



**UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS  
FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA**

**ÁREA DE CONCENTRAÇÃO  
ENGENHARIA DE PROCESSOS**

**ESTUDO DO RECOBRIMENTO DE CELULOSE MICROCRISTALINA  
EM LEITO FLUIDIZADO PULSADO ROTATIVO**

Autor – Marcio Wagner da Silva

Orientador – Prof. Dr. Osvaldir Pereira Taranto

Dissertação de mestrado apresentada à Faculdade de Engenharia Química como parte dos requisitos exigidos para a obtenção do título de mestre em Engenharia Química.

Campinas, Março de 2006.

ADADA \_\_\_\_\_  
EX \_\_\_\_\_  
BC: 690-35  
16.123-06  
D X  
22.00  
236666

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA  
BIBLIOTECA DA ÁREA DE ENGENHARIA E ARQUITETURA - BAE - UNICAMP

Si38e Silva, Marcio Wagner da  
Estudo do recobrimento de celulose microcristalina em  
leito fluidizado pulsado rotativo / Marcio Wagner da Silva.-  
-Campinas, SP: [s.n.], 2006.

Orientador: Osvaldir Pereira Taranto  
Dissertação (mestrado) - Universidade Estadual de  
Campinas, Faculdade de Engenharia Química.

I. Leito fluidizado. 2. Revestimento. 3. Fluidização. 4.  
Celulose. I. Taranto, Osvaldir Pereira. II. Universidade  
Estadual de Campinas. Faculdade de Engenharia Química.  
III. Título.

5882/9009

Título em Inglês: Study of microcrystalline cellulose coating in rotative pulsed fluidized  
bed

Palavras-chave em Inglês: Coating, Pulsed bed, Pulsed fluidized, Cellulose

Área de concentração: Engenharia de Processos


Titulação: Mestre em Engenharia Química

Banca examinadora: Nehemias Curvelo Pereira e Sandra Cristina dos Santos Rocha

Data da defesa: 28/03/2006

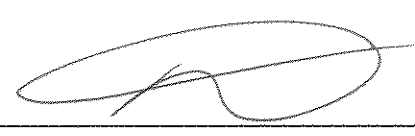
~ ~

Dissertação de mestrado defendida por Marcio Wagner da Silva e aprovada em 28 de  
Março de 2006 pela banca examinadora constituída pelos doutores:



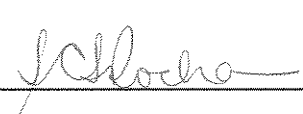
---

Prof. Dr. – Osvaldir Pereira Taranto



---

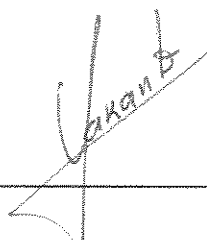
Prof. Dr. – Nehemias Curvelo Pereira



---

Prof<sup>a</sup>. Dr<sup>a</sup>. – Sandra Cristina dos Santos Rocha

Este exemplar corresponde a versão definitiva da dissertação de mestrado defendida por  
Marcio Wagner da Silva em 28 de Março de 2006.

A handwritten signature in black ink, written diagonally across a horizontal line. The signature appears to be 'Osvaldir Pereira Taranto'.

Prof. Dr. Osvaldir Pereira Taranto

## AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Dr. Osvaldir Pereira Taranto, pela orientação e por toda a atenção dispensada ao longo do desenvolvimento do trabalho.

A Prof. Dr<sup>a</sup>. Sandra Cristina dos Santos Rocha, por sua valiosa contribuição para o trabalho, e também pela boa vontade no empréstimo de materiais e utilização de seu laboratório. Agradeço também à Dr<sup>a</sup>. Marta Wilk Donida, por suas valiosas sugestões, ao MSc. Roberto Luiz Gomes da Cunha, por sua inestimável ajuda na análise dos resultados e à Engenheira de Alimentos Aline, por sua paciência e boa vontade.

Ao técnico Sr. Levi Moreira pela montagem e manutenção do equipamento experimental.

Ao Prof. Dr. Antônio Carlos Luz Lisboa, pela boa vontade e também pelo empréstimo de seu laboratório. Agradeço também ao seu aluno o Dr. Paulo Sérgio da Silva Porto, por sua grande e inestimável amizade.

À minha querida Ana Gláucia, por tudo de bom que representa.

À minha querida família, por seu apoio e compreensão.

À CAPES pelo apoio financeiro.

Aos amigos, Igor, Patrícia, Leonardo, Érico, Ana Elisa, Enéas e a todos os colegas de trabalho, os meus sinceros agradecimentos.

A todos que de alguma forma contribuíram para a realização deste trabalho, o meu muito obrigado.

---

**ÍNDICE**

NOMENCLATURA.....	VIII
1 INTRODUÇÃO.....	1
2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA.....	4
2.1 FUNDAMENTOS DE FLUIDIZAÇÃO.....	4
2.1.1 Propriedades das partículas .....	4
2.1.2 Regimes de fluidização.....	6
2.1.3 Parâmetros fluidodinâmicos .....	8
2.1.4 Fluidização não-convencional .....	10
2.1.5 Leito fluidizado pulsado rotativo.....	14
2.1.6 Fluidodinâmica do leito fluidizado pulsado rotativo.....	15
2.2 SECAGEM.....	17
2.2.1 Cinética de secagem .....	17
2.3 RECOBRIMENTO EM LEITO FLUIDIZADO .....	19
2.3.1 Qualidade do recobrimento .....	20
2.3.2 Equipamentos de leito fluidizado com aplicação no revestimento de partículas <sup>23</sup>	
2.3.3 Tecnologia de aglomeração.....	28
2.3.4 Forças interpartículas em leitos fluidodinamicamente ativos.....	30
3 MATERIAIS E MÉTODOS.....	36
3.1 MATERIAIS .....	36
3.1.1 Suspensão de recobrimento .....	37
3.1.2 Equipamentos periféricos .....	39
3.2 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL.....	39
3.2.1 Determinação da vazão de ar.....	41
3.2.2 Sistema de atomização .....	42
3.2.3 Estudo fluidodinâmico.....	42
3.2.4 Estudo fluidodinâmico com atomização .....	43
3.2.5 Estudo fluidodinâmico durante o recobrimento .....	43
3.2.6 Planejamento experimental .....	44
4 RESULTADOS E DISCUSSÃO .....	46
4.1 FLUIDODINÂMICA DO LEITO.....	46

---

4.1.1	Estudo da influência da carga de partículas na queda de pressão de mínima fluidização .....	47
4.1.2	Influência da frequência de pulsação sobre a velocidade de mínima fluidização .....	49
4.1.3	Influência do ar de atomização na fluidodinâmica do leito.....	50
4.2	ENSAIOS DE RECOBRIMENTO .....	51
4.2.1	Ensaio de recobrimentos preliminares .....	52
4.2.2	Determinação da umidade das partículas ao final do processo .....	54
4.2.3	Ensaio de recobrimento.....	55
4.3	RESULTADO DO PLANEJAMENTO EXPERIMENTAL COMPLETO 2 <sup>3</sup> .....	55
4.3.1	Análise estatística das respostas do planejamento completo 2 <sup>3</sup> .....	57
4.3.2	RESULTADO DO PLANEJAMENTO EXPERIMENTAL COMPLETO 2 <sup>4</sup> 61	
4.3.3	Análise dos efeitos das variáveis estudadas sobre as respostas do planejamento.....	62
4.4	ANÁLISE VIA MICROSCÓPIO ÓPTICO .....	73
4.5	ANÁLISE DE REABSORÇÃO DE UMIDADE .....	75
4.5.1	Comparação entre o comportamento do processo em LFPR e LFC .....	76
5	CONCLUSÕES .....	78
5.1	SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS .....	80
6	REFERÊNCIAS .....	81

**INDICE DE FIGURAS**

Figura 2.1 - Classificação de partículas para fluidização com ar (GELDART, 1986).....	6
Figura 2.2 - Regimes de fluidização (KUNII e LEVENSPIEL,1991) .....	7
Figura 2.3 – Queda de pressão em função da vazão de ar para um leito convencional .....	8
Figura 2.4 – Vazão em função do tempo para uma alimentação pulsada (WANG e RHODES, 2005).....	11
Figura 2.5 - Leito pulso-fluidizado, GAWRZYNSKI et al. (1996) .....	12
Figura 2.6 - Secador de leito pulso-fluidizado, PRACHAYAWARAKORN et. al. (2004) 13	
Figura 2.7 – Leito Fluidizado Pulsado Rotativo, ELENKOV e DJURKOV (1997).....	15
Figura 2.8 – Curva da taxa de secagem em função do teor de umidade do material (STRUMILLO e KUDRA, 1986).....	18
Figura 2.9 - Recobrimento em leito fluidizado (KLEINBACH e RIEDE, 1995) .....	20
Figura 2.10 – Liberação (%) em função do tempo para diferentes tipos de recobrimento (KLEINBACH e RIEDE, 1995).....	21
Figura 2.11 – Recobridor de leito fluidizado tipo Wurster (TURTON e CHENG, 2005) ...	24
Figura 2.12 – Equipamento recobridor de leito fluidizado com atomização no topo (TURTON e CHENG, 2005).....	25
Figura 2.13 – Recobridor de leito fluidizado rotativo (TURTON e CHENG, 2005).....	26
Figura 2.14 – Recobridor de leito fluidizado rotativo WATANO et.al.(2004) .....	27
Figura 2.15- Mecanismo de crescimento das partículas por formação de camadas (KADAM, 1991). .....	28
Figura 2.16-Processo de colapso em leito fluidizado (YONGSHENG e DAYOU, 1998) ..	31
Figura 2.17 – Ponte líquida entre partículas esféricas (SEVILLE et al., 2000) .....	31
Figura 2.18 – Força interpartícula em função do diâmetro da partícula (SEVILLE et al., 2000).....	32
Figura 3.1 – Equipamento experimental.....	40
Figura 3.2 – Conjunto de atomização (COSTA, 2003) .....	42
Figura 4.1 – Curva fluidodinâmica para carga de 1,0 kg e frequência de 10 Hz .....	46
Figura 4.2 – Influência da carga de partículas na velocidade de mínima fluidização .....	47
Figura 4.3 – Influência da frequência na fluidodinâmica do leito.....	49
Figura 4.4 – Influência do ar de atomização na fluidodinâmica das partículas de CMC.....	50
Figura 4.5 – Processo de recobrimento em Leito Fluidizado Pulsado-Rotativo (LFPR).....	54
Figura 4.6 – Diagrama de pareto para a resposta eficiência de recobrimento.....	57



Figura 4.7 – Valores observados em função dos valores previstos – $\eta$ (eficiência).....	59
Figura 4.8 – Distribuição dos resíduos para a resposta eficiência de recobrimento.....	59
Figura 4.9 – Diagrama de pareto para a resposta teor de aglomerados .....	60
Figura 4.10 – Diagrama de pareto para a resposta eficiência de processo ( $\eta$ ) .....	63
Figura 4.11 – Valores observados em função dos valores previstos – $\eta$ (eficiência).....	65
Figura 4.12 – Distribuição dos resíduos para a eficiência do processo.....	65
Figura 4.13 – Superfície de resposta para eficiência de processo em função de $T_{ar}$ e $P_{at}$ para $W_s = 7,3$ g/min e $f = 10$ Hz .....	66
Figura 4.14 – Superfície de resposta para eficiência de recobrimento em função de $P_{at}$ e $f$ para $W_s = 7,3$ g/min e $T_{ar} = 60$ °C.....	67
Figura 4.15 – Superfície de resposta para eficiência de recobrimento em função de $f$ e $T_{ar}$ para $W_s = 7,3$ g/min e $P_{at} = 120,66$ kPa .....	67
Figura 4.16 – Superfície de resposta para eficiência de recobrimento em função de $T_{ar}$ e $W_s$ para $f = 10$ Hz e $P_{at} = 120,6$ kPa.....	68
Figura 4.17 – Superfície de resposta para eficiência em função de $f$ e $W_s$ para $T_{ar} = 60$ °C e $P_{at} = 120,6$ kPa.....	68
Figura 4.18 – Superfície de resposta para eficiência de recobrimento em função de $P_{at}$ e $W_s$ para $T_{ar} = 60$ °C e $f = 10$ Hz .....	69
Figura 4.22 – Diagrama de pareto para a resposta índice de aglomerados (Agl).....	70
Figura 4.23 – Valores preditos em função dos valores observados para a resposta índice de aglomerados (Agl) .....	72
Figura 4.24 – Distribuição de resíduos para a resposta índice de aglomerados (Agl) .....	72
Figura 4.25 – Imagem das partículas recobertas para o ensaio 9 (ampliação de 40 X). (a) partículas recobertas; (b) aglomerados. ....	74
Figura 4.26 – Imagem das partículas recobertas para o ensaio 13 (ampliação de 40X). (a) partículas recobertas; (b) aglomerados obtidos. ....	74
Figura 4.27 – Isotermas de adsorção de vapor de água para os ensaios 9, 13, 14, 15 e para celulose não recoberta .....	76

**INDICE DE TABELAS**

Tabela 2.1 – Velocidades de mínima e máxima pulso-fluidização (GAWRZYNSKI et al., 1989).....	14
Tabela 3.1- Características das partículas de MICROCEL (SILVA, 2003).....	36
Tabela 3.2 – Composição da suspensão de recobrimento, DONIDA (2000).....	37
Tabela 4.1 – Queda de pressão e velocidade de mínima fluidização em função da carga de partículas para frequência de 15 Hz .....	48
Tabela 4.2 – Resultados dos ensaios de recobrimento preliminares .....	52
Tabela 4.3 – Matriz das variáveis independentes e variáveis resposta para o planejamento experimental completo $2^3$ .....	55
Tabela 4.4 – Análise de variância – Eficiência do processo de recobrimento .....	58
Tabela 4.5 – Resultados obtidos para o planejamento completo $2^4$ .....	62
Tabela 4.6 – Análise de variância para a eficiência do processo de recobrimento .....	64
Tabela 4.8- Análise de variância para a resposta índice de aglomerados (Agl).....	71
Tabela 4.9 – Resultados obtidos para a análise de absorção de umidade.....	75

---

## NOMENCLATURA

### Latinas

$a_1$	área do tubo ( $\text{cm}^2$ )
$a_2$	área do orifício ( $\text{cm}^2$ )
$A$	área de seção transversal ( $\text{cm}^2$ )
$A_{gl}$	índice de aglomerados (-)
$b$	pressão barométrica (mmHg)
$C_s$	concentração de sólidos na suspensão (-)
$d$	diâmetro ( $\mu\text{m}$ )
$f$	frequência de rotação (Hz)
$g$	aceleração da gravidade ( $\text{m/s}^2$ )
$H$	altura do leito de partículas (m)
$\Delta h_p$	variação de pressão através da placa de orifício ( $\text{cmH}_2\text{O}$ )
$k, k_1$	constantes (-)
$M$	massa de sólidos no leito (g)
$P$	pressão (Pa)
$P_1$	pressão estática na linha de ar ( $\text{cmH}_2\text{O}$ )
$\Delta P$	queda de pressão através do leito (Pa)
$Q$	vazão mássica do ar (kg/min)
$R$	constante universal dos gases ideais (J/mol.K)
$T$	temperatura do gás ( $^\circ\text{C}$ )
$t$	tempo (min)
$U$	velocidade do ar (cm/s)

---

$u_{pf}^i$	velocidade de mínima pulso-fluidização (cm/s)
$u_{pf}^d$	velocidade de máxima pulso-fluidização (cm/s)

### **Gregas**

$\alpha$	coeficiente de descarga (-)
$\varepsilon$	porosidade do leito; fator de compressibilidade (-)
$\mu$	viscosidade (kg/m.s)
$\eta$	eficiência da recobrimento (-)
$\chi$	crescimento relativo em massa (-)
$\rho$	densidade (g/cm <sup>3</sup> )
$\phi, \varphi$	esfericidade (-)

### **Subscritos**

cal	calculado
mf	mínima fluidização
p	partícula
g	gás
pf	pulso-fluidização
at	atomização
r	recobrimento
s	sólido
f	final
o	inicial
tab	tabelado
t	total

---

mfpr mínima fluidização pulsada-rotativa

### **Abreviações**

CMC celulose microcristalina

LFC leito fluidizado convencional

LFPR leito fluidizado pulsado-rotativo

### **Simbologia estatística**

F teste F de probabilidade estatística

GL graus de liberdade

SQ soma quadrática

### **Números adimensionais**

Número de Arquimedes :  $Ar = \frac{g \cdot d_p^3 \cdot \rho(\rho_s - \rho)}{\mu^2}$

Número de Reynolds na mínima fluidização :  $Re_{mf} = \frac{u_{mf} \rho d_p}{\mu}$

---

## RESUMO

O processo de recobrimento de microgrânulos em Leito Fluidizado Pulsado-Rotativo (LFPR) foi investigado através da realização de experimentos de revestimento de celulose microcristalina (MICROCEL). Foi analisada e discutida a influência da carga de partículas, frequência de pulsação da corrente gasosa, vazão de suspensão, pressão de atomização e temperatura de secagem sobre a eficiência de recobrimento, crescimento relativo em massa e índice de aglomerados.

O principal objetivo do desenvolvimento do trabalho foi avaliar o desempenho e o comportamento do processo de recobrimento de microgrânulos em um equipamento de leito fluidizado com alimentação pulsada da corrente gasosa, frente a um equipamento de leito fluidizado convencional, cujo comportamento é amplamente descrito na literatura. Para a investigação do processo de recobrimento foi utilizada uma suspensão polimérica à base de Eudragit<sup>®</sup>, e partículas de MICROCEL com diâmetro na faixa de 0,25 a 0,42 mm. O crescimento relativo médio das partículas foi de 3,63 %.

Os experimentos foram realizados segundo técnicas de planejamento experimental, em que as análises dos resultados experimentais obtidos foram realizadas através da Metodologia da Superfície de Resposta. A análise dos efeitos das variáveis sobre as variáveis de resposta do processo foram utilizadas na construção de um modelo empírico, visando, quando possível, a predição do comportamento do processo. A análise dos modelos obtidos foi realizada através da análise de variância (ANOVA).

As variáveis independentes analisadas foram: vazão de suspensão ( $W_s$ ), pressão de atomização ( $P_{at}$ ), temperatura do ar ( $T_{ar}$ ), carga de partículas no leito ( $M$ ) e frequência de pulsação ( $f$ ). Todas as variáveis operacionais foram avaliadas em três diferentes níveis.

Os resultados obtidos indicam que o leito fluidizado pulsado-rotativo é um equipamento adequado ao processo de recobrimento de microgrânulos, para as condições avaliadas, com grandes vantagens em relação ao equipamento de leito fluidizado convencional, destacando-se a redução na formação de aglomerados.

---

## ABSTRACT

The coating process of microgranules in a Rotative-Pulsed Fluidized Bed was investigated through the accomplishment of microcrystalline cellulose (MICROCEL) coating experiments. The influence of particle load, gaseous stream pulsation frequency, suspension flow rate, pressure of atomization and drying temperature on the coating efficiency, relative growth and agglomeration index were analyzed and argued.

The main objective of this work development was the evaluation of the performance and the behavior of microgranule coating process in fluidized bed equipment with beaten feeding of the gaseous stream, front a conventional fluidized bed equipment, which behavior is widely described in literature. For the inquiry of the coating process, a polymeric suspension of Eudragit<sup>®</sup> and MICROCEL particles with diameter range of 0.25 – 0.42 mm were used. The average relative growth of particles was of 3.63 %.

The experiments were carried out according experimental planning techniques, where the obtained experimental results analyses had been carried through the Response Surface Methodology. The analysis of the effect of the independent variable on the process answer variables had been used in the construction of an empirical model, aiming to predict the process behavior, when possible. The analysis of the obtained models was carried out using the variance analysis (ANOVA).

The independent variable used had been: suspension flow rate ( $W_s$ ), atomization pressure ( $P_{at}$ ), air temperature ( $T_{ar}$ ), bed particle load ( $m$ ) and pulsation frequency ( $f$ ).

Results obtained shown that Rotative-Pulsed Fluidized Bed is an adequate equipment to be used in microgranules coating process in the evaluated operational conditions showing great advantages when compared to conventional fluidized bed, highlighting the agglomerate formation reduction.

# 1 INTRODUÇÃO

O recobrimento de partículas é uma técnica amplamente empregada nas indústrias químicas, agrícolas, farmacêuticas e de alimentos. Esta técnica consiste em revestir diferentes partículas, como comprimidos e pílulas, com finalidades específicas, como proteção de condições ambientais agressivas ao material da partícula, prolongar a vida útil da mesma, etc. A operação de recobrimento pode ser definida como uma operação de secagem antecedida por uma etapa de aspersão de uma suspensão, cujo solvente deve ser removido para promover a aderência desejada. Em vista disso, os conceitos empregados na análise do recobrimento são fundamentalmente os mesmos da secagem. A fase gasosa insaturada é geralmente o ar que é previamente aquecido antes de entrar em contato com o material recoberto a ser secado. Pelas características desta operação, a secagem deve ocorrer rapidamente, proporcionando bom rendimento ao processo e boa qualidade ao produto.

As razões para a realização da operação de recobrimento são diversas, indo desde aspectos estéticos até funcionais. Alguns exemplos de aplicação desta operação são o revestimento de comprimidos na indústria farmacêutica, o revestimento de balas e confeitos na indústria alimentícia e o revestimento de sementes e fertilizantes na indústria agrícola.

Diversos trabalhos sobre recobrimento têm sido publicados evidenciando a versatilidade desta tecnologia no processamento dos mais diversos materiais. DONIDA (2000) estudou o recobrimento de uréia em leite de jorro com soluções poliméricas, que se mostrou muito promissor com relação à escolha da formulação da suspensão de recobrimento; COSTA (2003) estudou o processo de peletização de sementes de brócolos em leite de jorro cônico e os resultados se mostraram muito eficientes, principalmente por preservar as sementes quando submetidas às condições ambientais e não afetar a qualidade de germinação.

Uma das aplicações mais comuns do recobrimento de partículas é o revestimento de comprimidos e cápsulas na indústria farmacêutica, com o objetivo de fornecer uma liberação gradual e controlada do ingrediente ativo da droga administrada, evitando assim picos de concentração na corrente sanguínea. O uso de recobrimento de drogas foi provavelmente uma adaptação dos métodos utilizados para a conservação de alimentos, e publicações francesas datadas do século XVI descrevem o recobrimento como um meio de



“mascarar” o sabor desagradável de alguns medicamentos. O recobrimento de pílulas com soluções de açúcar foi muito desenvolvido na França no século XIX (SEITZ et al., 1986).

GOVENDER e DANGOR (1997) estudaram a liberação de Salbutamol (um bronco-dilatador), através de comprimidos revestidos com Eudragit® em leito Wurster e, verificaram que comprimidos recobertos promoviam uma liberação retardada do princípio ativo, mantendo assim níveis mais adequados da droga na corrente sanguínea, propiciando uma administração mais confortável da droga ao paciente.

A literatura apresenta trabalhos sobre recobrimento de microgrânulos, visando principalmente analisar as características do filme formado em partículas inertes, como vidro e alumina (SMITH e NIENOW, 1983), bem como a análise do produto em relação à formulação, presença de aditivos e eficiência na cinética de liberação. Todavia, estudos sobre a otimização do processo de recobrimento e comparação de eficiência de equipamentos de recobrimento são escassos.

Diversos equipamentos são empregados no recobrimento de partículas entre eles os mais comuns são: leito fluidizado, leito de jorro, drageadeiras e tambores rotativos. A escolha do equipamento mais apropriado depende das características da partícula a ser recoberta, e da qualidade de recobrimento que se deseja obter. O recobrimento de partículas em leito fluidizado possui diversas vantagens, dentre as quais destacam-se: elevado grau de mistura dos sólidos no interior do leito o que garante uma maior homogeneidade do produto final e elevadas taxas de transferência de calor e massa. Apesar destas vantagens, modificações têm sido impostas ao leito fluidizado convencional, visando garantir uma melhor distribuição do gás fluidizante através do leito de partículas, diminuindo a aglomeração e defluidização do leito além de uma maior economia de energia para o processo de recobrimento.

O trabalho de SILVA e ROCHA (2002) apresenta um estudo do processo de recobrimento de celulose microcristalina em leito fluidizado com base nas variáveis operacionais, analisando a eficiência do processo de recobrimento em função das condições operacionais. O processo de recobrimento deve ser rigorosamente controlado, pois qualquer modificação nas variáveis operacionais como vazão de suspensão, temperatura, umidade relativa do ar e pressão de atomização pode levar ao encharcamento, com formação de aglomerados indesejados ou mesmo o colapso do leito. Estes autores concluíram que o

processo de recobrimento em leito fluidizado convencional deve ser realizado com intermitência na alimentação da suspensão de recobrimento para evitar os efeitos citados.

A pulsação da corrente gasosa têm sido descrita como uma forma eficiente para sanar algumas deficiências dos equipamentos de leito fluidizado. DEVAHASTIN e MUJUMDAR (2001) estudaram o comportamento fluidodinâmico de partículas de polietileno, soja, poliestireno e trigo em um leito de jorro com alimentação pulsada da corrente gasosa e verificaram que existe uma frequência ótima de pulsação que permite uma melhor taxa de circulação das partículas e que a altura de jorro máximo diminui com a frequência de pulsação. Segundo os autores existe uma frequência crítica abaixo da qual o leito de jorro pulsado possui um comportamento fluidodinâmico superior ao leito de jorro convencional.

A literatura não apresenta trabalhos sobre recobrimento em leito fluidizado pulsado-rotativo. Desta forma, o objetivo central deste trabalho é avaliar o Leito Fluidizado Pulsado-Rotativo (LFPR) como equipamento recobridor de partículas que apresentem tendência à aglomeração e defluidização em leito fluidizado convencional com alimentação contínua da suspensão de recobrimento, além da obtenção de dados referentes a fluidodinâmica do recobrimento de partículas de Celulose Microcristalina (CMC) em leito fluidizado pulsado-rotativo (LFPR).

As seguintes etapas são propostas para o desenvolvimento deste trabalho:

- Estudo da fluidodinâmica do material no leito fluidizado pulsado-rotativo (LFPR), sem recobrimento.
- Estudo da fluidodinâmica a seco, com pressão de atomização, visando a verificação da influência da atomização nas características fluidodinâmicas do material no leito.
- Estudo da fluidodinâmica durante o recobrimento, identificando faixas de operação adequadas para o processo de recobrimento de CMC em leito fluidizado pulsado-rotativo (LFPR).
- Comparação dos resultados obtidos em leito fluidizado pulsado-rotativo (LFPR) com resultados obtidos em equipamento de fluidização convencional encontrados na literatura.

## 2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

### 2.1 FUNDAMENTOS DE FLUIDIZAÇÃO

Fluidização é uma técnica em que um leito de partículas sólidas assume as características de um fluido através da passagem de uma corrente de fluido através do leito sólido, a uma velocidade suficientemente alta para que a queda de pressão provocada pelas forças interpartículas e o fluxo do fluido compensem o peso das partículas. Abaixo desta velocidade, a queda de pressão através do leito varia linearmente com a velocidade do fluido. Esta velocidade é conhecida como velocidade de mínima fluidização (KUNII e LEVENSPIEL, 1991).

O estudo da fluidização envolve a avaliação de parâmetros fluidodinâmicos como velocidade e porosidade de mínima fluidização. Tais parâmetros são obtidos a partir de curvas de queda de pressão do leito em função da velocidade superficial do fluido. A tecnologia de fluidização é largamente aplicada nas indústrias químicas, petroquímicas, bioquímicas, metalúrgicas, farmacêuticas e de alimentos.

Esta variedade de aplicações se deve às vantagens que este equipamento oferece, como, altas taxas de transferência de calor e massa, devido ao contato íntimo entre as fases, dimensões reduzidas, excelente qualidade de mistura, etc.

