letteratura. L'assenza di effetti termici significativi ha dimostrato che la trasmissione degli sforzi e la risposta a rottura sono governate principalmente da geometria delle particelle, densità di impaccamento e attrito intergranulare, piuttosto che da variazioni termiche della coesione o della resistenza. Questa stabilità meccanica e riproducibilità hanno permesso di distinguere l'influenza dell'apparato e del protocollo di misura dagli effetti specifici del materiale, validando così l'affidabilità del prototipo sperimentale. Sebbene l'apparato sia stato progettato per resistere all'azione aggressiva dell'idrogeno in condizioni estreme, tali capacità non sono ancora state esplorate e saranno oggetto di studi futuri. Nella configurazione attuale, il prototipo ha dimostrato validità e affidabilità, consentendo analisi con approcci convenzionali su materiali standard e offrendo al contempo la versatilità necessaria per adattare le metodologie alle proprietà dei solidi testati. Questa flessibilità apre la strada all'indagine di nuove condizioni operative e all'ampliamento delle possibilità di caratterizzazione dei materiali granulari.

## References

- [1] S. R. Taylor, "Abundance of chemical elements in the continental crust: a new table," *Geochim. Cosmochim. Acta*, vol. 28, no. 8, pp. 1273–1285, Aug. 1964, doi: 10.1016/0016-7037(64)90129-2.
- [2] Liming. Lu, "Iron ore : mineralogy, processing and environmental sustainability," p. 842, 2022, Accessed: Sep. 10, 2025. [Online]. Available: [https://books.google.com/books/about/Iron\\_Ore.html?hl=it&id=fTFJEAAAQBAJ](https://books.google.com/books/about/Iron_Ore.html?hl=it&id=fTFJEAAAQBAJ)
- [3] D. Spreitzer and J. Schenk, "Reduction of Iron Oxides with Hydrogen—A Review," *Steel Res. Int.*, vol. 90, no. 10, p. 1900108, Oct. 2019, doi: 10.1002/SRIN.201900108.
- [4] Y. Xiao, K. Zhu, S. Ye, Z. Xie, Y. Zhang, and X. Lu, "Hydrogen on softening-melting and slag forming behavior under the operation of blast furnace with iron coke charging," *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 47, no. 73, pp. 31129–31139, Aug. 2022, doi: 10.1016/j.ijhydene.2022.07.035.

- [5] I. Tomasetta, D. Barletta, and M. Poletto, “The Effect of Temperature on Flow Properties of Fine Powders.”