

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS

FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA

Área de Concentração:

Engenharia de Processos

**MODELAGEM E SIMULAÇÃO DE PROCESSO
DESCONTÍNUO DE RECOBRIMENTO DE PARTÍCULAS
EM LEITO DE JORRO**

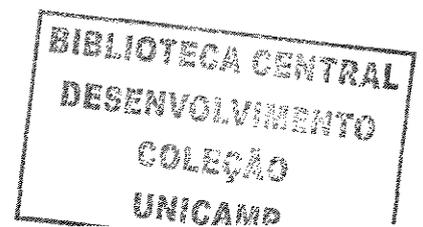
Autor: Mário Paulo Filho

Orientadora: Prof^a. Dr^a. Sandra Cristina dos Santos Rocha

Co-orientador: Prof. Dr. Antonio Carlos Luz Lisboa

Tese de Doutorado apresentada à Faculdade de Engenharia Química como parte dos requisitos exigidos para obtenção do título de Doutor em Engenharia Química.

Campinas – São Paulo
Julho de 2005



UNIDADE	BC
Nº CHAMADA	T/UNICAMP
V	EX
TOMBO BC/	65591
PROC.	16-86-05
C	<input type="checkbox"/>
D	<input checked="" type="checkbox"/>
PREÇO	11,00
DATA	14-9-05
Nº CPD	

Bib ID 364124

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

P285m	<p>Paulo Filho, Mário</p> <p>Modelagem e simulação de processo descontínuo de recobrimento de partículas em leito de jorro / Mário Paulo Filho.--Campinas, SP: [s.n.], 2005.</p> <p>Orientadores: Sandra Cristina dos Santos Rocha, Antonio Carlos Luz Lisboa</p> <p>Tese (Doutorado) - Universidade Estadual de Campinas, Faculdade de Engenharia Química.</p> <p>1. Processo de leito de jorro. 2. Revestimento. 3. Modelagem de dados. 4. Simulação (Computadores). I. Rocha, Sandra Cristina dos Santos. II. Lisboa, Antonio Carlos Luz. II. Universidade Estadual de Campinas. Faculdade de Engenharia Química. IV. Título.</p>
-------	--

Titulo em Inglês: Modeling and simulation of discontinuous process of particles coating in spouted bed.

Palavras-chave em Inglês: Spouted bed, Polydispersed particles, Particles coating, Modeling and simulation e Population balance.

Área de concentração: Engenharia de processos.

Titulação: Doutor em Engenharia Química.

Banca examinadora: Everton Fernando Zanoelo, Maria Aparecida Silva, Osvaldir Pereira Taranto e Wanderley Pereira de Oliveira.

Data da defesa: 05/07/2005

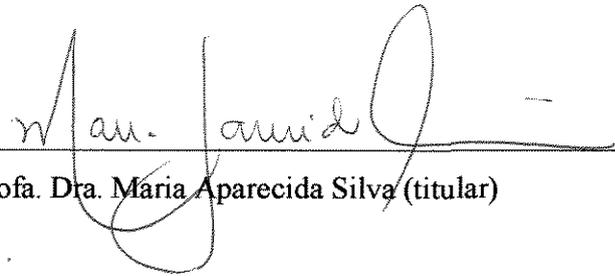
Tese de Doutorado defendida por Mario Paulo Filho e aprovada em 05 de julho de 2005
pela banca examinadora constituída pelos doutores:



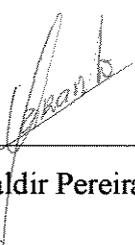
Profª Dra. Sandra Cristina dos Santos Rocha – Orientadora



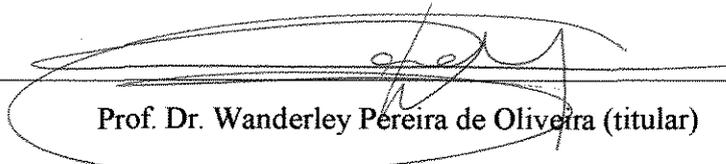
Prof. Dr. Everton Fernando Zanoelo (titular)



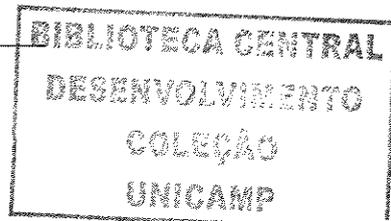
Profª. Dra. Maria Aparecida Silva (titular)



Prof. Dr. Osvaldir Pereira Taranto (titular)



Prof. Dr. Wanderley Pereira de Oliveira (titular)



20052055

Este exemplar corresponde à versão final da Tese de Doutorado em Engenharia Química.



Profa. Dra. Sandra Cristina dos Santos Rocha - Orientadora

*Aos meus pais, Mário (in memoriam) e Nagibe,
à minha esposa Angélica
e aos meus filhos Erick e Juliana*

AGRADECIMENTOS

À minha orientadora, Profa. Sandra, pela paciência, dedicação e amizade durante todo o desenvolvimento deste trabalho.

Ao meu co-orientador, Prof. Lisboa, pela amizade e orientação na elaboração e resolução das equações do modelo.

À minha esposa, Angélica, pelo incentivo e apoio durante todo o tempo de estudos e elaboração da tese.

Aos meus colegas do Laboratório de Fluidodinâmica e Secagem, Carlos, Josy, Marta, Melissa, Osvaldo, Rafael, Roberto e Virgínia, pela colaboração, companhia e sugestões.

Aos professores e funcionários da Faculdade de Engenharia Química que, de certa forma, contribuíram para a execução deste trabalho.

SUMÁRIO

RESUMO	iii
ABSTRACT	iv
LISTA DE FIGURAS	v
LISTA DE TABELAS	ix
NOMENCLATURA	x
CAPÍTULO 1 – INTRODUÇÃO	1
CAPÍTULO 2 – REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	4
2.1 – Recobrimento de Partículas	4
2.2 – Processos de Recobrimentos em Drageadeiras	5
2.3 – Processos de Recobrimento em Leito Fluidizado	6
2.4 – Processos de Recobrimento em Leito de Jorro	9
2.5 – Modelagem e Simulação de Processos de Recobrimento	17
2.5.1 – Métodos Clássicos	17
2.5.2 – Método do Balanço Populacional	20
CAPÍTULO 3 – METODOLOGIA	34
3.1- Experimental	34
3.2.1- Material	34
3.2.2- Equipamento	38
3.2.3- Planejamento Experimental	41
3.2.4- Procedimentos	43
3.2- Modelagem e Simulação	45
CAPÍTULO 4 – RESULTADOS E DISCUSSÃO	52
4.1 – Experimental	52
4.1.1- Características dos Materiais	52
4.1.2- Fluidodinâmica do Leito	53
4.1.2.1- Velocidade de jorro mínimo	56
4.1.2.2- Queda de pressão máxima	58
4.1.2.3- Queda de pressão de jorro estável	59
4.1.3- Resultados Experimentais do Recobrimento	61

4.1.3.1- Resultados dos testes experimentais	61
4.1.3.2- Variável eficiência	64
4.1.3.3- Variável crescimento relativo	66
4.1.3.4- Tamanho das partículas	68
4.2 – Modelagem e Simulação	77
4.2.1- Resultados da Simulação e Comparação com Resultados Experimentais	77
4.2.2- Análise de Sensibilidade Paramétrica	93
4.2.2.1- Vazão de suspensão	93
4.2.2.2- Tempo de processo	97
4.2.2.3- Concentração da suspensão	101
4.2.3- Comparação da Simulação com Resultados Experimentais da Literatura	106
4.2.4- Simulação do Recobrimento Utilizando Correlação para Crescimento Relativo .	126
4.2.5- Comparação dos Resultados da Literatura e deste Trabalho.	129
CAPÍTULO 5 – CONCLUSÕES E SUGESTÕES	131
5.1 – Conclusões	131
5.2 – Sugestões para Trabalhos Futuros	133
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	134
ANEXOS	140

RESUMO

A técnica do leito de jorro apresenta larga utilização nos processos de recobrimento de partículas sólidas, para se obter produtos com propriedades superficiais modificadas, em setores industriais como o agrícola, farmacêutico e de alimentos. Neste trabalho, utilizou-se modelagem matemática e simulação numérica em processo de recobrimento por batelada, aplicando-se as equações do balanço populacional. Posteriormente, o sistema de equações diferenciais obtido foi resolvido pelo método numérico de Runge-Kutta-Fehlberg, utilizando-se o software Maple 8[®]. Para a verificação dos resultados da simulação foram obtidos dados experimentais, em escala de laboratório, em um equipamento que consiste em um leito cone-cilíndrico, com um bico atomizador conectado, acoplado a um conjunto soprador e aquecedor de ar. Uma carga de partículas tipo esferas de vidro polidispersas, preparadas a partir da mistura de lotes de partículas de diversos tamanhos, foi colocada no leito de jorro, onde um bico atomizador pulveriza uma suspensão aquosa à base de hidroxietilcelulose. Um planejamento experimental, totalizando 11 experimentos, foi definido variando-se a temperatura do ar de jorro, vazão da suspensão de recobrimento e pressão do ar de atomização. Como variáveis de resposta, foram obtidas as taxas de crescimento das partículas e a eficiência do processo. Foram consideradas variáveis significativas do processo a vazão de suspensão e a temperatura do ar. Os valores da taxa de crescimento da partícula obtido experimentalmente foram comparados com os valores obtidos pela simulação. Verificou-se uma boa concordância, com pequenos desvios entre os dados obtidos experimentalmente e os resultados obtidos pela simulação. Dados experimentais obtidos em trabalho de recobrimento polimérico de uréia em leito de jorro também foram comparados com resultados simulados, obtendo-se uma concordância satisfatória. Uma correlação empírica para o crescimento relativo das partículas, envolvendo a adesão filme-partícula ou suspensão-partícula, foi incorporada à equação da taxa de crescimento para a simulação do recobrimento, obtendo-se uma boa concordância para os dados obtidos com baixa vazão da suspensão de recobrimento.

Palavras-chave: leito de jorro, partículas polidispersas, recobrimento de partículas, modelagem e simulação, balanço populacional.

ABSTRACT

Spouted beds present large utilization in solid particles coating, to obtain products with modified superficial properties, in fields agricultural, pharmaceutical and food industry. In this work a mathematical model and its numerical simulation were developed to simulate batch coating processes, applying population balance equations. The system of differential equations obtained was solved by Runge-Kutta-Fehlberg method using Maple 8[®] software. In order to verify the simulation results, a series of experimental data was carried out, at a lab scale, using a rig that consisted of a cylindrical bed with an atomizer nozzle; attached to the system there were a blower and an air heater. A batch of polydispersed glass beads was introduced into the bed, where the atomizer nozzle pulverized a hydroxiethylcelullose based aqueous suspension. An experimental planning, totaling 11 experimental runs, was designed to vary the spouted air temperature, coating suspension flow rate and atomization air pressure. The growth rate and process efficiency were chosen as dependent variables. Air temperature, suspension mass flux and atomization air pressure were considered as significant variables. The values of growth rate obtained experimentally were compared to the simulated results. A good agreement was verified with small deviations between the experimental and the simulated data. Experimental data obtained in a work with urea polymeric coating was compared to the simulated data, finding a satisfactory result. An empirical correlation to the particle growth rate, involving film-particle adhesion, was incorporated to the equation, obtaining a good agreement at low coating suspension flow rate.

Key words: spouted bed, polydispersed particles, particles coating, modeling and simulation, population balance.

LISTA DE FIGURAS

Figura 3.1 -	Ângulo de contato.	38
Figura 3.2 -	Equipamento experimental.	39
Figura 3.3 -	Fotografia do Equipamento.	39
Figura 3.4 -	Fotografia do leito.	40
Figura 4.1 -	Fluidodinâmica do leito de jorro, carga 2 kg.	54
Figura 4.2 -	Fluidodinâmica do leito de jorro, carga 3 kg.	55
Figura 4.3 -	Fluidodinâmica do leito de jorro, carga 4 kg.	55
Figura 4.4 -	Fluidodinâmica do leito de jorro, carga 4,5 kg.	56
Figura 4.5 -	Fotografia das esferas recobertas, ampliada 10 vezes.	63
Figura 4.6 -	Eficiência do processo.	64
Figura 4.7 -	Diagrama de “Pareto” para a eficiência.	65
Figura 4.8 -	Crescimento relativo das partículas.	67
Figura 4.9 -	Diagrama de “Pareto” para o crescimento relativo.	68
Figura 4.10 -	Massa de recobrimento depositada, experimentos 1 e 3.	69
Figura 4.11 -	Massa de recobrimento depositada, experimentos 2 e 4.	70
Figura 4.12 -	Massa de recobrimento depositada, experimentos 1 e 2.	70
Figura 4.13 -	Massa de recobrimento depositada, experimentos 9, 10 e 11.	71
Figura 4.14 -	Massa de recobrimento depositada, experimentos 5 e 7.	71
Figura 4.15 -	Massa de recobrimento depositada, experimentos 6 e 8.	72
Figura 4.16 -	Massa de recobrimento depositada, experimentos 1, 5 e 9.	72
Figura 4.17 -	Massa de recobrimento depositada, experimentos 3, 7 e 10.	73
Figura 4.18 -	Crescimento relativo das partículas nos experimentos 1 e 3.	74
Figura 4.19 -	Crescimento relativo das partículas nos experimentos 2 e 4.	74
Figura 4.20 -	Crescimento relativo das partículas nos experimentos 5 e 7.	75
Figura 4.21 -	Crescimento relativo das partículas nos experimentos 6 e 8.	75
Figura 4.22 -	Crescimento relativo das partículas nos experimentos 9, 10 e 11.	76
Figura 4.23 -	Crescimento relativo das partículas nos experimentos 1, 5 e 9.	76
Figura 4.24 -	Crescimento relativo das partículas nos experimentos 3, 7 e 10.	77
Figura 4.25 -	Estimativa do número de partículas.	78

Figura 4.26 - Comparação entre taxas experimental e simulada.	80
Figura 4.27 - Distribuição de massa das partículas recobertas.	82
Figura 4.28 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 1.	83
Figura 4.29 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 1.	84
Figura 4.30 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 2.	84
Figura 4.31 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 2.	84
Figura 4.32 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 3.	85
Figura 4.33 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 3.	85
Figura 4.34 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 4.	85
Figura 4.35 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 4.	86
Figura 4.36 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 5.	87
Figura 4.37 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 5.	87
Figura 4.38 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 6.	88
Figura 4.39 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 6.	88
Figura 4.40 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 7.	88
Figura 4.41 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 7.	89
Figura 4.42 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 8.	89
Figura 4.43 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 8.	89
Figura 4.44 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 9.	90
Figura 4.45 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 9.	90
Figura 4.46 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 10.	91
Figura 4.47 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 10.	91
Figura 4.48 - Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 11.	91
Figura 4.49 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 11.	92
Figura 4.50 - Recobrimento para 3 vazões de suspensão, condições exp. 1.	94
Figura 4.51 - Distribuição de massa para 3 vazões de suspensão, condições exp. 1.	94
Figura 4.52 - Recobrimento para 3 vazões de suspensão, condições exp. 6.	95
Figura 4.53 - Distribuição de massa para 3 vazões de suspensão, condições exp. 6.	95
Figura 4.54 - Recobrimento para 3 vazões de suspensão, condições exp. 7.	96
Figura 4.55 - Distribuição de massa para 3 vazões de suspensão, condições exp. 7.	96
Figura 4.56 - Recobrimento para 3 vazões de suspensão, condições exp. 7.	96
Figura 4.57 - Distribuição de massa para 3 vazões de suspensão, condições exp. 7.	97

Figura 4.58 - Recobrimento em diferentes tempos de processo, condições exp. 2.	98
Figura 4.59 - Distribuição de massa em diferentes tempos, condições exp. 2.	98
Figura 4.60 - Recobrimento em diferentes tempos de processo, condições exp. 5.	99
Figura 4.61 - Distribuição de massa em diferentes tempos, condições exp. 5.	99
Figura 4.62 - Recobrimento em diferentes tempos de processo, condições exp. 5.	99
Figura 4.63 - Distribuição de massa em diferentes tempos, condições exp. 5.	100
Figura 4.64 - Recobrimento em diferentes tempos de processo, condições exp. 9.	100
Figura 4.65 - Distribuição de massa em diferentes tempos, condições exp. 9.	101
Figura 4.66 - Recobrimento em diferentes concentrações, condições exp. 3.	102
Figura 4.67 - Distribuição de massa em diferentes concentrações, condições exp. 3.	102
Figura 4.68 - Recobrimento em diferentes concentrações, condições exp. 4.	103
Figura 4.69 - Distribuição de massa em diferentes concentrações, condições exp. 4.	103
Figura 4.70 - Recobrimento em diferentes concentrações, condições exp. 8.	104
Figura 4.71 - Distribuição de massa em diferentes concentrações, condições exp. 8.	104
Figura 4.72 - Recobrimento em diferentes concentrações, condições exp. 8.	105
Figura 4.73 - Distribuição de massa em diferentes concentrações, condições exp. 8.	105
Figura 4.74 - Comparação entre taxas experimental e simulada	110
Figura 4.75 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 10.	111
Figura 4.76 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 10.	111
Figura 4.77 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 11.	111
Figura 4.78 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 11.	112
Figura 4.79 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 13.	112
Figura 4.80 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 13.	112
Figura 4.81 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 19.	113
Figura 4.82 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 19.	113
Figura 4.83 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 1.	114
Figura 4.84 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 1.	114
Figura 4.85 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 6.	114
Figura 4.86 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 6.	115
Figura 4.87 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 7.	115
Figura 4.88 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 7.	115
Figura 4.89 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 8.	116

Figura 4.90 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 8.	116
Figura 4.91 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 17.	116
Figura 4.92 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 17.	117
Figura 4.93 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 18.	117
Figura 4.94 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 18.	117
Figura 4.95 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 20.	118
Figura 4.96 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 20.	118
Figura 4.97 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 2.	119
Figura 4.98 - Distribuição de massa de recobrimento, experimento 2.	119
Figura 4.99 - Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 3.	119
Figura 4.100- Distribuição de massa de recobrimento, experimento 3.	120
Figura 4.101- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 4.	120
Figura 4.102- Distribuição de massa de recobrimento, experimento 4.	120
Figura 4.103- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 9.	121
Figura 4.104- Distribuição de massa de recobrimento, experimento 9.	121
Figura 4.105- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 14.	121
Figura 4.106- Distribuição de massa de recobrimento, experimento 14.	122
Figura 4.107- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 16.	122
Figura 4.108- Distribuição de massa de recobrimento, experimento 16.	122
Figura 4.109- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 5.	123
Figura 4.110- Distribuição de massa de recobrimento, experimento 5.	123
Figura 4.111- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 12.	124
Figura 4.112- Distribuição de massa de recobrimento, experimento 12.	124
Figura 4.113- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, exp. 15.	124
Figura 4.114- Distribuição de massa de recobrimento, experimento 15.	125
Figura 4.115- Comparação entre as taxas de crescimento	127
Figura 4.116- Massa de recobrimento em função da massa da partícula	128
Figura 4.117- Distribuição da massa de recobrimento	128