Parâmetros fluidodinâmicos, como velocidade e porosidade de mínima fluidização são estimados através de equações empíricas e semi-empíricas, como a equação de GELDART e ABRAHAMSEN (KUNII e LEVENSPIEL, 1991).

#### 2.1.1 Propriedades das partículas

Segundo GELDART (1986) as partículas podem ser classificadas em quatro diferentes categorias, de acordo com seu comportamento em um leito percolado por um fluido qualquer, como mostra a Figura 2.1

**Categoria C** - Partículas coesivas e muito finas. Normalmente a fluidização é extremamente difícil, devido às forças interpartículas serem maiores que a resultante da ação do fluido. Em leitos de pequeno diâmetro estas partículas tendem a elevar-se como um

bloco de sólidos, ao passo que em leitos de grande diâmetro, canais preferenciais formam-se do distribuidor à superfície do leito, não havendo fluidização dos sólidos.

**Categoria A** – Corresponde a partícula relativamente fina ( $20 < d_p < 100\mu\text{m}$ ) e relativamente leve ( $\rho_p < 1400 \text{ kg/m}^3$ ). Possui uma grande faixa de fluidização entre a velocidade de mínima fluidização,  $U_{mf}$ , e a velocidade mínima de borbulhamento,  $U_{mB}$ , proporcionando alta expansão do leito e alto grau de mistura do fluido com o sólido. As partículas desta categoria apresentam uma fluidização particulada antes da formação das bolhas, a velocidade mínima de borbulhamento é superior à velocidade de mínima fluidização. Quando a velocidade do fluido aumenta acima de  $U_{mB}$ , a fluidização é borbulhante e é caracterizada por:

- as bolhas têm movimentos ascendentes mais rápidos que o fluido;
- as bolhas surgem após o distribuidor, dividem-se e coalescem quando sobem em direção à superfície do leito;
- em leito raso, só há uma boa mistura das partículas quando poucas bolhas estão presentes;
- quando estas bolhas atingem o diâmetro do leito, o regime muda para pistão.

**Categoria B** – Para estas partículas, as forças interpartículas são desprezíveis e o fenômeno de bolhas começa no início da fluidização. Não há evidência do tamanho máximo de bolhas, de modo que a coalescência é o fenômeno predominante. O diâmetro das bolhas aumenta com a altura do leito e a velocidade em excesso do fluido ( $U-U_{mf}$ ). A expansão do leito é pequena e uniforme.

**Categoria D** – Referem-se aos materiais densos e de grandes diâmetros ( $d_p > 600 \mu\text{m}$ ). Requerem alta velocidade para fluidizar e proporcionam baixa expansão do leito e baixa mistura de sólidos. Para fluidizar estas partículas utiliza-se distribuidor particular favorecendo a operação do tipo leito de jorro. As bolhas têm movimentos ascendentes mais lentos que o fluido e quando atingem o diâmetro do leito, observa-se o “slugging” ou pistão.

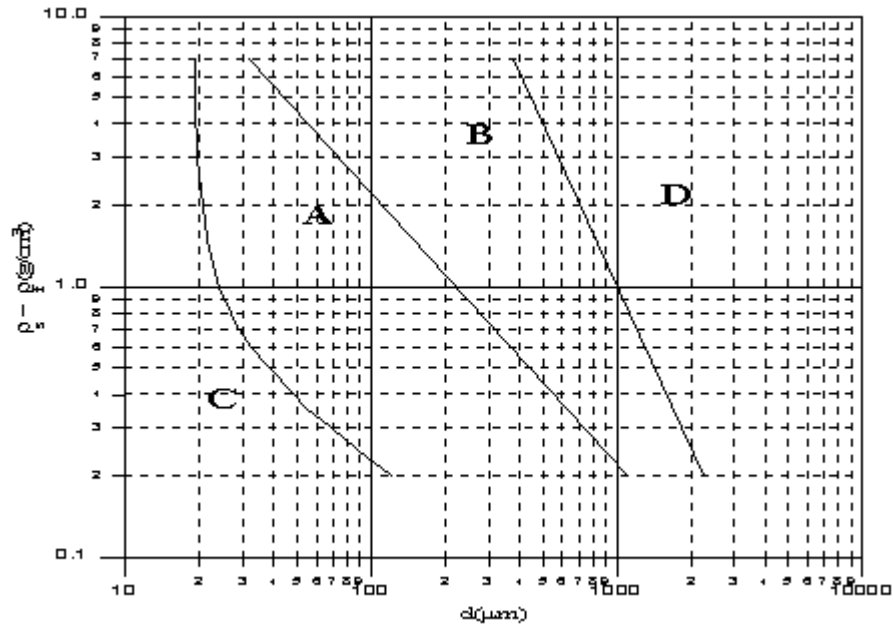


Figura 2.1 - Classificação de partículas para fluidização com ar (GELDART, 1986)

### 2.1.2 Regimes de fluidização

A Figura 2.2 apresenta o comportamento do sistema fluido-sólido sob diversos regimes, conforme descrição de KUNII e LEVENSPIEL (1991):

**Leito fixo** – Com velocidade do gás entre zero e a mínima de fluidização. Nesta fase as partículas estão imóveis e o fluido escoava entre os interstícios.

**Fluidização particulada ou suave** – Com a velocidade do gás entre a mínima de fluidização e a mínima para iniciar o regime de bolhas. O leito se expande de maneira progressiva, a superfície superior é bem definida, há pouca agregação de partículas e flutuação de pressão pequena.

**Fluidização borbulhante** – Com a velocidade do gás acima da velocidade de mínima fluidização, várias bolhas são formadas próximas ao distribuidor e sobem para a superfície do leito.

**Fluidização pistonada ou slugging** – Com velocidade do gás entre a mínima para fluidização pistonada e a mínima para o regime turbulento. As bolhas formadas ocupam grande parte da coluna e a superfície superior sobe e sofre colapsos com frequência; flutuações de pressão são observadas.

**Fluidização turbulenta** – Com velocidade do gás entre a mínima para a fluidização turbulenta e a velocidade terminal das partículas. São observadas regiões de vazios e movimentos desordenados de partículas com formação de bolhas instáveis, a superfície é indefinida e pequenas flutuações de pressão são observadas.

**Fluidização rápida** – Com velocidade do gás acima da velocidade terminal das partículas. A superfície não é definida, as partículas são transportadas para fora pelo topo da coluna e podem ser capturadas por um ciclone e recirculadas próximo ao fundo da coluna.

**Transporte** – A velocidade do fluido é superior à da fluidização. Não há praticamente partículas descendentes próximas a superfície do distribuidor. As partículas são arrastadas do leito.

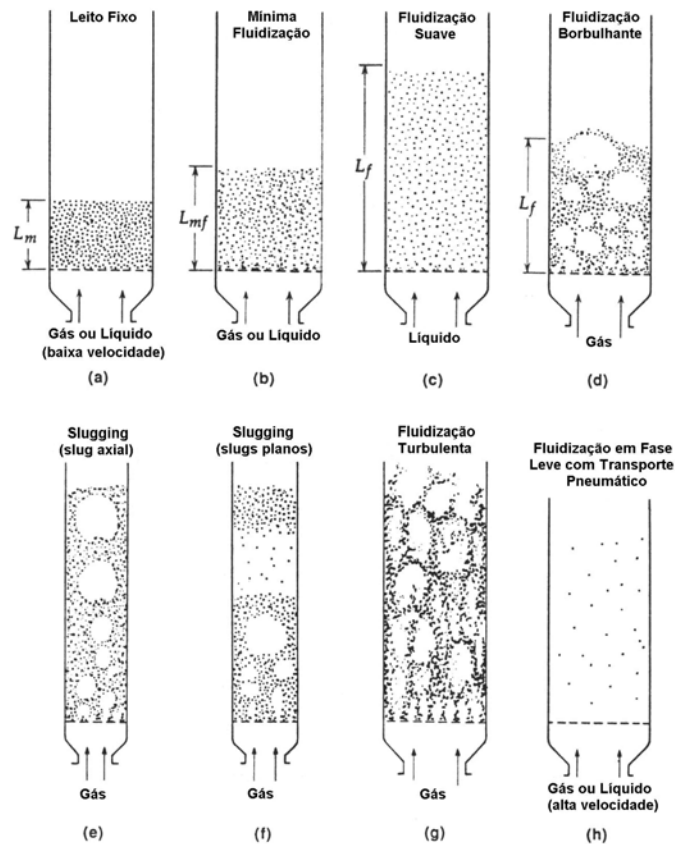


Figura 2.2 - Regimes de fluidização (KUNII e LEVENSPIEL,1991)

A Figura 2.3 mostra a variação da queda de pressão de um equipamento de leito fluidizado convencional em função da vazão de ar.

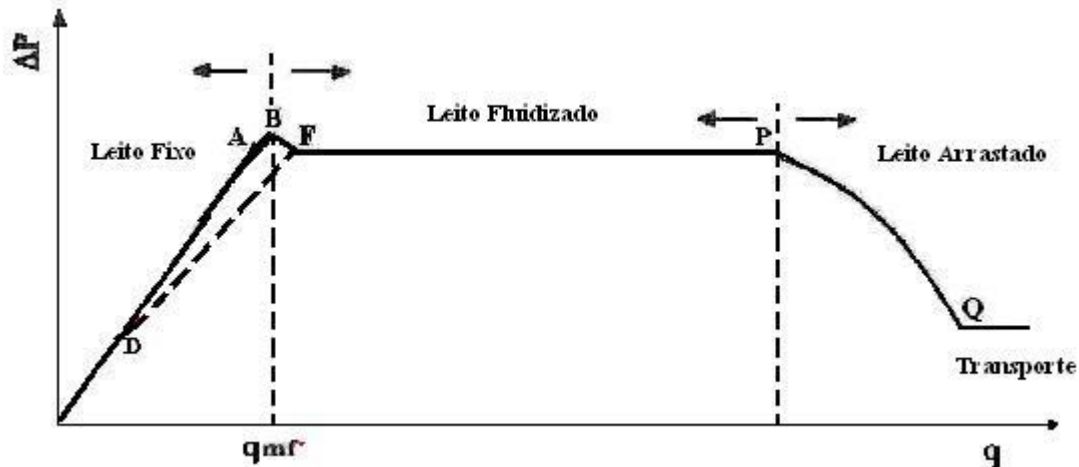


Figura 2.3 – Queda de pressão em função da vazão de ar para um leito convencional

### 2.1.3 Parâmetros fluidodinâmicos

Para uma melhor compreensão dos princípios da fluidização de partículas, se torna necessária a determinação de parâmetros relevantes do processo como velocidade e porosidade de mínima fluidização, que indicam o comportamento do leito em relação à passagem do fluido através deste. Tais parâmetros são avaliados através da análise do efeito da velocidade superficial do fluido sobre o gradiente de pressão no leito.

#### Porosidade de mínima fluidização

A porosidade de mínima fluidização ( $\varepsilon_{mf}$ ) é a porosidade do leito em condições de mínima fluidização, correspondendo assim à velocidade de fluido a partir da qual tem início a fluidização. A porosidade de mínima fluidização é uma medida do grau de expansão alcançado pelo leito de partículas nas condições de mínima fluidização. Fazendo-se um balanço de forças no leito de partículas temos:

$$\Delta P \cdot A = A \cdot H_{mf} (1 - \varepsilon_{mf}) \cdot (\rho_p - \rho_g) \cdot g \quad (2.1)$$

Rearranjando a equação ( 2.1 ) tem-se:

$$\varepsilon_{mf} = 1 - \frac{\Delta P}{H_{mf} (\rho_p - \rho_g) g} \quad (2.2)$$

Através da equação (2.2) é possível o cálculo da porosidade de mínima fluidização em função da queda de pressão do leito e da altura do leito na mínima fluidização.

### Velocidade de mínima fluidização

Um dos principais parâmetros de interesse no estudo do mecanismo pelo qual ocorre a fluidização é a velocidade de mínima fluidização ( $U_{mf}$ ). A partir desta velocidade a queda de pressão no leito de partículas se iguala ao peso das partículas sobre a área de seção transversal do leito, condição a partir da qual a fluidização é iniciada. Existe uma grande variedade de correlações para a estimativa da velocidade de mínima fluidização, dentre as quais pode-se destacar:

1. WEN e YU (1966) - Os autores utilizaram a equação de Ergun para partículas esféricas e não esféricas, em qualquer faixa do número de Reynolds e fizeram duas considerações:
  - a) a equação de Ergun é válida para a condição de mínima fluidização;
  - b) a porosidade de mínima fluidização,  $\varepsilon_{mf}$ , depende do fator de forma de acordo com as relações:

$$\frac{1}{\phi_s \cdot \varepsilon_{mf}^3} \cong 14 \quad \text{e} \quad \frac{1 - \varepsilon_{mf}}{\phi_s^2 \varepsilon_{mf}^3} \cong 11$$

Baseando-se nestas duas considerações, a equação de Ergun torna-se:

$$Re_{mf} = \left[ 33,7^2 + 0,0408 \frac{d_p^3 \rho_g (\rho_p - \rho_g) \cdot g}{\mu^2} \right]^{0,5} - 33,7 \quad (2.3)$$

2. KUNII e LEVENSPIEL (1991) – Estes autores apresentaram correlações para partículas pequenas e grandes, equações (2.4) e (2.5) respectivamente; também partindo da equação de Ergun com a simplificação dos termos menos significativos:

$$U_{mf} = \frac{d_p^2 (\rho_p - \rho_g) g}{1650 \mu} \quad Re_p < 20 \quad (2.4)$$



$$U_{mf}^2 = \frac{d_p^2 (\rho_p - \rho_g) \cdot g}{24,5 \rho_g} \quad \text{Re}_p > 1000 \quad (2.5)$$

3. GELDART e ABRAHAMSEN (1981) – A correlação proposta por estes autores é empírica e válida somente para partículas pequenas ( $< 100 \mu\text{m}$ ):

$$U_{mf} = \frac{(\rho_p - \rho_g)^{0,934} g^{0,934} d_p^{1,8}}{111 \mu^{0,87} \rho_p^{0,066}} (m/s) \quad (2.6)$$

onde  $\rho_g$  é a densidade do gás ( $\text{Kg/m}^3$ ),  $\rho_p$  é a densidade da partícula ( $\text{Kg/m}^3$ ),  $d_p$  é o diâmetro da partícula (m) e  $\mu$  é a viscosidade do gás ( $\text{Kg/m.s}$ ).

Conhecendo-se a velocidade de mínima fluidização e a velocidade de arraste do material é possível determinar a faixa de velocidades de operação do leito fluidizado.

#### 2.1.4 Fluidização não-convencional

Modificações impostas aos leitos fluidizados convencionais permitiram o desenvolvimento de novas técnicas, como o leito vibrofluidizado, o leito pulso-fluidizado (LFP) e o leito fluidizado pulsado-rotativo (LFPR), que será estudado neste trabalho.

Com exceção do leito vibrofluidizado, estes equipamentos visam elevar a qualidade do processo de fluidização, através de uma distribuição sequencial do fluido em diversas seções do leito.

A fluidização pulsada é um modo especial de operação do leito fluidizado, em que a vazão de gás é variada periodicamente com o tempo. Os benefícios da fluidização pulsada incluem redução no desvio de gás e na formação de canais preferenciais. O conceito original de pulsação do gás de fluidização envolve uma variação periódica do fluxo entre uma fase ativa em que a vazão é mantida constante a um certo nível, e uma fase inativa, em que a vazão de gás é cessada (WANG e RHODES, 2005). A Figura 2.4 ilustra este tipo de comportamento.

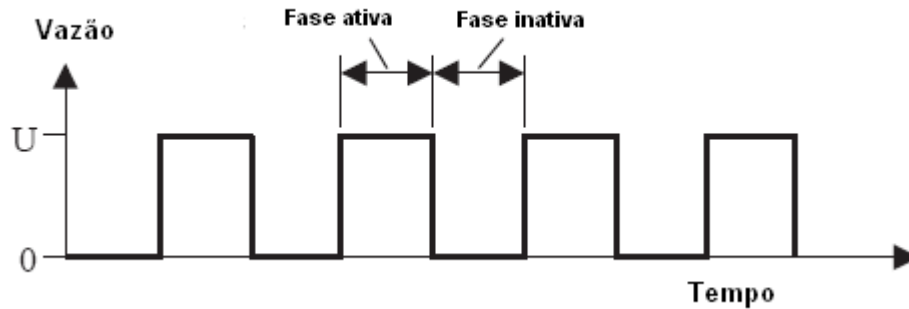


Figura 2.4 – Vazão em função do tempo para uma alimentação pulsada (WANG e RHODES, 2005)

WANG e RHODES (2005) afirmam haver três diferentes tipos de comportamento do processo de fluidização associadas a pulsação, como descrito na Figura 2.4: fluidização intermitente a baixas frequências, fluidização com comportamento pistão para frequências intermediárias e fluidização normal ou plena para frequências de pulsação elevadas. Segundo os autores o efeito de pulsação é mais pronunciado quando a pulsação imposta se aproxima da frequência natural do leito.

O uso de altas velocidades para prevenir o fenômeno de aglomeração pode não ser apropriado para a secagem de materiais em que o transporte de umidade no interior do grão é controlado pela difusão interna, resultando num desperdício de energia. A aplicação de vibrações ou pulsações para melhorar a qualidade da fluidização pode ser uma técnica eficiente.

Estudos de secagem realizados em leitos pulso-fluidizados indicam algumas vantagens desta técnica em relação à fluidização convencional, entre elas menor consumo de agente de secagem, maior uniformidade na distribuição de umidade, além da possibilidade de se trabalhar com uma maior variedade de partículas (GAWRZYNSKI et al., 1989). A pulsação do gás fluidizante influencia na dinâmica das bolhas no leito de partículas, o que contribui para um melhor contato gás-sólido.

Na Figura 2.5 é mostrada uma representação esquemática do equipamento de leito pulso-fluidizado.

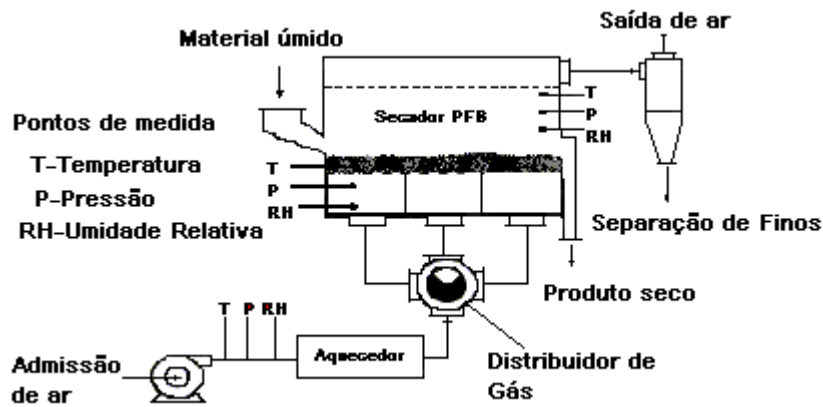


Figura 2.5 - Leito pulso-fluidizado, GAWRZYNSKI et al. (1996)

Nos secadores pulso-fluidizados, o gás responsável pela fluidização das partículas é introduzido com vazão volumétrica constante no secador. Um sistema rotativo distribui alternadamente o gás de secagem nas diferentes seções da tela que suporta o material a ser seco, causando a pulsação (GAWRZYNSKI et al., 1996).

GAWRZYNSKI e GLASER (1996) relataram algumas vantagens da técnica de secagem em leitos de fluidização pulsante em comparação aos de leito de fluidização contínua, entre elas pode-se relatar: perda de carga de 7 a 12 % menor e melhor regime de fluidização, sem a ocorrência de canais preferenciais e com melhor grau de mistura, o que levou, segundo os autores, a uma redução do consumo de energia de até 50 %.

PRACHAYAWARAKORN et al.(2004) estudaram o desempenho de secadores de leito fluidizado convencional e pulso-fluidizado na secagem de arroz em casca e estes autores verificaram um menor consumo de energia pelo secador de leito pulso- fluidizado, indicando que o secador de fluxo pulsado se mostrou mais econômico frente ao secador convencional. Os autores verificaram também que não ocorreu diferença na qualidade do produto final obtido nos dois equipamentos. O equipamento utilizado pelos autores é ilustrado na Figura 2.6.

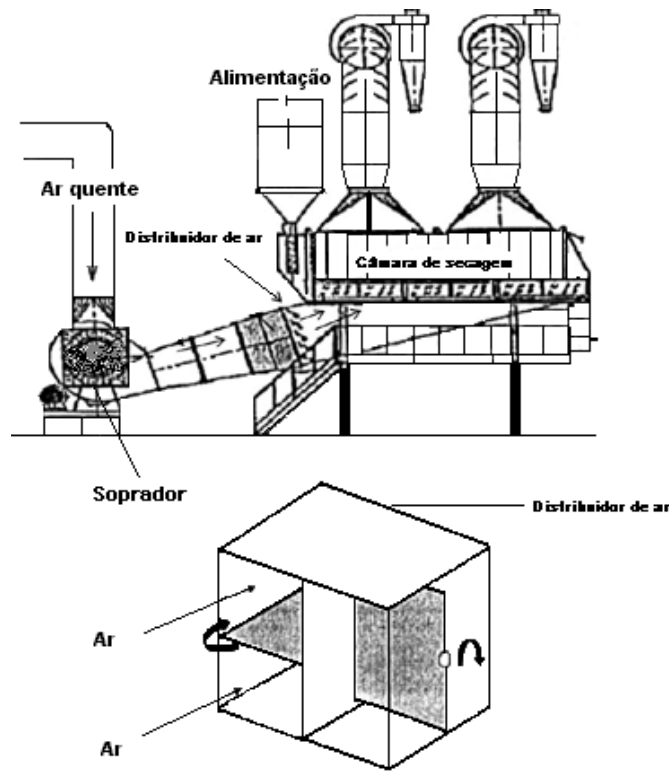


Figura 2.6 - Secador de leito pulso-fluidizado, PRACHAYAWARAKORN et. al. (2004)

GAWRZYNSKI et al. (1989) comprovaram que o menor consumo de agente de secagem no leito pulso-fluidizado, se deve ao fato de que as velocidades de operação deste leito estarem situadas numa faixa inferior à velocidade de mínima fluidização. Os resultados obtidos pelos autores são mostrados na Tabela 2.1.

Os autores definem a velocidade de mínima pulso-fluidização ( $u_{pf}^i$ ) como a mínima velocidade em que o leito passa a pulsar regularmente e a velocidade e máxima pulso-fluidização ( $u_{pf}^d$ ) como sendo a velocidade a partir da qual não se observa efeito significativo da pulsação da corrente gasosa sobre o leito de partículas.

Tabela 2.1 –Velocidades de mínima e máxima pulso-fluidização (GAWRZYNSKI et al., 1989)

<b>Material</b>	<b><math>u_{pf}^i</math> m/s</b>	<b><math>u_{pf}^d</math> m/s</b>	<b><math>u_{mf}</math> m/s</b>
<b>Pentaeritrol</b>	<b>0,28</b>	<b>0,42</b>	<b>0,97</b>
<b>Gluconato de Cálcio</b>	<b>0,55</b>	<b>0,85</b>	<b>2,29</b>
<b>Acenol</b>	<b>0,12</b>	<b>0,35</b>	<b>0,69</b>
<b>Thiohexame</b>	<b>0,31</b>	<b>0,54</b>	<b>0,62</b>
<b>Sacarose</b>	<b>0,50</b>	<b>0,65</b>	<b>0,86</b>
<b>Sementes de ervilha</b>	<b>0,66</b>	<b>1,08</b>	<b>1,22</b>
<b>Sementes de feijão</b>	<b>0,82</b>	<b>1,32</b>	<b>1,52</b>

### 2.1.5 Leito fluidizado pulsado rotativo

O leito fluidizado pulsado rotativo (LFPR) possui uma estrutura semelhante a um leito convencional, porém no LFPR o distribuidor de ar multi-orifícios é dividido em duas partes: o prato perfurado que serve de suporte para leito fixo e para distribuir o gás, e o disco rotativo que periodicamente distribui o gás em toda a seção do prato perfurado. Quando o disco está fixo, um ou mais jorros são formados dependendo do número de orifícios e o processo comporta-se como em um leito de jorro. Quando a velocidade de rotação do disco é baixa, os jorros giram e entre eles existem áreas de leito fixo. Em elevadas velocidades de rotação, o sistema é fluidizado como um todo, e o sistema se comporta como um leito fluidizado convencional. A principal vantagem deste método frente o leito de jorro e o leito fluidizado convencional, é que em toda a área do leito formam-se altas velocidades do gás nos orifícios do disco rotativo, e por isso não existem áreas com baixa percolação do gás através do leito (AMBROSIO-UGRI e TARANTO, 2002).

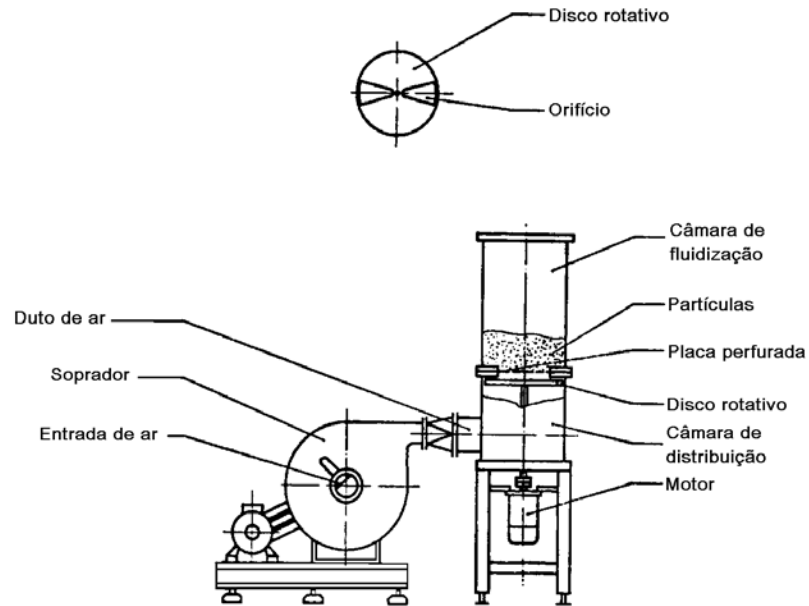


Figura 2.7 – Leito Fluidizado Pulsado Rotativo, ELENKOV e DJURKOV (1997)

### 2.1.6 Fluidodinâmica do leito fluidizado pulsado rotativo

ELENKOV e DJURKOV (1992) descrevem o leito fluidizado pulsado rotativo como indicado para a secagem de materiais com características coesivas, uma vez que a presença do distribuidor rotativo inibe a formação de zonas mortas ao longo da seção transversal do leito de partículas. A Figura 2.7 ilustra as características construtivas de um equipamento de leito fluidizado pulsado rotativo, com destaque para o distribuidor rotativo, responsável pela pulsação da corrente gasosa.

Os autores estudaram os parâmetros fluidodinâmicos básicos do leito fluidizado pulsado rotativo (LFPR), segundo os autores estes parâmetros podem ser calculados através das seguintes equações:

$$Re_{mf} = 0,013Ar^{0,63} \quad (2.7)$$

$$\Delta P = 9,36 \frac{m}{A} - 160 \quad (2.8)$$

ou

$$\Delta P = K[1 - 0,52\phi(1 - 2,7 \cdot 10^{-4} K)] \quad (2.9)$$

Onde o parâmetro  $K(N/m^2)$  é definido como:

$$K = \frac{mg}{A} \left( 1 - \frac{\rho_g}{\rho_s} \right) \quad (2.10)$$

Em que  $A$  é a área de seção transversal do leito ( $\text{m}^2$ ) e  $\text{Re}_{\text{mf}}$  é definido pela velocidade de mínima fluidização pulsada e o diâmetro equivalente da partícula,  $m$  é a massa de sólidos (kg).