LISTA DE TABELAS

Tabela 3.1 -	Composição da suspensão de recobrimento.	36
Tabela 3.2 -	Variáveis independentes.	42
Tabela 3.3 -	Experimentos realizados.	43
Tabela 3.4 -	Bomba peristáltica.	44
Tabela 4.1 -	Características das partículas sólidas.	52
Tabela 4.2 -	Distribuição granulométrica.	52
Tabela 4.3 -	Propriedades da suspensão.	53
Tabela 4.4 -	Comparação entre valores de correlações e experimentais para U_{jm} .	58
Tabela 4.5 -	Comparação entre valores de correlações e experimentais para ΔP_{max} .	59
Tabela 4.6 -	Comparação entre valores de correlações e experimentais para ΔP_j .	60
Tabela 4.7 -	Condições dos experimentos.	62
Tabela 4.8 -	Variáveis de resposta.	62
Tabela 4.9 -	Efeitos para a eficiência do processo.	65
Tabela 4.10 -	Análise de variância para a eficiência.	66
Tabela 4.11 -	Efeitos para o crescimento relativo.	67
Tabela 4.12 -	Análise de variância para o crescimento relativo.	68
Tabela 4.13 -	Intervalos discretos das partículas.	79
Tabela 4.14 -	Comparação entre as taxas de crescimento.	81
Tabela 4.15 -	Valores da constante de proporcionalidade.	82
Tabela 4.16 -	Variáveis independentes e de respostas no processo de recobrimento.	107
Tabela 4.17 -	Massa e número de partículas em cada intervalo.	108
Tabela 4.18 -	Valores das taxas, desvio médio e constante de proporcionalidade.	109
Tabela 4.19 -	Características da suspensão de recobrimento.	126

NOMENCLATURA

Letras latinas

a	momento de ordem zero, -
b	momento de ordem um, -
B	taxa de nascimento de partículas, $\text{kg/m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$
B^0	taxa de nucleação, kg/s
c	momento de ordem dois, -
c_p	calor específico, $\text{J/kg} \cdot \text{K}$
C_s	concentração de sólidos na suspensão, kg/kg
d	diâmetro, m
D	taxa de desaparecimento de partículas, $\text{kg/m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$
D_c	diâmetro da coluna, m
D_i	diâmetro do orifício, m
d_c	diâmetro do capilar, mm
D_f	difusividade, m^2/s
E	taxa média de elutriação, kg/s
f	função densidade populacional, -
g	aceleração da gravidade, m/s^2
G	taxa de crescimento de partículas, kg/s
h	coeficiente de transferência de calor, $\text{W/m}^2 \cdot \text{K}$
H	altura do leito estático, m
H_c	altura da seção cônica, m
k	índice de consistência, N/m^2
k'	coeficiente linear da reta, N/m^2
k_m	coeficiente de transferência de massa, m/s
k_t	condutividade térmica, $\text{W/m} \cdot \text{K}$
K	coeficiente de proporcionalidade, s^{-1}
L	tamanho da partícula, m
m	massa, kg
M	massa total de partículas, kg

N	número total de partículas, -
n'	densidade populacional, -
n	índice de comportamento, -
P	pressão, Pa
Q	vazão volumétrica, m^3/s
R	região no espaço da fase partícula, -
r	razão entre massas, -
S_d	taxa de material recoberto seco, kg/s
t	tempo, s
t_p	tempo de processo, s
T	temperatura, K
U	velocidade do ar, m/s
v	velocidade, m/s
v_e	velocidade externa da partícula, m/s
v_i	velocidade interna da partícula, m/s
W	vazão mássica, kg/s
W_{ad}	trabalho de adesão, N/m
x	conjunto de coordenadas internas e externas, -
x_i	fração em massa, -
z	altura da coluna, m

Letras gregas

α	ângulo de contato, grau
δ	crescimento relativo, -
Δ	variação, -
ε	porosidade do leito, -
ϕ	esfericidade, -
γ	taxa de deformação, -
γ^*	pseudotaxa de deformação, -
η	eficiência do processo de recobrimento, -
φ	umidade relativa do ar, -

μ_j	momento, -
μ	viscosidade, kg/m.s
μ^*	viscosidade aparente, kg/m.s
ρ	densidade, kg/m ³
ρ_f	densidade do fluido, kg/m ³
θ	ângulo de inclinação do cone, grau
τ	tensão de cisalhamento, N/m ²
σ	tensão superficial, N/m
ψ	propriedades internas da função densidade populacional, -
ξ	vetor unitário dos eixos coordenados, -

Subscritos

a	atomização
amb	ambiente
atm	atmosférico
b	“bulk”
circ	circunscrito
exp	experimental
est	estimado
estat	estático
f	final
g	gás
inscr	inscrito
i, j	intervalos discretos
J	jorro estável
jm	jorro mínimo
max	máximo
o	inicial
p	partícula
rec	recobrimento
s	suspensão de recobrimento

sim simulado

teor teórico

Grupos adimensionais

Ar número de Archimedes: $Ar = \frac{gd_p^3(\rho_p - \rho_f)\rho_f}{\mu^2}$

Nu número de Nusselt: $Nu = \frac{hd_p}{k_t}$

Pr número de Prandt: $Pr = \frac{\mu c_p}{k_t}$

Re número de Reynolds: $Re = \frac{d.v.\rho_f}{\mu}$

Sc número de Schimidt: $Sc = \frac{\mu}{D_f \cdot \rho_f}$

Sh número de Sherwood: $Sh = \frac{k_m d_p}{D_f}$

1 – INTRODUÇÃO

Em processos usuais de recobrimento, uma suspensão com o material de recobrimento é atomizada sobre as partículas. O material, então, é depositado e seco sobre a superfície das partículas. Forma-se uma camada uniforme sobre a partícula e o solvente é evaporado devido ao fornecimento de calor pelo gás.

A técnica do leito de jorro tem sido utilizada em recobrimento de partículas sólidas para se obter produtos com propriedades superficiais modificadas. O recobrimento tem sido empregado em vários setores industriais como o químico, agrícola, farmacêutico e de alimentos.

Na indústria farmacêutica, o recobrimento de formulações sólidas é uma etapa adicional ao processo e tem por finalidade: mascarar o sabor e o odor desagradáveis da droga, fornecer proteção contra o calor e a umidade, proteger a droga do ambiente gástrico, incorporar outras substâncias na fórmula, controlar o tempo de dissolução da droga e melhorar o aspecto do produto. O recobrimento de produtos alimentícios na indústria de alimentos e o recobrimento de sementes e fertilizantes na agroindústria, também são aplicações importantes desta técnica (FREIRE e OLIVEIRA, 1992).

Os diversos trabalhos experimentais sobre recobrimento realizados no “Laboratório de Fluidodinâmica e Secagem” da Faculdade de Engenharia Química, Unicamp, motivaram o desenvolvimento deste trabalho sobre modelagem e simulação. Já foram analisados os processos de recobrimentos de partículas de uréia, comprimidos placebos e sementes, utilizando como material de recobrimento suspensão polimérica e enxofre fundido, em equipamentos como leito de jorro cone-cilíndrico, leito de jorro bidimensional e leito fluidizado. Dentre esses trabalhos, pode-se citar os trabalhos de recobrimento publicados por AYUB (1997), DONIDA e ROCHA (2002), SILVA et al. (2004) e VIEIRA et al. (2004).

A modelagem matemática e a simulação numérica de um processo de recobrimento podem ser desenvolvidas utilizando-se o método clássico ou o método do balanço populacional. O balanço diferencial clássico utilizado em fenômenos de transporte apresenta uma complexidade no desenvolvimento das equações, escassez de informações consistentes, quantidade precária de adaptações e, em certos casos, uma maior dificuldade para a resolução dos sistemas de equações diferenciais (ATAÍDE, 1996).

O balanço populacional é uma generalização das funções de distribuição de idade, em que as variáveis de processo espaciais e temporais podem ser tratadas. O desenvolvimento dos balanços envolve uma teoria de distribuição multidimensional da partícula, bem definida para processos regulares de formação, incluindo a predição da forma e da magnitude da distribuição da partícula (HIMMELBLAU e BISCHOFF, 1976).

Na literatura, encontram-se vários trabalhos sobre modelagem matemática em processos de recobrimento de partículas, utilizando os balanços diferenciais clássicos de transferência de calor, massa e quantidade de movimento, como os trabalhos publicados por KUCHARSHI e KMIEC (1986), CHOI e MEISEN (1997), NAKAMURA et al. (1998), GUIGNON et al. (2000). Encontram-se, também, vários estudos utilizando a técnica do balanço populacional, como em processos de cristalização e aglomeração e, nos processos de recobrimento de partículas, conforme os trabalhos publicados por HOUNSLOW et al. (1988), WNUKOWSKI e SETTERWALL (1989), MARONGA e WNUKOWSKI (1997), DUARTE et al. (2004), HEINRICH et al. (2004). Comentários sobre os métodos, resultados, vantagens e desvantagens dessas técnicas estão relatados no capítulo Revisão Bibliográfica.

O presente trabalho tem por objetivo desenvolver um modelo matemático e simulação numérica, utilizando as equações diferenciais do balanço populacional, para um processo descontínuo de recobrimento de partículas. A técnica do balanço populacional foi escolhida pela facilidade de adaptação das equações nos processos de recobrimento, pela utilização da distribuição de massa das partículas polidispersas e pela aplicação, nesse modelo, de correlações empíricas para a eficiência do processo e crescimento relativo das partículas, podendo-se aplicar então resultados de pesquisas já desenvolvidas no “Laboratório de Fluidodinâmica e Secagem”. Pretende-se tratar lotes de partículas polidispersas ou seja, que apresentam diversidade de tamanho, para que possam ser

classificadas em intervalos discretos de acordo com sua massa. O modelo matemático desenvolvido foi baseado nos trabalhos realizados por LIU e LITSTER (1993b) e adaptado às condições deste trabalho. O sistema de equações diferenciais obtido foi resolvido pelo método numérico de Runge-Kutta-Fehlberg utilizando-se o software Maple 8[®]. Os resultados obtidos pela simulação numérica, em termos da taxa de crescimento das partículas, foram comparados com resultados experimentais próprios e da literatura (DONIDA, 2000). Foi realizada, também, uma análise de sensibilidade paramétrica considerando a influência de variáveis operacionais como tempo de processo, concentração e vazão da suspensão de recobrimento na taxa de crescimento das partículas.

Para a obtenção dos resultados experimentais, utilizados na comparação com a simulação, foi realizado experimentalmente, em escala de laboratório, o recobrimento de partículas esféricas de vidro polidispersas com suspensão polimérica em leito de jorro conecilíndrico. Um planejamento experimental, totalizando 11 experimentos, foi definido variando-se a temperatura do ar de jorro, vazão da suspensão de recobrimento e pressão do ar de atomização. Como variáveis de resposta, foram obtidos o crescimento relativo das partículas e a eficiência do processo. Durante o desenvolvimento do trabalho experimental foi efetuada a análise fluidodinâmica do leito de jorro para partículas polidispersas.

A presente tese está organizada da seguinte maneira: o Capítulo 1 apresenta os objetivos propostos para o trabalho; no Capítulo 2 é apresentada uma revisão da bibliografia relativa ao assunto do trabalho; o Capítulo 3 descreve a metodologia subdividida em duas partes, experimental, incluindo caracterização do material e análise do processo, e a modelagem matemática; o Capítulo 4 apresenta os resultados experimentais e simulados obtidos, sua comparação e análise; o Capítulo 5 apresenta as conclusões obtidas e as sugestões para trabalhos futuros no mesmo tema.

2 – REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

2.1- Recobrimento de Partículas

O recobrimento de partículas é uma operação utilizada no processamento de uma grande variedade de produtos e apresenta uma grande importância comercial. Exemplos de aplicação incluem o recobrimento de comprimidos na indústria farmacêutica, o recobrimento de produtos alimentícios e, na agroindústria, o recobrimento de sementes, fertilizantes e pesticidas (FREIRE e OLIVEIRA, 1992).

As finalidades de se aplicar o recobrimento em partículas sólidas são: proteger o produto da ação de agentes ambientais (umidade, luminosidade e calor excessivo), facilitar a manipulação do produto onde o recobrimento reduz a possibilidade de contaminação, melhorar a aparência estética, mascarar odores e sabores desagradáveis, aumentar a resistência mecânica do produto e reduzir a taxa de dissolução de substâncias químicas (FREIRE e OLIVEIRA, 1992).

O processo de recobrimento consiste em atomizar uma suspensão sobre um leito móvel de partículas sólidas, por onde passa uma corrente de ar quente. O material aspergido então, é seco formando uma película sobre as partículas. A suspensão pode ser aquosa, a base de açúcar ou polimérica, dispersa em água ou em solvente orgânico. Pode-se, também, utilizar material fundido, como o enxofre; neste caso não se utiliza solvente e a corrente de ar deve ser fria para solidificar o material sobre a partícula.

No processo de recobrimento ocorrem forças de adesão que são relativas às interações que ocorrem entre as partículas e o substrato. Essas interações são funções das propriedades físicas dos materiais e dos processos físico-químicos envolvidos. As forças de adesão podem ser classificadas, quanto à natureza dessas interações, nas seguintes possibilidades: forças intermoleculares, forças eletrostáticas, pontes líquidas e pontes sólidas (FREIRE e OLIVEIRA, 1992).

As forças intermoleculares, como as forças de Van der Waals, não apresentam uma importância significativa no processo de recobrimento. As forças de atração eletrostáticas, produzidas por atrito, apresentam valores máximos muito menores que o de outras forças presentes, atuantes nos mecanismos de ligação.

As pontes líquidas ocorrem quando um líquido está em contato com um sólido sendo que as forças predominantes se devem à tensão superficial. Então, a força de adesão é resultante das contribuições da tensão superficial.

As pontes sólidas são formadas pela cristalização dos materiais fundidos ou pela cristalização do material de recobrimento na superfície do substrato, durante a evaporação do solvente.

2.2- Processos de Recobrimento em Drageadeiras

A drageadeira convencional consiste em uma técnica tradicional de aplicação no recobrimento de partículas. As partículas são colocadas dentro de uma panela que gira em torno de um eixo levemente inclinado. A alimentação de sólidos e do agente de recobrimento é feita por uma abertura existente na face da drageadeira. A suspensão é atomizada sobre as partículas e a secagem é realizada pela passagem de ar quente. Deixa-se passar um tempo suficiente para que ocorra a mistura das partículas e a dispersão do líquido (FREIRE e OLIVEIRA, 1992).

A modificação mais significativa visando a otimização das drageadeiras de recobrimento, foi a introdução da drageadeira de Pellegrini. Neste equipamento, a drageadeira possui um formato angular sendo que, gira em torno de um eixo horizontal. Por apresentar essa geometria e por ter um sistema interno de chicanas, produz uma mistura mais uniforme. Como essas drageadeiras apresentam a entrada e saída de ar pela abertura posterior, a parte frontal da panela pode ficar aberta para inspeção ou pode permanecer fechada para se ter um sistema bem aerado (FREIRE e OLIVEIRA, 1992).

A técnica de recobrimento em drageadeiras apresenta como desvantagens o longo tempo necessário para o recobrimento, a falta de uniformidade no produto, fragmentação do material e o difícil controle do processo

2.3- Processos de Recobrimento em Leito Fluidizado

A fluidização é o mecanismo em que um leito de recheio é suspenso por uma corrente de ar ascendente, fazendo com que as partículas se movimentem de forma ascendente e descendente. A partir de um determinado nível da velocidade do ar, quando a fluidização inicia, a diferença de pressão no leito permanece aproximadamente constante. O sistema nessas condições se assemelha a um fluido, por isto o nome fluidizado.

Os equipamentos que utilizaram o princípio do leito fluidizado para recobrir partículas basicamente são constituídos de duas seções. A seção inferior, de forma cônica, possui fundo perfurado para a admissão do ar e para a sustentação das partículas. Acima da base cônica existe uma coluna cilíndrica, com um atomizador centralizado para alimentar o agente de recobrimento logo acima do leito fluidizado de partículas. Este tipo de equipamento tem sido muito utilizado para a aplicação de recobrimento à base de suspensões poliméricas ou a base de materiais fundidos. Outras variações para esse princípio consistem na colocação de uma coluna central interna (Wurster), na colocação de atomizadores inclinados para baixo na parede da coluna ou, na utilização de disco giratório não perfurado no compartimento do produto (FREIRE e OLIVEIRA, 1992).

ILEY (1991) estudou o recobrimento de material inorgânico poroso e não poroso com emulsão polimérica aquosa, utilizando leito fluidizado com tubo central, bico atomizador situado na base e spray concorrente ao movimento das partículas. Foi avaliado o efeito do tamanho das partículas na espessura do recobrimento e da aderência para partículas não porosas. Também foi realizada uma comparação da qualidade do recobrimento entre partículas porosas e não porosas. A selagem das partículas porosas é mais difícil, pois o material de recobrimento é absorvido pelos poros através da pressão de sucção exercida pelos capilares.

O resultado final demonstrou que as partículas menores conseguem melhor aderência do recobrimento mas, devido à elevada área específica da superfície dessas partículas, o filme apresentou-se delgado. O teste de liberação do material inorgânico das partículas originais em água deionizada mostrou que partículas não porosas recobertas liberam material mais rapidamente que as partículas porosas. Essa diferença é atribuída à selagem dos poros das partículas como resultado da presença do material de recobrimento dentro dos poros através das forças capilares.

KAGE et al. (1996) trabalharam com recobrimento de esferas de vidro com pó de nylon ou sílica em um sistema experimental de leito fluidizado. Uma solução aquosa de álcool polivinílico foi usada juntamente com o pó fino de nylon ou sílica. O bico atomizador foi colocado 30 cm acima da superfície estática do leito.

Nesse estudo foram avaliados os efeitos da temperatura do gás, do conteúdo de umidade do ar na entrada e da vazão de alimentação da suspensão de recobrimento sobre o crescimento das partículas e, também, sobre a eficiência do recobrimento. Concluiu-se que a maior eficiência de recobrimento foi obtida com as condições de baixa temperatura do leito, alta vazão de alimentação da suspensão e alto conteúdo de umidade do gás na entrada. A eficiência do recobrimento foi melhor relacionada com o conteúdo de umidade da camada de recobrimento, sendo que a maior eficiência foi obtida sob condições experimentais quando a camada continha um alto conteúdo de umidade.

ABE et al. (1998) estudaram as relações entre condições operacionais e distribuição de massa no recobrimento em leito fluidizado. Neste estudo foram utilizadas esferas de vidro com duas granulometrias distintas. Para a partícula de menor tamanho, a solução de recobrimento usada foi cloreto de sódio aquoso e para as partículas maiores foi utilizada solução aquosa de dextrose. O equipamento consistia em um leito cilíndrico com disco giratório e entrada de ar quente na base, remoção das partículas pela lateral, bico atomizador na parte superior do leito e um ciclone para recolher as substâncias não depositadas nas partículas.

Os experimentos foram realizados com ar a 70 °C, variando-se a taxa de alimentação da solução de recobrimento, o tempo de residência e a massa inicial das partículas. Foram avaliadas a eficiência do recobrimento, a massa média de recobrimento

por unidade de massa das partículas, a massa média de recobrimento por unidade de área superficial da partícula e um coeficiente de variação de distribuição de massa. Os resultados comprovaram que a massa de recobrimento por unidade de superfície obedece uma distribuição normal; o coeficiente de variação da distribuição de massa diminuiu com o aumento do tempo de recobrimento, aumenta com o tamanho das partículas e diminui com a retenção das partículas. Contudo, a velocidade rotacional do disco praticamente não afeta o coeficiente de variação.

SUDSAKORN e TURTON (2000) investigaram o efeito do tamanho das partículas na uniformidade do recobrimento em um leito fluidizado com um tubo central e bico atomizador colocado na placa distribuidora. Foram utilizados 5 diferentes tamanhos de partículas de vidro esféricas e uma solução aquosa de polímero para o recobrimento. Em cada uma das oito corridas realizadas os cinco tamanhos de partículas foram distribuídos em proporções distintas.