DJURKOV (1998) elaborou um estudo com o intuito de estabelecer um modelo fluidodinâmico para o leito fluidizado pulsado rotativo. A equação (2.9) foi utilizada pelo autor para o desenvolvimento e construção de duas instalações industriais para a secagem de minerais e sementes com capacidades de 100 e 3000 kg/h respectivamente. Os resultados obtidos indicam uma boa concordância entre o modelo desenvolvido e os dados experimentais.

UGRI (2003) realizou experimentos em um secador LFPR com partículas do grupo A de Geldart ( $d=80\mu\text{m}$ ), em que a distribuição de gás foi fornecida por um disco rotativo com abertura em um ângulo de  $60^\circ$ . O estudo fluidodinâmico foi realizado à temperatura ambiente para as partículas secas e úmidas e as variáveis estudadas foram a frequência de rotação (5 e 15Hz) e a carga de partículas (400 e 900g). Ao comparar o leito fluidizado convencional com o leito fluidizado pulsado rotativo o autor constatou que existe uma suavização da curva fluidodinâmica quando existe a pulsação da corrente de gás. Observou que para a menor carga de partículas, ao mudar a frequência de 5 para 15 Hz, ocorre um decréscimo no valor na velocidade de mínima fluidização pulsada ( $u_{\text{mfp}}$ ) sem grandes alterações no valor de  $\Delta P_{\text{mfp}}$ , enquanto que para a maior carga de partículas a variação da frequência praticamente não influencia no valor da velocidade de mínima fluidização pulsada. Devido aos menores valores de  $u_{\text{mfp}}$ , e por apresentar um melhor índice de fluidização, o autor constatou que a melhor condição de fluidização no LFPR, para o processo estudado é utilizar a maior carga de partículas (900 g) e a maior frequência de rotação (15 Hz).

AMBROSIO-UGRI e TARANTO (2004) estudaram a fluidodinâmica de um leito fluidizado pulsado-rotativo operando com partículas de ácido 2-hidroxibenzóico, utilizando dois níveis de carga de sólidos (400 e 650g) e três níveis de frequência de pulsação da corrente de ar (5,10 e 15 Hz) e verificaram que o aumento da frequência de distribuição da corrente gasosa promove uma melhor mistura dos sólidos e auxilia a movimentação,

facilitando a fluidização das partículas e conseqüentemente reduzindo a velocidade de mínima fluidização. Os autores afirmam ainda haver uma diminuição da velocidade de mínima fluidização pulsada ( $u_{mfp}$ ) com o aumento da carga de sólidos alimentada ao equipamento, para os níveis estudados. Os autores verificaram também haver uma diminuição da queda de pressão do leito tanto na condição de mínima fluidização como em todo o processo de fluidização.

## **2.2 Secagem**

A secagem é uma operação unitária em que a umidade de um material sólido é retirada pela ação de uma fase gasosa insaturada e por meio de mecanismos de vaporização térmica. Normalmente a umidade a ser removida do sólido é água, podendo esta estar na forma de água líquida ou no estado vapor. Para a sua remoção, a fase gasosa insaturada mais comumente utilizada é o ar (SILVA, 1995).

A secagem demanda a existência de gradientes de pressões parciais de vapor de água entre as partículas e o ar de secagem. De acordo com as propriedades higroscópicas, o fluxo de vapor de água ocorre no sentido da maior para a menor pressão parcial de vapor; assim, o aquecimento do ar de secagem determina a redução da umidade relativa e o conseqüente aumento do potencial de retenção de água. A secagem também pode ser entendida como um processo simultâneo de transferência de calor do ar para as partículas e de massa (água) do sólido para o ar. Assim, em função da necessidade de energia térmica para a evaporação da água, ocorre um resfriamento do ar de secagem pela perda de calor sensível. No entanto, o balanço energético é nulo, pois o ar recupera, na forma de vapor de água (calor latente), o que perdeu na forma de calor sensível. Desse modo, a secagem é considerada um processo isoentálpico, em que ocorre redução de temperatura do ar e aumentos da razão de mistura, da umidade relativa, da pressão de vapor e da temperatura do ponto de orvalho; por outro lado a entalpia e a temperatura de bulbo úmido permanecem praticamente constantes (STRUMILLO e KUDRA, 1986).

### **2.2.1 Cinética de secagem**

A cinética de secagem está associada às mudanças no teor de umidade do material e da temperatura com o tempo. As variações do teor de umidade do material e da temperatura são controladas pela transferência de calor e massa entre a superfície do sólido, as vizinhanças e o interior do sólido. A intensidade da secagem é influenciada por



parâmetros como: temperatura, umidade relativa do ar, velocidade relativa do ar e pressão total (STRUMILLO e KUDRA, 1986).

A curva de secagem (Figura 2.8), apresenta os dois períodos característicos da secagem: o período de taxa constante que corresponde à transferência de umidade da superfície do material e o período de taxa decrescente, correspondente à transferência de umidade interna.

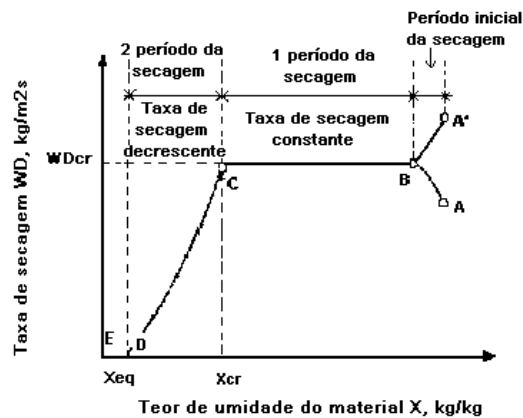


Figura 2.8 – Curva da taxa de secagem em função do teor de umidade do material (STRUMILLO e KUDRA, 1986)

Segundo STRUMILLO e KUDRA (1986), estes períodos podem ser descritos como:

- a) Período de taxa constante: No início da secagem o material passa por um período transitório (segmento AB, A`B da Figura 2.8 ), durante este período, tanto a temperatura do sólido quanto a velocidade de secagem podem aumentar ou diminuir. O período de taxa constante (segmento BC da Figura 2.8) é caracterizado pelo fato da taxa de secagem ser independente da umidade total do material em cada instante. Durante este período, ocorre a transferência de umidade retida na superfície do material.

Neste período, quando o sólido a ser secado não é poroso, a água removida é principalmente a água superficial, contudo se o sólido é poroso, o período de taxa constante continua durante um tempo maior, com a água que é removida da superfície sendo substituída pela água do interior do sólido. O mecanismo através do qual o líquido é levado a superfície, depende da estrutura do material. Em sólidos que possuem espaços vazios relativamente grandes, o mecanismo provavelmente é

controlado pela tensão superficial e por forças de gravidade no seu interior. Em sólidos fibrosos ou de estrutura amorfa, o movimento do líquido através do sólido ocorre devido à difusão.

- b) Período de taxa decrescente: O período de taxa decrescente é regido pelo mecanismo de transporte interno da água no material, portanto depende das características do material. Este período pode ser dividido em dois:

Primeiro período de taxa decrescente: O primeiro período de taxa decrescente (segmento CD da Figura 2.8) começa no instante em que o material atinge o teor crítico de umidade, indicando o instante em que o movimento do líquido do interior do sólido para a superfície é insuficiente para compensar a evaporação do líquido. Durante este período, tem-se dois mecanismos: o mecanismo que existia no período de taxa constante continua existindo, enquanto houver líquido saturado na superfície. Ao mesmo tempo, o vapor proveniente dos níveis mais baixos se difunde através do sólido para as regiões da superfície que não estão saturadas, tendo, em seguida, que se difundir na corrente gasosa. Este mecanismo de difusão é muito lento, assim, a taxa de secagem diminui rapidamente à medida que a umidade diminui.

Segundo período de taxa decrescente: O segundo período de taxa decrescente inicia a partir do ponto D da Figura 2.8, onde toda a evaporação ocorre no interior do material. Nesse período, todo o vapor que é retirado do sólido deve difundir-se através do sólido até a superfície e, em seguida, através da corrente gasosa. Isto faz com que a taxa de secagem decresça ainda mais. Quando se atinge a umidade de equilíbrio, não se tem mais secagem e a taxa de secagem é nula. A umidade de equilíbrio corresponde ao teor mínimo de umidade que o material pode atingir.

### 2.3 RECOBRIMENTO EM LEITO FLUIDIZADO

A Figura 2.9 ilustra o princípio de operação de um equipamento de recobrimento em leito fluidizado. Uma corrente de gás pré-aquecido passa através de um leito de partículas a serem recobertas com uma velocidade maior que a velocidade de mínima fluidização. Devido ao movimento do gás as partículas são intensivamente misturadas e a secagem do material recoberto é realizada. O material de recobrimento é alimentado como uma suspensão, dispersa por um bico atomizador na forma de pequenas gotas. O bico atomizador pode estar localizado acima, abaixo ou na lateral do leito fluidizado. A maior

parte das gotas é depositada sobre as partículas na “zona de spray” que corresponde a região que é atingida diretamente pelas gotas distribuídas pelo bico atomizador.

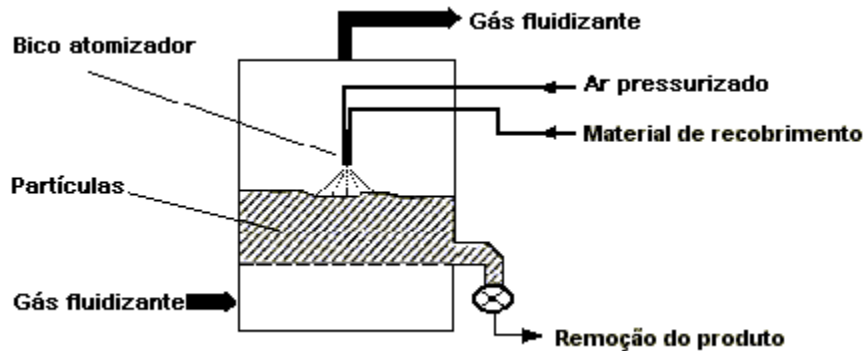


Figura 2.9 - Recobrimento em leito fluidizado (KLEINBACH e RIEDE, 1995)

O material de recobrimento permanece sobre a superfície da partícula e estabelece uma ligação com o material da mesma. O processo deve ser realizado de forma que todas as partículas possuam o mesmo tempo de residência no leito fluidizado (KLEINBACH e RIEDE, 1995).

### 2.3.1 Qualidade do recobrimento

Cada aplicação requer uma qualidade de recobrimento diferente. Na coloração de alimentos, por exemplo, pequenas imperfeições e uma variação da espessura de recobrimento ao longo da superfície da partícula podem ser tolerados, no entanto na produção de produtos que exigem uma liberação gradual de seu princípio ativo, essas imperfeições não podem existir.

Os recobrimentos podem ser classificados pelos seguintes tipos descritos no trabalho de KLEINBACH e RIEDE, 1995:

- Tipo A : Recobrimento ideal: são caracterizados pelo fato de que o revestimento em todas as partículas é integral com camada de espessura uniforme. A razão entre a taxa de liberação do princípio ativo e o tempo é linear;
- Tipo B : O recobrimento também é intacto, no entanto a espessura da camada varia. Em consequência disso, a quantidade de princípio ativo liberado em função do tempo é não-linear. Inicialmente, o princípio ativo é liberado rapidamente, mas em seguida prossegue lentamente. As partículas com camada fina liberam rapidamente, enquanto as partículas com camada espessa liberam lentamente o princípio ativo;

- Tipo C : Diferente do tipo B, onde algumas partículas apresentam imperfeições na camada de recobrimento. Estas partículas liberam seu princípio ativo quase imediatamente, resultando numa descontinuidade na curva de liberação logo no início. Depois disso, a liberação segue como no tipo B. A Figura 2.10 ilustra os tipos de recobrimentos descritos.

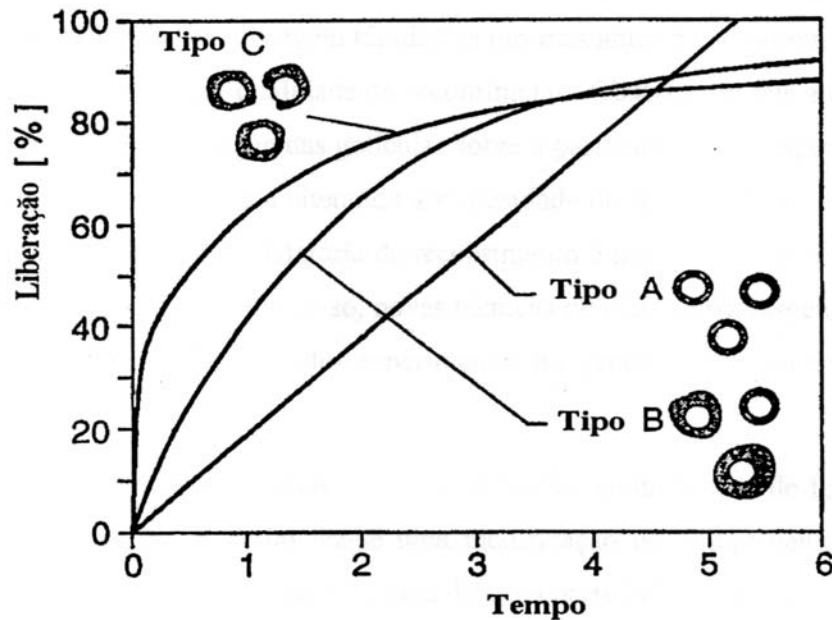


Figura 2.10 – Liberação (%) em função do tempo para diferentes tipos de recobrimento (KLEINBACH e RIEDE, 1995)

A operação de recobrimento é realizada visando a produção de um recobrimento do tipo A, que é utilizado para obter um produto de liberação retardada do princípio ativo. Isto somente é alcançado quando duas condições são satisfeitas:

- Cada partícula deve receber a mesma quantidade de material de recobrimento;
- A espessura da camada de recobrimento através da superfície da partícula deve ser constante;

Para que as duas condições acima sejam satisfeitas deve haver uma uniformidade ao longo do leito. A região conhecida como “zona de spray” é caracterizada por um teor elevado de umidade e baixa temperatura, em comparação com o restante do leito, o que acarreta mudanças no comportamento da fluidização. O excesso de umidade nesta região do leito pode levar à formação de aglomerados durante a secagem. A formação de grandes aglomerados pode levar ao colapso do leito fluidizado.

Segundo JONES (1994) a uniformidade do recobrimento é o resultado de uma intensa circulação dos sólidos no leito, ou seja, do número de vezes que as partículas são expostas ao spray. A taxa com que o recobrimento é aplicado depende da concentração da solução e da velocidade de atomização. No recobrimento de partículas pequenas, a tendência é aplicar uma solução mais concentrada uma vez que se exige uma quantidade maior de recobrimento para recobrir totalmente estas partículas; entretanto o tamanho da gota e as características de dispersão do bico atomizador podem ser afetados pelo aumento de viscosidade da solução. Segundo o autor, a escolha da taxa de alimentação da solução depende da capacidade de secagem do ar, da espessura da camada de recobrimento que deve ser aplicada e da velocidade das partículas no leito.

SMITH e NIENOW (1983) estudaram o recobrimento de partículas de vidro e alumina por aglomeração em leito fluidizado. O objetivo do estudo foi de esclarecer os mecanismos de crescimento das partículas. O leito constava de uma coluna de vidro com 15 cm de diâmetro com placa perfurada no distribuidor. A solução de recobrimento utilizada foi preparada à base de ácido benzóico e polietileno glicol (Carbowax 4000) dissolvidos em metanol. A extremidade do bico atomizador coincide com a superfície do leito fixo, de modo que ao fluidizar este fica submerso e o jato de aspersão tem um contato direto com as partículas. A escolha da posição do bico atomizador é importante para evitar que ocorram problemas como: aglomeração, quando o bico é posicionado acima do leito de partículas; encharcamento, quando o bico é colocado muito próximo ao leito; elutriação, quando o bico é colocado muito distante do leito e as gotículas secam antes de atingirem a superfície das partículas. Foi analisado o crescimento das partículas recobertas através da análise por peneiras, através de amostras retiradas do leito em intervalos de tempo pré-determinados. Foi verificada aglomeração para velocidades em excesso ( $U-U_{mf}$ ) de 0,15 e 0,275 m/s e para altas velocidades ( $U-U_{mf}$  acima de 0,525 m/s) o mecanismo dominante é o crescimento da película, sendo este independente da velocidade do gás em excesso.

Diversos trabalhos têm sido elaborados visando à obtenção de parâmetros ótimos para recobrimento de partículas, para as mais diversas aplicações.

YANG et. al. (1992) estudaram o efeito da geometria da câmara de recobrimento, posição do bico atomizador e carga do leito sobre a qualidade do recobrimento de partículas de propanolol HCL em leito fluidizado. Os autores verificaram que em condições semelhantes de operação, a atomização no fundo do leito produz um recobrimento mais

uniforme, os autores verificam também que a geometria da câmara de recobrimento tem pouca influência na qualidade do recobrimento do material utilizado, em relação à carga do leito verificaram uma pequena diminuição da velocidade de liberação com o aumento da carga de partículas introduzida no leito.

SHELUKAR et al. (2000) estudaram o recobrimento de comprimidos à base de celulose microcristalina com solução aquosa de hidroximetilpropilcelulose (HPMC) em leito Wurster e verificaram que a uniformidade do recobrimento deste material é controlada pela distribuição do recobrimento por passagem através da zona de recobrimento e pela distribuição do tempo de exposição das partículas na zona de recobrimento. Os autores verificaram ainda que a distribuição total do recobrimento sobre as partículas é mais dependente da distribuição de recobrimento por passagem do que do tempo de exposição das mesmas na região de atomização. Segundo os autores, a formação de alguns aglomerados durante o processo se deve à variação da proximidade das partículas do bico atomizador quando da passagem através da zona de recobrimento, o que leva a um grande aumento na umidade da mesma, favorecendo a formação de pontes líquidas.

Alguns pesquisadores têm se dedicado à pesquisa de alternativas que minimizem a formação de aglomerados durante o processo de recobrimento. Este problema se torna mais acentuado para o caso de pós-finos e de baixa densidade (grupo C de GELDART(1986)), devido à baixa qualidade de fluidização alcançada por estes materiais quando aerados.

### **2.3.2 Equipamentos de leito fluidizado com aplicação no revestimento de partículas**

A complexidade da operação de revestimento de partículas em equipamentos de leito fluidizado, têm motivado pesquisadores a desenvolver equipamentos mais eficientes ou aprimorar equipamentos existentes visando a solução de problemas associados ao processo ou a melhoria da qualidade do produto final obtido.

O equipamento de leito fluidizado mais conhecido e aplicado ao processo de revestimento de partículas é o leito Wurster, que consiste de uma coluna que pode ser cilíndrica ou levemente cônica. Ao fundo desta coluna é posicionado o bico atomizador e logo acima do atomizador existe uma partição conhecida por tubo “draft”. A Figura 2.11 ilustra os detalhes construtivos de um equipamento de recobrimento tipo Wurster. A porosidade da placa distribuidora na área abaixo do tubo é elevada permitindo que um grande volume de partículas assumam velocidades elevadas no transporte pneumático

ascendente através da zona de spray. O material de recobrimento é atomizado e depositado sobre as partículas que estão em movimento ascendente no interior do tubo “draft”, cada partícula recebe uma pequena quantidade de material de recobrimento cada vez que passa pela zona de spray. O movimento repetitivo e uniforme das partículas produz um recobrimento uniforme sobre as partículas. Uma das maiores desvantagens deste equipamento é o elevado atrito sofrido pelas partículas devido à alta velocidade atingida no interior do tubo “draft” que pode causar danos à superfície das partículas; uma outra desvantagem é a dificuldade de acesso ao bico atomizador durante o processo (JONES, 1994).

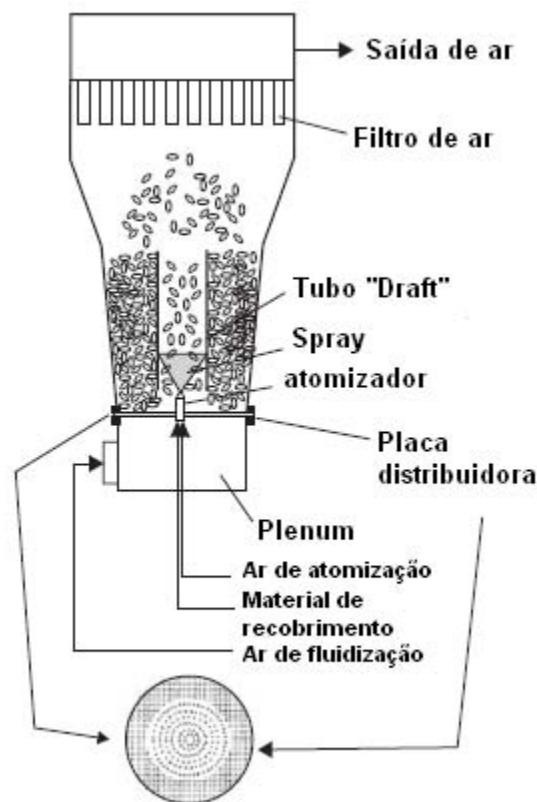


Figura 2.11 – Recobridor de leito fluidizado tipo Wurster (TURTON e CHENG, 2005)

O leito fluidizado com bico atomizador posicionado no topo do leito de partículas é amplamente utilizado no processo de recobrimento. O material de recobrimento é atomizado em sentido contrário ao movimento das partículas no leito, a uniformidade do recobrimento obtido é inferior ao alcançado no equipamento Wurster, mas este equipamento possui a vantagem de permitir o acesso ao bico atomizador durante a operação do equipamento. Este equipamento é geralmente empregado em processos de granulação e

recobrimento á quente (TURTON e CHENG, 2005). A Figura 2.12 apresenta o princípio de funcionamento deste equipamento.

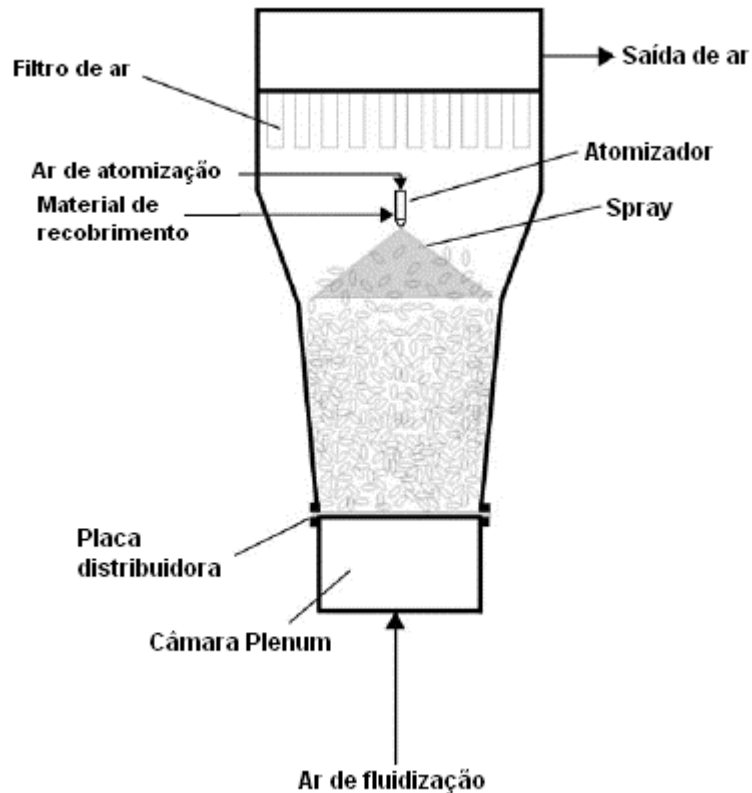


Figura 2.12 – Equipamento recobridor de leito fluidizado com atomização no topo  
(TURTON e CHENG, 2005)

Uma variação do equipamento descrito é o equipamento de atomização tangencial, neste equipamento o bico atomizador está posicionado junto à placa distribuidora, mas na lateral do equipamento.

TURTON e CHENG (2005) descrevem ainda um equipamento de leito fluidizado em que um rotor gira acima da placa distribuidora, sendo o equipamento chamado de Leito Fluidizado Rotativo. O ar é alimentado ao leito através de uma abertura entre o rotor e a parede interna do equipamento. A combinação do ar de fluidização e o movimento do rotor fazem com que o leito de partículas assuma um movimento helicoidal que se move circunferencialmente ao redor do fundo do leito. Esse movimento impede a formação de pontos de estagnação próximos à placa distribuidora. O material de recobrimento é então disperso sobre as partículas por bicos atomizadores posicionados na lateral do leito. Os detalhes construtivos do equipamento são ilustrados na Figura 2.13.



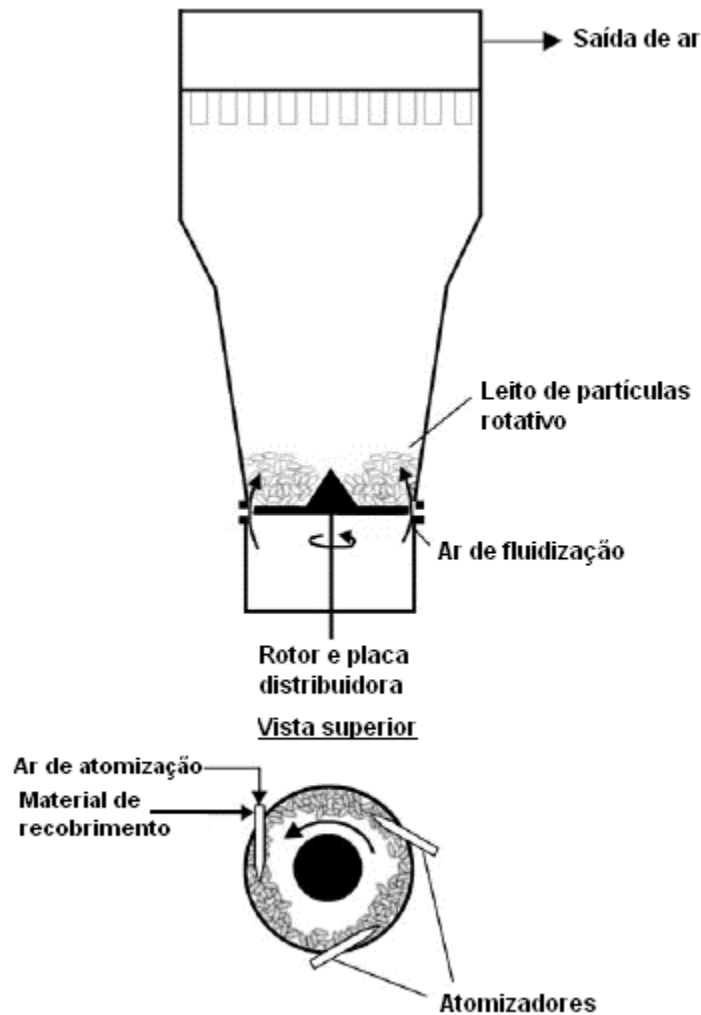


Figura 2.13 – Recobridor de leito fluidizado rotativo (TURTON e CHENG, 2005)

WATANO et. al.(2004) estudaram o recobrimento de partículas de amido de milho com solução aquosa de hydroxipropilcelulose(HPC-L), em um equipamento de leito fluidizado rotativo, sendo o equipamento ilustrado na Figura 2.14.