Os resultados indicaram que a massa de recobrimento depositada nas partículas é proporcional ao quadrado do diâmetro da partícula, podendo ser estimada através de uma constante de proporcionalidade. Em alguns casos ajustes melhores foram conseguidos com expoentes para o diâmetro que variavam entre 2,86 e 3,63. O coeficiente de variação da distribuição de massa de recobrimento, calculado pela razão entre o desvio padrão e a média das massas, mostrou-se praticamente independente do tamanho das partículas.

SILVA et al. (2004) estudaram o recobrimento de celulose microcristalina com suspensão polimérica em leito fluidizado, utilizando alimentação contínua ou intermitente. Foram analisadas a eficiência do processo, o crescimento relativo das partículas, o índice de aglomeração e o efeito do conteúdo de umidade das partículas antes do colapso do leito.

Os dois intervalos de tamanho de partículas utilizados apresentaram comportamento similar e um adequado movimento dos sólidos durante a fluidização. Obteve-se um crescimento relativo maior para as partículas com diâmetro médio de 0,355 mm. Foram observadas as formações de aglomerados, finos coletados em ciclone e um elevado crescimento relativo das partículas. O conteúdo de umidade das partículas durante o recobrimento foi um fator importante para a identificação do início do colapso do leito.

Os valores da eficiência do processo obtidos foram satisfatórios, na maioria dos experimentos.

CUNHA (2004) estudou a fluidodinâmica e o recobrimento de celulose microcristalina com uma suspensão aquosa a base de Eudragit[®], em leito fluidizado. As variáveis operacionais foram vazão de suspensão e pressão do ar de atomização. Foi investigada a influência das condições operacionais nas variáveis de resposta: eficiência do processo, crescimento relativo das partículas, índice de aglomerados e saturação instantânea até o colapso do leito.

Verificou-se que a eficiência do processo variou de 51 a 99,7%, o crescimento de partículas foi característico de recobrimento tipo filme, o índice de aglomerados variou de 0,38 a 6,285 e a saturação instantânea de $5,370.10^{-3}$ a $16,828.10^{-3} \text{ min}^{-1}$.

2.4- Processos de Recobrimento em Leito de Jorro

Injetando-se um fluido, verticalmente e com velocidade suficiente, em um vaso recheado com partículas relativamente grossas, ocorrerá um regime fluidodinâmico que se chama de “leito de jorro”. Essas partículas formam um fluxo ascendente na região central do leito formando uma fonte no topo e, posteriormente, descem pela região periférica do leito. A fase central é chamada de região de jorro e apresenta alta porosidade, a fase periférica é conhecida como região anular e a porosidade equivale à de um leito fixo expandido. Os vasos utilizados podem ser de colunas cilíndricas com base cônica, cônicos ou bidimensionais (seção transversal retangular) (MATHUR e EPSTEIN, 1974).

O leito de jorro tem sido utilizado em processos de granulação e de recobrimento de partículas. Principalmente na indústria farmacêutica, é muito utilizado para o recobrimento de comprimidos devido à necessidade de se obter uma uniformidade na espessura da película. Esta operação consiste em recobrir uma carga de comprimidos por batelada em uma coluna, por onde se passa uma corrente de ar quente suficiente para o

jorro, e um fluxo do líquido de recobrimento através de um bico atomizador pneumático. A vazão do líquido é regulada para que ocorra a secagem do solvente, não havendo, portanto, umidade excessiva na superfície dos comprimidos (MATHUR e EPSTEIN, 1974).

KUCHARSKI e KMIEC (1983) estudaram a fluidodinâmica, transferência de calor e de massa durante o recobrimento de dois tamanhos de comprimidos em leito de jorro cone-cilíndrico. Um bico atomizador foi colocado na parte cônica do leito, acima do anteparo. Os comprimidos placebos foram obtidos por compressão em duas dimensões diferentes. A solução de recobrimento consistia em açúcar em água à temperatura de 80 °C.

A vazão de jorro mínimo e a queda de pressão no leito foram determinadas experimentalmente para seis valores de altura do leito estático nos dois tamanhos de comprimidos. Os valores experimentais da vazão foram comparados com os valores preditos da Equação (2.1) e apresentaram pequeno desvio. Os valores para a máxima queda de pressão do leito, para cada altura, apresentaram uma boa concordância entre os dados obtidos com aqueles calculados pela correlação empírica representada pela Equação (2.2). Essas equações foram desenvolvidas para descrever a fluidodinâmica em leitos de jorro sem recobrimento (KUCHARSKI e KMIEC, 1983).

$$Q_{jm} = \left[\frac{2,51(1-\varepsilon)\rho_f}{6\pi^2(1-\cos(\theta/2))^2 \phi d_p \varepsilon^3} \left(\frac{-8\text{sen}^3(\theta/2)}{D_i^3} + \frac{1}{\left(H + \frac{D_i}{2\text{sen}(\theta/2)}\right)^3} \right) \right] \quad (2.1)$$

$$\frac{\Delta P}{H\rho_b g} = 1 + 6,65 \left(\frac{H}{D_i}\right)^{1,2} (\text{tg}(\theta/2))^{0,5} Ar^{-0,2} \quad (2.2)$$

Os coeficientes médios de transferência de calor obtidos em função de valores da velocidade superficial do gás foram ajustados pela correlação empírica do número de Nusselt (2.3). Os coeficientes médios de transferência de massa em função da velocidade do gás foram ajustados pela correlação do número de Sherwood (2.4), em ambos os casos com suficiente precisão.

$$Nu = 0,0451 Re_p^{0,644} Pr^{0,333} Ar^{0,226} (tg\theta/2)^{-0,852} \left(\frac{H}{d_p}\right)^{-1,47} \left(\frac{D_i}{d_p}\right)^{0,947} \phi^{-2,304} \quad (2.3)$$

$$Sh = 0,01173 Re^{0,800} Sc^{0,333} Ar^{0,229} (tg\theta/2)^{-0,961} \left(\frac{H}{d_p}\right)^{-1,446} \left(\frac{D_i}{d_p}\right)^{1,036} \phi^{-1,922} \quad (2.4)$$

KUCHARSKI e KMIEC (1989) investigaram a cinética do recobrimento de comprimidos placebos com solução aquosa de açúcar em leito de jorro cone-cilíndrico. Foram avaliados os efeitos das variáveis velocidade do gás, vazão da solução de recobrimento, tempo de processamento e altura do leito estático no diâmetro médio da partícula formada e no coeficiente de granulação. O coeficiente de granulação foi obtido experimentalmente como a razão entre o incremento de massa no leito e o fluxo de suspensão. Os resultados experimentais obtidos foram comparados com os dados obtidos por correlações empíricas desenvolvidas neste trabalho.

Uma comparação entre os resultados experimentais e os valores calculados pelo modelo para o diâmetro médio, apresentou uma pequena divergência não excedendo a 6% de erro. Para o coeficiente de granulação, a comparação entre os dados obtidos experimentalmente e os valores calculados pela correlação empírica, apresentou um erro médio de 2,37%. Neste trabalho, concluiu-se também, que a distribuição de massa nos grânulos depende do tempo de processo, a cinética da granulação depende de propriedades físicas do leito como velocidade do gás e vazão da solução de recobrimento, isso influenciando o aumento na espessura da camada e a forma da partícula.

LIU e LITSTER (1993a) estudaram os efeitos da fluidodinâmica do leito, das propriedades das partículas e da suspensão de recobrimento, da máxima taxa de alimentação e elutriação durante o recobrimento de sementes em leito de jorro cônico-cilíndrico. Foram utilizados 13 tipos de sementes e uma suspensão de fosfato de cálcio e metil celulose em água. A máxima taxa de recobrimento nas sementes, caracterizada pela

umidade relativa do ar na entrada, pode ser limitada pelo balanço de massa da água, balanço de energia ou pela fluidodinâmica do leito.

Com relação ao efeito da velocidade do ar de jorro, verificou-se que a umidade relativa do ar na saída do leito aumentava com a elevação da velocidade do jorro para todos os tipos de sementes. Para o efeito nas propriedades das partículas, notou-se que para sementes maiores e de formato esférico a umidade relativa do ar na saída era maior. Na análise dos efeitos dos parâmetros do leito, mantendo-se uma máxima taxa do spray e uma velocidade do ar acima do jorro mínimo, verificou-se que: para duas alturas diferentes do leito, não houve alteração na umidade do ar na saída; para dois tamanhos de orifícios de entrada, a maior umidade do ar na saída foi obtida com o menor orifício; uma redução na temperatura do leito provocou a queda na máxima taxa do spray, mas a umidade do ar na saída não se alterou. Para os efeitos das propriedades da suspensão, a umidade do ar na saída aumenta com o decréscimo da viscosidade da suspensão de recobrimento. Nesse trabalho, concluiu-se também, que a máxima taxa de recobrimento em um equipamento de recobrimento em leito de jorro é mais alta que aquela predita considerando-o apenas como um secador, o colapso do jorro é causado pela formação de embriões de aglomeração da zona do spray à base do jorro.

OLIVEIRA et al. (1997) estudaram o recobrimento, em leito de jorro cone-cilíndrico, de partículas esféricas porosas de alumina com solução de açúcar e talco em água. O bico atomizador foi colocado na parte inferior do leito, concorrente à entrada de ar. Foram avaliados os efeitos do fluxo de gás (Q/Q_{jm}), do fluxo da suspensão de recobrimento (W_s/W_g) e da temperatura do gás. As variáveis de resposta foram taxa de crescimento das partículas e fração de sólidos incorporada nas partículas.

A taxa de crescimento das partículas e a fração de sólidos incorporados nas partículas aumentaram significativamente com o aumento dos fluxos de gás e da suspensão de recobrimento. A temperatura do gás não afetou significativamente o processo de recobrimento. Os resultados experimentais para as variáveis de resposta, no caso das partículas recobertas neste trabalho, puderam ser estimados com um bom ajuste pelas Equações empíricas (2.5) e (2.6), obtidas por métodos estatísticos (OLIVEIRA et al., 1997).

$$G = 0,143 \left(\frac{W_s}{W_g} \right)^{0,440} \left(\frac{Q}{Q_{jm}} \right)^{0,255} - 0,00817 \quad (2.5)$$

$$\eta = 6,050 \left(\frac{Q}{Q_{jm}} \right) - 1,944 \left(\frac{Q}{Q_{jm}} \right)^2 + 174,156 \left(\frac{W_s}{W_g} \right) - 17977,0 \left(\frac{W_s}{W_g} \right)^2 - 4,204 \quad (2.6)$$

QUEIROZ FILHO (1997) estudou o recobrimento de comprimidos com filme polimérico em leito de jorro bidimensional, utilizando 3 posições distintas de atomização da suspensão. Para cada posição do bico atomizador foram realizados oito experimentos variando-se a vazão de ar do jorro, a vazão da suspensão de recobrimento e a pressão do ar de atomização. Foram utilizadas cargas de 1,8 kg, ângulo de inclinação da base do leito de 50 ° e temperatura do ar controlada a 70 °C.

Para a atomização na base inclinada do leito e no topo do leito, verificou-se que valores elevados das três variáveis produziram um aumento no coeficiente de crescimento dos comprimidos. Para a atomização no fundo do leito apenas a pressão do ar de atomização apresentou efeito contrário aos demais casos. Uma comparação entre as três posições mostrou que os coeficientes de crescimento da película formada sobre os placebos não apresentaram variação significativa. Entretanto, verificou-se que os placebos apresentaram uma superfície uniforme e lisa, quando a atomização foi realizada pelo fundo ou pelo topo do leito.

AYUB (1997) desenvolveu uma unidade experimental para revestimento de partículas de uréia de formato aproximadamente esférico, com enxofre, em leito de jorro bidimensional. Foram verificadas as relações entre a qualidade do produto e as principais variáveis de operação como temperatura do ar de jorro, vazão de enxofre e vazão do ar de atomização. Foram avaliadas a cinética do crescimento da uréia e a eficiência do processo. A qualidade do produto foi analisada por dissolução a 25% e através de microscopia eletrônica. As condições operacionais foram temperatura do ar de jorro 69,0 °C e 82,5 °C, vazão de enxofre elementar fundido de 26,8 g/min e 33,9 g/min e vazão do ar de atomização de 1,0 m³/h e 1,4 m³/h. Um bico atomizador, instalado na base do leito, atomizou o enxofre em sentido concorrente ao fluxo do ar de jorro. Determinou-se que a vazão de enxofre é significativa para a cinética de crescimento e, no caso de dissolução a

25%, a temperatura do ar de jorro e a vazão do ar de atomização, revelaram ser estatisticamente significativas. Os valores para a eficiência do processo, entre 80,34% e 88,93% foram satisfatórios e a melhor qualidade do produto em termos de dissolução a 25% foi obtida nos níveis mais elevados de temperatura do ar de jorro, vazão de enxofre e ar de atomização. A microscopia revelou a presença de crateras nas partículas não recobertas, o que favoreceu a rápida difusão da uréia.

DONIDA (2000) estudou o recobrimento de grânulos de uréia com uma suspensão aquosa a base do polímero sintético Eudragit® em leito de jorro. O equipamento utilizado foi o leito bidimensional com o bico atomizador colocado na parte superior. Foram avaliados os efeitos das variáveis vazão de ar de jorro, temperatura do ar, pressão do ar de atomização e vazão da suspensão de recobrimento sobre o crescimento das partículas, eficiência do processo e qualidade do filme obtido em termos de retenção de umidade.

As eficiências mais altas para esse estudo foram conseguidas para as condições de menor temperatura e vazão do ar de jorro, maiores pressão do ar de atomização e vazão da suspensão. A cinética do recobrimento apresentou duas etapas distintas, os primeiros 45 min apresentaram menores taxas de crescimento, indicando que houve uma maior adesão sobre o filme do que sobre a uréia. O produto obtido apresentou um recobrimento uniforme, partículas não aglomeradas e uma melhor capacidade de retenção de umidade se comparado com as partículas sem o recobrimento.

KMIEC e AL JABARIN (2000) estudaram a fluidodinâmica, transferência de calor e de massa no recobrimento de vários tipos de sólidos com forma de anéis em leito de jorro cone-cilíndrico. A solução de recobrimento consistia em dióxido de titânio em etanol, pulverizada através de um bico atomizador colocado na parte inferior do cone.

No estudo da fluidodinâmica foram determinadas as curvas de queda de pressão em função da velocidade do gás e as curvas de velocidade de jorro mínimo em função da altura do leito. Os resultados experimentais para a velocidade de jorro mínimo foram comparados com valores calculados por correlações empíricas, sendo o melhor ajuste conseguido pela Equação (2.7). A transferência de calor foi avaliada através do número de Nusselt em função do número de Reynolds para várias alturas do leito. Os valores obtidos experimentalmente foram comparados com os valores calculados pela correlação

representada pela Equação (2.8), obtendo-se um desvio médio de 7,69%. Da mesma forma, a transferência de massa foi avaliada através do número de Sherwood em função do número de Reynolds para várias alturas do leito. Os dados experimentais foram comparados com os calculados pela correlação (2.9) e tiveram um desvio médio de 7,23%.

$$Re = 0,028 Ar^{0,57} \left(\frac{H}{D_i}\right)^{0,48} \left(\frac{D_c}{D_i}\right)^{1,27} \quad (2.7)$$

$$Nu = 2,673 Re_p^{0,516} Pr^{0,333} Ar^{0,033} (tg(\theta/2))^{-2,331} \left(\frac{H}{d_p}\right)^{-1,334} \left(\frac{D_i}{d_p}\right)^{0,602} \phi^{2,102} \quad (2.8)$$

$$Sh = 1,371 Re_p^{0,567} Sc^{0,333} Ar^{0,044} (tg(\theta/2))^{-2,442} \left(\frac{H}{d_p}\right)^{-1,3530} \left(\frac{D_i}{d_p}\right)^{0,753} \phi^{2,252} \quad (2.9)$$

ALMEIDA (2002) recobriu sementes de brócolis em leito de jorro e leito fluidizado para proporcionar proteção a alta concentração de vapor d'água, não prejudicando a absorção de água livre pela semente. Os resultados mostraram que foi possível recobrir sementes de brócolis não alterando a qualidade fisiológica da semente. A suspensão utilizada, a base de hidroxietilcelulose, proporcionou um comportamento protetor, verificado principalmente para alta concentração de vapor d'água. Observou-se, através de microscopia, a formação de um filme uniforme, liso, homogêneo e consistente nas sementes.

ADEODATO (2003) estudou a fluidodinâmica do leito de jorro convencional durante o processo de recobrimento, utilizando-se vários tipos de partículas. Foram analisadas as influências das propriedades físicas das partículas e da suspensão de recobrimento na fluidodinâmica.

Foram feitas medições de velocidade dos sólidos no interior do leito, correlacionando-se a taxa de circulação com o grau de saturação do leito. As partículas que apresentaram elevado ângulo de contato da suspensão, como polipropileno, polietileno e poliestireno, não foram recobertas pela suspensão de hidroxietilcelulose por não haver adesão sobre a superfície da partícula. Esferas de vidro, ABS e placebo foram recobertas pela hidroxietilcelulose e apresentaram valores satisfatórios de eficiência.

Verificou-se, também, que a velocidade de circulação das partículas no ânulo decresceu com o aumento da umidade no interior do leito, a queda de pressão de jorro estável em leito seco foi superior à do leito úmido.

DONIDA (2004) estudou o recobrimento de partículas, tratando da interação superfície da partícula e material para recobrir, analisando as influências das características do sólido e da suspensão de recobrimento utilizadas no processo. Foram utilizados diferentes tipos de partículas como esferas de vidro, placebos e poliestireno. Utilizaram-se, também, diferentes formulações de suspensões poliméricas aquosas. O recobrimento foi realizado em leito de jorro em condições operacionais pré-fixadas. As influências das características do sólido e da suspensão foram analisadas através da taxa de crescimento, da influência e qualidade do recobrimento.

Identificou-se que o ângulo de contato entre a suspensão de recobrimento e a superfície das partículas pode ser usado como indicativo do tipo de operação a ser obtida no leito de jorro. A adesão da suspensão na superfície da partícula não é dependente apenas do trabalho de adesão, mas de um conjunto de variáveis, como a fluidodinâmica, o atrito entre partículas, a atomização da suspensão e a mudança da molhabilidade das interfaces. A eficiência do processo mostrou ser influenciada por uma interferência complexa de mais de uma característica como condições interfaciais, reológicas, operacionais e de atomização da suspensão. Verificou-se, também, que as partículas crescem mais quando a suspensão de recobrimento possui maior concentração de sólidos, maior viscosidade aparente, maior densidade e maior adesão com a superfície da partícula.

DONIDA (2004) estudou a influência da adesão nos processos de recobrimento. A molhabilidade é definida como sendo a habilidade da gota molhar a partícula e espalhar-se sobre a superfície sólida. A molhabilidade de um sólido por um líquido depende do ângulo de contato entre as três fases presentes, sólido-líquido-gás. O ângulo de contato é definido como o ângulo subtendido pela tangente da fronteira gás-líquido a partir do ponto trifásico e a tangente da fronteira sólido-líquido a partir do mesmo ponto. A tensão superficial de um líquido pode ser definida como a força por unidade de comprimento necessária para estender a superfície líquida. Então, a adesão é promovida pela molhabilidade através de ligações e mecanismos atuando na interface recobrimento-sólido; a energia de adesão pode ser quantificada através do trabalho de adesão (W_{ad}) definido pela Equação (2.10). Uma

correlação empírica foi desenvolvida para o crescimento relativo a partir do trabalho de adesão, conforme está representado pela Equação (2.11).

$$W_{ad} = \sigma(1 + \cos \alpha) \quad (2.10)$$

$$\delta = 0,0670.(C_s)^{0,8345} \left(\frac{W_{ad} \cdot Q_s \cdot \rho_s^2}{\mu^{*3}} \right)^{-0,0107} \quad (2.11)$$

2.5- Modelagem e Simulação de Processos de Recobrimento

2.5.1- Métodos Clássicos

Os métodos clássicos para modelagem matemática no recobrimento são desenvolvidos a partir de equações dos balanços diferenciais, utilizados em fenômenos de transportes, para transferência da quantidade de movimento, calor e massa.