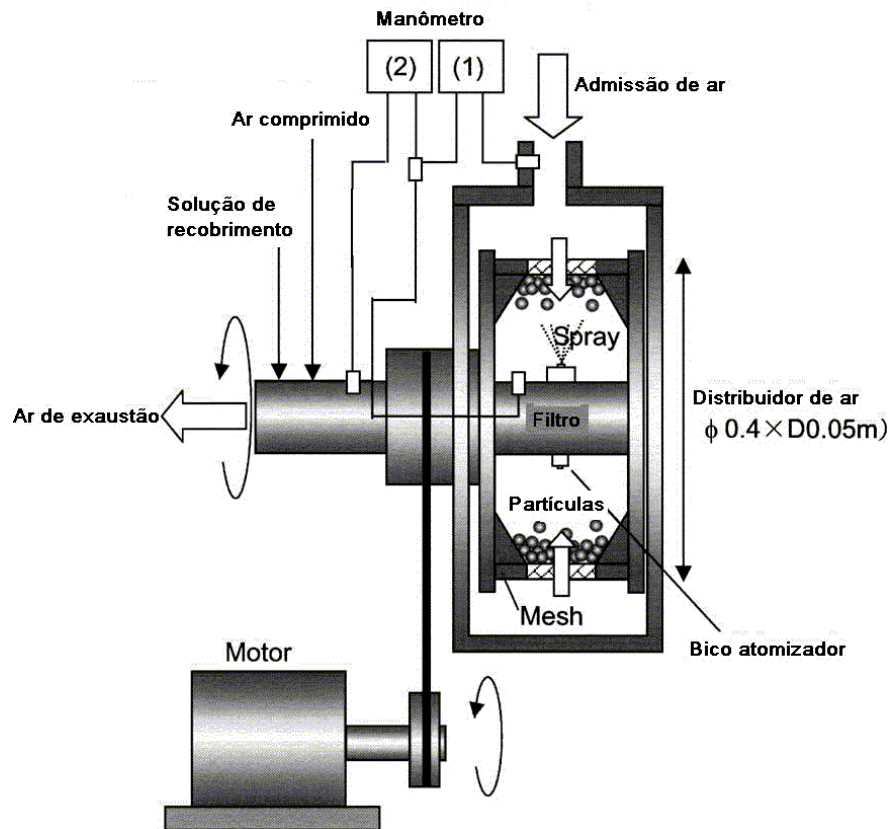


Figura 2.14 – Recobridor de leito fluidizado rotativo WATANO et.al.(2004)

Os autores verificaram que o equipamento melhora a qualidade de fluidização das partículas através da ação da força centrífuga que atua sobre as mesmas no equipamento e pode ser muito intensa dependendo da velocidade de rotação do distribuidor. Em um leito fluidizado convencional, o distribuidor de ar é montado horizontalmente, as partículas são depositadas sobre o mesmo e são levantadas pelo fluxo vertical de ar. No leito fluidizado rotativo, as partículas são introduzidas no interior do distribuidor e são forçadas contra a parede do equipamento pela força centrífuga, devido à rotação do distribuidor. O ar flui radialmente para dentro do distribuidor e as forças sobre as partículas são balanceadas pelo fluxo de ar (força de arrasto) e pela força centrífuga. Ao contrário de um leito convencional, o leito rotativo pode produzir uma elevada força centrífuga e então a força de arrasto também se torna elevada. Estas forças intensas atuando sobre as partículas fazem com que normalmente partículas do grupo C de Geldart tenham comportamento de partículas do grupo A (WATANO et al., 2004). Partículas recobertas com este equipamento apresentaram uma liberação prolongada da droga sem problemas sérios de aglomeração.

### 2.3.3 Tecnologia de aglomeração

Em processos de recobrimento e de granulação, de acordo com as condições operacionais e com as propriedades físico químicas da matéria-prima (substrato e revestimento), o crescimento da partícula no leito é governado principalmente por dois mecanismos: aglomeração e formação de camadas. A aglomeração resulta da aderência de pequenas partículas pela formação de pontes líquidas e sólidas entre elas, conduzindo à formação de partículas maiores, de diâmetro médio pelo menos duas vezes o diâmetro inicial das partículas. O recobrimento ou formação de camadas corresponde à deposição de um ingrediente sobre toda a superfície das partículas (DONIDA, 2004).

A Figura 2.15 apresenta o mecanismo de formação de camadas. O crescimento de partículas ocorre em torno do núcleo (partícula), no qual partículas menores colidem e aderem formando camadas concêntricas. O recobrimento de partículas é um exemplo deste tipo de crescimento na formação do filme (CUNHA, 2004).

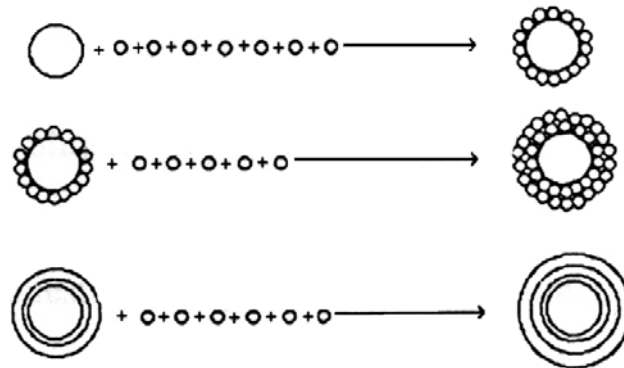


Figura 2.15- Mecanismo de crescimento das partículas por formação de camadas (KADAM, 1991).

A adesão entre o revestimento e o substrato sólido é determinante no processo de recobrimento e granulação. As interações entre o sólido e o líquido determinam a captura, formação e qualidade do recobrimento ou do aglomerado. Na literatura encontram-se vários trabalhos recentes em leitos fluidizados que estudam a influência das condições operacionais e das características da solução/suspensão granulante com objetivo de se estabelecer a melhor formulação para recobrimento ou granulação de partículas finas (DONIDA, 2004).

Segundo JONES (1994), a taxa de alimentação da suspensão de recobrimento possui grande influência na formação de aglomerados durante o processo de recobrimento em equipamentos de leito fluidizado. Segundo o autor, durante o processo de recobrimento a suspensão é aplicada sobre as partículas suspensas pelo ar, mas colisões de partículas com a parede do leito e entre as próprias partículas podem ocorrer. Se duas partículas colidem no momento em que a suspensão acaba de ser aplicada, uma “ponte” pode se formar entre as partículas e se a massa das partículas (que diminui com o tamanho da partícula) não for suficiente para separar a partícula devido à espessura da camada de recobrimento, a ligação pode tornar-se permanente, resultando em aglomeração. A espessura da camada de recobrimento aplicada pode ser controlada através da taxa de atomização da suspensão.

O tamanho da gota atomizada é controlado através da pressão e do volume do ar de atomização e deve ser selecionada em relação ao tamanho das partículas que serão recobertas. Para partículas pequenas ( $< 250\mu\text{m}$ ) são necessários grandes volumes e pressões do ar de atomização para que pequenas gotas sejam formadas e atinjam as partículas sem o risco de formação de pontes líquidas. O tamanho da gota aspergida sobre as partículas também é função das características da suspensão de recobrimento como viscosidade e tensão superficial.

Um estudo experimental das influências físico-químicas do sólido e do líquido em processos de granulação em leitos fluidizados, na cinética de crescimento de partículas, foi realizado por HEMATI et al.(2003). A solução aquosa granulante foi introduzida ao leito fluidizado através de um bico atomizador de duplo fluido. Os efeitos da velocidade do ar de fluidização, da vazão do granulante, da vazão do ar de atomização e a porosidade e tamanho inicial das partículas foram examinados. A influência da viscosidade da solução entre 16 e 185 cPoise, da tensão superficial entre 0,072 e 0,033 N/m, e o ângulo de contato com as partículas entre  $38^\circ$  e maior que  $90^\circ$  foram também investigados. Com os experimentos de granulação, os autores verificaram que o aumento da umidade relativa do ar, dependendo da vazão do líquido e da velocidade de fluidização, favorece a aglomeração, especialmente para valores de umidade superiores a 40%. O crescimento de aglomerados mostrou ser favorecido quando a tensão superficial do líquido aumenta e o ângulo de contato diminui. A viscosidade da solução apresentou menor efeito que os parâmetros interfaciais no crescimento do aglomerado.

SALEH et al. (2003) estudaram o processo de recobrimento e aglomeração de partículas de areia em leito fluidizado. Partículas com diâmetro médio de 90, 176, 267, 437 e 639  $\mu\text{m}$  foram recobertas com soluções de NaCl na concentração de 200  $\text{kg}/\text{m}^3$ . O crescimento em camadas, com características de recobrimento, foi observado principalmente para partículas com diâmetro médio superior a 200  $\mu\text{m}$ . Para as partículas com diâmetros inferiores, o crescimento ocorreu por aglomeração das partículas finas. As partículas com menores diâmetros médios e maiores áreas superficiais apresentaram maiores taxas de crescimento, maior quantidade de soluto aderido, conduzindo a uma maior eficiência do processo.

#### **2.3.4 Forças interpartículas em leitos fluidodinamicamente ativos**

Diversos pesquisadores têm estudado a influência de forças interpartículas na dinâmica de leitos ativos, principalmente no que se refere à força existente, devido a pontes líquidas criadas quando a terceira fase (líquida) é adicionada ao leito de partículas. O processo de recobrimento se inicia com o leito em boas condições de mistura, sendo essa condição comprometida ao longo do processo de recobrimento, à medida que a suspensão de recobrimento é alimentada ao leito. Em condições extremas, dependendo das condições operacionais, principalmente, vazão de alimentação da suspensão e pressão de atomização, o leito entra em colapso (SEVILLE et al., 2000).

O processo de colapso de um leito fluidizado é acompanhado da variação da altura do leito com o tempo, conforme Figura 2.16. Primeiro as bolhas ascendentes através do leito escapam rapidamente do leito de partículas, sendo este estágio chamado de estágio de escape das bolhas. Durante este período, a seção superior do leito é constituída por bolhas, abaixo existe uma fase densa livre de bolhas e no fundo do leito existe uma camada de partículas sedimentadas. Logo após, as bolhas cessam completamente, depois disso a altura da superfície do leito continua a diminuir, enquanto a camada de partículas acumuladas no fundo do leito aumenta, e por final todo o gás contido na fase densa é expelido para fora do leito e o processo de colapso é completado (YONGSHENG e DAYOU, 1998).

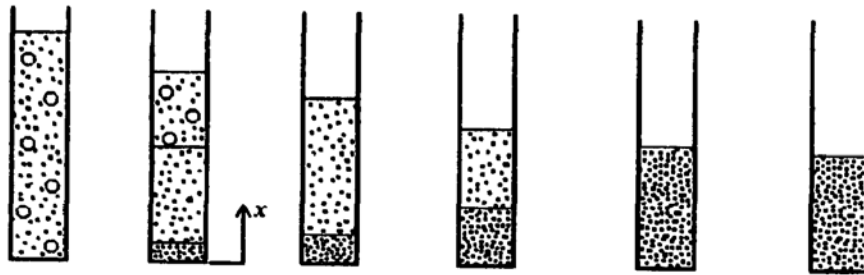


Figura 2.16-Processo de colapso em leito fluidizado (YONGSHENG e DAYOU, 1998)

A magnitude das chamadas pontes líquidas pode ser controlada através da quantidade líquido no leito e suas propriedades, principalmente viscosidade e tensão superficial. As forças interpartículas devido a pontes líquidas são de grande importância prática para processos de aglomeração e secagem (SEVILLE et al., 2000). A Figura 2.17 apresenta a formação de ponte líquida entre duas partículas esféricas.

MAZZONE et.al. (1987) afirmam que a característica mais importante no sistema sólido-líquido-sólido é a força de atração entre as partículas devido à tensão superficial do líquido e da diferença de pressão entre as fases causada pela curvatura da interface. Os autores concluíram que a força necessária para separar duas partículas em movimento possui uma magnitude maior do que a necessária para a situação em que as partículas estão paradas, este fenômeno ocorre devido às forças viscosas que resistem ao movimento do fluido.

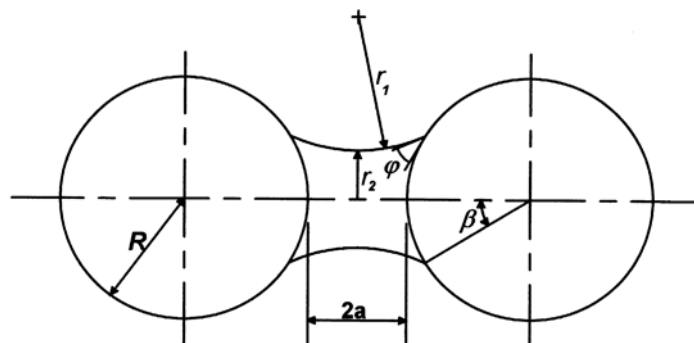


Figura 2.17 – Ponte líquida entre partículas esféricas (SEVILLE et al., 2000)

Segundo SEVILLE et al. (2000), a adição de líquido ao um leito fluidizado aumenta a coesividade das partículas, podendo ser observado, na Figura 2.18, a força líquida máxima da ponte que pode igualar o peso da partícula, para partículas de até 100  $\mu\text{m}$ . Como consequência deste comportamento, pode ocorrer o aumento da queda de

pressão estabelecida no leito na mínima fluidização, em virtude do aumento de peso das partículas, aumentando assim a velocidade de mínima fluidização. Se a velocidade não é aumentada o leito defluidiza. O efeito coesivo estabiliza uma estrutura de uma porosidade mais elevada. Este estudo mostra também que a adição de uma quantidade pequena do líquido é suficiente para causar uma separação entre os pontos da mínima fluidização e de mínimo borbulhamento, com uma região estável da expansão entre eles.

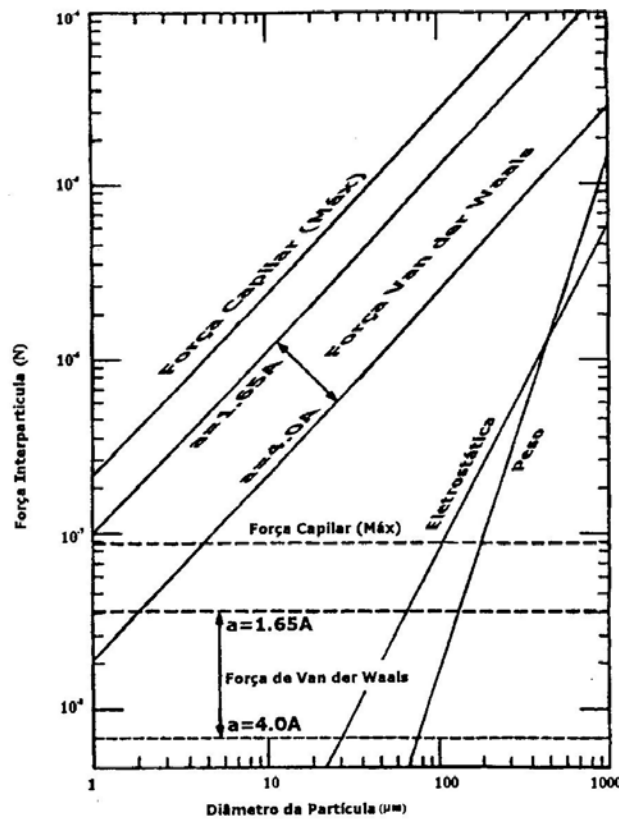


Figura 2.18 – Força interpartícula em função do diâmetro da partícula (SEVILLE et al., 2000)

WATANO et al.(1997) estudaram o recobrimento de fármacos em leito fluidizado agitado e observaram que a taxa de líquido adicionada é o fator limitante no processo de aglomeração das partículas recobertas. O líquido adicionado é responsável pela umidade do leito, sendo necessário para recobrir as partículas sem a formação de aglomerados, manter a umidade do leito a um nível em que ocorra a secagem sem formação de pontes líquidas entre as partículas.

PASSOS e MUJUMDAR (2000) estudaram o efeito das forças coesivas sobre a fluidodinâmica de partículas úmidas em leito de jorro e fluidizado. Em processos de

recobrimento e granulação, a operação do leito móvel é mais complexa, devido ao desenvolvimento de forças coesivas resultantes de pontes líquidas entre as partículas. Estas forças podem afetar o fluxo de gás no leito, levando à aglomeração descontrolada de partículas e a um contato gás-sólido ruim. As principais variáveis que afetam a taxa de secagem de pastas em leitos de partículas inertes são a temperatura e a taxa do ar de circulação das partículas. Ambas variáveis governam a transferência de calor e a taxa de circulação dos sólidos, respectivamente, sendo necessário um ajuste adequado para inibir a aglomeração.

Segundo MCLAUGHLIN e RHODES (2001) o processo de defluidização pode ser descrito como uma degradação na qualidade de fluidização. De acordo com os autores este fenômeno se manifesta das mais diferentes formas, incluindo a aglomeração ou fusão do material do leito, redução da formação de bolhas, aumento da quantidade de gás de fluidização requerida para o processo e finalmente a formação de canais preferenciais permanentes através do leito de partículas, reduzindo drasticamente a queda de pressão através do leito de partículas. Os autores afirmam ainda que a defluidização é geralmente atribuída a mudanças nas propriedades de superfície do material no interior do leito, resultando numa maior interação e adesão do leito de partículas através de pontes líquidas ou mecanismos de sinterização.

CUNHA (2004) estudou o recobrimento de partículas de celulose microcristalina do tipo MC-500 em leito fluidizado visando a identificação da instabilidade (colapso) do leito frente condições operacionais do equipamento e verificou que o colapso do leito fluidizado está relacionado com a umidade das partículas no leito e que ocorre uma diminuição da queda de pressão do leito quando as partículas atingem um teor máximo de umidade, devido a formação de canais preferenciais. O autor verificou que a saturação do ar de fluidização não é o fator que define a defluidização do leito de partículas, uma vez que segundo o autor a umidade relativa do ar à saída do leito atinge rapidamente o valor de 100 % e ainda assim o leito mostra boa movimentação dos sólidos. O autor afirma que o fenômeno de defluidização do leito é observado através da formação de um jato central e o aparecimento de zonas mortas formando uma região anular estagnada. Segundo o autor, verifica-se uma diminuição no conteúdo de umidade acompanhada pela diminuição da queda de pressão, conduzindo ao colapso do leito de partículas. O autor verificou que para vazões de suspensão de recobrimento acima de 6,4 g/min a alimentação contínua de



suspensão ao leito não é recomendável devido ao excesso de umidade alcançado no leito de partículas, causando o empacotamento e induzindo ao colapso em um curto período de processo. O autor afirma ainda que a pressão de atomização não exerce influência significativa sobre as características fluidodinâmicas do leito, no entanto o ar de atomização auxilia na movimentação das partículas induzindo á uma melhor qualidade de mistura das partículas no leito.

SILVA et al. (2003) estudaram a influência do teor de umidade de partículas de celulose microcristalina com diâmetro médio de 330 e 308  $\mu\text{m}$  sobre o processo de recobrimento em leito fluidizado convencional com bico atomizador posicionado no topo do leito de partículas. Os autores realizaram ensaios de recobrimento de forma contínua e intermitente, variando-se a vazão de material de recobrimento alimentada ao leito de partículas e pressão de atomização. Segundo os autores, a umidade das partículas no leito é o fator determinante na identificação do início do fenômeno de colapso ou defluidização. Os autores verificaram que o atrito entre partículas durante a fluidização não levou a produção de finos devido à ruptura das partículas do material estudado. Verificaram também que a vazão de suspensão associada à pressão de atomização exerce importante influência sobre o processo de recobrimento.

SILVA (2003) estudou o recobrimento de partículas de celulose microcristalina em leito fluidizado. O autor elaborou um estudo para o levantamento das condições ótimas de operação do leito fluidizado para o recobrimento de celulose microcristalina. As partículas foram divididas em três lotes de diferentes faixas de tamanho de partícula variando de 180 a 420  $\mu\text{m}$ . Através de um planejamento experimental o autor determinou as condições ótimas de operação do leito ( $P_{at} = 137,89 \text{ kPa}$ ;  $W_s = 11,4 \text{ g/min}$ ;  $T_{ar} = 70 \text{ }^\circ\text{C}$  e  $d_p = 269 \text{ } \mu\text{m}$ ) e verificou ainda que para vazões de suspensão de recobrimento acima de 6 g/min é necessária a intermitência da alimentação de suspensão ao leito para evitar que o excesso de umidade provoque o colapso do leito. A umidade das partículas no interior do leito foi monitorada através de amostragem em intervalos de tempos pré-determinados. A partir desta análise o autor verificou que a partir do colapso do leito a saturação se dava sempre para um teor de umidade inferior ao obtido para o ponto de intermitência anterior e que a umidade crítica de saturação do leito era de aproximadamente 26 %. O autor verificou que as variáveis pressão de atomização ( $P_{at}$ ) e temperatura de entrada do ar ( $T_{ar}$ ) exercem efeitos negativos sobre a eficiência do processo de recobrimento, uma vez que o

menor diâmetro das gotas aspergidas para maiores pressões de atomização facilitam a secagem da suspensão antes do contato com a superfície da partícula, sendo este fenômeno ainda mais pronunciado para temperaturas mais elevadas do ar de secagem. Segundo os resultados obtidos pelo autor partículas de maior diâmetro possuem um maior crescimento relativo e uma maior eficiência de recobrimento.

Resultados de liberação de grânulos de diclofenaco recobertos em leito fluidizado convencional obtidos por SILVA (2003) indicam a viabilidade do processo de recobrimento em leito fluidizado convencional para a aplicação de recobrimento gastro-resistentes ou de liberação sustentada. No entanto, o autor verificou a partir dos resultados de testes de reabsorção de umidade que as partículas recobertas não apresentaram nenhuma tendência que comprove a viabilidade da operação de recobrimento para a proteção contra a higroscopicidade.

### 3 MATERIAIS E MÉTODOS

#### 3.1 MATERIAIS

O material utilizado no processo de recobrimento consiste de partículas de celulose microcristalina – MICROCEL, com faixa de diâmetro de partículas entre 250 e 420  $\mu\text{m}$ . A celulose é um pó cristalino branco, praticamente inodoro, solúvel em água e ácidos diluídos, possui fórmula química  $(\text{C}_6\text{H}_{10}\text{O}_5)_n$ , onde  $n=220$ . A microcelulose foi inicialmente introduzida no mercado como agente ligante e diluente em formulações de comprimidos e cápsulas, nas quais podia ser utilizada tanto no processo de compressão direta como na granulação pela via úmida. A principal vantagem da sua utilização se encontra no fato de simplificar o processo de fabricação, resumindo as etapas em umectação do pó, mistura e compressão. Também é utilizada como agente lubrificante e desintegrante na fabricação de comprimidos.

A celulose microcristalina é capaz de melhorar a fluidez das misturas em pó devido ao baixo coeficiente de fricção desse material não fibroso ou pode ser adicionada à formulação somente para preencher o volume desejado, tendo em vista a sua compatibilidade química e biológica. Isto é particularmente interessante na produção de cápsulas. Devido à sua multiplicidade de aplicação, a celulose microcristalina é igualmente utilizada em produtos cosméticos e alimentícios (Handbook of Pharmaceutical Excipients, 2000).

Este material é amplamente empregado em formulações farmacêuticas e produtos alimentícios, e é considerado um material não tóxico e não irritante, por não ser absorvida sistematicamente após administração oral.

A celulose microcristalina utilizada neste trabalho é do tipo MC – 500, adquirida junto a Blanver Farmoquímica LTDA, cujas características são mostradas na Tabela 3.1.

Tabela 3.1- Características das partículas de MICROCEL (SILVA, 2003)

Tipo	$\rho_{ap}(\text{g}/\text{cm}^3)$	$\rho_s(\text{g}/\text{cm}^3)$	$dp(\mu\text{m})$
MC - 500	0,97	1,55	275

Foram realizados testes preliminares, incluindo ensaios fluidodinâmicos e de recobrimento, com o objetivo de acompanhar o desempenho do material e estabelecer faixas operacionais do equipamento. Nos testes preliminares foram utilizadas partículas de MICROCEL do tipo MC – 500, a faixa de diâmetro de partículas utilizada foi de 250 a 300  $\mu\text{m}$  para um planejamento experimental inicial e de 300 a 420  $\mu\text{m}$  para o segundo planejamento, sendo que estas faixas granulométricas escolhidas com base nos resultados apresentados no trabalho de SILVA (2003).

### 3.1.1 Suspensão de recobrimento

O recobrimento é obtido através da atomização da suspensão polimérica, em leito fluidizado pulsado rotativo (LFPR). A suspensão polimérica utilizada, à base de Eudragit<sup>®</sup>, tem sua formulação descrita na Tabela 3.2 .

Tabela 3.2 – Composição da suspensão de recobrimento, DONIDA (2000)

Reagentes	(%) em massa
Eudragit L30-D55	16,70
PEG 6000	0,75
Talco	2,75
Estearato de magnésio	1,00
Dióxido de titânio	1,40
Corante	0,60
Trietil citrato	0,50
Água	76,30

Esta suspensão foi utilizada por SILVA (2003) com base nos resultados encontrados por DONIDA (2000), que utilizando esta formulação obteve a formação de um filme uniforme e liso no recobrimento de partículas de uréia em leito de jorro bi-dimensional. Cada um dos reagentes citados na Tabela 3.2 tem uma função específica e contribui de forma diferente para a formação de um recobrimento uniforme e de qualidade.

O PEG 6000 e o trietil citrato são plastificantes e têm por finalidade dar flexibilidade à película, para que esta suporte melhor as tensões mecânicas; o talco e o estearato de magnésio têm a função de agentes de separação e alisamento, reduzindo a aglutinação da película ao secarem, produzindo uma superfície lisa. O estearato de

magnésio é responsável pela diminuição da tensão superficial da suspensão, facilitando assim o espalhamento da mesma sobre a superfície da partícula e sobre a camada de filme seco sobre a partícula; o dióxido de titânio é um opacificante, fornecendo ao revestimento uma coloração uniforme, impedindo assim que a superfície do núcleo seja visualizada, principalmente quando se trabalha com partículas de coloração escura; o corante é usado para proporcionar boa aparência às partículas recobertas, e, principalmente nos testes de microscopia, para melhorar a visualização e permitir a identificação de irregularidades na película formada. O Eudragit<sup>®</sup> é composto de copolímeros de ácidos metacrílicos, aminoetilmetacrilatos e ésteres neutros de ácidos acrílicos e metacrílicos. As propriedades de permeabilidade e solubilidade dependem da quantidade de grupos ácidos, básicos e hidrofílicos presentes. Estes compostos podem ser utilizados com solventes orgânicos ou em dispersões aquosas (CUNHA, 2004).

A suspensão de recobrimento foi preparada segundo método descrito por SILVA (2003). Em uma etapa inicial, preparou-se uma parte da suspensão sem o polímero, chamada de suspensão de pigmentos, composta por PEG 6000, talco, dióxido de titânio, corante, estearato de magnésio e trietil citrato. Estes reagentes foram adicionados a uma quantidade de água (aproximadamente 500 g), sob forte agitação mecânica. Após sua preparação a suspensão de pigmentos foi passada através de um moinho coloidal, por um período de 15 minutos, para redução do tamanho de partículas. A suspensão polimérica foi preparada com a adição do Eudragit<sup>®</sup> à outra parte de água, sob agitação, através de um agitador magnético. A última etapa na preparação da suspensão consistiu na mistura das duas suspensões, sob agitação, com o auxílio de uma bomba peristáltica de forma que a suspensão de pigmentos fosse adicionada à suspensão polimérica.

Após a mistura das suspensões de pigmentos e polimérica, formando a suspensão definitiva, esta permaneceu sob agitação, através de agitador magnético, por um período de 30 minutos e durante 24 horas permaneceu em repouso para reduzir a espuma formada.

Antes da utilização da suspensão no processo de recobrimento, foram coletadas duas amostras de 8 mL para a determinação do teor de sólidos em suspensão. A determinação do teor de sólidos consistiu em pesar a quantidade de suspensão inicial e colocar o material em estufa por um período de 24 horas na temperatura de 105 °C; a seguir era feita a pesagem da massa de sólido seco na amostra coletada. Este procedimento foi repetido para todas as suspensões preparadas.