KUCHARSHI e KMIEC (1986) analisaram simultaneamente o processo de recobrimento e secagem de comprimidos de tamanho único em leito de jorro cônico. Foi proposto um modelo matemático, por região do leito, que descreve a fluidodinâmica, balanços para transferência de calor e massa entre as fases. Consideraram-se duas zonas estruturais distintas, a zona anular e a zona do spray. O núcleo da fase sólida foi dividido em três tipos de formas, a fase inerte, a fase de recobrimento e a fase de spray. Os sistemas de equações diferenciais ordinárias não lineares obtidos, complementadas com as equações empíricas fenomenológicas, foram resolvidos por métodos numéricos.

Como resultado da simulação, para a montagem experimental desenvolvida, apresentou-se uma distribuição de velocidades do gás ao longo do eixo axial do leito e o tempo de residência na fase inerte do leito, formada por partículas ainda não recobertas. O

modelo forneceu também uma distribuição do tempo de processamento, temperatura do gás e das fases sólidas consideradas, umidade das fases sólidas e os perfis de diâmetros equivalentes das partículas.

CHOI e MEISEN (1997) desenvolveram dois modelos matemáticos para descrever o recobrimento de partículas de uréia com enxofre em leite de jorro raso. O material de recobrimento é injetado coaxialmente com o gás do jorro sob estado estacionário ou regime transiente, em operações contínua ou por batelada. O primeiro modelo foi baseado em uma única zona do leite, enquanto um equacionamento alternativo propôs a divisão do leite em três zonas detalhando a fluidodinâmica do leite e os impactos inerciais. Em ambos os modelos foi predita a distribuição do material de recobrimento sobre as partículas do leite e comparada com a qualidade do produto final.

No primeiro modelo as seguintes hipóteses foram consideradas: as partículas estão perfeitamente misturadas, as gotículas do spray estão uniformemente distribuídas em todo o leite, todas as gotículas do spray depositam-se sobre as partículas e todas as partículas do leite têm o mesmo tamanho. O conteúdo de recobrimento foi definido como sendo a razão entre a massa de enxofre e a massa total (enxofre e uréia).

Como o primeiro modelo admite que a zona de spray se estende por todo o leite, este não prevê a presença de partículas não recobertas. Tal deficiência foi suprida pelo modelo alternativo, baseando-se na distribuição do recobrimento e no comportamento individual da partícula, calculado por equações que descrevem a circulação da partícula e o mecanismo do recobrimento. Considerou-se para o modelo alternativo que as partículas na fonte estão perfeitamente misturadas, as partículas no jorro e ânulo estão em escoamento pistão, variações no tamanho e na densidade das partículas são negligenciáveis, bem como são insignificantes as mudanças nas propriedades do enxofre como solidificação e transformações alotrópicas. A qualidade do produto foi avaliada por um teste de dissolução em água por 7 dias, através da taxa de uréia dissolvida.

Os resultados calculados pelos modelos matemáticos foram comparados com resultados experimentais. O conteúdo de recobrimento, em ambos os modelos, apresentou uma boa concordância entre os valores preditos e medidos, contudo essa concordância não foi satisfatória para valores de recobrimento inferior a 10 %. Com relação à taxa de uréia

dissolvida, em algumas corridas houve uma boa aproximação entre os valores medidos e preditos, no entanto, em outras onde o estado estacionário não foi alcançado, os valores medidos mostraram-se mais elevados que os preditos.

NAKAMURA et al. (1998) empregaram o método bidimensional de “Monte Carlo” para simular um recobrimento de partículas em leito fluidizado tipo. Os resultados de distribuição de massa foram comparados com aqueles obtidos experimentalmente por ABE et al. (1998). O modelo consistiu em designar uma zona de spray e uma zona de não spray sendo que as partículas estavam distribuídas aleatoriamente no leito. Foi considerado que o movimento das partículas é aproximadamente a soma unidirecional do seu fluxo médio, causado pela rotação do disco e do ar de fluidização, com os desvios do fluxo médio, causado por turbulências e colisões de partículas. A direção do movimento foi determinada pela seleção de uma direção arbitrária usando um número aleatório. Os parâmetros da simulação foram definidos como: determinação da área da zona do spray, cálculo do número de gotículas do spray, cálculo do número de ciclos por segundo, cálculo da taxa do número de ciclos do spray pela área da zona do spray, determinação da taxa unidirecional média das partículas e estimativa da distância de movimento aleatório das partículas.

A comparação entre os valores simulados para a distribuição do tempo de residência com os valores calculados apresentou um bom resultado, apesar da consideração do fluxo unidirecional médio. Na simulação, devido às partículas serem cobertas somente dentro da zona de spray, a distribuição da massa de recobrimento foi considerada como a distribuição total do tempo de residência de cada partícula na zona do spray. A comparação entre os resultados experimentais e resultados simulados para a massa média de recobrimento, apresentou uma boa concordância, apesar do método de simulação utilizada ser bastante simplificado.

GUIGNON et al. (2000) estudaram o recobrimento de partículas (experimental e modelagem) em leito fluidizado cônico com tubo central e bico atomizador na base. As partículas utilizadas foram semolina (porosa e com formato irregular) ou alumina (superfície lisa e forma esférica), as soluções de recobrimento usadas foram cloreto de sódio, maltodextrina ou goma de acácia, dissolvidas em água. A quantidade de material e a espessura média de recobrimento foram determinadas por dissolução das partículas

recobertas em água e a concentração da solução resultante foi medida com refratômetro e condutivímetro.

Na modelagem do processo, o leito foi dividido em quatro zonas: zona abaixo do tubo, de umidificação e secagem, de secagem e de atrito e de secagem. Foi considerado que as partículas circulam por todas as zonas, atingem a espessura de recobrimento, possuem a mesma trajetória e considerou-se apenas o movimento vertical da partícula. A transferência de calor foi considerada um fator não limitante para o processo. As equações diferenciais foram resolvidas por métodos numéricos.

A massa teórica fixada do soluto para cada 100g de partículas e a correspondente espessura do recobrimento foram calculadas para 25 min de atomização da suspensão. Os valores calculados foram comparados com aqueles obtidos experimentalmente. Para a semolina, verificou-se que estes foram menores que os valores calculados. No caso da alumina, os resultados experimentais foram maiores que os calculados através do modelo. Concluiu-se que são necessários mais experimentos para validar esse modelo.

2.5.2- Método do Balanço Populacional

Neste trabalho, optou-se pela metodologia do balanço populacional para a modelagem matemática do recobrimento. Portanto, será feita uma discussão sobre o assunto, iniciada no trabalho desenvolvido por RANDOLPH e LARSON (1971). O texto a seguir trata das equações do balanço populacional aplicadas a processos de cristalização e aglomeração.

O balanço populacional consiste no desenvolvimento de uma teoria de distribuição multidimensional da partícula, bem definida para processos regulares de formação de partículas, incluindo a predição da forma e muitas vezes da magnitude da distribuição da partícula. A função distribuição é definida pela solução de equações diferenciais dadas por uma forma algébrica específica. Os parâmetros físicos afetam a formação da distribuição

nas equações diferenciais, desta forma permitindo que a teoria seja utilizada na predição tanto quanto no sentido descritivo. A resposta transiente do processo da partícula pode ser quantitativamente descrita por meio dessa teoria.

O espaço da fase partícula consiste no menor número de coordenadas independentes anexadas à distribuição da partícula que permite uma completa descrição de propriedades da distribuição da partícula. Esse espaço pode convenientemente ser dividido em duas sub-regiões dadas por coordenadas internas e externas da partícula. As coordenadas externas referem-se simplesmente à distribuição espacial das partículas, sendo de fato desnecessárias. As coordenadas internas referem-se às propriedades fixas de cada partícula individual e que quantitativamente medem seu estado, independente de sua posição (exemplos: tamanho, composição química, tempo, conteúdo de energia).

No tratamento seguinte, considera-se uma função distribuição de partículas $n'(R,t)$ definida sobre uma região R consistindo de três coordenadas espaciais mais m propriedades internas das partículas. O número de partículas existentes em um tempo t em um incremento de região do espaço da fase partícula, dR , é dada por:

$$dN = n' dR \quad (2.12)$$

enquanto o número total de partículas na mesma sub-região finita do espaço R_1 é:

$$N(R_1) = \int_{R_1} n dR \quad (2.13)$$

Em qualquer processo particulado que leve à formação de uma distribuição de partículas, partículas individuais vão continuamente mudando suas posições no espaço da fase partícula. Cada partícula se move ao longo de várias coordenadas internas e externas. Se essas mudanças forem graduais e contínuas, refere-se a esse movimento como uma convecção ao longo da respectiva coordenada da partícula e a taxa de mudança das propriedades das coordenadas da partícula como uma velocidade convectiva da partícula ao longo dos eixos coordenados. Desta forma, define-se o vetor velocidade da partícula na fase do espaço como:

$$\vec{v} = v_x \xi_x + v_y \xi_y + v_z \xi_z + v_1 \xi_1 + v_2 \xi_2 + \dots + v_m \xi_m \quad (2.14)$$

ou

$$\vec{v} = \vec{v}_e + \vec{v}_i \quad (2.15)$$

onde \vec{v} é o vetor velocidade e os ξ são os vetores unitários ao longo dos eixos coordenados externos e internos. Deve ser notado que a velocidade externa não é necessariamente a mesma que a velocidade do fluido na suspensão. Em geral, a velocidade da partícula deve ser computada a partir da velocidade do fluido e a uma troca de momento adequado (fator de fricção) relacionado a um balanço auxiliar de forças para cada partícula.

As velocidades internas da partícula são as únicas que assumem a função de estado da partícula. Um exemplo de velocidade interna é aquele em que a taxa linear de crescimento de um cristal em uma solução supersaturada, é determinada pelo tamanho da partícula e por um nível ao redor da supersaturação. Definindo-se o tamanho linear da partícula L , a taxa de crescimento linear G é apenas a taxa de variação de L . Assim:

$$G = \frac{dL}{dt} \quad (2.16)$$

Finalmente, reconhece-se a possibilidade das partículas repentinamente aparecerem ou desaparecerem no ponto do espaço da fase interna da partícula, o qual pode ser representado por funções de crescimento e morte da distribuição das partículas. O processo regular no qual ocorrem eventos de nascimento e morte das partículas pode ser relacionado ao estado total do sistema e/ou à posição da partícula no espaço da fase partícula. B e D representam as tais funções empíricas de nascimento e morte das partículas em um ponto no espaço da fase. A taxa de aparição das partículas em um dado ponto é dada por $(B - D)dR$. Deve-se enfatizar que essa fórmula é somente simbólica sendo de pequeno valor a menos que, formas teóricas razoáveis ou empíricas para os termos de nascimento e morte possam ser expressas em termos de uma distribuição de funções.

Um balanço populacional para partículas em uma mesma sub-região fixa do espaço da fase partícula, pode ser expressa por:

$$Acúmulo = Entra - Sai + Gerado$$

Se considerarmos a sub-região R_I , movendo-se com velocidade \bar{v} no espaço da fase partícula, então o balanço populacional das partículas na sub-região R_I pode ser dado por:

$$\frac{d}{dt} \int_{R_I} n' dR = \int_{R_I} (B - D) dR \quad (2.17)$$

O termo anterior pode ser ampliado, usando a regra de Leibnitz:

$$\frac{d}{dt} \int_{R_I} n' dR = \int_{R_I} \frac{\partial n'}{\partial t} dR + \left(n' \frac{dx}{dt} \right) \Big|_{R_I} = \int_{R_I} \left[\frac{\partial n'}{\partial t} + \nabla \cdot \left(\frac{dx}{dt} n' \right) \right] dR \quad (2.18)$$

onde x é o conjunto de coordenadas internas e externas incluídas no espaço da fase R_I . Reconhecendo que:

$$\frac{dx}{dt} = v = v_e + v_i \quad (2.19)$$

o balanço populacional pode ser escrito para a região R_I como:

$$\int_{R_I} \left[\frac{\partial n'}{\partial t} + \nabla \cdot (v_e n') + \nabla \cdot (v_i n') + D - B \right] dR = 0 \quad (2.20)$$

Como a região R_I foi arbitrária, a integral deve desaparecer. Assim o balanço é dado por:

$$\frac{\partial n'}{\partial t} + \nabla \cdot (v n') - B + D = 0 \quad (2.21)$$

ou, em termos de $m + 3$ coordenadas,

$$\frac{\partial n'}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (v_x n') + \frac{\partial}{\partial y} (v_y n') + \frac{\partial}{\partial z} (v_z n') + \sum_{j=1}^m \frac{\partial}{\partial (x_i)_j} [(v_i)_j n'] - B + D = 0 \quad (2.22)$$

A Equação (2.21) é a equação da continuidade para a partícula no espaço da fase partícula. Essa equação, junto com os balanços de massa e energia, encerram os valores das coordenadas internas de velocidade v_i , a cinética de formação das partículas e as condições de entrada e saída da suspensão na região de interesse. Determina, também, a dinâmica da distribuição multidimensional de partículas formadas nos processos que obedecem as

restrições gerais discutidas anteriormente. A Equação (2.21) é geral, sendo usada quando as partículas são distribuídas ao longo das coordenadas espaciais externas e internas.

Na maioria dos sistemas de cristalização, recobrimento e aglomeração, um conhecimento completo da distribuição das partículas é desnecessário. De preferência, alguma média ou quantidades totais é suficiente para representar a distribuição da partícula. Pode-se citar tamanho médio, área superficial ou concentração em massa, que poderiam ser obtidas em termos de integrais da função de distribuição, em particular, momentos da distribuição.

Em certos casos, ocorre uma incompatibilidade básica da equação do balanço populacional em relação às equações do transporte de massa, quantidade de movimento e de energia; isto é, quando aquelas equações são respectivamente de $m + 3$ e 3 dimensões. Essa diferença dimensional, dificulta uma resolução simultânea das equações de transporte juntamente com as equações do balanço populacional, usualmente resultando equações integro-diferenciais.

Assim, procura-se uma transformação da equação do balanço populacional, que dividirá proporcionalmente a distribuição com referência às propriedades das coordenadas internas, e que reduzirá a dimensionalidade das equações de transporte. Esse conjunto fechado, em condições apropriadas, pode dar uma idéia de como seria uma representação matemática completa de um sistema particulado, estando sob várias restrições.

Considera-se uma distribuição espacial dos processos particulados que possa ser descrito adequadamente com uma coordenada interna do espaço da fase partícula. O balanço populacional pode ser escrito para esse sistema como:

$$\frac{\partial n'}{\partial t} + \nabla \cdot v_e n' + \frac{\partial}{\partial L} (Gn') = B - D \quad (2.23)$$

onde a única coordenada interna L pode ser, por exemplo o tamanho da partícula. Considerando que a taxa de crescimento da partícula G varia linearmente com o tamanho da partícula. Assim,

$$G = G_0(1 + aL) \quad (2.24)$$

Define-se o *j*-ésimo momento da distribuição como:

$$\mu_j(x_e, t) = \int_0^\infty n' L^j dL \quad (2.25)$$

O balanço populacional pode ser agora medido na dimensão L , multiplicando-o por $L^j dL$ e integrando de zero a infinito. Assim,

$$\int_0^\infty L^j \left[\frac{\partial n'}{\partial t} + \nabla \cdot v_e n' + \frac{\partial}{\partial L} (Gn') - B + D \right] dL = 0 \quad (2.26)$$

Invertendo a ordem de integração e diferenciando os primeiros dois termos, tem-se:

$$\int_0^\infty L^j \left(\frac{\partial n'}{\partial t} + \nabla \cdot v_e n' \right) dL = \frac{\partial \mu_j}{\partial t} + \nabla \cdot v_e \mu_j \quad (2.27)$$

o qual considera que $v_e \neq v_e(L)$.

Geralmente, os termos de nascimento e morte, B e D , serão dados em termos da função de distribuição n' e também das coordenadas independentes x_e e L . Assume-se que a média espacial (momento de integração) dessas funções pode ser expandida em termos do primeiro momento da distribuição, $\mu_0, \mu_1, \dots, \mu_k$. Assim, escreve-se:

$$\int_0^\infty [B(x_e, L, n', t) - D(x_e, L, n', t)] L^j dL = \bar{B}(x_e, t, \mu_k) - \bar{D}(x_e, t, \mu_k) \quad (2.28)$$

$$j = 0, 1, 2, \dots \geq k$$

Finalmente, o terceiro termo do balanço populacional pode ser integrado por partes, como:

$$\int_0^\infty L^j \frac{\partial}{\partial L} (Gn') dL = -0^j \cdot B^0 - jG_0(\mu_{j-1} - a\mu_j) \quad (2.29)$$

onde B^0 é o fluxo de entrada da região das coordenadas internas a $L = 0$ (no caso de cristalização, taxa de nucleação). O momento de transformação do balanço populacional para uma coordenada interna pode assim ser escrito:

$$\frac{\partial \mu_j}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{v}_e \mu_j = 0^j \cdot B^0 + jG_0(\mu_{j-1} + a\mu_j) + \bar{B} - \bar{D} \quad (2.30)$$

A Equação (2.30) foi definida para ser dimensionalmente igual às equações de transporte e poder ser resolvida juntamente com as equações de transferência de massa, energia e quantidade de movimento, produzindo assim uma descrição matemática completa de um processo particulado. Além disso, as propriedades médias e/ou totais da distribuição podem ser obtidas diretamente dos momentos na dependência do tempo e na dependência da posição, informações geralmente suficientes para descrever a fase particulada.

Finalmente, as questões da estabilidade dinâmica do processo particulado podem ser determinadas pela resolução do conjunto truncado de equações do momento. Certamente, a instabilidade das quantidades médias (momentos) indica instabilidade da distribuição do sistema.

HULBURT e KATZ (1964) desenvolveram uma equação apropriada para uma fase “bulk”, com crescimento de partículas, em escoamento em tubos. O ponto de partida é o sistema de equações dos momentos na distribuição de tamanho das partículas, com o momento μ_n , as funções intrínsecas da taxa de crescimento e a função taxa de nucleação. Desistiu-se da complexidade tridimensional transiente e considerou-se estado de fluxo unidimensional. Tomou-se o regime hidráulico externo para dar incompressibilidade ao fluxo pistão, permanecendo então a coordenada externa associando a velocidade linear constante. Com essas considerações, o momento μ_n , a concentração C_s e a temperatura T tomam-se somente funções da coordenada x .

Foram desenvolvidas equações de dependência do tempo para processos de aglomeração em tubos. As partículas movem-se em média por toda a mesma linha reta, com a mesma velocidade v em qualquer mudança de posição x e tempo t . Ignora-se todas as características intrínsecas da partícula mas, sua massa m , a coordenada externa x e a coordenada interna L , definem o espaço da fase partícula. Foram propostas, também, uma análise da distribuição do tempo de permanência considerando as partículas bem homogeneizadas, o vaso com entrada e saída de fluxo contínuo e a evolução da distribuição do tempo de residência em relação ao estado estacionário.