### **3.1.2 Equipamentos periféricos**

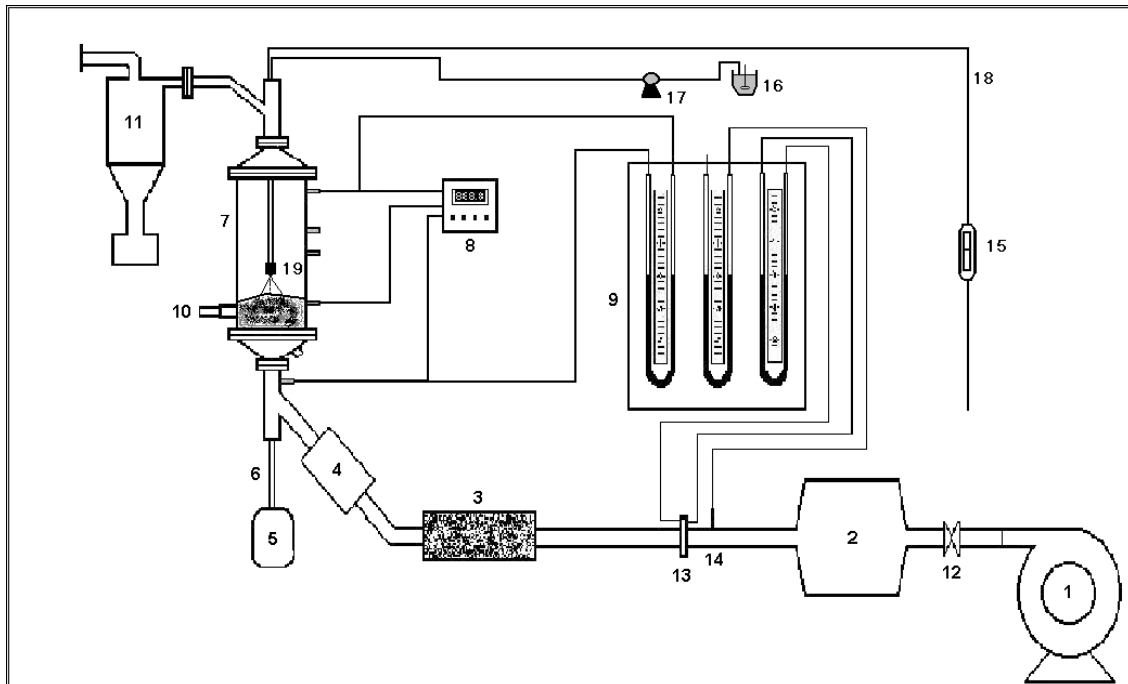
- Agitador magnético marca Fisatom, modelo 753, potência 50 W;
- Agitador mecânico marca Fisatom, modelo 713, potência 80 W;
- Aquecedor elétrico com 4 resistências, potência 1600 W;
- Agitador de peneiras, marca Produtest, com marcador de tempo – Laboratório de Desenvolvimento em Sistemas Particulados (LDPSP);
- Bomba peristáltica Masterflex, modelo L/S 7518-20;
- Moinho coloidal OSMEC, motor EBERLE de  $\frac{3}{4}$  CV e 3470 rpm – Laboratório de Fluidodinâmica e Secagem (LFS);
- Microscópio óptico, marca Stereozoom, modelo 48920-20 MFG 420T acoplado a um sistema de aquisição de imagens – Scanpro – Laboratório de Fluidodinâmica e Secagem (LFS);
- Estufa de secagem e esterilização, marca FANEM;
- Balança técnica GEHAKA, modelo BG 8000 – Laboratório de Engenharia Ambiental (LEA);
- Balança analítica OHAUS, modelo GT 410 – Laboratório de Desenvolvimento em Sistemas Particulados (LDPSP);

### **3.2 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL**

O equipamento experimental utilizado no processo de recobrimento é ilustrado na Figura 3.1 . O ar é fornecido por um soprador com 7,5 cv (1). A tubulação utilizada para a alimentação do leito é de aço galvanizado com diâmetro interno de 2 in. A vazão de ar é controlada por uma válvula tipo globo (12) e, em seguida o ar passa por um resfriador (2). Em (13) e (14) estão ilustradas as tomadas de pressão da placa de orifício e da linha.

A perda de carga no leito de partículas é acompanhada através do quadro de manômetros “U” (9). Em seguida o ar passa por um leito de sílica (3), constituído de uma coluna cilíndrica de acrílico de 4 mm de espessura, com 41 cm de comprimento e diâmetro interno de 7,1 cm; antes de entrar no leito o ar é aquecido por um aquecedor elétrico (4). O ar entra no leito (7) constituído de uma coluna de acrílico com 14,3 cm de diâmetro e 70 cm de altura, através da parte inferior, passando através do conjunto de distribuição de gás (disco rotativo e placa distribuidora), ambos construídos em aço inox. Abaixo do leito está posicionado o motor elétrico (5) que está acoplado ao disco rotativo através de um eixo (6),

no qual está fixo o conjunto de distribuição do gás. Na base do leito existe um sistema de amostragem dos sólidos (10), e o ciclone (11) para a retenção de finos está posicionado na saída do leito. Acima do leito de partículas está posicionado o bico atomizador (19) que é alimentado com a suspensão de recobrimento através de uma bomba peristáltica (17) e com ar através da linha de ar comprimido (18). A vazão de ar de atomização é controlada através do rotâmetro (15), a pressão de atomização é controlada por um regulador de pressão posicionado na linha de ar comprimido.



**LEGENDA**

- |                              |                                |
|------------------------------|--------------------------------|
| 1 – Soprador                 | 11 – Ciclone                   |
| 2 – Resfriador de ar         | 12 – Válvula globo             |
| 3 – Leito de sílica          | 13 – Placa de orifício         |
| 4 – Aquecedor elétrico       | 14 – Tomada de pressão         |
| 5 – Motor elétrico           | 15 – Rotâmetro                 |
| 6 – Eixo do motor            | 16 – Reservatório da suspensão |
| 7 – Leito de acrílico        | 17 – Bomba peristáltica        |
| 8 – Indicador de temperatura | 18 – Linha de ar comprimido    |
| 9 – Painel de Manômetros “U” | 19 – Bico atomizador           |
| 10 – Amostrador              |                                |

Figura 3.1 – Equipamento experimental

### 3.2.1 Determinação da vazão de ar

As medidas de vazão do ar foram obtidas através de um medidor do tipo placa de orifício, que consiste de uma placa fina presa entre dois flanges na tubulação de ar com um orifício coaxial com o tubo. Duas tomadas de pressão diferencial são instaladas, uma antes e a outra imediatamente após a placa com o diâmetro do orifício estabelecido segundo RIBEIRO (2005). A leitura da queda de pressão na placa foi feita através de um manômetro de tubo em “U”. A vazão de ar foi obtida através da equação seguinte (OWER e PANKHURST, 1977):

$$Q = k\varepsilon.\alpha.a_2 \sqrt{\frac{I}{I-m^2} (\Delta h_p) \frac{b}{k_1 + T}}$$

em que:

$Q$  – Vazão mássica de ar (kg/min)

$$\varepsilon = 1 - \beta \frac{\Delta h_p}{P_1 + b} \quad (\text{fator de compressibilidade})$$

$P_1$  – pressão estática na linha de ar (cm H<sub>2</sub>O)

$b$  – pressão barométrica local (mmHg)

$$\beta = 0,3041 + 0,0876.m - 0,1166.m^2 + 0,4089.m^3$$

$$\alpha = 0,5959 + 0,0312.m^{1,05} - 0,184.m^4 \quad (\text{coeficiente de descarga})$$

$$m = \frac{a_2}{a_1}$$

$$a_1 = \frac{\pi D^2}{4} \quad (\text{área do tubo, cm}^2)$$

$$a_2 = \frac{\pi d^2}{4} \quad (\text{área do orifício, cm}^2)$$

$\Delta h_p$  – queda de pressão na placa de orifício (cm H<sub>2</sub>O)

$T$  – temperatura do ar na entrada do leito (°C)

Para temperatura em °C e pressão em mmHg, os valores de  $k$  e  $k_1$  são 0,0573 e 273, respectivamente.



### 3.2.2 Sistema de atomização

O sistema de atomização utilizado consiste de um bico atomizador de duplo fluido. O conjunto de atomização utilizado é composto de uma capa de ar, uma capa de fluido e corpo do bico atomizador, como ilustrado na Figura 3.2.

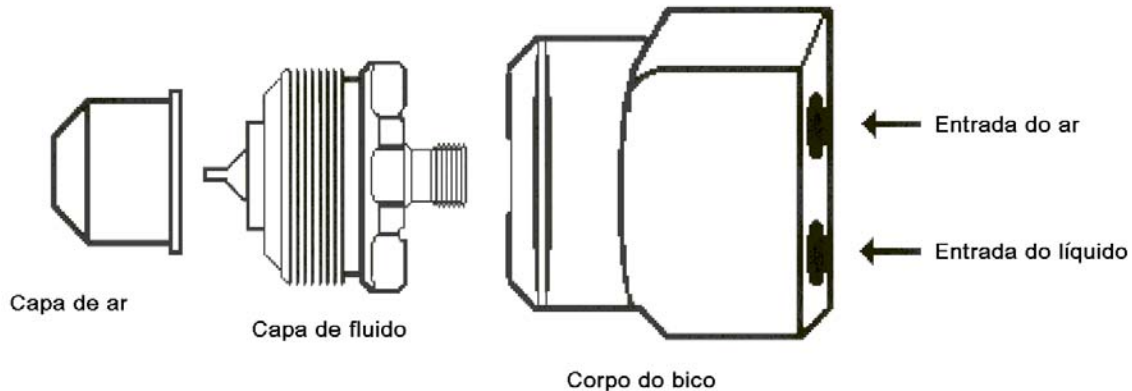


Figura 3.2 – Conjunto de atomização (COSTA, 2003)

O ar de atomização é fornecido por um compressor de 10 cv de potência, deslocamento de  $1,1 \text{ m}^3/\text{min}$  e pressão máxima de trabalho de 1207 kPa. A suspensão de recobrimento é mantida em um reservatório sob agitação e alimentada ao bico atomizador através de uma bomba peristáltica da marca Masterflex<sup>®</sup>, modelo L/S 7518-20, devidamente calibrada antes de cada ensaio. A suspensão de recobrimento é conduzida até o bico atomizador através de um tubo de silicone para fornecer a vazão necessária de operação. Ao entrar em contato com o ar comprimido, a suspensão é atomizada na forma de gotículas de diferentes tamanhos dependendo da pressão de atomização; neste trabalho a pressão de atomização foi fixada em 1,38 bar, baseando-se nos resultados obtidos por SILVA (2003).

### 3.2.3 Estudo fluidodinâmico

Os testes fluidodinâmicos foram realizados para cargas de 400, 500, 600, 750 e 1000 g de partículas de celulose microcristalina com diâmetros de partícula entre 250 e 300  $\mu\text{m}$ , sendo esta faixa de diâmetro escolhida com base nos resultados de SILVA (2003). Segundo o autor, a operação de recobrimento apresenta um maior rendimento para esta faixa de diâmetro de partícula, as frequências de rotação do distribuidor de gás utilizadas foram de 5, 10 e 15 Hz, sendo estes valores escolhidos com base nos resultados de RIBEIRO (2005), que verificou não haver distribuição satisfatória para frequências

menores do que 5 Hz e limitações construtivas do equipamento, que impedem a utilização de frequências superiores a 15 Hz . Os testes foram realizados visando-se a determinação da qualidade de fluidização das partículas em leito fluidizado pulsado-rotativo (LFPR) e a determinação da velocidade de mínima fluidização pulsada rotativa ( $U_{mfpr}$ ). A determinação deste parâmetro é realizada segundo o método clássico proposto por RICHARDSON (1971), a partir de dados de queda de pressão no leito e da velocidade superficial do gás. São traçadas curvas de queda de pressão ( $\Delta P$ ) em função da velocidade superficial do gás ( $U$ ) nos sentidos crescente e decrescente. A velocidade de mínima fluidização é obtida para a curva decrescente e corresponde à interseção da reta para o leito fixo com a reta horizontal, correspondente a perda de carga constante onde o leito se encontra totalmente fluidizado.

#### **3.2.4 Estudo fluidodinâmico com atomização**

Este estudo foi realizado com o intuito de determinar a influência da pressão de atomização na fluidodinâmica das partículas e na velocidade de mínima fluidização. Foram realizados testes variando-se a pressão de atomização em três níveis (1,0 1,4 e 2,0 bar), para uma carga fixa de partículas no leito. Neste estudo foram levantadas curvas fluidodinâmicas das partículas de celulose microcristalina com a presença de ar de atomização sobre o leito de partículas. Com o leito carregado, a vazão de gás foi elevada até que a fluidização fosse alcançada; em seguida a vazão de gás foi gradualmente reduzida acompanhando-se a queda de pressão no leito, até que cessasse a alimentação de gás. A partir destes dados foram construídas curvas de queda de pressão no leito em função da velocidade superficial do gás que foram comparadas com as curvas obtidas sem a presença do ar de atomização. Nestes ensaios a frequência de rotação do distribuidor foi fixada em 10 Hz.

#### **3.2.5 Estudo fluidodinâmico durante o recobrimento**

Nesta etapa foram realizados ensaios de recobrimento das partículas de celulose microcristalina na faixa de diâmetro de partícula de 250 a 300  $\mu\text{m}$ , variando-se a vazão de suspensão ( $W_s$ ), carga do leito e frequência de rotação do distribuidor de gás, mantendo-se fixas pressão de atomização ( $P_{at}$ ) e temperatura do ar na entrada do leito ( $T_{ar}$ ). Durante os ensaios foi feito um acompanhamento do processo medindo-se temperatura do leito e a queda de pressão, observando-se a dinâmica das partículas do leito com o objetivo de

verificar áreas de instabilidade e a tendência do leito à saturação. As variáveis de resposta foram eficiência do processo de recobrimento, o índice de aglomeração e os crescimentos relativos de massa, que são calculadas segundo DONIDA (2000) pelas seguintes equações:

Crescimento relativo de massa;

$$\chi = \frac{M_f - M_o}{M_o} \cdot 100 \quad (3.1)$$

Eficiência do processo de recobrimento;

$$\eta = \frac{M_f - M_o}{W_s \cdot C_s \cdot t_{at}} \cdot 100 \quad (3.2)$$

Índice de aglomeração;

$$Agl = \frac{M_{agl}}{M_t} \cdot 100 \quad (3.3)$$

O crescimento relativo das partículas ( $\chi$ ) é obtido medindo-se a massa destas no início e no final de cada experimento. A diferença entre a massa final e inicial das partículas fornece a massa do filme formado. O crescimento das partículas é obtido através da razão entre a massa do filme formado e a massa inicial das partículas.

A eficiência do processo de recobrimento ( $\eta$ ) é definida como a razão entre a massa de sólidos aderida às partículas e a massa de sólidos da suspensão adicionada ao leito (DONIDA, 2000).

A quantificação de aglomerados formados é obtida através do peneiramento das partículas recobertas. As partículas que apresentam diâmetro superior à faixa de tamanho utilizada são consideradas aglomerados. A massa destas partículas deve ser medida para a obtenção do índice de aglomeração, que é definido como a razão entre a massa de partículas aglomeradas e massa total de partículas carregadas ao leito no início do ensaio (equação (3.3)).

### 3.2.6 Planejamento experimental

Foi elaborado um planejamento fatorial  $2^3$ , para os fatores: vazão de suspensão ( $W_s$ ), nos níveis 4, 6 e 8 ml/min, que correspondem as vazões reais de 4,80; 7,33 e 9,50 g/min respectivamente; carga de partículas ( $M$ ), 400, 600 e 800 g e frequência de rotação

do distribuidor rotativo ( $f$ ), 5, 10, 15 Hz. A temperatura do ar de secagem ( $T_{ar}$ ) foi fixada em  $70^{\circ}\text{C}$  e a velocidade do ar de secagem foi mantida fixa em  $2,5(U_{mfpr})$ . A temperatura de secagem foi definida de acordo com o observado por SILVA (2003) que verificou que para este nível a eficiência do processo de recobrimento era superior do que para níveis de temperatura menos elevados. A velocidade do ar de fluidização foi fixada com base nos resultados de testes preliminares, onde se observa uma melhor movimentação dos sólidos no leito para este nível de velocidade.

Como citado anteriormente, SILVA (2003) estudou o efeito do diâmetro de partícula ( $d_p$ ) sobre a eficiência do processo de recobrimento. Em seu trabalho o autor verificou que o melhor rendimento observado foi obtido para a faixa de diâmetro de 250-300  $\mu\text{m}$ , e esta foi a faixa de diâmetro escolhida para os ensaios iniciais.

Para verificar a influência das variáveis operacionais no processo de recobrimento foi utilizada a técnica de planejamento fatorial, descrita por BARROS NETO et al. (2002). De acordo com o planejamento fatorial  $2^3$ , foram realizados 8 ensaios de recobrimento mais três repetições no nível central das variáveis, totalizando 11 ensaios realizados, tendo como fatores: vazão de suspensão ( $W_s$ ), carga de partículas ( $M$ ) e frequência de rotação do distribuidor ( $f$ ), todos analisados em três níveis. As variáveis de resposta analisadas foram o índice de aglomeração ( $Agl$ ), o crescimento relativo ( $X$ ) e a eficiência de recobrimento ( $\eta$ ).

Após a realização do planejamento inicial  $2^3$  optou-se por realizar um estudo mais aprofundado incluindo como variáveis independentes a pressão de atomização ( $P_{at}$ ) e temperatura de entrada do ar de secagem ( $T_{ar}$ ) além da vazão de suspensão ( $W_s$ ) e frequência de rotação do distribuidor de gás ( $f$ ), assim foi elaborado um planejamento experimental  $2^4$  com três repetições nos níveis centrais das variáveis, totalizando 19 ensaios, nestes ensaios optou-se por trabalhar com uma faixa de diâmetro de partícula maior (0,30-0,42mm) e uma carga fixa de 700g de partículas. Os níveis das variáveis utilizados nos ensaios foram baseados nos resultados do planejamento inicial e nos resultados descritos no trabalho de SILVA (2003). Procurou-se, sempre que possível, trabalhar com os mesmos níveis utilizados pelo autor para efeito de comparação da operação de recobrimento em leito fluidizado convencional e em leito fluidizado pulsado-rotativo.

## 4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

### 4.1 FLUIDODINÂMICA DO LEITO

Foram realizados testes para a determinação da velocidade de mínima fluidização das partículas de celulose microcristalina. As curvas de queda de pressão no leito em função da velocidade superficial do gás apresentaram um comportamento característico de equipamentos de leito fluidizado, conforme descrito na literatura (KUNII e LEVENSPIEL, 1991). Os testes foram realizados variando-se a carga do leito e frequência de rotação do distribuidor de gás. Todos os ensaios resultaram em curvas fluidodinâmicas de comportamento similar ao da Figura 4.1.

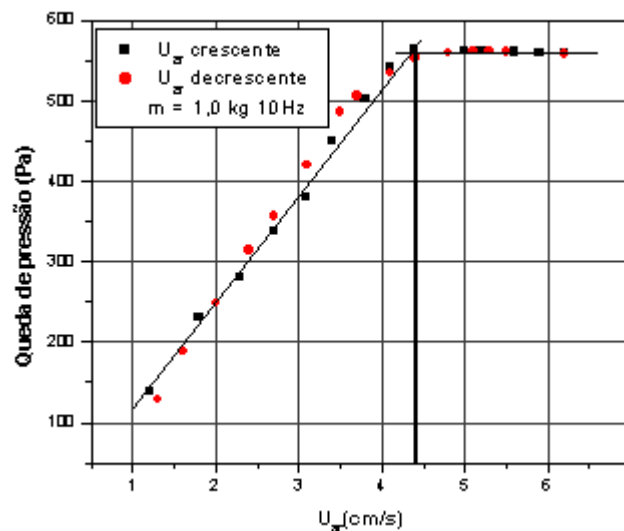


Figura 4.1 – Curva fluidodinâmica para carga de 1,0 kg e frequência de 10 Hz

A velocidade de mínima fluidização pulsada rotativa ( $U_{mfpr}$ ) foi calculada segundo o método de RICHARDSON (1971). Para cada ensaio foram traçadas curvas da queda de pressão no leito em função da velocidade superficial do gás. A velocidade de mínima fluidização corresponde à interseção do patamar horizontal relativo à perda de carga em que o leito está totalmente fluidizado, com a porção linear da curva correspondente ao leito fixo, a velocidade decrescente.

#### 4.1.1 Estudo da influência da carga de partículas na queda de pressão de mínima fluidização

Foram realizados ensaios variando-se a carga de partículas no leito, com o objetivo de investigar a influência da carga de partículas na velocidade de mínima fluidização. Os resultados são mostrados na Figura 4.2.

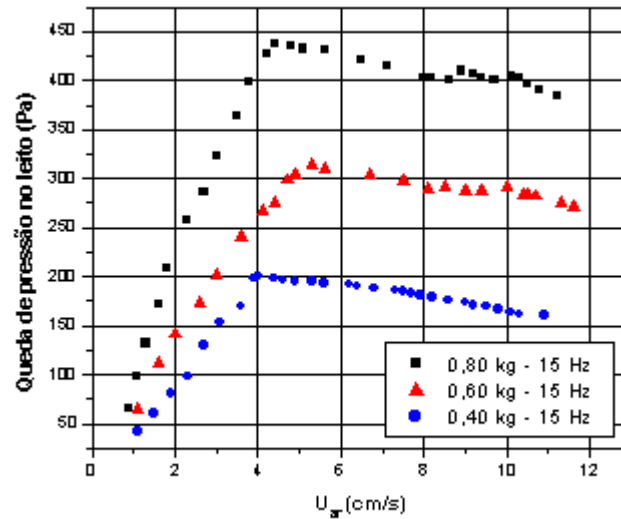


Figura 4.2 – Influência da carga de partículas na velocidade de mínima fluidização

Para as curvas características de fluidização a velocidade decrescente para uma frequência de pulsação de 15 Hz, mostradas na Figura 4.2, verificou-se que a velocidade de mínima fluidização pulsada rotativa apresentou um valor médio de  $4,66 \pm 0,24$  cm/s, indicando que a carga de partículas exerce pouca ou quase nenhuma influência sobre a velocidade de mínima fluidização pulsada rotativa, estando este resultado de acordo com o obtido por RIBEIRO (2005). A Tabela 4.1 mostra os valores obtidos para velocidade de mínima fluidização ( $U_{mfpr}$ ) e da queda de pressão nas condições de mínima fluidização para frequência de pulsação de 15 Hz.

Tabela 4.1 – Queda de pressão e velocidade de mínima fluidização em função da carga de partículas para frequência de 15 Hz

Carga (kg)	$U_{mfpr}$ (cm/s)	$\Delta P_{mfpr}$ (Pa)
<b>0,40</b>	<b>4,40</b>	<b>201,50</b>
<b>0,60</b>	<b>4,88</b>	<b>314,20</b>
<b>0,80</b>	<b>4,70</b>	<b>438,10</b>

Através da Figura 4.2 e Tabela 4.1, pode-se observar a influência da carga de partículas na queda de pressão no leito durante a fluidização. É possível verificar a forte influência da carga de partículas na queda de pressão do leito, devido à necessidade do ar exercer uma força maior para suspender uma carga maior de partículas.

GELDART (1986) afirma que um parâmetro importante para as condições de fluidização é a relação entre a altura do leito e o diâmetro da coluna. De acordo com o autor, o leito é raso quando a relação  $H_L/D_L$  é menor do que 1 e profundo se  $H_L/D_L$  for maior do que a unidade. Um leito raso pode provocar desvios entre a velocidade de mínima fluidização obtida experimentalmente e os valores preditos pela literatura, sendo este comportamento devido à maior ocorrência de canais preferenciais no leito pela dificuldade de distribuição satisfatória do gás de fluidização (SILVA, 2003). Neste trabalho, optou-se por operar o equipamento com cargas de 400, 600 e 800 g para as quais a profundidade do leito atingiu valores de 6, 9 e 12 cm respectivamente. Desta forma a razão  $H_L/D_L$  variou de 0,42 a 0,84 e pode-se observar uma fluidização com boa movimentação de partículas e velocidade de mínima fluidização pulsada rotativa média de  $4,66 \pm 0,24$  cm/s, o que demonstra não haver diferenças significativas na velocidade de mínima fluidização com a variação da carga do leito. A velocidade de mínima fluidização foi também calculada através das correlações apresentadas na literatura. O valor calculado pelas equações (2.3) e (2.4) apresentaram valores de 3,60 e 3,63 cm/s respectivamente para a velocidade de mínima fluidização, o que indica desvios da ordem de 24 % em relação ao valor determinado experimentalmente; O limite de aceitabilidade destas correlações é de 20 % e o intervalo de confiança dessas correlações depende das condições operacionais utilizadas. O desvio acentuado em relação ao valor observado experimentalmente indica que as correlações não descrevem de forma satisfatória o comportamento fluidodinâmico do leito

fluidizado pulsado-rotativo nas condições de mínima fluidização, uma vez que as equações utilizadas foram desenvolvidas para leitos fluidizados convencionais.

#### 4.1.2 Influência da frequência de pulsação sobre a velocidade de mínima fluidização

Ensaio foram realizados com o objetivo de verificar a influência da frequência de rotação do distribuidor de gás na velocidade de mínima fluidização. Os resultados são mostrados na Figura 4.3, em que as curvas foram traçadas mantendo-se a carga do leito constante (0,80kg) e variando-se a frequência de rotação do distribuidor de gás. A partir da Figura 4.3 é possível observar que a variação na velocidade de mínima fluidização é muito pequena, indicando que a frequência de rotação do distribuidor de gás não interfere significativamente sobre a fluidodinâmica das partículas no leito. Este resultado vai ao encontro do observado por RIBEIRO (2005), que estudou a fluidodinâmica de partículas de CMC secas e úmidas em leito fluidizado pulsado-rotativo (LFPR) e verificou também a não influência da frequência de rotação do distribuidor sobre a fluidodinâmica de partículas secas.

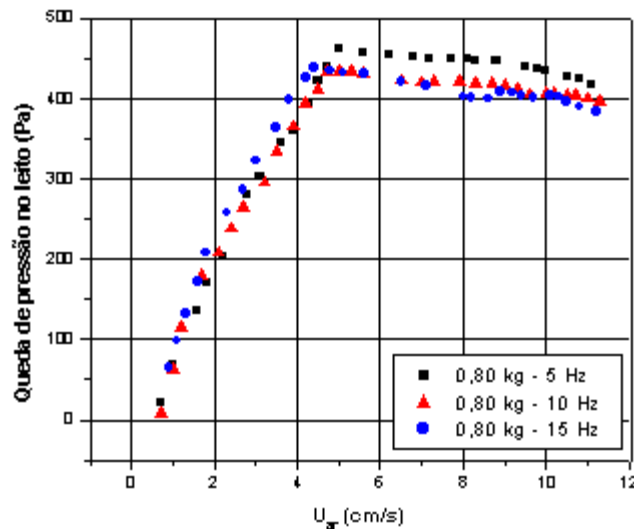


Figura 4.3 – Influência da frequência na fluidodinâmica do leito

A velocidade de mínima fluidização pulsada rotativa apresentou um valor médio de  $4,67 \pm 0,16$  cm/s. Variando-se a frequência de pulsação, a queda de pressão na mínima fluidização ( $\Delta P_{mfpr}$ ) apresentou valor médio de  $446,2 \pm 15,9$  Pa, estes resultados demonstram que não existe influência significativa da frequência de rotação do distribuidor na fluidodinâmica das partículas de CMC no leito fluidizado pulsado-rotativo (LFPR).



### 4.1.3 Influência do ar de atomização na fluidodinâmica do leito

Através do teste realizado foi possível observar que a influência do ar de atomização sobre a fluidodinâmica das partículas de CMC no leito fluidizado pulsado-rotativo (LFPR) é praticamente nula, para as condições experimentais estudadas. A Figura 4.4 mostra uma curva fluidodinâmica característica para uma carga de partículas de 0,80 kg e uma frequência de rotação do distribuidor de 5 Hz, variando-se a pressão de atomização sobre o leito de partículas.

Pela Figura 4.4, observa-se que a presença do ar de atomização causa um aumento da queda de pressão apenas na região de leito fixo, uma vez que o ar de atomização representa uma barreira adicional à passagem do ar de fluidização, pois escoar em sentido contrário. Portanto, a presença do ar de atomização não influenciará a fluidodinâmica das partículas de CMC durante o recobrimento, que serão realizados em velocidades superiores à velocidade de mínima fluidização ( $U = 2,5 U_{mf}$ ), sendo este valor fixado com base nos resultados de SILVA (2003).

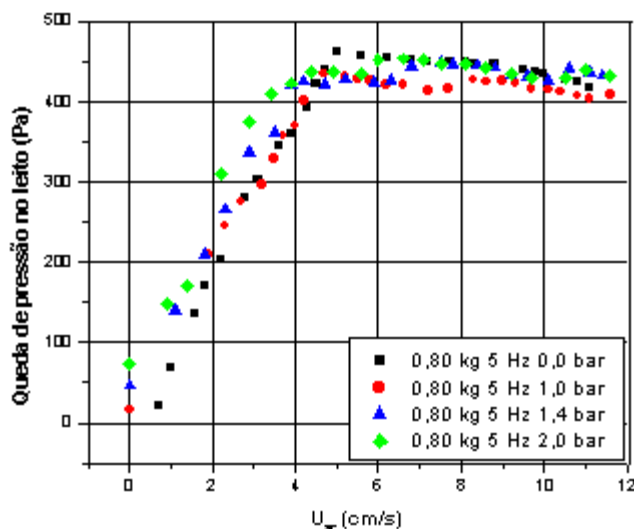


Figura 4.4 – Influência do ar de atomização na fluidodinâmica das partículas de CMC

O resultado obtido está de acordo com o observado por SILVA (2003), que estudou o recobrimento de partículas de CMC em leito fluidizado convencional e verificou que a presença do ar de atomização não interfere na fluidodinâmica das partículas no leito, acima da velocidade de mínima fluidização. O autor afirma ainda que a presença do ar de

atomização auxilia a movimentação e o grau de mistura das partículas no leito, esta informação pôde ser comprovada durante o ensaio.

## **4.2 ENSAIOS DE RECOBRIMENTO**

O procedimento para realização dos ensaios de recobrimento consistiu em alimentar o leito vazio com o ar na velocidade de operação até que a temperatura do ar na entrada do leito atingisse a temperatura de operação para cada ensaio. A temperatura e umidade do ar de entrada eram monitoradas por um termohigrômetro posicionado na base do leito. Quando a temperatura de operação era alcançada o fluxo de ar era desviado do leito através do orifício da sonda do termohigrômetro e procedia-se a alimentação das partículas ao leito. Após a alimentação das partículas de celulose no leito, a velocidade do ar era reduzida através de uma válvula globo posicionada logo após a saída do soprador e fazia-se o ar passar novamente através do leito de partículas. A velocidade do ar era ajustada até o valor de operação ( $\approx 2,5 U_{mfpr}$ ) e as partículas permaneciam fluidizando por aproximadamente 10 minutos para a retirada dos finos aderidos sobre a superfície das partículas. Durante este procedimento a suspensão permanecia sob agitação magnética. Após o procedimento de preparação do leito, a suspensão de recobrimento era alimentada através de uma bomba peristáltica até o bico atomizador e dava-se início ao processo de revestimento das partículas de MICROCEL. Quando a saturação do leito era alcançada, a atomização da suspensão era cessada e eram retiradas quatro amostras em diferentes pontos do leito para a determinação da umidade crítica de operação estável do leito. A determinação do teor de umidade das amostras foi realizado por secagem em estufa a 105 °C por um período de 24 horas. Após a retirada das amostras as partículas permaneciam fluidizando por um período de 20 minutos para a redução do teor de umidade e facilitação de sua retirada do equipamento. As partículas eram retiradas do equipamento com um aspirador de pó, sendo que o reservatório do aspirador era pesado em balança analítica antes e depois da retirada das partículas do equipamento para a determinação da massa de partículas retidas no reservatório. Após a retirada das partículas, eram coletadas amostras para a determinação de umidade para o cálculo de eficiência de recobrimento e crescimento relativo.

#### 4.2.1 Ensaios de recobrimentos preliminares

Foram realizados ensaios preliminares, para a determinação da faixa de vazão de suspensão de recobrimento a ser utilizada nos ensaios. Durante os ensaios preliminares, observou-se que o processo poderia ser conduzido com alimentação contínua da suspensão de recobrimento para vazões de suspensão de até 9,5 g/min, e este valor foi estabelecido como valor máximo da variável vazão de suspensão. Através de observações visuais do processo verifica-se uma movimentação eficiente dos sólidos no interior do leito, em que as partículas possuem um movimento ascendente-descendente, com a formação de vórtices ao longo de toda a área de secção transversal do leito de partículas. Durante os ensaios exploratórios foi definida também a posição do bico atomizador em relação ao leito de partículas. Devido à pequena expansão observada no leito (inferior a 2 cm), quando este se encontra em condições de operação, foi possível operar com o atomizador próximo ao leito de partículas (4,5 cm em relação ao leito fixo), minimizando perdas por elutriação da suspensão. Os ensaios preliminares foram realizados utilizando as variáveis pressão de atomização e temperatura do ar constantes, conforme descrito anteriormente, os resultados dos ensaios preliminares são descritos na Tabela 4.2.

Tabela 4.2 – Resultados dos ensaios de recobrimento preliminares

Ensaio	Ws (g/min)	M (g)	f (Hz)	t <sub>at</sub> (min)	η (%)	χ (%)	Agl (%)
1	4,8	400	5	40,0	56,4	3,13	1,08
2	6,2	400	5	37,0	72,6	4,54	1,89
3	7,3	400	15	30,0	78,5	4,70	2,75
4	9,5	400	15	24,0	81,5	4,95	3,85
5	9,5	800	5	39,0	89,4	4,80	2,25
6	10,4	800	5	24,0	90,7	3,10	2,36
7	12,2	800	15	13,5	92,8	2,21	3,74
8	13,4	800	15	10,5	93,6	1,91	4,47
9	9,5	600	10	25,0	85,4	3,87	3,05
10	7,3	600	10	29,0	80,7	4,08	2,45
11	4,8	600	10	47,0	81,4	3,53	2,27

Observa-se da Tabela 4.2 que os valores de eficiência de recobrimento apresentaram valores razoáveis e que para vazões elevadas de suspensão, acima de 9,5 g/min, o crescimento relativo das partículas diminui, devido ao tempo reduzido de processo. Os valores obtidos são considerados satisfatórios, uma vez que a literatura afirma ser de 6 % o valor máximo obtido para o crescimento por filme. O tempo de processo é fortemente influenciado pela vazão de suspensão. Para vazões maiores o leito “satura” mais rapidamente, levando o leito ao colapso. Os resultados indicam também haver uma redução no teor de aglomerados com a diminuição da frequência de rotação do distribuidor de ar. Este fenômeno é resultado de um efeito mais pronunciado da pulsação da corrente gasosa para menores frequências de rotação do distribuidor. Resultado inverso é observado em relação à variável vazão de suspensão. O aumento da vazão de suspensão conduz a um aumento no teor de aglomerados, devido provavelmente a um “encharcamento” mais rápido do leito reduzindo a eficiência de secagem e favorecendo a produção de aglomerados. Durante o processo de recobrimento observou-se que os aglomerados são formados na zona de aspersão, próximas ao bico atomizador, devido à grande umidade desta região do leito. As partículas ao passarem por esta região formam grandes aglomerados e estes ao se tornarem pesados caíam sobre o leito. Como muitas vezes a movimentação do leito é insuficiente para quebrar essa massa de partículas, esse fenômeno contribuiu para o aumento do teor de aglomerados. Comportamento semelhante é descrito por SILVA (2003) e CUNHA (2004).

Observa-se também a influência da carga de partículas sobre a eficiência de recobrimento. Operando-se com uma vazão de suspensão fixa observa-se um significativo aumento da eficiência do processo com a elevação da carga do leito. Este fenômeno se deve provavelmente a maior profundidade do leito de partículas quando se opera com cargas elevadas. Para um leito raso as partículas são “varridas” para a lateral do leito devido ao ar de atomização e a suspensão de recobrimento atinge a placa distribuidora, causando perdas de suspensão e conseqüentemente reduzindo a eficiência do processo. O processo de recobrimento de MICROCEL em leito fluidizado pulsado-rotativo é ilustrado na Figura 4.5.



Figura 4.5 – Processo de recobrimento em Leito Fluidizado Pulsado-Rotativo (LFPR)

#### 4.2.2 Determinação da umidade das partículas ao final do processo

Ao final do processo de recobrimento, devido ao colapso do leito, eram coletadas quatro amostras em diferentes regiões do leito de partículas, para a determinação da umidade crítica, em que a qualidade fluidodinâmica do leito se torna inadequada ao processo de recobrimento. A determinação da umidade das partículas era feita através de secagem em estufa na temperatura de 105 °C, por um período de 24 horas. A umidade crítica foi tomada como sendo a média aritmética das quatro amostras coletadas, ficando em torno de 21 %, este valor é próximo ao obtido por SILVA (2003).

O processo de colapso do leito de partículas é precedido pela formação de canais preferenciais e zonas de estagnação próximas à placa distribuidora. A movimentação e conseqüentemente a mistura das partículas no leito ficam comprometidas, até a total estagnação das partículas no leito.

### 4.2.3 Ensaios de recobrimento

De acordo com o planejamento experimental completo  $2^3$  foram realizados inicialmente 11 ensaios de recobrimento.

SILVA (2003) afirma que para um leito convencional é necessária a intermitência na alimentação da suspensão para vazões superiores a 6,0 g/min. Posteriormente CUNHA (2004) obteve que para vazões superiores a 6,4 g/min a intermitência da alimentação da suspensão para um leito fluidizado convencional se fazia necessária.

Os resultados indicam que a alimentação pulsada da corrente gasosa melhora a movimentação das partículas úmidas no leito. O efeito da pulsação da corrente gasosa inibe a formação de zonas “mortas” através do rompimento das pontes líquidas que tendem a “empacotar” e diminuir a movimentação do leito de partículas, conforme descrito por ELENKOV e DJURKOV (1992) e RIBEIRO (2005).

### 4.3 RESULTADO DO PLANEJAMENTO EXPERIMENTAL COMPLETO $2^3$

Os resultados obtidos para as variáveis de resposta, eficiência de recobrimento, crescimento relativo e índice de aglomerados, foram analisados com o auxílio do software STATISTICA<sup>®</sup>. A matriz de planejamento é ilustrada na Tabela 4.3, as variáveis independentes são apresentadas na forma codificada.

Tabela 4.3 – Matriz das variáveis independentes e variáveis resposta para o planejamento experimental completo  $2^3$

Ensaio	$t_{at}$ (min)	M (g)	Ws (g/min)	f (Hz)	$\eta$ (%)	$\chi$ (%)	Agl(%)
1	31,5	-1	-1	-1	75,4	3,00	0,87
2	21,0	-1	+1	-1	86,4	4,52	0,97
3	31,0	-1	-1	+1	62,5	2,43	2,30
4	20,7	-1	+1	+1	73,7	3,81	3,35
5	66,7	+1	-1	-1	90,2	3,80	0,35
6	38,0	+1	+1	-1	92,7	4,40	0,94
7	60,0	+1	-1	+1	76,3	3,41	1,69
8	31,5	+1	+1	+1	89,0	4,20	3,40
9	28,6	0	0	0	77,7	3,42	3,75
10	33,4	0	0	0	69,8	3,58	3,45
11	35,4	0	0	0	75,7	3,33	4,12

Analisando-se os resultados descritos na Tabela 4.3 é possível observar um aumento da eficiência de recobrimento no sentido de aumento da carga de partículas. Os

ensaios com carga de 400 g apresentaram uma eficiência média de 74,5 % contra uma média de 87 % para os ensaios realizados para a carga de 800 g. Esse comportamento pode estar relacionado à profundidade do leito de partículas. Como para uma carga menor a profundidade do leito é reduzida, as gotas atomizadas atingem a placa distribuidora, levando a perdas e a redução da eficiência do processo. A eficiência de recobrimento também é fortemente dependente da vazão de suspensão. Como em vazões maiores a gota atomizada tem maior diâmetro, as perdas por secagem da suspensão são minimizadas, favorecendo o crescimento das partículas. O crescimento relativo das partículas apresentou valores razoáveis, o crescimento observado normalmente para o crescimento por filme é de no máximo 6%. Sendo assim, os ensaios apresentaram resultados satisfatórios de crescimento, apresentando valores que variam de 2,43 a 4,52 %. Em relação ao teor de aglomerados, verifica-se uma redução na formação de aglomerados no sentido de diminuição da frequência de rotação do distribuidor. Segundo WANG e RHODES (2005), a diminuição da frequência provoca um efeito mais pronunciado da pulsação na alimentação do gás de fluidização, ou seja, a amplitude dos pulsos é mais elevada, favorecendo o rompimento das “pontes” líquidas entre as partículas.

Observa-se uma redução do tempo de processo com a elevação da vazão de suspensão, esta redução no tempo de processo justifica-se pelo fato de que para maiores vazões o leito atinge um teor crítico de umidade mais rapidamente, o movimento das partículas é prejudicado e a partir deste ponto a qualidade fluidodinâmica do leito é inadequada ao processo de recobrimento.

De acordo com os resultados obtidos experimentalmente pode-se observar que

- O tempo de processo é fortemente influenciado pela vazão de suspensão e carga de partículas no leito, a eficiência de recobrimento e o crescimento das partículas são influenciados diretamente pela vazão de suspensão.
- A alimentação pulsada da corrente gasosa minimiza a formação de aglomerados.
- A menor expansão do leito de partículas para o LFPR (aproximadamente 2 cm) permite que o bico atomizador opera mais próximo ao leito de partículas minimizando assim, perdas por elutriação da suspensão contribuindo positivamente para a eficiência do processo.

### 4.3.1 Análise estatística das respostas do planejamento completo 2<sup>3</sup>

A resposta do planejamento foi avaliada com o auxílio do software STATISTICA, com um intervalo de confiança de 90 %. Os efeitos das variáveis independentes sobre a resposta eficiência de recobrimento são ilustrados através do diagrama de pareto, a Figura 4.6. Como apresentado na Figura 4.6, a estimativa dos efeitos para a resposta eficiência de recobrimento apresentou valores negativos para a variável frequência de rotação do distribuidor (f) e para a interação entre as variáveis vazão de suspensão e carga de partículas (Ws\*M). As demais interações entre as variáveis independentes e a variável vazão de suspensão apresentaram efeitos positivos sobre a resposta, porém não se mostraram estatisticamente significativos, para um intervalo de confiança de 90 %.

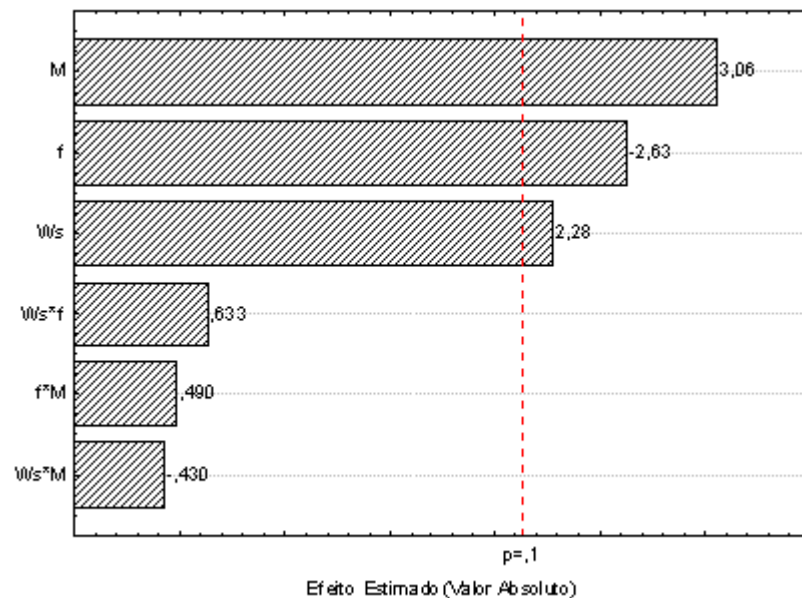


Figura 4.6 – Diagrama de pareto para a resposta eficiência de recobrimento

O diagrama de pareto ilustrado pela Figura 4.6 indica que todas as variáveis estudadas apresentaram efeitos significativos sobre a eficiência de recobrimento. A carga de partículas e a vazão de suspensão possuem efeito positivo sobre a resposta, indicando que uma elevação na carga de partículas e a vazão de suspensão alimentada ao leito conduz á um aumento na eficiência de recobrimento, e a elevação da frequência de pulsação reduz a eficiência do processo. A Tabela 4.4 apresenta a avaliação do modelo obtido para a eficiência do processo de recobrimento realizado através da análise da variância (ANOVA), segundo método descrito por RODRIGES e LEMMA (2005).



Tabela 4.4 – Análise de variância – Eficiência do processo de recobrimento

Fonte de variação	Soma Quadrática	Nº de graus de liberdade	Média Quadrática	F <sub>cal</sub>
Regressão	750,78	6	125,13	3,71
Resíduos	134,91	4	33,73	
Falta de ajuste	101,2	2	50,60	3,00
Erro puro	33,74	2	16,87	
Total	885,69	10		

O modelo para a eficiência do processo de recobrimento foi obtido para um ajuste linear. A equação (4.1) indica o modelo estatístico obtido para a variável resposta eficiência de recobrimento das partículas.

$$\eta = 79,04 + 6,275.M + 4,675.Ws - 5,40.f \quad (4.1)$$

A percentagem de variação explicada através da regressão em torno da média é de 84,76 %. A qualidade do ajuste obtido pelo modelo é de 84,77 %, este resultado indica um nível razoável de ajuste entre os valores previstos pelo modelo e os valores obtidos experimentalmente. Através do teste F para a regressão e para a falta de ajuste foram encontrados os valores da razão entre o valor de F calculado e o valor de F tabelado de 0,60 para a regressão e 0,158 para a falta de ajuste para um nível de confiança de 90 %. Segundo RODRIGES e LEMMA (2005) o modelo é indicado para a predição de valores experimentais quando o valor de F calculado for superior a três vezes o valor de F tabelado, o que não foi obtido para o modelo obtido, portanto segundo o teste F o modelo não deve ser utilizado para a predição das respostas.

A Figura 4.7 apresenta uma comparação entre os valores observados experimentalmente e os valores previstos pelo modelo linear. Observa-se uma distribuição razoável dos pontos em torno da reta, verifica-se que para valores próximos a 75 % e 87 % de eficiência o comportamento dos resultados experimentais apresenta uma maior tendência e proximidade aos valores previstos pelo modelo.

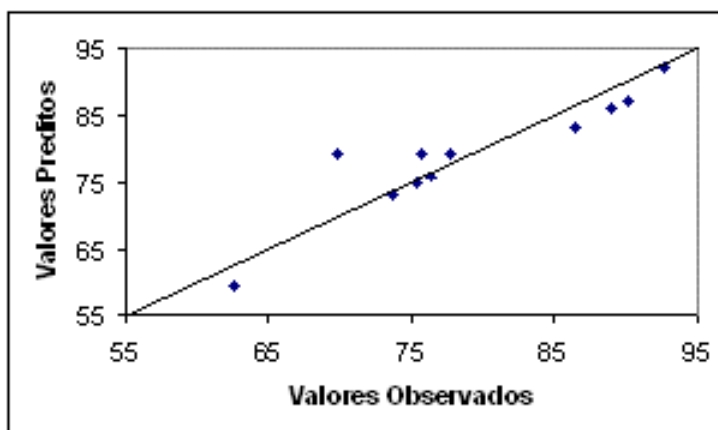


Figura 4.7 – Valores observados em função dos valores previstos –  $\eta$  (eficiência)

A distribuição dos resíduos é mostrada na Figura 4.8, observa-se uma distribuição não aleatória dos resíduos em torno da média, indicando que o modelo não representa de forma adequada as variações obtidas experimentalmente para a faixa de valores estudada.

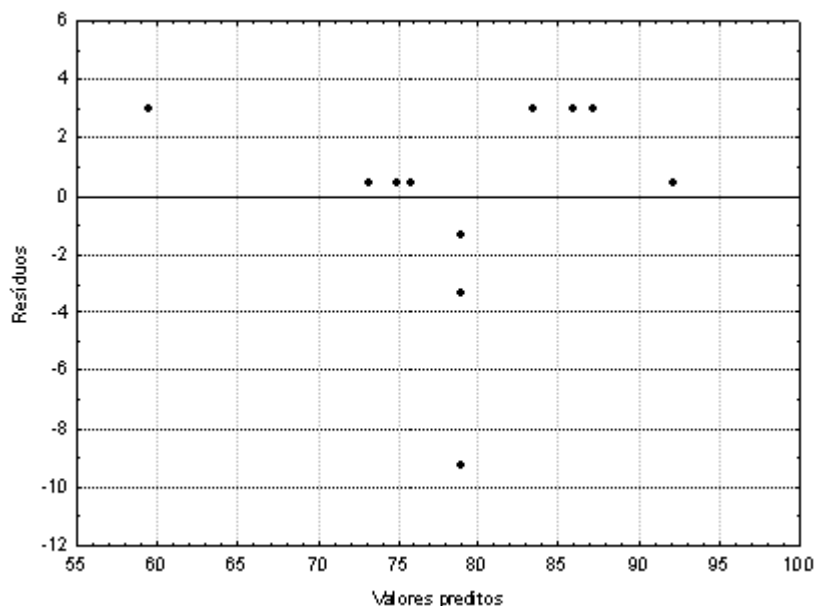


Figura 4.8 – Distribuição dos resíduos para a resposta eficiência de recobrimento

#### Resultados obtidos para a resposta crescimento de partículas ( $X$ )

A análise da resposta crescimento relativo deve considerar o tempo de processo, deste modo à análise estatística não foi realizada para esta resposta. Análises de ensaios com tempos de processo semelhantes fornecem uma idéia das influências das variáveis estudadas sobre o crescimento em massa das partículas de CMC. Comparando-se os ensaios 1,3 e 8 pode-se observar uma redução do crescimento relativo em razão do aumento

da frequência de pulsação da corrente gasosa, e uma elevação do crescimento relativo em função da elevação da vazão de suspensão e da carga de partículas no leito. Esta análise indica que as variáveis estudadas apresentam efeitos sobre o crescimento relativo em massa. A comparação dos resultados obtidos para os ensaios 2 e 4 indicam o efeito da frequência de pulsação da corrente gasosa sobre o crescimento relativo das partículas, a elevação da frequência de 5 para 15 Hz provocou uma redução significativa no crescimento alcançado.

#### Resultados obtidos para a resposta teor de aglomerados (Agl)

Os efeitos das variáveis independentes sobre a resposta teor de aglomerados são ilustrados na Figura 4.9. Observa-se que as variáveis estudadas não apresentaram efeitos significativos sobre a resposta para um intervalo de confiança de 90 %. Os efeitos sobre a variável teor de aglomerados foram negativos apenas para a carga de partículas (M) e para a interação frequência-carga de partículas ( $f^*M$ ). As variáveis frequência de rotação do distribuidor (f) e vazão de suspensão (Ws) apresentaram efeitos positivos sobre o teor de aglomerados, sendo que a variável independente que se mostrou mais relevante foi a frequência de rotação dos distribuidor de gás (f), indicando que a elevação da frequência de distribuição do gás de fluidização favorece o fenômeno de aglomeração .

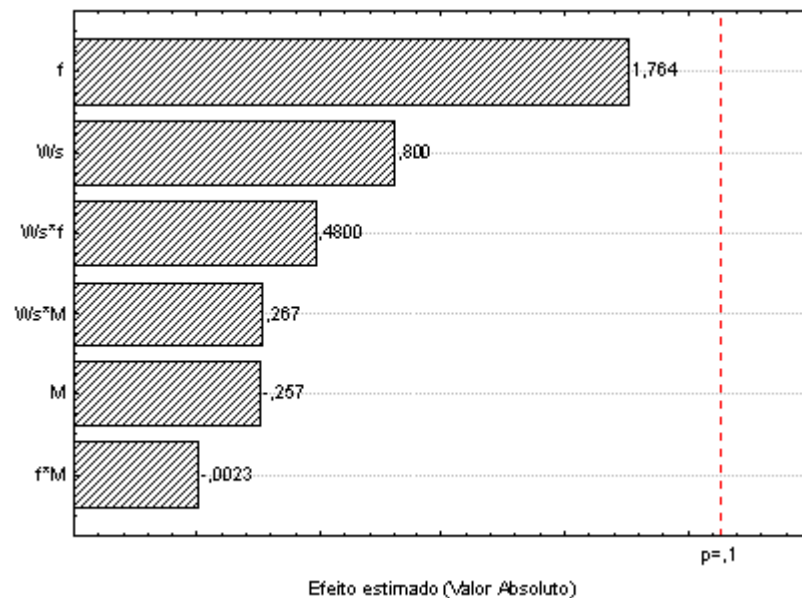


Figura 4.9 – Diagrama de pareto para a resposta teor de aglomerados

A partir da análise estatística realizada e das tendências observadas dos efeitos das variáveis independentes estudadas sobre as variáveis respostas, pode-se concluir:

- A melhor condição de operação do leito é alcançada operando com o nível mais elevado de carga de partículas no leito, menor frequência de distribuição do gás de fluidização e maior vazão de suspensão, pois para estas condições observa-se uma maior eficiência, maior crescimento relativo e um teor menor de aglomerados;
- O aumento da vazão de suspensão associado à redução da frequência de distribuição do ar favorece o crescimento relativo das partículas;
- A redução da frequência de pulsação da corrente gasosa minimiza a formação de aglomerados;
- A utilização de maiores cargas de partículas alimentadas ao leito provoca um aumento da eficiência de recobrimento;
- O tempo de processo estável é drasticamente reduzido com a elevação da vazão de suspensão;
- O efeito de pulsação da corrente gasosa garante um movimento cíclico das partículas no interior do leito, elevando o grau de mistura das partículas e favorecendo o processo de recobrimento.

O efeito positivo da variável carga de partículas (M) sobre o crescimento relativo é justificado através da saturação mais rápida do leito para cargas menores, que reduz o tempo de processo e conseqüentemente faz com que a massa de sólidos aderida á superfície da partícula seja menor, reduzindo o crescimento relativo. Este fato é observado no trabalho de YANG et al. (1992) que verificou uma redução na velocidade de liberação de comprimidos de propanolol aumentando-se a carga de partículas no leito durante o recobrimento em leito fluidizado com atomização no topo, o que indica que a massa de partículas alimentada ao leito tem influência significativa para o processo de recobrimento de partículas.

#### **4.3.2 RESULTADO DO PLANEJAMENTO EXPERIMENTAL COMPLETO 2<sup>4</sup>**

Após a análise dos resultados obtidos no planejamento completo 2<sup>3</sup>, optou-se por realizar um estudo mais aprofundado do processo de recobrimento em leito fluidizado pulsado-rotativo (LFPR). Manteve-se fixa a carga de partículas alimentada ao leito em 700 g, sendo este parâmetro escolhido em função do descrito por SILVA (2003) e mantido para

efeito de comparação. Optou-se por inserir as variáveis pressão de atomização ( $P_{at}$ ) e temperatura de entrada do ar de fluidização ( $T_{ar}$ ), além da frequência de rotação do distribuidor ( $f$ ) e vazão de suspensão ( $W_s$ ). Os resultados obtidos são mostrados na Tabela 4.5.