HOUNSLOW et al. (1988) desenvolveram uma técnica numérica, através do balanço populacional, para a simulação por batelada na formação de cálculos renais. Partículas de oxalato de cálcio monohidratado cresceram e formaram agregados em uma solução supersaturada de oxalato de cálcio. O papel do crescimento linear e agregação sobre a influência da força de supersaturação foi estabelecido como um mecanismo para a formação de pedras na urina. Os dados obtidos dos testes puderam ser examinados de forma qualitativa por observação do número total de cristais para o crescimento e do volume para a agregação. As equações do balanço populacional foram discretizadas pelo motivo da dificuldade da inclusão dos termos de agregação nessas equações; uma técnica similar também foi usada para o crescimento.

A técnica do balanço populacional para nucleação, crescimento e agregação, em sistemas por batelada a volume constante, permitiu a transformação de equações diferenciais parciais e equações integrais em um conjunto de equações diferenciais ordinárias. As equações transformadas produziram resultados próximos às soluções analíticas testadas. Os momentos simulados e a distribuição de tamanho das partículas estavam em excelente concordância como os resultados experimentais.

WNUKOWSKI e SETTERWALL (1989) propuseram um modelo de balanço populacional em um processo de recobrimento de partículas em leito fluidizado para analisar os efeitos da distribuição de massa. Assumiu-se que a distribuição de massa pode ser considerada como uma função de distribuição do tempo de residência. O leito foi dividido em dois domínios: F onde as partículas são secas e misturadas e G onde as partículas são recobertas, em ambos os domínios desprezam-se as variações de tamanho das partículas.

O sistema de equações foi resolvido por três formas diferentes: analiticamente por Transformada de Laplace, por simulação numérica e pelas transformações das equações do balanço populacional em momentos.

A análise dos resultados demonstrou que uma maior uniformidade na distribuição do recobrimento para uma mesma massa total adicionada por batelada pode ser conseguida: ampliando o tamanho da zona ativa, decrescendo o tempo de passagem no leito,

conservando a taxa do spray tecnologicamente ou economicamente em um nível mínimo permitido.

LIU e LITSTER (1993b) estudaram o recobrimento de sementes distribuídas em diferentes tamanhos iniciais e a massa de recobrimento depositada, para operações por batelada e contínua em leito de jorro cônico-cilíndrico. Foram estudados os efeitos de condições operacionais tais como fluxo da suspensão de recobrimento, velocidade do ar de jorro e a taxa de recobrimento. Um balanço populacional foi desenvolvido para prever a distribuição da massa de recobrimento. Uma simulação para o processo contínuo resultou na dependência da massa das partículas com o fluxo.

O balanço populacional foi desenvolvido a partir da Equação (2.31), estudada por RANDOLPH e LARSON (1971):

$$\frac{\partial Nf(m)}{\partial t} = -\frac{\partial(GNf(m))}{\partial m} + B - D \quad (2.31)$$

No processo de recobrimento das sementes, o principal mecanismo é a formação da camada. Supondo a não existência de aglomeração ou fragmentação das partículas, então a equação (2.31) se reduz a:

$$\frac{\partial Nf(m)}{\partial t} = -\frac{\partial(GNf(m))}{\partial m} \quad (2.32)$$

onde G é a taxa de crescimento da partícula, ou seja, a massa depositada na partícula por unidade de tempo, dada pela expressão:

$$G(m) = \frac{dm}{dt} \quad (2.33)$$

Considerou-se que um leito de jorro consiste de partículas de várias massas, e que cada partícula no leito gasta o mesmo tempo na zona do spray. Após um período de tempo significativo, espera-se que a taxa de crescimento instantânea para a partícula, passando através da zona de spray, será proporcional a sua área superficial. Assim:

$$G(m) = K \frac{\pi d^2}{\phi} = Km^{2/3} \quad (2.34)$$

No primeiro termo da equação ϕ é a esfericidade da partícula e d o diâmetro volumétrico equivalente das partículas. A massa do recobrimento é insignificante se comparada com a massa das sementes. Assim a densidade média das partículas mudará muito pouco com o tempo de processo, portanto esse efeito foi desprezado nessa análise. O coeficiente de proporcionalidade K , que é apresentado no segundo termo da Equação (2.35), pode ser obtido em qualquer tempo t pelo seguinte balanço de massa:

$$\int_0^{\infty} Nf(m)G(m)dm = S_d - E \quad (2.35)$$

substituindo a Equação (2.34) na Equação (2.35) e rearranjando, K é obtida por:

$$K = \frac{S_d - E}{\int_0^{\infty} Nf(m)m^{2/3} dm} \quad (2.36)$$

e a taxa de crescimento G por:

$$G(m) = \frac{(S_d - E)m^{2/3}}{\int_0^{\infty} Nf(m)m^{2/3} dm} \quad (2.37)$$

Para calcular a massa de recobrimento depositada na partícula com uma massa inicial m_0 , combinam-se as Equações (2.33) e (2.37), assim obtém-se a Equação (2.38) para o processo por batelada:

$$\frac{dm_p(t)}{m_p^{2/3}(t)} = \frac{(S_d - E)dt}{\int_0^{\infty} N.f(m)m^{2/3} dm} = K(t)dt \quad (2.38)$$

A equação do balanço populacional foi discretizada pelo método de HOUNSLOW (1988) e obteve-se a equação:

$$\frac{dN_i}{dt} = \frac{1}{m_i} (aG_{i-1}N_{i-1} + bG_iN_i + cG_{i+1}N_{i+1}) \quad (2.39)$$

sendo a , b , c os momentos de ordem zero, um e dois respectivamente.

Para o processo contínuo, LIU e LITSTER (1993b) obtiveram a Equação (2.40). A Equação (2.41) foi desenvolvida para a distribuição por tamanho das partículas recobertas no leito. As equações diferenciais foram resolvidas através do método da discretização desenvolvido por HOUNSLOW et al. (1988).

$$\frac{d(Gn')}{dm} = - \left(\frac{\partial n'}{\partial t} \right) \quad (2.40)$$

$$\frac{d(Gn')}{dm} = n' \frac{n' \cdot m^2}{\int_0^{\infty} n' \cdot m^2 \cdot dm} \frac{N}{t} \quad (2.41)$$

Os resultados preditos pelo modelo foram comparados com resultados experimentais para recobrimento de 3 tipos de sementes com uma suspensão aquosa de fosfato de cálcio e metil celulose. Foram avaliadas as relações entre a massa natural das sementes e a massa do recobrimento, variando-se a velocidade do ar de jorro e o fluxo da suspensão de recobrimento. A distribuição da massa no recobrimento depende da distribuição inicial do tamanho das partículas, a quantidade de recobrimento na partícula é proporcional à sua massa e os parâmetros do leito de jorro não influem na distribuição da massa de recobrimento. O modelo de balanço populacional, relacionando a dependência do tamanho da partícula com o termo de crescimento, mostrou uma boa concordância com os resultados experimentais para todo o conjunto de dados. Contudo, houve um maior desvio para as sementes grandes sendo mais pronunciado, ainda, para casos que envolvem grandes massas de material de recobrimento e de sementes recobertas. A simulação do processo contínuo resultou na predição de uma distribuição de massa de recobrimento mais ampla, comparada com a operação em batelada.

ATAÍDE (1996) estudou a cinética de crescimento de comprimidos durante a operação de recobrimento e secagem do filme depositado sobre a superfície das partículas. O recobrimento foi realizado em leito de jorro cone-cilíndrico com sistema de injeção auxiliar de gás, denominado leito de jorro-fluidizado. Neste trabalho foram feitas as caracterizações fluidodinâmicas do leito de jorro em comparação ao jorro-fluidizado, estudou-se o efeito da injeção de ar na taxa de circulação dos comprimidos para as condições operacionais utilizadas. Durante o processo de recobrimento foram avaliados os efeitos da altura estática do leito e da vazão da suspensão de recobrimento sobre a taxa de

crescimento dos comprimidos para os dois sistemas estudados. Desenvolveu-se também um modelo matemático para descrever a cinética de crescimento dos comprimidos e optou-se por um modelo de balanço populacional, baseado nas equações desenvolvidas por LIU e LITSTER (1993b). As equações diferenciais obtidas foram resolvidas por métodos numéricos e os resultados comparados com as determinações experimentais.

A qualidade do produto final foi avaliada em termos de homogeneidade, através da distribuição de massa do comprimido recoberto em relação à massa inicial. O processo de recobrimento em leito de jorro-fluidizado apresentou-se mais eficiente devido à melhor taxa de circulação de partículas na região anular do leito. Entretanto, o leito de jorro propicia um menor arraste de gotículas atomizadas e uma melhor secagem das partículas. Com relação à análise das influências na cinética de crescimento, conclui-se que para uma maior vazão da suspensão ocorreu maior crescimento das partículas, e que um aumento na altura estática do leito diminui a taxa de crescimento. O modelo matemático do balanço populacional mostrou um bom desempenho quando se comparou o valor calculado com os resultados experimentais obtidos. Provavelmente a técnica de utilização de histogramas da matéria prima para estimar o número de partículas no instante inicial, associada a se destinar alguns intervalos vazios para serem ocupados ao longo do período de recobrimento, foram responsáveis pela boa concordância obtida.

MARONGA e WNUKOWSKY (1997) estudaram a modelagem por balanço populacional para o recobrimento de partículas em leito fluidizado. O leito foi dividido em três zonas: o domínio de spray ativo, onde as partículas são pulverizadas pela solução, o domínio da secagem ativa, onde as partículas são secas e o domínio não ativo, onde as partículas não são diretamente envolvidas no processo de recobrimento. Nessa modelagem em três domínios foi considerado que: as partículas dentro de um mesmo domínio são perfeitamente miscíveis, o tamanho relativo de cada domínio é constante, as partículas gastam a menor unidade de tempo no domínio, não há atrito, elutriação ou quebra das partículas, o tamanho das partículas é bastante próximo, todo o spray é depositado nas partículas, a massa do recobrimento acrescentada é relativamente pequena se comparado com a massa das partículas.

Os resultados da simulação numérica mostraram que a distribuição do recobrimento nos três compartimentos do modelo depende da duração do recobrimento, do

tamanho dos domínios e da taxa de transferência entre os domínios. A escolha do passo da integração numérica das equações de balanço populacional tem um profundo efeito no resultado da distribuição do recobrimento. A taxa de transferência de partículas, entre os três domínios em operação normal, foi fixada em 10% do tamanho do domínio de recobrimento ativo. A variância da distribuição de recobrimento diminui com o aumento da diferença das taxas de transferência entre os domínios. Quando a taxa de transferência entre todos os domínios é aumentada na mesma proporção, os valores da média adimensional de recobrimento e da variância de recobrimento mantêm-se constantes. Os resultados também indicam que, independente do tempo de recobrimento e do tamanho do domínio não ativo, a distribuição do recobrimento com alta variância é obtida quando há mesma taxa de transferência entre os domínios.

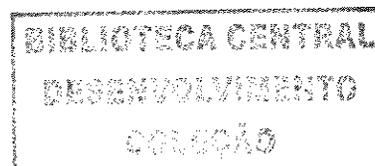
DUARTE et al. (2004) simularam a distribuição de massa de sementes de soja recobertas com inoculante e micronutrientes em leito de jorro, utilizando o modelo do balanço populacional. Os resultados simulados foram validados com os resultados obtidos em 16 experimentos variando-se a vazão do ar de jorro, a vazão do ar de atomização e a vazão da suspensão.

Através dos resultados obtidos nesse trabalho pôde-se concluir que foi possível prever a massa final da semente recoberta em leito de jorro com um erro da ordem de 0,3 %, utilizando-se o modelo do balanço populacional associado a um planejamento experimental.

HEINRICH et al. (2004) desenvolveram um modelo para um processo contínuo de granulação por “spray” em leito fluidizado. Foram estudados os processos de transferência de calor e de massa através de um modelo unidimensional acoplado ao balanço populacional. Para o cálculo das distribuições de temperatura e umidade foi utilizado um modelo tridimensional. O experimento foi realizado utilizando quatro bicos atomizadores de água em um leito fluidizado monodisperso de esferas plásticas em uma câmara termicamente isolada.

O modelo para transferência de calor e massa permitiu o cálculo da umidificação, deposição e secagem das gotículas do “spray” nas partículas. Os resultados simulados e experimentais determinaram que uma área estreita sobre a placa distribuidora foi definida

como uma zona de transferência de calor. O líquido evaporado das partículas entra em contato com o ar fazendo com que a umidade do ar ascenda no leito. A zona do “spray” pode, portanto, ser definida como a zona de transferência de massa e é caracterizada por uma alta eficiência de umidificação. O modelo acoplado ao balanço populacional para o cálculo da dependência do tempo na distribuição do tamanho das partículas, levou em conta o atrito, a formação de poeira, a nucleação e a descarga do produto.



3 – METODOLOGIA

3.1- Experimental

Foram realizados ensaios experimentais de recobrimento com a finalidade de comparar os dados obtidos com os resultados obtidos por simulação, a partir de modelo desenvolvido no item 3.2, já que não foram encontrados na literatura dados de recobrimento em leito de jorro para partículas polidispersas.

3.1.1- Material

As partículas sólidas utilizadas nos experimentos de recobrimento foram esferas de vidro de diversos tamanhos. Inicialmente essas partículas passaram por ensaios de caracterização como granulometria, densidade, porosidade do leito fixo e esfericidade.

Para os ensaios granulométricos foi utilizada a série de peneiras Tyler com mesh números 7, 8, 9, 10 e 12. Uma amostra de 300 g das partículas foi colocada no conjunto de peneiras para vibração durante 15 min; as porções separadas foram pesadas em balança analítica. Este procedimento permitiu a determinação, para cada intervalo, do diâmetro médio das partículas, massa retida nas peneiras, massa unitária da partícula e número de partículas. O diâmetro médio do lote pôde ser avaliado pelo diâmetro de Sauter através da expressão:

$$d_p = \frac{1}{\sum \left(\frac{x_i}{d_{p_i}} \right)} \quad (3.1)$$

Na determinação da densidade das esferas de vidro foi utilizado um picnômetro de 25 mL dessecado, calibrado e um termômetro. Uma quantidade de partículas foi colocada no picnômetro e posteriormente pesada, em seguida o volume é completado com água

destilada e pesado novamente. O volume de água adicionado foi determinado através de uma tabela de densidades para a água à temperatura registrada. Determinou-se, então, a densidade dividindo-se a massa das partículas pela diferença entre os volumes total do picnômetro e da água adicionada.

A densidade do empacotamento de partículas (“bulk”) foi determinada adicionando-se as esferas em recipiente cilíndrico de alumínio (100 mL) tarado e com volume aferido. As partículas foram colocadas sem compactação, até se completar o volume e o conjunto pesado em seguida. A porosidade do leito estático de esferas foi determinada através da densidade “bulk” e da densidade das partículas, pela expressão:

$$\varepsilon = 1 - \frac{\rho_b}{\rho_p} \quad (3.2)$$

A esfericidade das partículas de vidro foi determinada por projeção de um lote aleatório de 20 esferas, sendo que o valor da esfericidade para cada partícula, foi dado pela razão entre os diâmetros do círculo inscrito pelo círculo circunscrito, conforme a Equação (3.3). Para todo o lote de partículas foi determinado um valor médio da esfericidade.

$$\phi = \frac{d_{inscr.}}{d_{circ.}} \quad (3.3)$$

A suspensão de recobrimento foi preparada a base do polímero hidroxietilcelulose em água com concentração de sólidos em torno de 11% em massa, conforme os dados da Tabela 3.1 (ATAÍDE, 1996). As substâncias adicionadas, juntamente com a hidroxietilcelulose, têm por finalidade melhorar a qualidade do recobrimento, a saber: o polietilenoglicol é plastificante, o estearato de magnésio reduz a tensão superficial da suspensão, o dióxido de titânio é opacificante e o talco torna lisa a superfície da película. A preparação consistiu em dissolver a hidroxietilcelulose em metade da água e os demais componentes na outra metade. Agitou-se separadamente, utilizando agitador mecânico, misturou-se as duas partes e agitou-se novamente até aspecto homogêneo. Posteriormente, a suspensão foi submetida a um moinho coloidal, por 20 min, com a finalidade de reduzir o tamanho das partículas em suspensão, evitando assim problemas de entupimento na atomização.

Tabela 3.1 – Composição da suspensão de recobrimento (ATAÍDE, 1996)

<i>Reagentes</i>	<i>Percentagem em massa (%)</i>	<i>massa (g)</i>
Hidroxietilcelulose	3,50	35,0
polietilenoglicol 6000	0,75	7,5
estearato de magnésio	1,00	10,0
dióxido de titânio	1,25	12,5
pigmento azul	1,00	10,0
Talco	3,50	35,0
Água	89,0	890,0
Total	100,00	1000,0

Testes de caracterização foram feitos, em duplicata, com a suspensão de recobrimento. Determinou-se a densidade, concentração de sólidos, tensão superficial, propriedades reológicas e ângulo de contato.

A densidade da suspensão de recobrimento foi determinada à temperatura ambiente, para cada lote de suspensão produzida, utilizando-se picnômetro de 25 mL calibrado.

Para a determinação da concentração de sólidos, em cada lote de suspensão, colocou-se 10 mL da suspensão em uma cápsula de porcelana, em seguida deixou-se em estufa a 110 °C para perda da umidade até massa constante.

A tensão superficial da suspensão foi medida pelo tensiômetro automático de DuNoüy da marca KSB - SIGMA, em banho termostático à temperatura de 25 °C. A tensão é determinada a partir das medidas sucessivas da força necessária para romper um filme líquido da suspensão formado por um anel.

A reologia foi obtida em um reômetro capilar, através da determinação da curva pseudo-reológica. Mediu-se a vazão da suspensão em escoamento laminar a diferentes alturas. Obteve-se a tensão de cisalhamento τ através da Equação (3.4) e a pseudotaxa de deformação $\dot{\gamma}^*$ através da Equação (3.5).

$$\tau = \frac{d_c \Delta P}{4z} \quad (3.4)$$

$$\gamma^* = \frac{8v}{d_c} \quad (3.5)$$

A curva pseudo-reológica foi obtida através do gráfico da tensão de cisalhamento versus pseudotaxa de deformação, obtidas pelas Equações (3.4) e (3.5). Os parâmetros k' e n foram determinados, respectivamente, pelos coeficientes linear e angular da regressão da curva.

Os parâmetros reológicos do modelo “power-law” são dados pela Equação (3.6), sendo k o índice de consistência e n o índice de comportamento. Se os dados τ versus γ^* se ajustarem a uma reta, o fluido é Newtoniano ou se comporta de acordo com a lei da potência. Neste caso se $n=1$ o fluido é Newtoniano, se $n<1$ é um pseudoplástico e se $n>1$ o fluido é dilatante. A partir do coeficiente linear k' , obtém-se o índice de consistência k através da Equação (3.7)

$$\tau = k\gamma^n \quad (3.6)$$

$$k' = k \left(\frac{3n+1}{4n} \right)^n \quad (3.7)$$

O ângulo de contato é o ângulo da gota líquida formado entre a superfície sólida da partícula e a linha tangente onde a gota cai. Depende da energia de superfície da partícula e da tensão superficial do líquido. Utilizou-se para essa medida o método óptico através do goniômetro de ângulo de contato, com precisão de $\pm 2^\circ$. Foram feitas 20 medidas de ângulo de contato para uma placa de vidro, a fim de se obter uma boa precisão. Um balanço de tensões interfaciais, como mostrado pela Figura 3.1, fornece o ângulo de contato α do sistema.

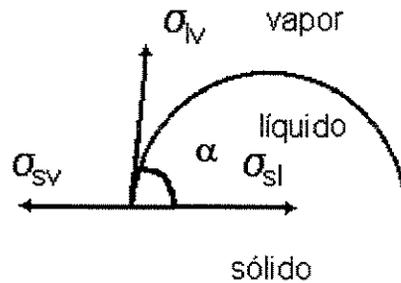


Figura 3.1- Ângulo de contato.

3.1.2- Equipamento

O sistema experimental usado, em escala de laboratório, está esquematizado na Figura 3.2 e demonstrado por fotografia na Figura 3.3. O equipamento de recobrimento consiste em um leito de jorro cone-cilíndrico construído em acrílico, conforme fotografia na Figura 3.4, com as seguintes dimensões: diâmetro da coluna de 20 cm, altura da coluna cilíndrica de 30 cm e da base cônica de 13 cm, diâmetro do orifício de 5 cm e ângulo de inclinação da base cônica de 60°. Um conjunto soprador com potência de 7,5 cv, resfriador e aquecedor elétrico com potência de 1200 W produzem uma vazão de ar de jorro na temperatura do processo. A atomização da suspensão de recobrimento é obtida através de um bico atomizador, tipo duplo fluido com mistura interna, colocado verticalmente a uma altura de 14 cm do fim da secção cilíndrica. A suspensão é mantida sob agitação num recipiente de onde flui, por meio de uma bomba peristáltica, até o bico atomizador; paralelamente uma linha de ar comprimido também é acoplada ao bico atomizador. O processo é monitorado através do uso de instrumentos como termo-higrômetros de resposta rápida, termopares de cobre-constantan ligado a indicador de temperatura e manômetros diferenciais em vidro tipo tubo em “U”.

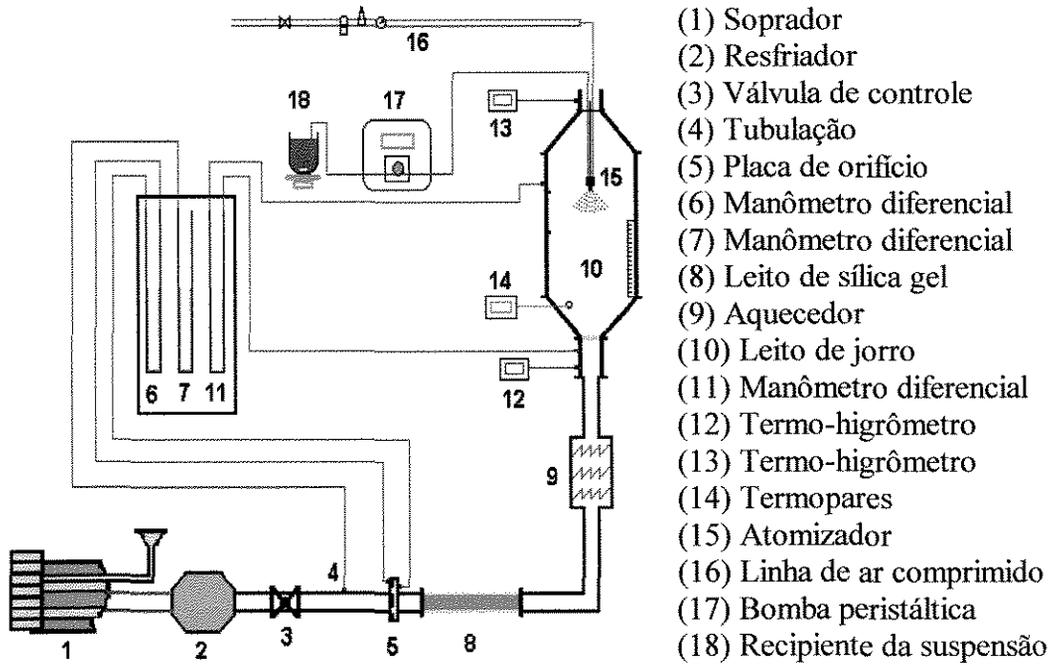


Figura 3.2 – Equipamento experimental

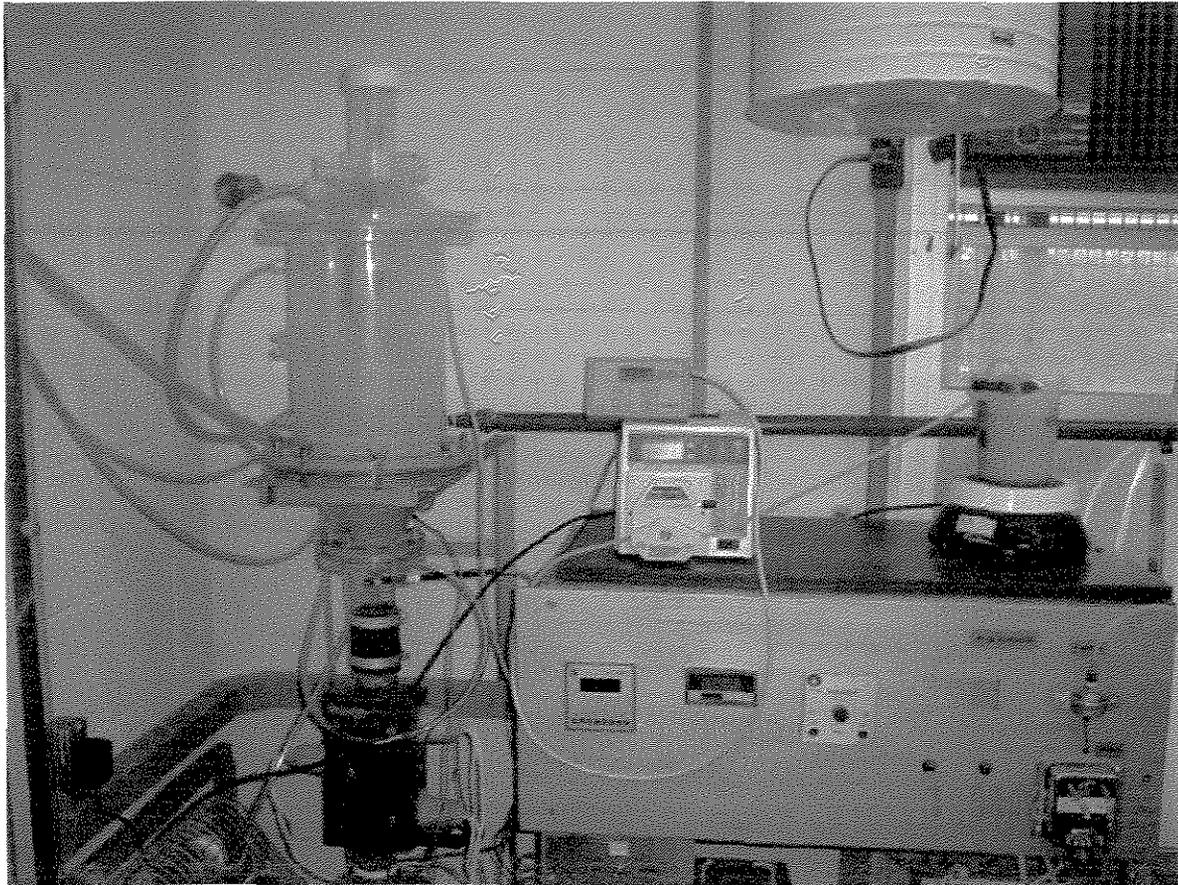


Figura 3.3- Fotografia do equipamento

Para a medida da vazão mássica do ar de jorro (W em kg/s) na tubulação de diâmetro 50 mm, utilizou-se os valores obtidos através dos manômetros e do termopar, como pressão estática na linha (P_{estat} em cm H₂O), pressão atmosférica local (P_{atm} em mm Hg), temperatura do ar (T em °C) e queda de pressão na placa de orifício de diâmetro 18 mm (ΔP em cm H₂O). O cálculo da vazão foi obtido através da expressão desenvolvida por OWER e PANKHURST (1977):

$$W = \frac{1}{60} \left(0,088 - 0,0276 \cdot \frac{\Delta P}{P_{estat}} \right) \left(\frac{\Delta P \cdot P_{atm}}{(T + 273,15)} \right)^{0,5} \quad (3.8)$$

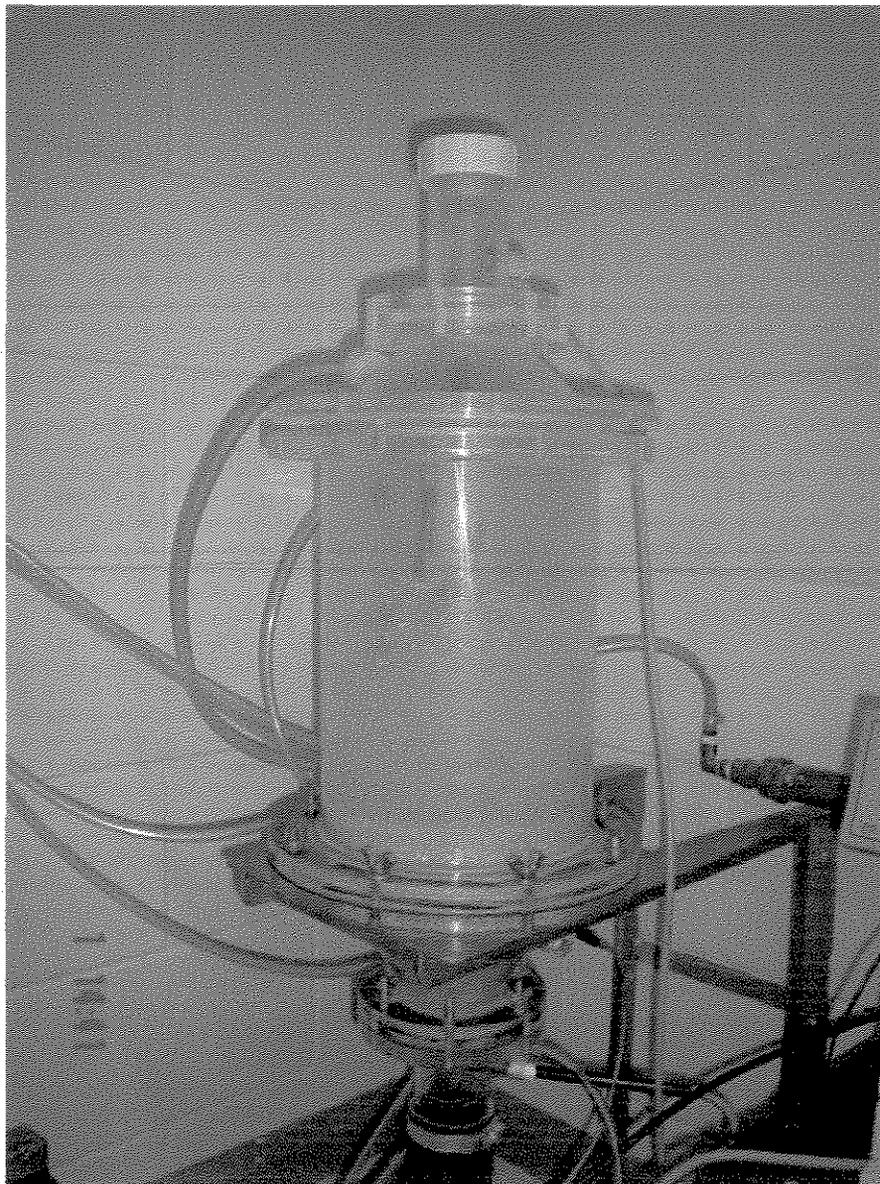


Figura 3.4- Fotografia do leito

Um estudo da fluidodinâmica do leito foi feito utilizando-se cargas de partículas de 2 kg, 3 kg, 4 kg e 4,5 kg para definir a carga de partículas e os parâmetros fluidodinâmicos para os testes de recobrimento. As cargas de partículas foram preparadas misturando-se lotes de esferas de vidro de diversos tamanhos, obtendo-se assim um lote final de partículas polidispersas com a mesma distribuição de massa. Com auxílio do soprador e resfriador manteve-se a temperatura do ar em torno de 25 °C. Aumentou-se a vazão de ar, a partir do leito fixo até o jorro, registrando-se os valores da queda de pressão no leito. Da mesma forma, procedeu-se à redução da vazão até retornar ao leito fixo. Dos dados de queda de pressão foi debitada a queda de pressão do leito vazio, para a plotagem do diagrama vazão de ar versus queda de pressão do leito. Determinaram-se, assim, os valores da velocidade de jorro mínimo, queda de pressão de jorro estável e queda de pressão máxima. Foram, também, observados visualmente o regime fluidodinâmico e a circulação das partículas no leito. Os valores obtidos experimentalmente foram comparados com valores obtidos por correlações conhecidas da literatura, para leito de jorro utilizando partículas monodispersas.

3.1.3- Planejamento experimental

Para o presente estudo foi proposto um planejamento experimental fatorial 2^3 , o qual totalizou 11 experimentos, sendo 3 como ponto central. As variáveis independentes foram definidas, através de ensaios preliminares, como pressão do ar de atomização (P_a), temperatura do ar de jorro (T_g) e vazão volumétrica da suspensão (Q_s). Através dos ensaios preliminares, foram definidas, também, as faixas de operação para essas variáveis, pois apresentaram melhores resultados na qualidade do recobrimento. Os valores inferior, central e superior estão exibidos na Tabela 3.2.

O tempo de processo foi definido, por ensaios preliminares, em 45 min. Os valores inferiores apresentavam falhas na película do recobrimento, já valores superiores provocavam um aumento demasiado na massa da partícula com a conseqüente extinção do

jorro. Devido ao processo de recobrimento, a vazão de ar para manter o jorro até o final do processo, foi definida em um valor 20 % superior à vazão de jorro mínimo, previamente definida em condições experimentais que desconsideram o processo de recobrimento.

Como variáveis de resposta foram obtidos o crescimento relativo da partícula (δ), a eficiência do processo (η) e a taxa de crescimento (G), calculados, respectivamente, pelas Equações (3.9a), (3.9b), (3.10) e (3.11). Com relação à eficiência do processo, embora esta possa ser diferente para cada faixa de tamanho das partículas, foi definido trabalhar com um valor médio para o lote. Então, a eficiência foi determinada para amostras aleatórias de partículas, no final da corrida.

$$\delta_{\text{exp.}} = \frac{m_f - m_o}{m_o} \quad (3.9a)$$

$$\delta_{\text{teor.}} = \frac{C_s \rho_s Q_s t}{M_o} \quad (3.9b)$$

$$\eta = \frac{\delta_{\text{exp.}}}{\delta_{\text{teor.}}} \cdot 100 \quad (3.10)$$

$$G = \frac{m_f - m_o}{t} \quad (3.11)$$

A relação dos experimentos realizados com as variáveis independentes definidas, está demonstrada na Tabela 3.3. Entretanto, a ordem cronológica de realização dos experimentos foi determinada por sorteio, não coincidindo com a ordem de colocação na tabela.

Tabela 3.2 – Variáveis independentes

<i>Variáveis</i>	<i>Inferior (-1)</i>	<i>Central (0)</i>	<i>Superior (+1)</i>
P _a (kPa)	138	172	206
T _g (°C)	60	70	80
Q _s (mL/min)	10	12	14

Tabela 3.3 – Experimentos realizados

<i>Experimento n.º</i>	<i>P_a (kPa)</i>	<i>T_g (°C)</i>	<i>Q_s (mL/min)</i>
01	138	60	10
02	206	60	10
03	138	80	10
04	206	80	10
05	138	60	14
06	206	60	14
07	138	80	14
08	206	80	14
09	172	70	12
10	172	70	12
11	172	70	12

3.1.4- Procedimentos

Uma carga de 4 kg de partículas polidispersas de esferas de vidro foi colocada no leito cone-cilíndrico, de tal forma que ocupava todo o espaço da base cônica e mais 3 cm de altura na parte cilíndrica. O soprador de ar foi acionado e a vazão foi controlada, através de válvula globo, para um valor 20% superior à vazão de jorro mínimo, determinado na análise fluidodinâmica. Através do aquecedor e resfriador de ar, mantinha-se a temperatura no valor determinado para o processo. Eram feitas leituras da umidade relativa do ar na temperatura ambiente e de processo, bem como medidas da queda de pressão no leito de jorro.

Atingidas as condições do processo, acionava-se uma bomba peristáltica que recalrava a suspensão, com concentração de sólidos de 11% à temperatura ambiente, juntamente com o ar comprimido para o bico atomizador. A vazão de suspensão era definida através da rotação da bomba peristáltica conforme a Tabela 3.4.

Transcorridos 45 min de recobrimento, o bico atomizador era desligado e, a temperatura do ar era reduzida até o valor da temperatura ambiente para o resfriamento das partículas recobertas. Em seguida, o fluxo de ar era fechado e a carga de partículas recobertas era retirada do leito para os ensaios finais.

Tabela 3.4 – Bomba peristáltica

<i>Rotação</i> (rpm)	<i>Q_s</i> (mL/min)
9	10
11	12
13	14

Uma amostra aleatória de 300 g das partículas recobertas foi submetida a um ensaio granulométrico, por 15 min, nas peneiras da série Tyler números 7, 8, 9, 10 e 12. Para garantir que não houvesse perda da película de recobrimento, foram feitas pesagens antes e depois do teste. Feita a separação, verificou-se as massas finais recolhendo as partículas de cada peneira e pesando-as, em seguida. O número de partículas retidas em cada peneira foi obtido por contagem manual.

Para a determinação da massa de recobrimento por intervalo e conseqüentemente do crescimento relativo (δ), as amostras retidas nas peneiras foram lavadas com água e detergente neutro para a remoção total da película de recobrimento. Em seguida foram colocadas em cápsulas taradas e levadas na estufa a 110 °C durante 2 h ou até massa constante. Após dessecação, foi feita a pesagem e a determinação da massa de recobrimento, para cada intervalo, por diferença.

O mesmo tratamento foi dado para uma amostra geral, ou seja, aquela que não foi submetida ao processo de separação por tamanho da partícula. Uma amostra aleatória, em duplicata, de aproximadamente 100 g foi lavada com água e detergente neutro até completa remoção da película, colocada em uma cápsula tarada e levada à estufa a 110 °C durante 2 h ou até massa constante, dessecada e pesada posteriormente. Determinou-se, então, a massa

de recobrimento média e o crescimento relativo médio do processo, para cada condição operacional.

Uma análise estatística dos dados obtidos foi realizada utilizando-se o software Microsoft Excel®. Foram determinadas as variáveis significativas para o processo, correlações empíricas, coeficiente de correlação, comparação entre dados experimentais e estimados e análise de variância (Anova) para a eficiência do processo e para o crescimento relativo.

3.2 – Modelagem e Simulação

Neste trabalho foi desenvolvida uma modelagem matemática para o processo de recobrimento de partículas polidispersas em leito de jorro utilizando-se o método do balanço populacional. Para um determinado espaço da fase, a equação diferencial do balanço populacional, também conhecida como equação da continuidade para a partícula, é dada por (RANDOLPH e LARSON, 1971):

$$\frac{\partial n'}{\partial t} + \nabla \cdot (vn') - B + D = 0 \quad (3.12)$$

ou em termos das três coordenadas externas e das i -ésimas coordenadas internas tem-se:

$$\frac{\partial n'}{\partial t} + \frac{\partial (v_x n')}{\partial x} + \frac{\partial (v_y n')}{\partial y} + \frac{\partial (v_z n')}{\partial z} + \sum_{i=1}^m \frac{\partial v_i n'}{\partial \psi_i} - B + D = 0 \quad (3.13)$$

Para o desenvolvimento do modelo de balanço populacional aplicado para operação em batelada para o recobrimento de partículas em leito de jorro, pode-se definir a função densidade populacional normalizada:

$$f(x, y, z, \psi_1, \psi_2, \dots, \psi_m, t) \quad (3.14)$$

em que ψ_i representa as propriedades internas da função densidade populacional, que são parâmetros operacionais que influenciam na cinética de crescimento da partícula.