Tabela 4.5 – Resultados obtidos para o planejamento completo  $2^4$ 

Ensaio	$t_{at}$ (min)	$T_{ar}$	$P_{at}$	$f$	$W_s$	$\eta$ (%)	$\chi$ (%)	Agl (%)
1	41	-1	-1	-1	-1	82,6	2,20	0,97
2	40	1	-1	-1	-1	80,5	2,00	0,61
3	39	-1	1	-1	-1	66,6	1,78	0,65
4	40	1	1	-1	-1	60,5	1,65	0,43
5	41	-1	-1	1	-1	63,7	1,77	1,31
6	43	1	-1	1	-1	60,3	1,80	1,19
7	39	-1	1	1	-1	62,9	1,67	1,10
8	42	1	1	1	-1	59,8	1,73	0,90
9	25	-1	-1	-1	1	97,5	3,32	1,54
10	25	1	-1	-1	1	78,5	2,64	0,95
11	30	-1	1	-1	1	75,3	2,90	1,23
12	27	1	1	-1	1	71,2	2,60	0,76
13	26	-1	-1	1	1	87,4	3,12	1,40
14	21	1	-1	1	1	81,5	2,31	1,04
15	24	-1	1	1	1	84,2	2,68	1,00
16	21	1	1	1	1	76,7	2,18	0,88
17	26	0	0	0	0	73,0	1,98	1,30
18	27	0	0	0	0	72,3	2,03	1,26
19	24	0	0	0	0	74,1	1,87	1,32

### 4.3.3 Análise dos efeitos das variáveis estudadas sobre as respostas do planejamento

#### Eficiência do processo de recobrimento

O diagrama de pareto ilustrado na Figura 4.10 mostra o efeito das variáveis estudadas sobre a eficiência do processo de recobrimento. Observa-se que todas as

variáveis estudadas se mostraram estatisticamente significativas para um intervalo de confiança de 95 %.

Como pode-se observar na Figura 4.10, a estimativa dos efeitos para a eficiência do processo de recobrimento apresentou efeitos negativos para as variáveis pressão de atomização ( $P_{at}$ ), temperatura do ar de entrada ( $T_{ar}$ ) e frequência de pulsação da corrente gasosa ( $f$ ). Os efeitos positivos sobre a eficiência do processo são obtidos para a vazão de suspensão ( $W_s$ ) e pelas interações ( $P_{at}*f$ ) e ( $f*W_s$ ); as demais interações não se apresentaram estatisticamente significativas para um intervalo de confiança de 95 %.

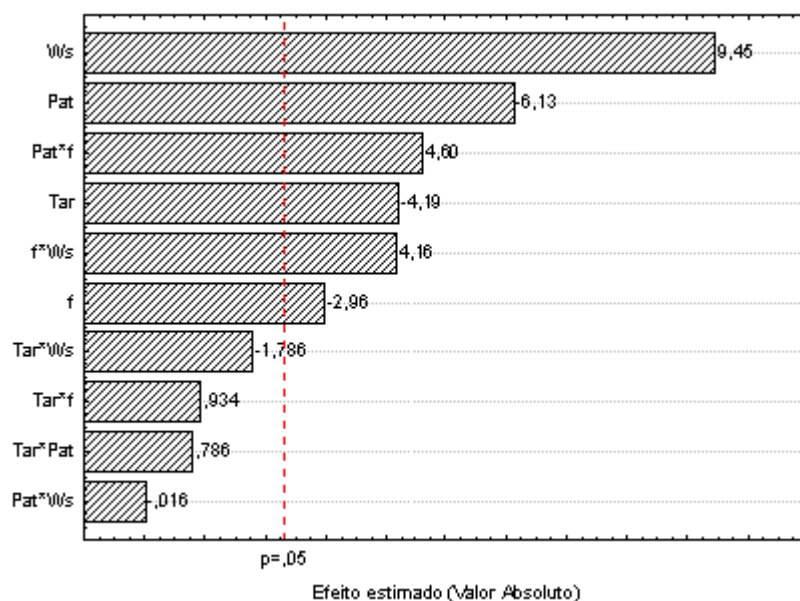


Figura 4.10 – Diagrama de Pareto para a resposta eficiência de processo ( $\eta$ )

Através da Figura 4.10 pode-se observar as variáveis independentes de maior influência sobre a eficiência de recobrimento. O aumento da vazão de suspensão ( $W_s$ ) provoca um aumento da eficiência de recobrimento, apresentando-se como a variável mais significativa. Esse aumento na eficiência se deve provavelmente ao fato de que uma maior taxa de alimentação de suspensão reduz a possibilidade de elutriação da suspensão durante o processo. Observa-se que a pressão de atomização provoca uma redução na eficiência do processo, em virtude de uma redução no diâmetro da gota de suspensão aspergida sobre o leito de partículas, o que favorece a secagem e elutriação da suspensão antes que a mesma atinja a superfície da partícula. Comportamento semelhante é descrito por (SILVA, 2003). A frequência de rotação do distribuidor de gás e a temperatura do ar também provocam redução na eficiência do processo de recobrimento. A operação do leito em temperaturas

elevadas favorece a secagem da suspensão antes de seu contato com as partículas, reduzindo assim a eficiência de recobrimento. Em relação à frequência de rotação do distribuidor, o efeito negativo sobre a eficiência pode ser explicado em função da menor movimentação observada no leito de partículas quando se opera a frequências elevadas, sob estas condições o comportamento do leito se aproxima de um equipamento de fluidização convencional que possui uma menor movimentação o que favorece o processo de aglomeração, conduzindo a perdas de material de recobrimento em virtude de a atomização ser realizada sobre um leito com movimentação deficiente, isto reduz o tempo de processo e conseqüentemente o crescimento relativo e eficiência, em virtude da rápida saturação do leito. A operação sob frequências reduzidas faz com que os caminhos preferenciais causados pela umidade sejam desfeitos, em função do efeito mais pronunciado da pulsação da corrente gasosa, o que favorece a movimentação das partículas no equipamento. A combinação da pressão de atomização e frequência ( $P_{at} \cdot f$ ) e da frequência com a vazão de suspensão ( $f \cdot W_s$ ) provocam uma elevação na eficiência do processo.

A validação estatística do modelo é obtida através da análise de variância conforme descrito na Tabela 4.6.

Tabela 4.6 – Análise de variância para a eficiência do processo de recobrimento

<b>Fonte de variação</b>	<b>Soma Quadrática</b>	<b>Nº de graus de liberdade</b>	<b>Média Quadrática</b>	<b>F</b>
Regressão (R)	1830,03	10	183,00	19,63
Resíduos (r)	74,53	8	9,32	
Falta de ajuste	72,88	6	12,15	14,82
Erro puro	1,65	2	0,82	
Total	1904,56	18		

De acordo com os resultados apresentados na Tabela 4.6 o modelo apresenta uma boa qualidade de ajuste. A regressão é responsável por 96,08 % da variação total em torno da média de um máximo de 100 %. A qualidade do ajuste obtido para o modelo é de 96,1 %, o que é um indicativo de que há um bom ajuste entre os valores previstos pelo modelo e os resultados obtidos experimentalmente. O valor de F calculado é 5,86 vezes superior ao valor de F tabelado para um nível de confiança de 95 %. O teste F para a falta de ajuste

apresentou um valor de 0,76 indicando que o modelo pode ser utilizado para a predição de valores experimentais.

A Figura 4.11 mostra a comparação entre valores experimentais e valores preditos pelo modelo obtido, observa-se um ajuste satisfatório entre os valores observados e preditos.

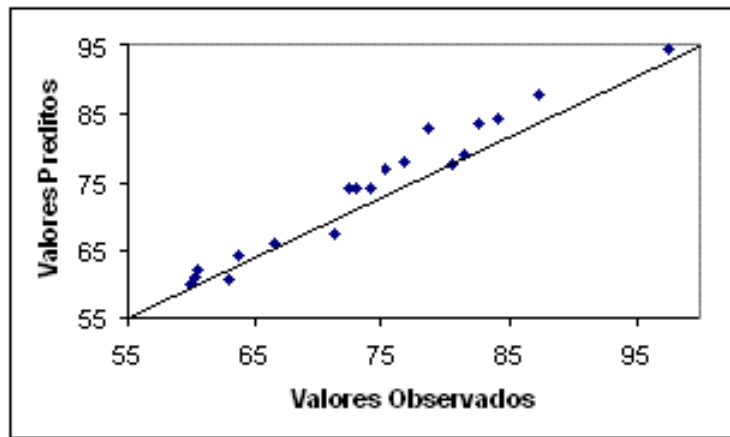


Figura 4.11 – Valores observados em função dos valores previstos –  $\eta$  (eficiência)

A Figura 4.12 mostra a distribuição dos resíduos para a eficiência de recobrimento. A distribuição aleatória dos resíduos indica que o modelo representa de forma adequada as variações da eficiência de recobrimento.

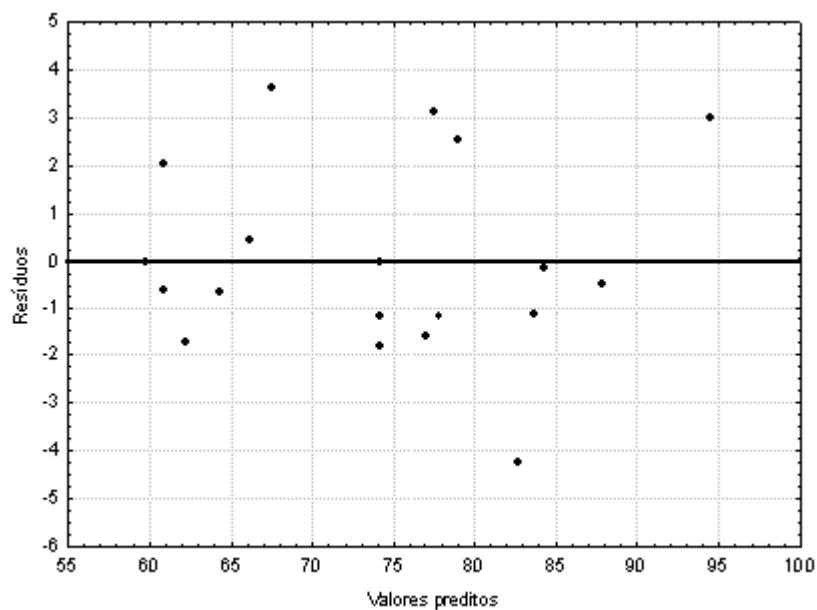


Figura 4.12 – Distribuição dos resíduos para a eficiência do processo



Os resultados obtidos indicam que foi possível obter um modelo estatisticamente significativo para a predição de valores experimentais. O modelo obtido é descrito pela equação (4.3).

$$\eta = 74,14 - 3,20.T_{ar} - 4,68.Pat - 2,26.f + 7,21.Ws + 3,17.f.Ws + 3,51.Pat.f \quad (4.2)$$

### Análise das superfícies de resposta

Verificou-se através do teste F que o modelo é estatisticamente significativo para a predição de valores experimentais. Assim, o modelo pode ser utilizado para gerar as superfícies de resposta.

Nas Figuras 4.16 à 4.21 são ilustradas as superfícies de resposta para a eficiência de recobrimento, em função das variáveis independentes estatisticamente significativas, mantendo-se fixas as demais variáveis em seu nível central.

A Figura 4.13 indica um aumento da eficiência do processo de recobrimento no sentido de diminuição da pressão de atomização juntamente com a temperatura de entrada do ar. A temperatura mais elevada pode favorecer também o processo de secagem da suspensão antes que a superfície das partículas seja atingida, conforme discutido anteriormente.

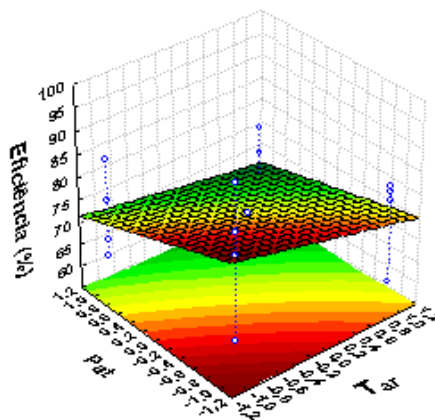


Figura 4.13 – Superfície de resposta para eficiência de processo em função de  $T_{ar}$  e  $P_{at}$  para  $W_s = 7,3$  g/min e  $f = 10$  Hz

Nas Figuras 4.17 e 4.18 observa-se a influência negativa da frequência de distribuição da corrente gasosa sobre a eficiência de recobrimento. A melhor movimentação obtida para menores frequências conduz a uma elevação da eficiência do processo, em virtude da redução da formação de aglomerados.

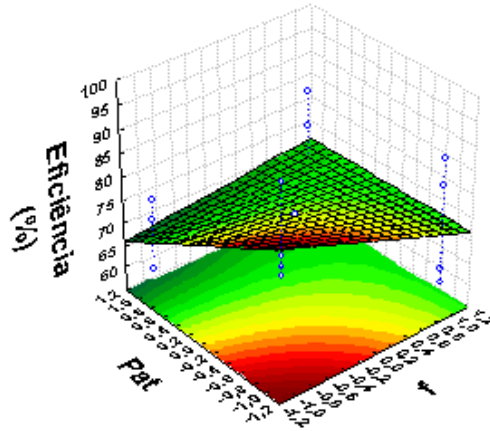


Figura 4.14 – Superfície de resposta para eficiência de recobrimento em função de  $P_{at}$  e  $f$  para  $W_s = 7,3$  g/min e  $T_{ar} = 60$  °C

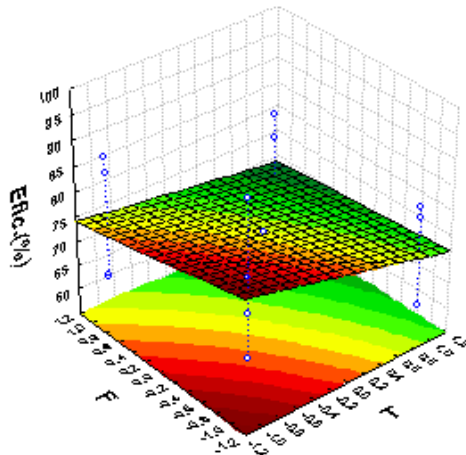


Figura 4.15 – Superfície de resposta para eficiência de recobrimento em função de  $f$  e  $T_{ar}$  para  $W_s = 7,3$  g/min e  $P_{at} = 120,66$  kPa

As Figuras 4.19, 4.20 e 4.21 apresentam o efeito positivo da vazão de suspensão sobre a eficiência de recobrimento. As figuras mostram uma tendência de aumento da eficiência do processo no sentido de aumento da vazão de suspensão.

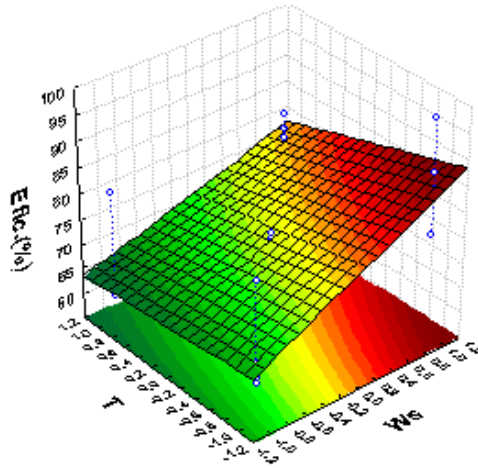


Figura 4.16 –Superfície de resposta para eficiência de recobrimento em função de  $T_{ar}$  e  $W_s$  para  $f = 10$  Hz e  $Pat = 120,6$  kPa

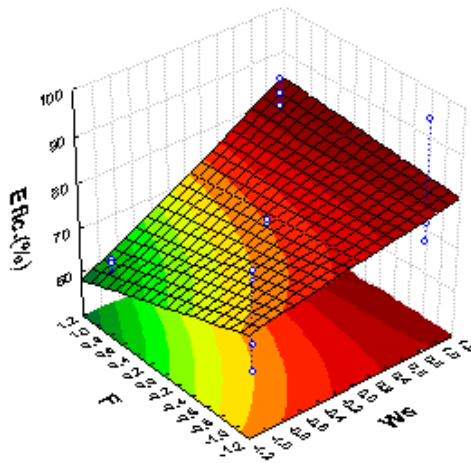


Figura 4.17 – Superfície de resposta para eficiência em função de  $f$  e  $W_s$  para  $T_{ar} = 60$  °C e  $Pat = 120,6$  kPa

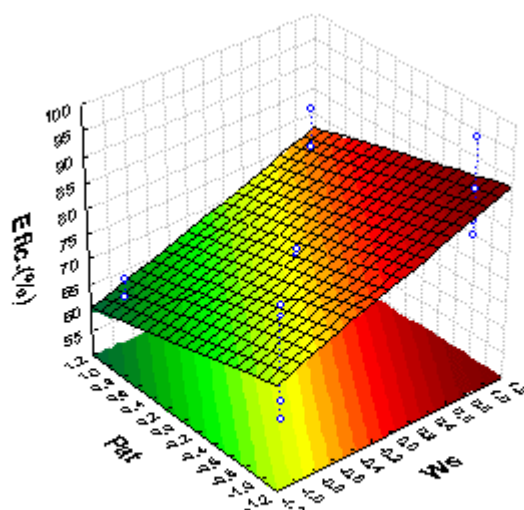


Figura 4.18 – Superfície de resposta para eficiência de recobrimento em função de Pat e Ws para  $T_{ar} = 60\text{ }^{\circ}\text{C}$  e  $f = 10\text{ Hz}$

#### Crescimento relativo das partículas ( $\gamma$ )

A Tabela 4.5 pode ser analisada para a resposta crescimento relativo, escolhendo-se ensaios em que o tempo de processo é aproximadamente constante. Observa-se uma redução no crescimento de partículas entre os ensaios 1 e 2 o que indica um efeito negativo da temperatura do ar sobre o crescimento relativo, comportamento semelhante para a pressão de atomização é observado comparando-se os ensaios 1 e 3, indicando haver um efeito negativo do aumento da pressão de atomização sobre o crescimento das partículas. A vazão de suspensão apresenta efeito positivo sobre o crescimento relativo, este fato pode ser observado comparando-se os resultados obtidos para os ensaios 2 e 11 além dos ensaios 8 e 21, assim como o obtido para a resposta eficiência de recobrimento.

Como citado anteriormente, o efeito negativo da pressão de atomização sobre o crescimento das partículas de MICROCEL se deve ao fato de que para pressões mais elevadas o tamanho da gota de suspensão aspergida sobre o leito de partículas é reduzido, favorecendo a secagem e conseqüente elutriação da suspensão antes que seja atingida a superfície da partícula, reduzindo a quantidade de material disponível para o crescimento das partículas.

A temperatura de entrada do ar de fluidização também apresentou influência negativa sobre o crescimento das partículas de MICROCEL. A temperatura mais elevada

do ar de fluidização favorece a secagem da suspensão, reduzindo conseqüentemente o crescimento das partículas.

Apesar de não se apresentar estatisticamente significativa a frequência de pulsação do gás de fluidização apresentou efeito negativo sobre o crescimento das partículas, como observado para o planejamento anterior. A movimentação mais eficiente obtida para frequências reduzidas favorece o crescimento das partículas, em virtude do aumento no tempo de processo.

#### Índice de aglomerados

A Figura 4.19 apresenta o diagrama de pareto para a resposta índice de aglomerados. Observa-se que todas as variáveis independentes apresentaram-se estatisticamente significativas sobre a resposta para um nível de confiança de 95 %. A temperatura de entrada do ar ( $T_{ar}$ ) apresentou efeito negativo sobre o índice de aglomerados e se apresentou como a variável mais relevante. A pressão de atomização e a interação frequência-vazão de suspensão ( $f \cdot W_s$ ) também apresentaram efeitos negativos sobre a resposta. Os efeitos positivos sobre o índice de aglomerados são obtidos para as variáveis vazão de suspensão ( $W_s$ ) e frequência de pulsação da corrente gasosa ( $f$ ).

A Tabela 4.7 mostra os resultados obtidos para a análise de variância (ANOVA) para a resposta índice de aglomerados.

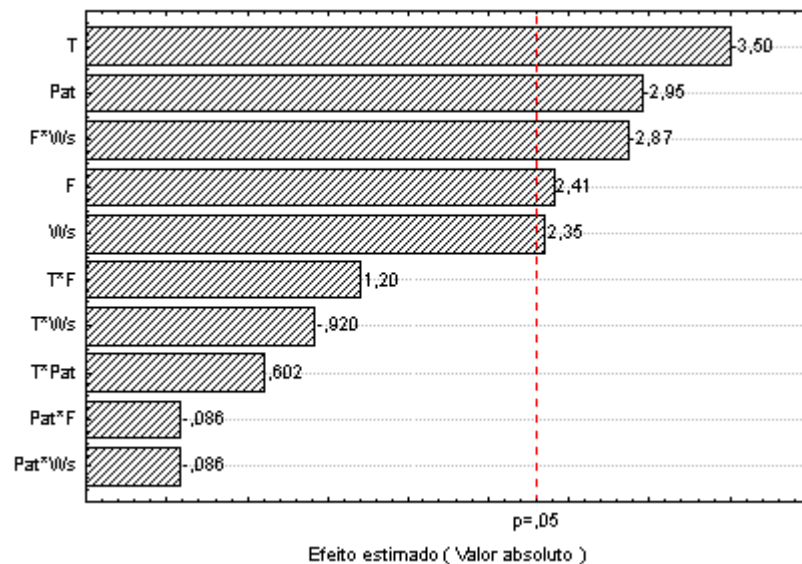


Figura 4.19 – Diagrama de pareto para a resposta índice de aglomerados (Agl)

O modelo obtido para a resposta índice de aglomerados é descrito pela equação (4.5).

$$Agl = 1,04 - 0,153.T_{ar} - 0,129.Pat + 0,105.f + 0,102.Ws - 0,125.f.Ws \quad (4.3)$$

Tabela 4.7- Análise de variância para a resposta índice de aglomerados (Agl)

Fonte de variação	Soma Quadrática	Nº de graus de liberdade	Média Quadrática	F
Regressão	1,313	10	0,131	4,37
Resíduos	0,243	8	0,030	
Falta de ajuste	0,241	6	0,040	42,78
Erro Puro	0,00187	2		
Total	1,556	18		

A regressão explica 84,38 % da variação em torno da média, para um máximo explicável de 100 %. A razão  $F_{\text{tab}}/F_{\text{cal}}$  apresentou valores de 0,77 e 0,45 para regressão e falta de ajuste respectivamente, o que indica que o modelo não deve ser utilizado para predição de resultados experimentais. A qualidade do ajuste obtido para o modelo foi de 84,4 % o que indica haver um ajuste apenas razoável entre os valores preditos pelo modelo e observados experimentalmente.

A Figura 4.20 mostra um bom ajuste entre os valores preditos e observados apesar da invalidação do modelo pelo teste F.

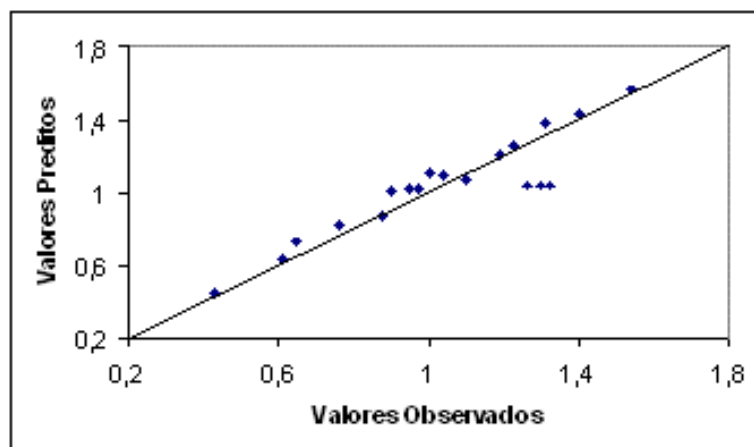


Figura 4.20 – Valores preditos em função dos valores observados para a resposta índice de aglomerados (Agl)

A Figura 4.21 mostra a distribuição dos resíduos para a resposta índice de aglomerados, observa-se que os resultados preditos apresentaram desvios positivos em sua maioria, observa-se uma distribuição não aleatória para valores acima de 1,2 %.

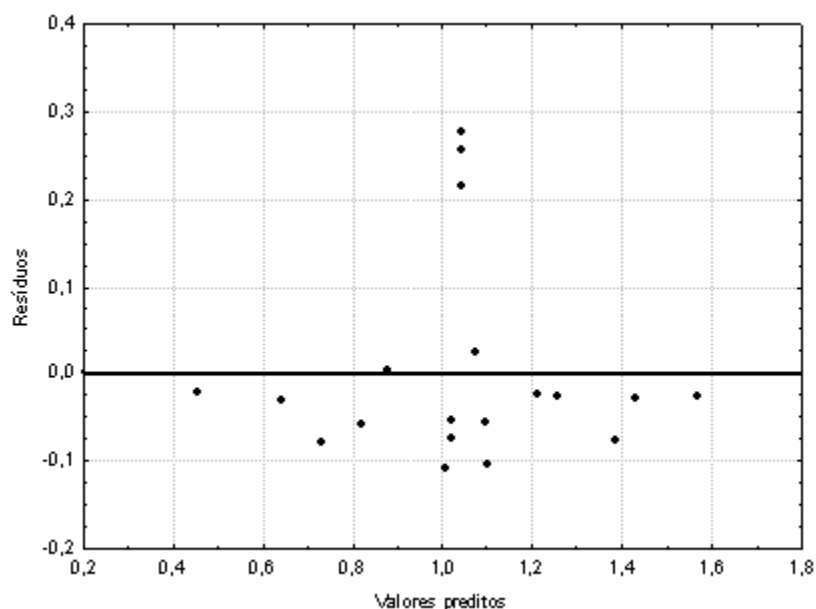


Figura 4.21 – Distribuição de resíduos para a resposta índice de aglomerados (Agl)

Durante os ensaios experimentais observou-se a formação de aglomerados na zona de aspersão do conjunto atomizador. A elevada umidade existente nesta região favorece a aglomeração de partículas; observa-se a formação de um conjunto de partículas como uma “bola de neve”, que ao se tornar pesada recai sobre o leito de partículas e, devido ao seu elevado teor de umidade a movimentação fluidodinâmica do leito não é suficiente para

romper as ligações formadas entre as partículas. Este comportamento foi observado também por SILVA (2003) e CUNHA (2004), que trabalharam com recobrimento de celulose microcristalina em leito fluidizado convencional.

Durante os ensaios experimentais verificou-se que a formação de aglomerados junto ao bocal de aspersão do conjunto atomizador era mais acentuada quando a operação era realizada para o nível inferior de pressão de atomização e vazões elevadas de suspensão. A associação destas duas variáveis promove um aumento significativo no tamanho de gotas aspergidas sobre o leito, o que exige uma maior eficiência de secagem do equipamento para que o processo de aglomeração seja minimizado, além do que a umidade junto ao bocal de aspersão é mais pronunciada para estas condições, o que favorece a formação de aglomerados junto a essa região.

A influência negativa da temperatura de entrada do ar ( $T_{ar}$ ) sobre o fenômeno de aglomeração se deve ao fato de que sob temperaturas mais elevadas a suspensão evapora de forma mais rápida, reduzindo assim o teor de umidade das partículas no leito e inibindo a formação de pontes líquidas entre as partículas, responsáveis pela aglomeração.