A densidade populacional n' para um determinado número N de partículas é dada, em termos do incremento de massa, por:

$$n' = Nf(m) \quad (3.15)$$

A equação do balanço populacional aplicada ao processo de recobrimento para um determinado número de partículas, em sistemas com intenso efeito de mistura e volume constante, desenvolvida por RANDOLPH e LARSON (1971) é dada por:

$$\frac{\partial N \cdot f(m)}{\partial t} + \frac{\partial (G(m)N \cdot f(m))}{\partial m} = B - D \quad (3.16)$$

A taxa de crescimento em massa que ocorre pela sobreposição das camadas de revestimento nas partículas é dada por:

$$G(m) = \frac{dm}{dt} \quad (3.17)$$

LIU e LITSTER (1993b) propuseram as expressões para a taxa de crescimento em massa como função de uma constante de proporcionalidade K e da massa m com expoente unitário e também, com o expoente $2/3$. A suposição original propunha o expoente $2/3$, porém a taxa de crescimento linear pode depender do tamanho da partícula, assim partículas maiores gastam um tempo maior na zona de recobrimento e, levando-se em consideração o tempo de permanência da partícula no topo do “spray”, adotou-se o expoente 1 para a massa. Neste trabalho utilizou-se ainda um valor intermediário entre $2/3$ e 1 , o expoente $0,8$, na tentativa de se conseguir ajustes melhores para a taxa de crescimento. O valor $0,8$ foi arbitrado porque para alguns experimentos realizados neste trabalho, para as partículas de maior massa, o modelo não estava se ajustando bem quando se utilizavam os expoentes 1 ou $2/3$. As expressões para a taxa G ficaram:

$$G(m) = K \cdot m \quad (3.18a)$$

$$G(m) = K m^{2/3} \quad (3.18b)$$

$$G(m) = Km^{0,8} \quad (3.18c)$$

Nos processos de recobrimento, o mecanismo principal é sem dúvida o mecanismo de crescimento da cobertura do sólido e, admitindo-se a não ocorrência de problemas de aglomeração ou fragmentação das partículas, então $B = 0$ e $D = 0$, portanto a Equação (3.16) reduz-se a:

$$\frac{\partial N \cdot f(m)}{\partial t} = - \frac{\partial (G(m)N \cdot f(m))}{\partial m} \quad (3.19)$$

Fazendo-se um balanço de massa envolvendo a taxa de crescimento da Equação (3.17) e utilizando-se o produto $\eta\rho_s Q_s C_s$, que representa a massa de recobrimento efetiva depositada na partícula por intervalo de tempo, obtém-se:

$$\int_0^{\infty} G(m)Nf(m)dm = \eta\rho_s Q_s C_s \quad (3.20)$$

Substituindo-se a taxa de crescimento em função da constante de proporcionalidade K na Equação (3.10) e isolando-se os termos, têm-se as Equações (3.21 a,b,c), dependendo da equação utilizada para a função $G(m)$:

$$K = \frac{\eta\rho_s Q_s C_s}{\int_0^{\infty} Nf(m)mdm} \quad (3.21a)$$

$$K = \frac{\eta\rho_s Q_s C_s}{\int_0^{\infty} Nf(m)m^{2/3} dm} \quad (3.21b)$$

$$K = \frac{\eta\rho_s Q_s C_s}{\int_0^{\infty} Nf(m)m^{0,8} dm} \quad (3.21c)$$

A Equação (3.19) foi discretizada, para o crescimento em massa, conforme o método de discretização utilizado por HOUNSLOW et al. (1988) e modificado por LIU e LITSTER (1993b), obtendo-se:

$$\frac{dN_i}{dt} = \frac{1}{m_i} (aG_{i-1}N_{i-1} + bG_iN_i + cG_{i+1}N_{i+1}) \quad (3.22)$$

Para a resolução das equações do balanço populacional utilizaram-se as equações dos momentos μ_j com a finalidade de converter sistemas complexos de equações diferenciais parciais de difícil manuseio em equações diferenciais ordinárias. A equação dos momentos é dada por:

$$\mu_j = \int_0^{\infty} n' m^j dm \quad (3.23)$$

Os parâmetros a , b e c foram obtidos a partir das equações dos momentos de ordem zero, um e dois em função da razão r entre as massas m_{i+1} e m_i de cada intervalo discreto, conforme as expressões desenvolvidas por LIU e LITSTER (1993b):

$$a = \frac{2r}{(1+r)(r^2-1)} \quad (3.24a)$$

$$b = \frac{2}{1+r} \quad (3.24b)$$

$$c = \frac{-2r}{(1+r)(r^2-1)} \quad (3.24c)$$

$$r = \frac{m_{i+1}}{m_i} \quad (3.25)$$

A taxa de crescimento obtida através das Equações (3.18) e (3.21), na forma discreta, utilizando-se a massa média de cada intervalo discreto \bar{m}_i , é dada para cada caso analisado da função $G(m)$, conforme as Equações (3.26a), (3.26b) e (3.26c). O índice i representa cada intervalo discreto para a taxa, enquanto o índice j representa todos os intervalos na expressão.

$$G_i = \frac{\eta \rho_s Q_s C_s}{\sum_{j=1}^{\infty} N_j \bar{m}_j} \bar{m}_i \quad (3.26a)$$

$$G_i = \frac{\eta \rho_s Q_s C_s}{\sum_{j=1}^{\infty} N_j \bar{m}_j} \bar{m}_i^{2/3} \quad (3.26b)$$

$$G_i = \frac{\eta \rho_s Q_s C_s}{\sum_{j=1}^{\infty} N_j \bar{m}_j} \bar{m}_i^{0,8} \quad (3.26c)$$

Para a resolução do sistema foi necessário o conhecimento do valor para a eficiência η do processo, ou utilizar uma equação constitutiva para cada tipo de processo (partícula-suspensão) e que é dependente do equipamento recobridor. Foi obtida neste trabalho uma correlação empírica para a eficiência η do processo, em função das variáveis pressão do ar de atomização, temperatura do ar e vazão da suspensão, para o recobrimento de esferas de vidro com suspensão aquosa polimérica em leito de jorro. A correlação foi obtida por regressão a partir dos dados experimentais.

Neste estudo foi utilizada, também, a correlação do crescimento relativo δ em função do trabalho de adesão W_{ad} , desenvolvida por DONIDA et al. (2004), conforme a Equação (3.27). Neste caso, supôs-se que o crescimento relativo, definido pela Equação (3.9a), é igual em todos os intervalos de massa das partículas.

$$\delta = 0,0670.(C_s)^{0,8345} \left(\frac{W_{ad} \cdot Q_s \cdot \rho_s^2}{\mu^{*3}} \right)^{-0,0107} \quad (3.27)$$

A taxa de crescimento média pode ser obtida a partir do crescimento relativo, da massa inicial e do tempo de processo, conforme a Equação (3.28). A combinação das equações (3.26a) e (3.28) pela substituição do termo $\eta \rho_s Q_s C_s$ por $M_0 \cdot \delta / t_p$ resulta na Equação (3.29). Então, substituindo-se o crescimento relativo da Equação (3.27) na Equação (3.29) obtém-se, finalmente, a Equação (3.30).

$$G = \frac{M_0 \cdot \delta}{t_p} \quad (3.28)$$

$$G_i = \frac{M_0 \cdot \delta}{t_p \sum_{j=1}^{\infty} N_j \bar{m}_j} \bar{m}_i \quad (3.29)$$

$$G_i = \frac{M_0 \cdot 0,0670 (C_s)^{0,8345} \left(\frac{W_{ad} Q_s \rho_s^2}{\mu^{*3}} \right)^{-0,0107}}{t_p \sum_{j=1}^{\infty} N_j \bar{m}_j} \bar{m}_i \quad (3.30)$$

Para o caso da correlação de DONIDA et al. (2004), Equação (3.27), não houve a necessidade de se utilizar a eficiência do processo, já que foi utilizada diretamente uma equação para o crescimento em função das características de adesão do sistema partícula-suspensão de recobrimento. Então, a correlação da eficiência que é específica para cada estudo de recobrimento, não entrou na resolução do sistema para este enfoque. Esta particularidade é positiva devido à dificuldade de se obter uma correlação para a eficiência de uso geral em todos os processos de recobrimento.

Foram obtidos por regressão, através de estimativa dos dados experimentais, um total de 11 intervalos discretos com valores constantes para a massa m_i e número de partículas N_i , em cada intervalo. Esses intervalos foram obtidos a partir de uma distribuição de massa, com os dados experimentais, formada por 5 intervalos discretos. Foram acrescentados mais 6 intervalos, um antes da menor massa, 4 intermediários e um após a maior massa. Assim, garantiu-se que nenhum tamanho de partícula ficou fora desses intervalos e, com um número maior de intervalos, obtém-se maior precisão na resolução numérica do sistema de equações diferenciais. Obteve-se, então, a massa média \bar{m}_i e o número total de partículas N_i , constantes para cada um dos intervalos discretos i .

Os sistemas de equações diferenciais ordinárias formados pelas Equações (3.22), (3.24) e (3.26) ou (3.30) foram resolvidos por método numérico utilizando o algoritmo de Runge-Kutta-Fehlberg e o software Maple 8[®] (Anexo 1).

Os resultados obtidos pela simulação numérica, em termos de eficiência e taxa de crescimento, foram comparados com os resultados obtidos experimentalmente. Desta

forma, foi possível prever a massa de recobrimento depositada na partícula em função do tempo, para cada condição estabelecida pelo processo.

Dados experimentais obtidos do trabalho de recobrimento de partículas de uréia com suspensão polimérica em leito de jorro bidimensional, desenvolvido por DONIDA (2000), também foram utilizados para comparação nesta simulação. Nesse caso, foi suposta uma distribuição aleatória de massa com intervalos entre a menor e a maior massa das partículas, já que a distribuição real não está disponível. Para estimar os valores de eficiência do processo foi utilizada a correlação empírica, desenvolvida por DONIDA (2000), para dados codificados $(-1, 0, +1)$, representada pela Equação (3.31).

$$\eta = 67,8 - 6,15T_g + 2,22P_a + 2,72W_s - 2,84W_gW_s + 5,83T_gP_a - 2,56T_gW_s + 4,57P_aW_s + 2,12W_gT_gP_a - 3,29T_gP_aW_s \quad (3.31)$$

4 – RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1- Experimental

4.1.1- Características dos Materiais

Os sólidos utilizados no recobrimento foram partículas de vidro de formato aproximadamente esférico, polidispersas e cujas características originais, determinadas conforme os métodos descritos no item 3.2.1, estão demonstradas na Tabela 4.1.

Tabela 4.1- Características das partículas sólidas

<i>Propriedade</i>	<i>Média</i>	<i>Desvio padrão</i>
ρ_p (g/cm ³)	2,4675	0,0052
ρ_b (g/cm ³)	1,3867	0,0113
ε	0,4380	-
ϕ	0,73	0,11
\bar{d}_p (mm)	1,92	-

A distribuição granulométrica das esferas de vidro, antes do processo do recobrimento, para uma carga de 300,986 g e um total de 22779 partículas, determinadas por amostragem e contagem manual, está apresentada na Tabela 4.2. A peneira número 14 foi colocada, entretanto o número de partículas coletadas pode ser considerado desprezível.

Tabela 4.2- Distribuição granulométrica

<i>Tyler (mesh)</i>	\bar{d}_p (mm)	<i>m</i> (g)	<i>m_p</i> (g)	<i>N</i>
7	> 2,8	20,010	0,0360	556
8	2,59	67,223	0,0243	2767
9	2,19	98,790	0,0189	5227
10	1,84	63,934	0,0109	5865
12	1,54	51,019	0,0061	8364
fundo	< 1,54	-	-	-

A suspensão aquosa a base de hidroxietilcelulose, utilizada no processo de recobrimento, tem suas propriedades físicas à temperatura ambiente apresentada na Tabela 4.3, conforme os trabalhos desenvolvidos por VIEIRA et al. (2004) e cujos métodos estão especificados no item 3.2.1. Pela análise da reologia da suspensão, determinou-se que se trata de um fluido não Newtoniano tipo pseudoplástico, conforme a Equação (4.1) da lei da potência. O ângulo de contato foi determinado para uma superfície de vidro do tipo Placa de Petri.

Tabela 4.3- Propriedades da suspensão (VIEIRA et al., 2004)

<i>Propriedade</i>	<i>Média</i>	<i>Desvio</i>
ρ_s (g/cm ³)	1,0340	0,0062
σ (N/m)	63,37.10 ⁻³	0,98.10 ⁻³
k (N/m ²)	0,1086	0,0042
α (°)	40,3	2,0
n	0,8625	-

$$\tau = 0,1086.\dot{\gamma}^{0,8625} \quad (4.1)$$

4.1.2- Fluidodinâmica do Leito

Foram construídos gráficos de queda de pressão (ΔP) versus vazão de ar (W) com os dados obtidos, para as cargas 2, 3, 4 e 4,5 kg. A distribuição granulométrica para todas as cargas foi a mesma por se tratar de um lote único de partículas. As linhas colocadas nos gráficos somente correspondem às ligações ponto a ponto para uma melhor definição e não significam ajustes de dados. Considerou-se como queda de pressão máxima o maior valor observado ao longo do ensaio, não necessariamente o último pico, antes do estabelecimento do jorro estável.

Uma análise do gráfico para a carga de 2 kg de esferas, conforme Figura 4.1, demonstrou que diferentemente do que é observado em diagramas do mesmo tipo para

partículas de tamanho único, não há a formação de um único pico de queda de pressão. Durante o experimento foi observado que antes do estabelecimento do jorro, as partículas começam a circular no leito. Observando-se a Figura 4.1, pode-se distinguir vários picos e um platô antes do estabelecimento do jorro. Partículas de mesmo tamanho apresentam um único pico, a queda de pressão máxima, e não se observa outro platô, antes do estabelecimento do jorro estável, neste tipo de gráfico. Foram obtidos, também, pela análise gráfica da fluidodinâmica do leito (Figura 4.1) através das vazões decrescentes e observações visuais, os seguintes dados experimentais: queda de pressão máxima, $\Delta P_{\max} = 2718$ Pa, queda de pressão de jorro estável $\Delta P_j = 1415$ Pa e velocidade de jorro mínimo $U_{jm} = 0,339$ m/s.

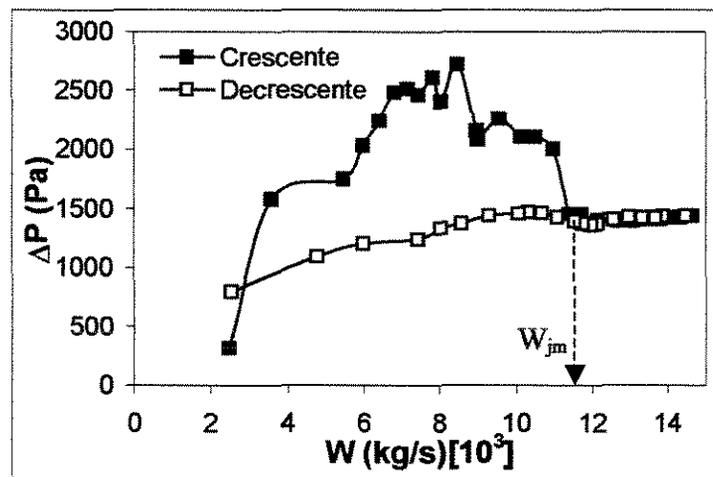


Figura 4.1 – Fluidodinâmica do leito de jorro, carga 2 kg

O ensaio realizado para carga de 3 kg de esferas seguiu a mesma tendência observada para a carga de 2 kg. Observando-se a Figura 4.2 pode-se verificar que o comportamento das partículas foi o mesmo, não há formação de um único pico de queda de pressão e há tendência de formação de um platô antes que o jorro se estabeleça. Os resultados obtidos com esse ensaios foram: queda de pressão máxima $\Delta P_{\max} = 4022$ Pa, queda de pressão de jorro estável $\Delta P_j = 1601$ Pa e velocidade de jorro mínimo $U_{jm} = 0,409$ m/s.

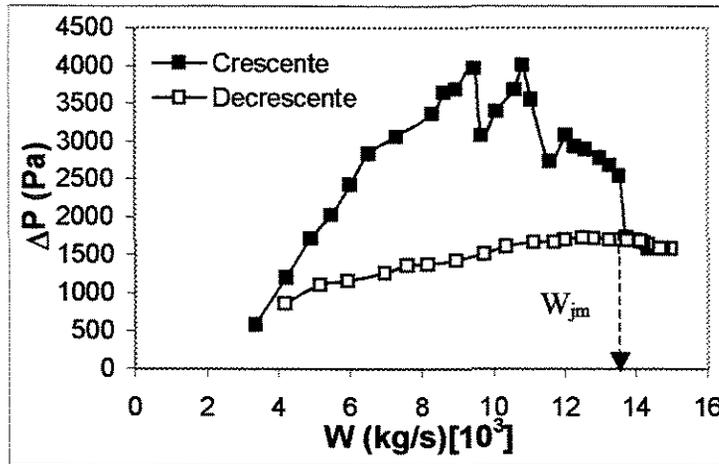


Figura 4.2 – Fluidodinâmica do leito de jorro, carga 3 kg

O gráfico obtido através do ensaio realizado com carga de 4 kg de esferas pode ser observado na Figura 4.3. Nesse ensaio pôde-se verificar que há formação de um único pico distinto e novamente um platô antes do estabelecimento do jorro estável. Foram obtidos pela análise gráfica da fluidodinâmica do leito os seguintes dados experimentais: queda de pressão máxima $\Delta P_{max} = 4345$ Pa, queda de pressão de jorro estável $\Delta P_j = 1709$ Pa e velocidade de jorro mínimo $U_{jm} = 0,485$ m/s.

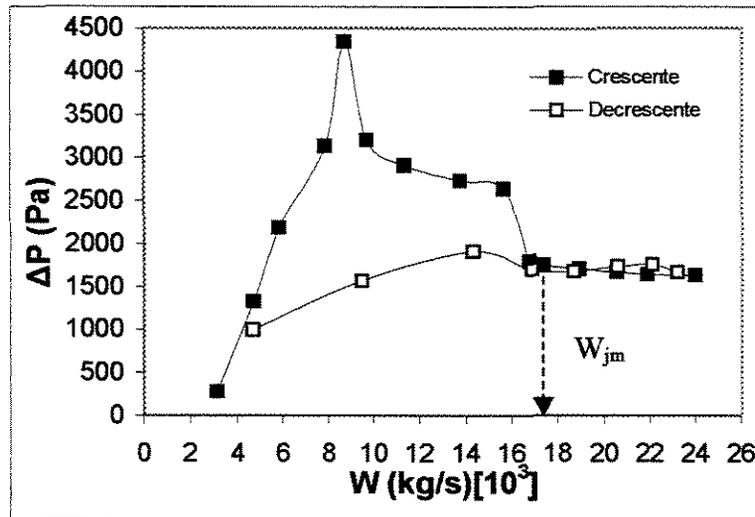


Figura 4.3 – Fluidodinâmica do leito de jorro, carga 4 kg

O último ensaio, realizado com carga de 4,5 kg de esferas (Figura 4.4), apresentou resultado semelhante aos demais no que diz respeito ao comportamento fluidodinâmico do leito. Pode-se observar na Figura 4.4 que houve formação de diversos picos e um platô antes do estabelecimento do jorro estável. Para cargas maiores, a tendência de se formarem vários picos ao invés de um, parece se acentuar. Foram observados diversos picos e comportamento oscilatório da queda de pressão antes do estabelecimento do jorro estável. Os resultados obtidos para essa carga foram: queda de pressão máxima $\Delta P_{\max} = 7705$ Pa, queda de pressão de jorro estável $\Delta P_j = 1891$ Pa e velocidade de jorro mínimo $U_{jm} = 0,552$ m/s.