O efeito positivo da frequência de pulsação do gás de fluidização indica que sob frequências reduzidas o fenômeno aglomeração de partículas é minimizado. A operação do equipamento de leito fluidizado pulsado-rotativo sob frequências reduzidas faz com que o efeito de pulsação seja mais pronunciado no leito de partículas, fazendo com que a movimentação das partículas seja mais eficiente e conseqüentemente reduzindo a possibilidade de atuação de forças coesivas sobre as partículas, levando a redução no índice de aglomerados obtido. Sob elevadas frequências a fluidização passa a se comportar como um processo de fluidização convencional, e o efeito de pulsação da corrente gasosa é inexpressivo.

#### **4.4 ANÁLISE VIA MICROSCÓPIO ÓPTICO**

A análise da superfície das partículas recobertas é ilustrada nas Figuras 4.28 e 4.29 para os ensaios 9 e 13, respectivamente. As imagens foram obtidas através de microscópio óptico com ampliação de 40 vezes. A análise das imagens indica um recobrimento uniforme, o que comprova a elevada eficiência de recobrimento apresentada pelos ensaios experimentais. As imagens mostram uma boa aparência das partículas recobertas, apresentando uma coloração homogênea, conferindo desta forma, uma estética agradável ao



produto final. As imagens indicam também o recobrimento de toda a superfície das partículas.

Os aglomerados ilustrados foram, em sua maior parte, produzidos na zona de aspersão do bico atomizador, conforme descrito por SILVA (2003) e CUNHA (2004).

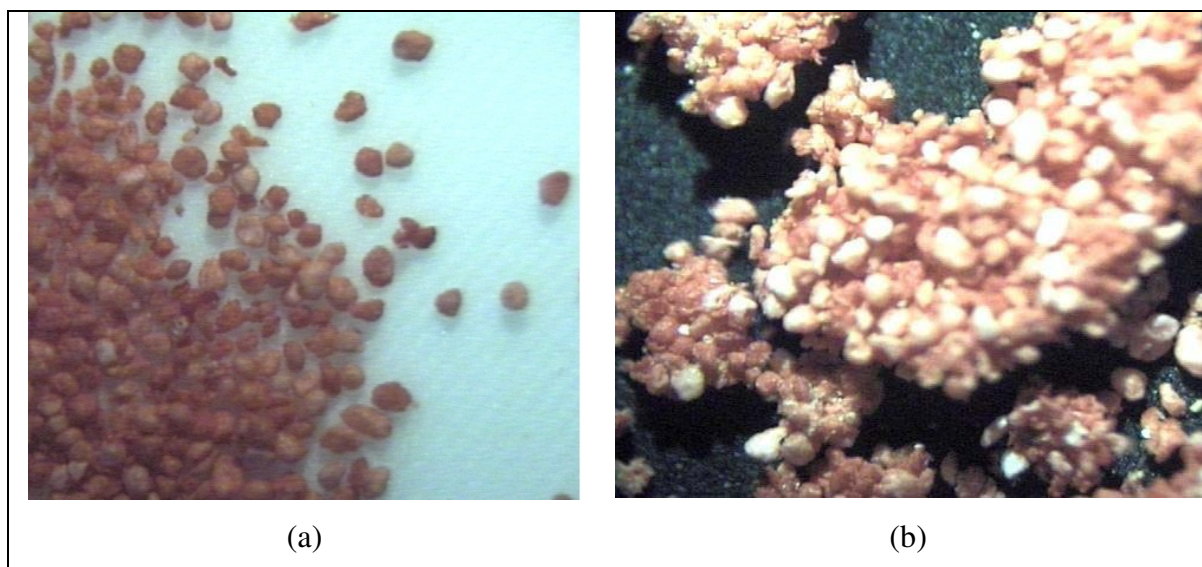


Figura 4.22 – Imagem das partículas recobertas para o ensaio 9 (ampliação de 40 X). (a) partículas recobertas; (b) aglomerados.

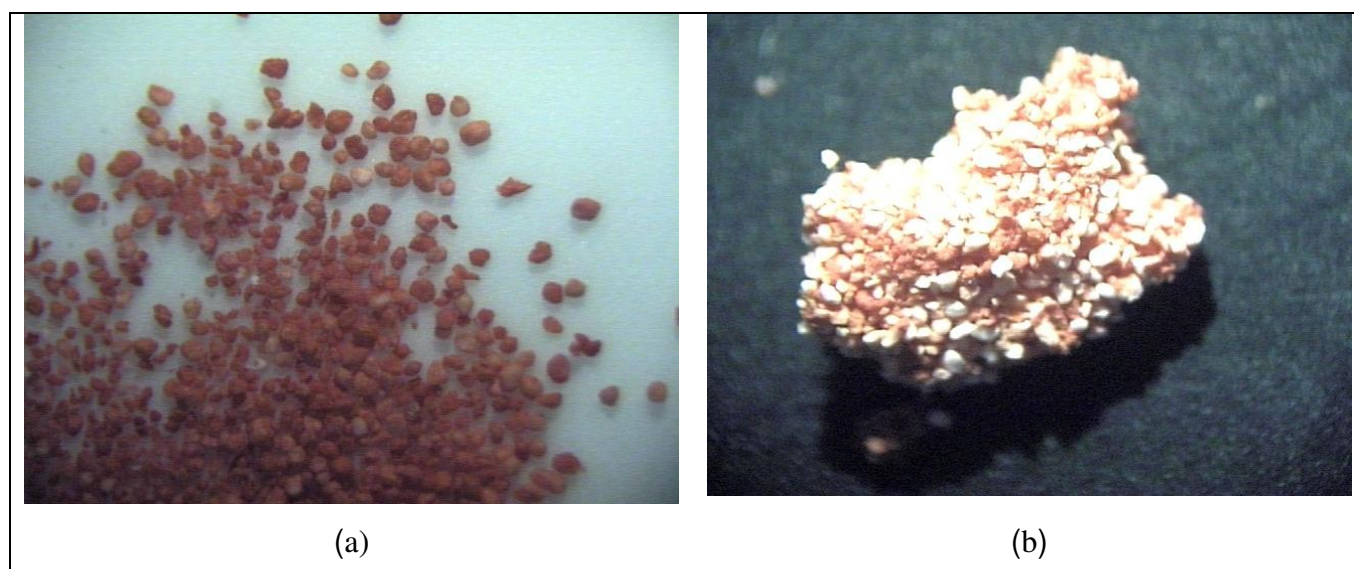


Figura 4.23 – Imagem das partículas recobertas para o ensaio 13 (ampliação de 40X). (a) partículas recobertas; (b) aglomerados obtidos.

#### 4.5 ANÁLISE DE REABSORÇÃO DE UMIDADE

A Tabela 4.8 mostra as condições de realização dos ensaios e os resultados obtidos para o teste de absorção de umidade das partículas recobertas, para os ensaios 9, 13, 14 e 15 e para partículas de celulose sem recobrimento. A escolha destes ensaios teve como motivação a elevada eficiência, o que teoricamente indica uma maior espessura do filme polimérico depositado sobre a partícula.

A análise de reabsorção foi realizada em um equipamento DVS (Dynamic Vapour Sorption), em que a umidade relativa no ambiente em que está exposta a amostra é controlada automaticamente.

Tabela 4.8 – Resultados obtidos para a análise de absorção de umidade

T (°C)	24,9 °C	24,9 °C	25,1 °C	25,0 °C	24,9 °C
M(g)	0.055227	0.058703	0.060547	0.053799	0.054523
<b>Teor de Umidade em base seca (%)</b>					
<b>UR (%)</b>	<b>Ensaio 9</b>	<b>Ensaio 13</b>	<b>Ensaio 14</b>	<b>Ensaio 15</b>	<b>S/ recobrimento</b>
0.0	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
9.5	1,42	1,44	1,37	1,57	1,58
19.0	2,41	2,47	2,54	2,58	2,52
28.5	3,29	3,41	3,37	3,47	3,40
38.0	4,20	4,36	4,25	4,37	4,36
47.5	5,13	5,35	5,16	5,32	5,28
57.0	6,39	6,41	6,19	6,34	6,33
66.5	7,58	7,66	7,39	7,46	7,54
76.0	9,15	9,35	8,98	9,00	9,18
85.5	11,26	11,50	10,90	10,99	11,34
95.0	14,77	14,87	14,61	14,56	15,16

A Figura 4.24 mostra as isotermas de adsorção de vapor de água para todas as amostras analisadas. Observa-se que não há diferença significativa na reabsorção de

umidade para os ensaios analisados em relação à celulose sem recobrimento. Este resultado indica que a absorção de umidade das partículas e celulose microcristalina é independente da espessura da camada de recobrimento depositada sobre a partícula.

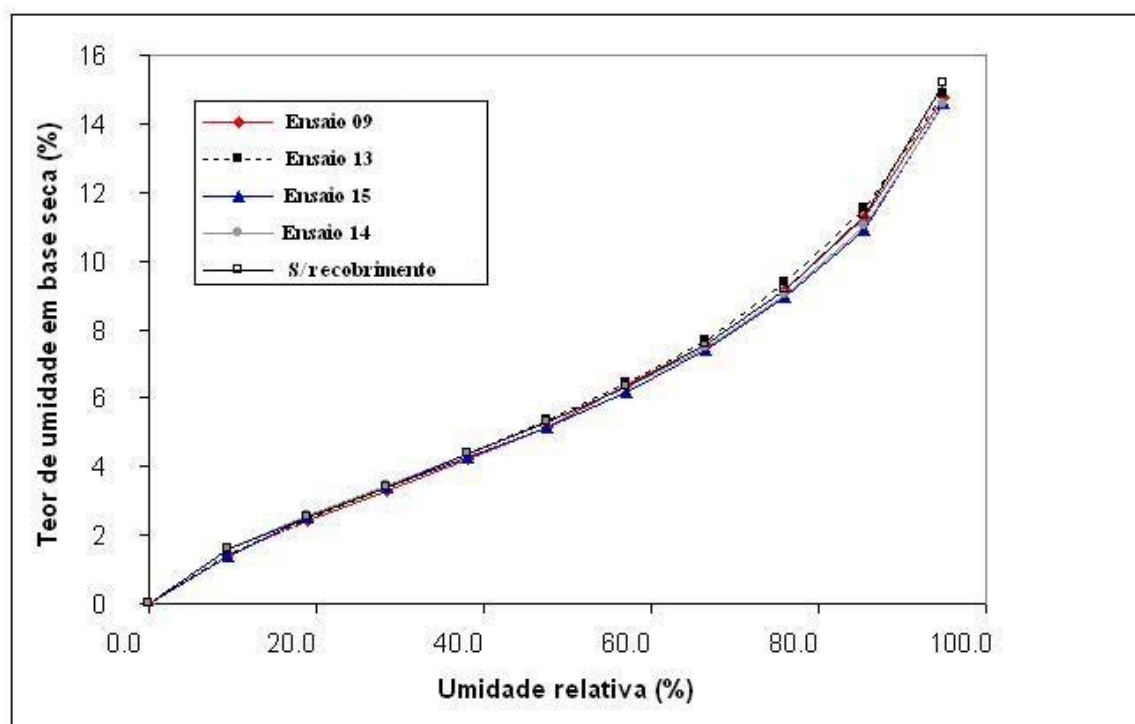


Figura 4.24 – Isotermas de adsorção de vapor de água para os ensaios 9, 13, 14, 15 e para celulose não recoberta

O comportamento apresentado na Figura 4.24, indica que o recobrimento à base de Eudragit® é inadequado para a proteção da matriz sólida de ambientes de elevada umidade relativa, ou materiais altamente higroscópicos, uma vez que a absorção de umidade pode provocar a degradação da matriz sólida ou do princípio ativo adicionado à matriz.

O resultado obtido está de acordo com o observado por SILVA (2003), que verificou não haver diferença no comportamento de reabsorção de umidade entre as partículas recobertas e partículas isentas de recobrimento. No entanto é preciso salientar que o objetivo central de aplicação do polímero Eudragit® é conferir resistência a transferência de massa sob condições de pH ácido e não o controle de absorção de umidade.

#### 4.5.1 Comparação entre o comportamento do processo em LFPR e LFC

De acordo com os resultados obtidos verifica-se que os efeitos das variáveis analisadas sobre o processo de recobrimento seguem a mesma tendência nos dois equipamentos. Foi necessária a utilização de níveis mais elevados para a variável pressão

de atomização para a operação do LFPR em comparação com o descrito na literatura para o leito fluidizado convencional. Em virtude da maior proximidade do bico atomizador, a operação em níveis inferiores aos analisados provocava a rápida saturação do leito.

A comparação dos dois planejamentos mostra que no leito fluidizado pulsado-rotativo houve uma ocorrência maior de aglomerados quando o equipamento foi operado para o recobrimento de partículas de diâmetro médio ( $d_p$ ) reduzido, resultado oposto ao obtido por SILVA (2003) que analisou o processo de recobrimento de MICROCEL em leito fluidizado convencional.

Como descrito na literatura (CUNHA, 2004; SILVA, 2003), a umidade das partículas é o fator determinante para o processo de defluidização do leito, e o valor crítico de umidade das partículas de celulose microcristalina observado na operação em LFPR é próxima de 22 % em base úmida, que é semelhante ao valor obtido pelos autores em leito fluidizado convencional.

O aumento do limite da vazão de suspensão para a operação contínua foi de aproximadamente 48 %, esse aumento deve-se ao efeito de pulsação da corrente gasosa que eleva o grau de mistura entre as partículas e inibe a formação ou consegue romper as pontes líquidas entre as mesmas, o que permite a operação do equipamento com vazões mais elevadas de suspensão.

## 5 CONCLUSÕES

De acordo com os resultados obtidos, pode-se concluir:

- As curvas fluidodinâmicas obtidas para a celulose microcristalina mostraram uma suavização na condição de mínima fluidização, sem a apresentação de picos de pressão na condição de mínima fluidização que é um comportamento típico do (LFPR).
- A fluidodinâmica do leito não é afetada pelo ar de atomização, mas observa-se uma movimentação mais intensa das partículas para a faixa de pressões analisada.
- Devido a baixa expansão do leito de partículas é necessária uma maior proximidade do bico atomizador em relação ao leito fixo, comparado a operação em LFC.
- Os testes de recobrimento preliminares indicaram que a operação do leito fluidizado pulsado rotativo, com alimentação contínua da suspensão de recobrimento é viável para vazões inferiores a 9,5 g/min. A alimentação contínua acima deste valor se tornou proibitiva em função da rápida saturação do leito.
- Os efeitos significativos das variáveis investigadas através dos planejamentos experimentais foram os seguintes:
  1. Carga de partículas (M) – apresentou efeito positivo sobre o crescimento relativo (X), não apresentou efeito significativo sobre a eficiência de recobrimento e índice de aglomerados;
  2. Vazão de suspensão (Ws) – apresentou efeito positivo sobre a eficiência de recobrimento, crescimento relativo e índice de aglomerados;
  3. Pressão de atomização (Pat) – efeito negativo sobre a eficiência de recobrimento e crescimento relativo e índice de aglomerados;
  4. Temperatura do ar ( $T_{ar}$ ) – apresentou efeito negativo sobre todas as respostas;

5. Frequência de pulsação(f) – apresentou efeito negativo sobre a eficiência de recobrimento e crescimento relativo e positivo para o índice de aglomerados;

- Comparando-se os dois planejamentos observa-se uma maior ocorrência de aglomerados quando a operação de recobrimento é realizada com partículas de diâmetro médio inferior;
- A pulsação da corrente gasosa reduz a formação de aglomerados;
- O crescimento relativo das partículas e a eficiência do recobrimento são maximizados quando se opera o leito a vazões de suspensão elevadas, pressão de atomização reduzidas, maior quantidade de partículas no leito e baixas frequências de pulsação da corrente gasosa;
- Os testes de reabsorção de umidade indicam que o recobrimento obtido é inadequado para partículas altamente higroscópicas, ou proteção contra ambientes de umidade relativa elevada;
- A pulsação da corrente gasosa minimiza o efeito de forças coesivas sobre as partículas, permitindo a operação de recobrimento com alimentação contínua da suspensão para uma vazão de até 9,5 g/min, um aumento de 48 % em relação ao alcançado em um leito fluidizado convencional;
- O comportamento do processo de recobrimento em leito fluidizado pulsado-rotativo segue as mesmas tendências apresentadas em um equipamento de leito fluidizado convencional;
- Os aglomerados são formados na zona de aspersão do bico atomizador;
- O tempo de processo em regime estável é fortemente influenciado pela vazão de suspensão e pela pressão de atomização;

De acordo com os resultados obtidos, pode-se concluir que o Leito Fluidizado Pulsado-Rotativo (LFPR) é indicado para o recobrimento de microgrânulos. O equipamento apresenta vantagens em relação ao equipamento de leito fluidizado convencional, principalmente pelo fato de operar com alimentação contínua da suspensão de recobrimento para vazões bem superiores aos limites alcançados na operação do leito fluidizado convencional. Porém, a operação do equipamento se torna mais complexa e demanda uma

atenção especial; a utilização de frequências elevadas provoca oscilações que podem ser prejudiciais à estrutura do equipamento.

A escolha entre os dois equipamentos deve estar ligada a uma avaliação econômica de implantação dos dois equipamentos, devido ao distribuidor especial o custo de fabricação do LFPR é maior do que o custo de fabricação de um LFC.

Os resultados indicam que o LFPR deve ser utilizado em processos em que a obtenção de aglomerados deva ser minimizada.

## **5.1 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS**

Para um estudo mais aprofundado da operação de recobrimento em leito fluidizado pulsado-rotativo, sugere-se;

- A inserção do diâmetro de partícula e velocidade do ar de fluidização como variáveis independentes no planejamento de análise do processo;
- Utilização de um sistema de aquisição de dados para monitoramento do processo de recobrimento e identificação do momento de colapso do leito;
- Elaboração de um estudo de viabilidade econômica da operação de recobrimento em leito fluidizado pulsado-rotativo em relação à operação em leito fluidizado convencional, com levantamento da relação custo benefício do equipamento;
- Avaliar a operação de recobrimento no LFPR com utilização de distribuidores com discos rotativos com duas aberturas;

## 6 REFERÊNCIAS

AMBROSIO-UGRI, M.C.B.; TARANTO, O. P., Estudo das características fluidodinâmicas do leito fluidizado pulsado rotativo. *Anais do XXX ENEMP*, São Carlos, p.80-87, 2002.

AMBROSIO-UGRI, M.C.B.; TARANTO, O.P. Estudo fluidodinâmico do leito fluidizado pulsado rotativo. *Acta Scientiarum Technology*. V.26 (1), p. 53-57, 2004.

BARROS NETO, B.; SCARMINO, I.S.; BRUNS, R.E. Como fazer experimentos: Pesquisa e desenvolvimento na ciência e na indústria. Editora da Unicamp, Campinas, SP, 2<sup>a</sup> ed. p. 210-215, 2002.

COSTA, M.A. Peletização de Sementes de Brócolos em Leito de Jorro Cônico – Tese de Doutorado – FEQ-Unicamp. Faculdade de Engenharia química, Universidade Estadual de Campinas, 2003.

CUNHA, R. L. G. Caracterização Fluidodinâmica no Recobrimento de Celulose Microcristalina em Leito Fluidizado, Tese de Mestrado, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2004.

DEVAHASTIN, S.; MUJUMDAR, A.S. Some hydrodynamic and mixing characteristics of a pulsed spouted bed dryer. *Powder Technology* V.117, p. 189-197, 2001.

DJURKOV, T.G., Modeling of bed pressure drops in rotation-pulsed fluidized bed dryer. *Proceedings of the 11<sup>th</sup> International Drying Symposium, Drying98*, v. A, pp 160-167, 1998.

DONIDA, M. W. Recobrimento Polimérico de Uréia em Leito de Jorro Bidimensional. Dissertação de Mestrado, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP, p.102, 2000.

DONIDA, M. W., Análise das Características do Sólido e da Suspensão no Processo de Recobrimento em Leito de Jorro, Tese de Doutorado, Universidade Estadual de Campinas, Campinas-SP, 2004.

ELENKOV, V. R.; DJURKOV, T. G. A fluidized bed with a jet-pulsed agitation of fluidization. *Chemical and Process Engineering and Ecology*, p. 105-116, 1997.



ELENKOV, V.R., DJURKOV, T.G. Rotating-pulsed fluidized bed dryer for high-moisture content bioproducts. *Proceedings of 8<sup>th</sup> International Drying Symposium, Drying92*, pp. 1636-1641, 1992.

GARCIA, D.C., BARROS A.C.S., PESKE, S.T.; MENEZES, N.L. A secagem de sementes – *Ciência Rural*, v. 34, p. 603-608, 2004.

GAWRZYNSKI, Z. e GLASER, R. Drying in a pulsed-fluid bed with relocated gas stream, *Drying Technology*, v.14(5),p.1121-1172, 1996.

GAWRZYNSKI, Z., GLASER, R., ZAGORZALEWICZ, J., PELECH, Z., STANISLAWSKI, J., ROGULA, G.; PIECZABA, B. Operational tests of a pulsed fluid bed dryer/cooler for granulated sugar. *Proceedings of the 10<sup>th</sup> International Drying Symposium, Drying96*, v.B, p.771-777, 1996.

GAWRZYNSKI, Z., GLASER, R.; ZGORZALEWICZ, J. Drying of granular material in pulsofluidized bed. *Hungarian Journal of Industrial Chemistry*, v. 17, p. 245-255, 1989.

GELDART, D. e ABRAHAMSEN, A. R. Fluidization of fine porous powders, *AIChE*, 77(205), p.160, 1981.

GELDART, D. Gas fluidization technology, John Wiley & Sons, Inc. New York, 1986.

GOVENDER, T. and DANGOR, C.M. Formulation and preparation of controlled release pellets of salbutamol by the air suspension technique, *Journal of Microencapsulation*, V. 14 (4), p. 445-455, 1997.

Handbook of Pharmaceutical Excipients, 3<sup>rd</sup> edition, 2000.

HEMATI, M.; CHERIF, R.; SALEH, K.; PONT, V. Fluidized bed coating and granulation: influence of process-related variables and physicochemical properties on the growth kinetics. *Powder Technology*, V. 130, p.18-34, 2003.

JONES, D. Air suspension coating for multiparticulates. *Drug Development and Industrial Pharmacy*, v. 20(20), p. 3175-3206, 1994.

- 
- KADAM, L. K. Granulation technology for bioproducts. CRC – Press, Boston, p. 336, 1991.
- KLEINBACH, E.; RIEDE, Th. Coating of solids. *Chemical Engineering and Processing*, v. 34 p.329-337, 1995.
- KUNII, D.; LEVENSPIEL, O., Fluidization Engineering, Segunda edição, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1991.
- MAZZONE, D.N.; TARDOS, G.I.; PFEFFER, R. The Behavior of Liquid Bridges Between Two Relatively Moving Particles. *Powder Technology* V. 51, p. 71-83, 1987.
- MCLAUGHLIN, L. J.; RHODES, M. J. Prediction of the fluidized bed behavior in the presence of liquid bridges. *Powder Technology* V. 114, p. 213-223, 2001.
- OWER, E.; PANKHURST, R.C. The Measurement of air flow. 5<sup>th</sup> Edition, New York, NY, Pergamon Press, p. 362, 1977.
- PASSOS, M. L.; MUJUMDAR, A. S.; Effect of cohesive forces on fluidized and spouted beds of wet particles. *Powder Technology*, V.110, p. 222-238, 2000.
- PRACHAYAWARAKORN, S., TIA, W., POOPAIBOON, K.; SOPONRONNARIT, S. Comparison of performances of pulsed and conventional fluidised-bed dryers. *Journal of Stored Products Research*, V. 42, p. 1-19, 2004.
- RIBEIRO, M.S. Estudo Fluidodinâmico de Partículas Secas e Úmidas em Leito Fluidizado Pulsado Rotativo – Dissertação de Mestrado, FEQ-Unicamp, 2005.
- RICHARDSON, J.F. Incipient fluidization and particulate systems. Fluidization – Ed. Davidson, J.F. e Harrison, D., Academic Press, Londres, 1971.
- RODRIGES, M. I.; LEMMA, A. F. Planejamento de Experimentos e Otimização de Processos : Uma estratégia sequencial de planejamentos. Ed. Casa do Pão, Campinas-SP, p. 86-93 1º ed., 2005.
- SALEH, K.; STEINMETZ, D.; HEMATI, M. Experimental study and modeling of fluidized bed coating and agglomeration. *Powder Technology*, V. 130, p. 116-123, 2003.

SEITZ, J.A.; MEHTA, S.P.; YEAGER J.L. Tablet Coating – *The theory and practice of industrial pharmacy*. p. 346-373, 1986.

SEVILLE, J. P. K.; WILLETT, C. D.; KNIGHT, P. C. Interparticle forces in fluidisation: a review. *Powder Technology* V. 113, p. 261-268, 2000.

SHELUKAR, S.; HO, J.; ZEGA, J.; ROLAND, E.; YEH, N.; QUIRAM, D.; NOLE, A. KATDARE, A.; REYNOLDS, S. Identification and characterization of factors controlling tablet coating uniformity in a Wurster coating process. *Powder Technology* V.110, p. 29-36, 2000.

SILVA, M.A. Curso de secagem industrial – Tipos de secadores IPT São Paulo, 1995.

SILVA, O.S.; ROCHA, S.C.S, Analysis of the growth and agglomerate formation in the granules process coating, *Drying '2002 – 13<sup>th</sup> International Drying Symposium (IDS)*, B, p. 1069 – 1078, 2002.

SILVA, O.S.; ROCHA, S.C.S; MARSAL, S.C, The influence of the moisture content of Microcrystalline Cellulose on the coating process in a fluidized bed. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, V. 21, No 2, p. 325-333, 2004.

SILVA, O.S, Desenvolvimento do processo de recobrimento e secagem de microgrânulos em leito fluidizado, Tese de Doutorado, Universidade Estadual de Campinas, Campinas – SP, p. 140, 2003.

SMITH, P.G. e NIENOW, A. W. Particle growth mechanisms in fluidized bed granulation-I. *Chemical Engineering Science*, V.38, p. 1223-1231, 1983.

STRUMILLO, C.; KUDRA, T. *Drying: Principles, Applications and Design*. London: Gordon and Breach Science Publ., 1986.

TURTON, R.; CHENG, X. X. The scale-up of coating processes for granular solids and tablets. *Powder Technology* V. 150, p. 78-85, 2005.

UGRI, M.C.B.A. Caracterização física e secagem do ácido 2-hidroxibenzoico em leito fluidizado agitado mecanicamente e em leito fluidizado pulsado rotativo: FEQ, UNICAMP,

2003. Tese de Doutorado – Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, 2003.

WANG, X.S.; RHODES, M. J. Pulsed fluidization – a DEM study of a fascinating phenomenon. *Powder Technology* V. 159, p. 142-149, 2005.

WATANO, S.; ANDO, K.; MIYANAMI, K.; II, Y.; SASATANI, S. Preparation of core particles for aqueous film coating agitation fluidized bed. *Chemical Pharmaceutical Bulletin*, V.45 (12), p. 2039-2042, 1997.

WATANO, S.; NAKAMURA, H.; HAMADA, K.; WAKAMATSU, Y.; TANABE, Y.; DAVE, R. N.; PFEFFER, R. Fine particle coating by a novel rotating fluidized bed coater. *Powder Technology* V.141, p. 172-176, 2004.

WEN, C. H. and YU, Y.H. Generalized method for predicting the minimum fluidization velocity, *AIChE*, 12, p. 610, 1966.

YANG, S. T.; SAVAGE, G. V.; WEISS, J.; SELASSIE, I. G. The effect of spray mode and chamber geometry of fluid-bed coating equipment and other parameters on an aqueous-based ethylcellulose coating. *International Journal of Pharmaceutics* V.86, p. 247-257, 1992.

YONGSHENG, N.; DAYOU, L. Dynamics of collapsing fluidized beds and its application in the simulation of pulsed fluidized beds. *Powder Technology* V. 99, p. 132-139, 1998.