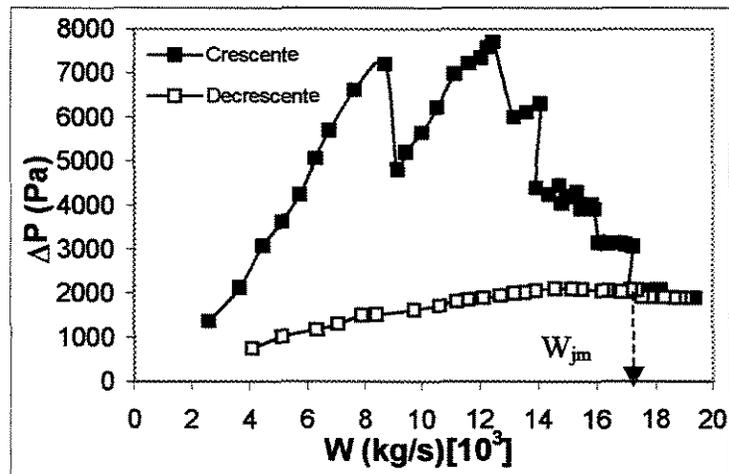


Figura 4.4 – Fluidodinâmica do leito de jorro, carga 4,5 kg

A formação de um platô antes do estabelecimento do jorro estável coincide com o período em que já ocorre circulação das partículas no leito, de forma que a queda de pressão praticamente se mantém constante.

4.1.2.1- Velocidade de jorro mínimo

Os valores estimados de velocidade de jorro mínimo foram calculados através das correlações, desenvolvidas para partículas de tamanho único, de MATHUR e GISHLER (1955) (Equação 4.2) citado em MATHUR e EPSTEIN (1974), UEMAKI et al (1983) (Equação 4.3), OGINO et al (1993) (Equação 4.4), ABDELRAZEK (1969) (Equação 4.5) e

CHOI e MEISEN (1992) (Equação 4.6), por estarem de acordo com as faixas experimentais deste trabalho.

As condições das variáveis nas correlações são as seguintes: MATHUR e GISHLER: ρ_p : 1050 - 3950 kg/m³, H/Dc: 1,3 - 1,7 e Dc/Di: 3,3 - 24. UEMAKI et al: Dc= 20 cm, Di: 2,2 - 3.0 cm, θ : 60°, dp: 0,655 - 2,23 cm, $\rho_p = 2650$ kg/m³ e H: 25 - 50 cm. OGINO et al: Dc: 10 - 20 cm, dp: 0,92 - 4.95 mm, Di: 0,5 - 3,0 cm e H: 20 - 50 cm. ABDERALZEK: Dc: 5 - 10 cm, Dc/Di = 12, H/Dc: 1 - 3, $\theta = 60^\circ$, $\phi = 1.0$, dp: 0,5 - 0,8 mm e ρ_p : 2460 - 7070 kg / m³. CHOI e MEISEN: Dc: 24 - 45 cm, dp: 2,1 - 2,8 mm, $\theta = 60^\circ$, Di: 2.1 - 3.5 cm e H: 24 - 40 cm.

$$U_{jm} = (dp/Dc)(Di/Dc)^{1/3} (2gH(\rho_p - \rho_f)/\rho_f)^{1/2} \quad (4.2)$$

$$U_{jm} = 0,977(dp/Dc)^{0,615} (Di/Dc)^{0,274} \left[\frac{2gH(\rho_p - \rho_f)}{\rho_f} \right]^{0,324} \quad (4.3)$$

$$U_{jm} = 0,015 \left[\frac{\varepsilon^4}{2(1-\varepsilon)} \right]^{0,5} \left[(1-\varepsilon) \frac{\rho_f(\rho_p - \rho_f)gDc^3}{\mu^2} \right]^{1/4} (dp/Dc)(Di/Dc)^{1/3} \left[\frac{2gH(\rho_p - \rho_f)}{\rho_f} \right]^{1/2} \quad (4.4)$$

$$U_{jm} = \frac{1}{1,74} \left\{ (dp/Dc)(Di/Dc)^{1/3} \left[\frac{2gH(\rho_p - \rho_f)}{\rho_f} \right]^{0,5} - 0,25 \right\} \quad (4.5)$$

$$U_{jm} = 10,6(2gH)^{0,5} (dp/Dc)^{1,05} (Di/Dc)^{0,266} (H/Dc)^{-0,095} \left[\frac{(\rho_p - \rho_f)}{\rho_f} \right]^{0,256} \quad (4.6)$$

A Tabela 4.4 mostra a comparação entre os valores obtidos através das correlações utilizadas com o diâmetro médio de Sauter e os valores obtidos experimentalmente. Pode-

se perceber que os valores obtidos com a correlação de MATHUR e GISHLER (1955) foram os que apresentaram menores desvios. Os valores obtidos com as demais correlações não apresentaram desvios próximos para diferentes cargas, predizendo melhor a velocidade de mínimo jorro para uma das cargas. Apresentaram resultados razoáveis a correlação de UEMAKI et al. (1983) para a carga de 4,5 kg e a correlação de OGINO et al. (1993) para a carga de 2 kg.

Tabela 4.4 – Comparação entre valores de correlações e experimentais para U_{jm}

Correlação	2 kg		3 kg		4 kg		4,5 kg	
	U_{jm} (m/s)	Desvio (%)	U_{jm} (m/s)	Desvio (%)	U_{jm} (m/s)	Desvio (%)	U_{jm} (m/s)	Desvio (%)
MATHUR GISHLER (1955)	0,379	11,77	0,414	1,35	0,476	1,86	0,490	12,17
UEMAKI et al. (1983)	0,561	65,44	0,593	45,18	0,649	33,81	0,662	18,66
OGINO et al. (1993)	0,269	20,67	0,295	27,70	0,362	25,36	0,355	36,37
ABDELRAZEK (1969)	0,174	48,69	0,203	50,24	0,230	52,58	0,238	57,34
CHOI e MEISEN (1992)	0,589	73,70	0,632	54,72	0,707	45,77	0,724	29,77
Valor experimental	0,339	-	0,408	-	0,485	-	0,558	-

4.1.2.2- Queda de pressão máxima

Os valores experimentais foram comparados com os valores obtidos através de duas correlações para queda de pressão máxima, desenvolvidas para partículas de tamanho único, a correlação de PALLAI e NEMETH (1969) (Equação 4.7) e a correlação de SAN JOSE et al (1995) (Equação 4.8).

As condições para a correlação de PALLAI e NEMETH são: $D_c: 10 - 30$ cm e $H / D_c > 1$. As condições para SAN JOSE et al são: $D_c = 15$ cm, $H_c: 1,2 - 16,8$ cm, $D_i: 2 - 6$ cm, $H < 35$ cm, $d_p: 1 - 8$ mm, $\phi = 1,0$, $\theta = 15 - 75^\circ$ e $\rho_p = 2420$ kg / m³.

$$\Delta P_{\max} = H(\rho_p - \rho_f)(1 - \varepsilon)g = H\rho_b g \quad (4.7)$$

$$\Delta P_{\max} = (\Delta P_{\max})_{\text{cone}} + (\Delta P_{\max})_{\text{cilindro}} \quad (4.8a)$$

$$\left(\frac{\Delta P_{\max}}{\Delta P_J} \right)_{\text{cone}} = 1 + 0.116(Hc / Di)^{0.5} (\tan(\theta / 2))^{-0.8} Ar^{0.0125} \quad (4.8b)$$

$$\left(\frac{\Delta P_{\max}}{\Delta P_J} \right)_{\text{cilindro}} = 1 + 0.35 \left[\frac{(H - Hc)}{Dc} \right]^{0.1} (Di / Dc)^{1.1} Ar^{0.1} \quad (4.8c)$$

A Tabela 4.5 mostra a comparação entre os valores obtidos experimentalmente e os valores obtidos através das duas correlações utilizadas com o diâmetro médio de Sauter. Pode-se observar que nenhuma das duas correlações conseguiu prever de modo satisfatório a queda de pressão máxima para a maior carga. Para as demais cargas, os valores obtidos com a correlação de SAN JOSE et. al.(1995) apresentaram um desvio menor, porém inferior a 20% apenas para a menor carga.

Tabela 4.5 – Comparação entre valores de correlações e experimentais para ΔP_{\max}

Correlação	2 kg		3 kg		4 kg		4,5 kg	
	ΔP_{\max} (Pa)	Desvio (%)						
PALLAI e NEMETH (1969)	1421,13	47,71	2138,94	46,82	2173,38	49,98	2347,40	69,53
SAN JOSÉ et al. (1995)	2353,91	13,40	2449,17	39,10	2488,64	42,72	2612,84	66,09
Valor experimental	2718		4022		4345		7705	-

4.1.2.3- Queda de pressão de jorro estável

Para a comparação dos valores obtidos para queda de pressão de jorro estável, foram utilizadas duas correlações, também desenvolvidas para partículas de tamanho único, a de NASCIMENTO et. al (1976) (Equação 4.9) citado em MASSARANI (1987) e a de SAN JOSÉ et. al. (1995) (Equação 4.10).

As condições para a correlação de NASCIMENTO et al (1976) são: d_p : 4,0 – 6,0 mm, $\theta = 60^\circ$, ρ_p : 1110 – 1190 kg/m³ e $\phi = 0,8 – 0,9$. As condições para a correlação de SAN JOSÉ et al (1995) são: $D_c = 15$ cm, H_c : 1,2 – 16,8 cm, D_i : 2 – 6 cm, $H < 25$ cm, d_p : 1 – 8 mm, $\phi = 1,0$, $\theta = 15 – 75^\circ$ e $\rho_p = 2420$ kg/m³.

$$\Delta P_J = 0,67(1 - \varepsilon)Hg\rho_b \tag{4.9}$$

$$\Delta P_J = (\Delta P_J)_{cone} + (\Delta P_J)_{cilindro} \tag{4.10a}$$

$$\left(\frac{\Delta P_J}{gH_c\rho_b} \right)_{cone} = 1,20(\tan(\theta/2))^{-0,11} (Re_i)_{jm}^{-0,06} (H_c/D_i)^{0,08} \tag{4.10b}$$

$$\left(\frac{\Delta P_J}{g(H - H_c)\rho_b} \right)_{cilindro} = 0,0385 \left[\frac{(H - H_c)}{D_c} \right]^{-0,12} (D_c/D_i)^{0,69} (Re_i)_{jm}^{0,31} \tag{4.10c}$$

$$(Re_i)_{jm} = 0,126Ar^{0,5} (D_c/D_i)^{1,68} (\tan(\theta/2))^{-0,57} \tag{4.10d}$$

A Tabela 4.6 mostra os resultados obtidos experimentalmente e através das correlações. Os valores obtidos com a correlação de SAN JOSE et al.(1995) apresentaram menor desvio para todas as cargas.

Tabela 4.6 – Comparação entre valores de correlações e experimentais para ΔP_J

Correlação	2 kg	Desvio	3 kg	Desvio	4 kg	Desvio	4,5 kg	Desvio
	ΔP_J (Pa)	(%)						
NASCIMENTO et al. (1976)	690,22	51,22	1037,38	35,19	1074,94	37,10	1140,09	39,71
SAN JOSE et al. (1995)	1786,21	26,23	1850,04	15,56	1917,34	12,19	2020,49	6,85
Valor experimental	1415	-	1601	-	1709	-	1891	-

A análise da fluidodinâmica do leito mostrou, para todas as cargas utilizadas, um comportamento diferente para partículas polidispersas se for comparado com os diagramas obtidos para partículas monodispersas. Foi verificada a formação de um platô e diversos picos de queda de pressão antes do estabelecimento do jorro estável. Verificou-se, também, uma alta circulação de partículas antes do estabelecimento do jorro estável.

A comparação dos resultados experimentais com aqueles obtidos pelas correlações empíricas apresentou desvio elevado, na maioria dos casos. Isso pode ser explicado pelo fato de tais correlações terem sido desenvolvidas para partículas monodispersas ou com pequena variação de tamanho.

Com relação às diferentes cargas utilizadas, verificou-se que quanto maior a massa de partículas, mais elevados foram os valores da velocidade de jorro mínimo, queda de pressão máxima e queda de pressão de jorro estável. Como a carga de 4 kg apresentou um comportamento de maior estabilidade no jorro, esta foi escolhida para os ensaios de recobrimento.

4.1.3 - Resultados Experimentais do Recobrimento

4.1.3.1- Resultados dos testes experimentais

Os 11 experimentos foram realizados com cargas de 4 kg de partículas, com tempo de processo de 45 min, conforme planejamento experimental, na ordem cronológica, condições ambientais e operacionais demonstradas na Tabela 4.7. A vazão de ar foi de 0,020 kg/s, valor 20% superior a vazão de jorro mínimo. A queda de pressão no leito de jorro manteve-se em torno de 1800 Pa em todos os experimentos. A concentração de suspensão de recobrimento, prevista em 11%, ficou em torno de 10% (em massa) devido a perdas durante o preparo, principalmente no moinho coloidal. A vazão da suspensão de recobrimento também sofreu pequenas alterações em relação aos valores estipulados, devido a variações da bomba peristáltica. A temperatura do leito foi obtida através de termopar colocado na região anular do leito de jorro.

Tabela 4.7 – Condições dos experimentos

<i>Exp.</i>	<i>Ordem</i>	P_a	T_g	Q_s	T_{leito}	T_{amb}	ϕ_{amb}	C_s	ρ_s
n°.		(kPa)	(°C)	(mL/min)	(°C)	(°C)	(%)	(%)	(g/cm ³)
01	7°.	138	60	9,7	53	25	84,8	9,61	1,0336
02	5°.	206	60	9,8	51	24	69,5	10,07	1,0344
03	2°.	138	80	9,8	68	25	72,5	9,77	1,0273
04	10°.	206	80	9,8	69	26	83,3	10,14	1,0349
05	1°.	138	60	14,2	50	24	77,4	10,12	1,0363
06	6°.	206	60	14,3	48	25	79,2	9,41	1,0241
07	9°.	138	80	14,2	70	26	86,3	9,92	1,0394
08	3°.	206	80	13,6	67	21	52,2	9,69	1,0417
09	4°.	172	70	12,1	63	28	50,7	9,87	1,0398
10	8°.	172	70	11,9	59	28	73,0	9,94	1,0230
11	11°.	172	70	11,8	59	23	73,2	10,20	1,0399

As variáveis de resposta obtidas no processo foram eficiência η , o crescimento relativo da partícula δ e a taxa de crescimento G , conforme demonstrado na Tabela 4.8.

Tabela 4.8- Variáveis de resposta

<i>Exp. No.</i>	$\delta_{teor.} (%)$	$\delta_{exp} (%)$	$\eta (%)$	$G (g/min)$
01	1,08	0,99	91,67	0,8749
02	1,15	0,99	86,09	0,8826
03	1,11	0,85	76,58	0,7446
04	1,15	0,89	77,39	0,7851
05	1,68	1,61	95,83	1,4108
06	1,56	1,55	99,36	1,3619
07	1,65	1,51	91,52	1,2999
08	1,54	1,33	86,36	1,1699
09	1,39	1,28	92,09	1,1218
10	1,36	1,16	85,29	1,0168
11	1,41	1,21	85,82	1,0512

A análise dos resultados mostrou que com uma maior vazão de suspensão obtém-se maior crescimento relativo e conseqüentemente maior taxa de crescimento para as partículas, fato explicado pela maior deposição de massa de recobrimento. Entretanto, as temperaturas mais altas reduzem o crescimento relativo das partículas e, também a eficiência do processo, provavelmente devido à secagem prematura e elutriação da suspensão atomizada.

Observações visuais das corridas permitiu verificar que, nos experimentos cuja temperatura do ar foi de 80 °C, houve formação de uma película envolvendo a parede interna do leito. Porém, em nenhum dos experimentos realizados, houve formação de aglomerados ou quebra de partículas. A Figura 4.5 mostra a foto, ampliada em 10 vezes, de um lote de esferas de vidro recobertas.

Os valores de eficiência obtidos foram plenamente satisfatórios em todos os ensaios realizados.

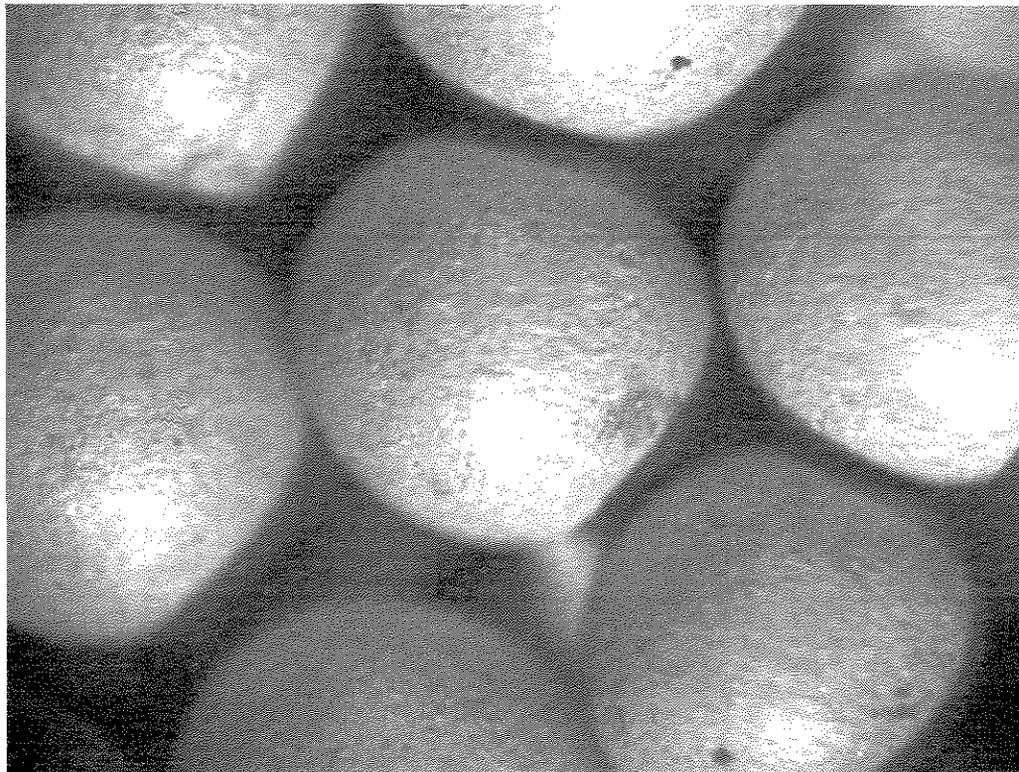


Figura 4.5- Fotografia das esferas recobertas, ampliada 10 vezes.

4.1.3.2- Variável eficiência

Uma correlação empírica para a eficiência do processo foi obtida por regressão, dentro do limite de confiança de 95%, utilizando-se o software Microsoft Excel[®]. Foram utilizadas as variáveis do processo pressão do ar de atomização (kPa), temperatura do ar (°C) e vazão da suspensão de recobrimento (kg/s) e a variável de resposta eficiência (%), conforme demonstrado na Equação (4.11).

$$\eta = 9529P_a^{-0,0464}T_g^{-0,4109}W_s^{0,3184} \quad (4.11)$$

Obteve-se para este modelo estatístico o coeficiente de correlação $R^2 = 0,8691$ e erro padrão de 0,0350. Esses valores demonstram que o modelo é satisfatório, conforme a comparação entre as eficiências experimentais e estimadas, demonstrada na Figura 4.6.

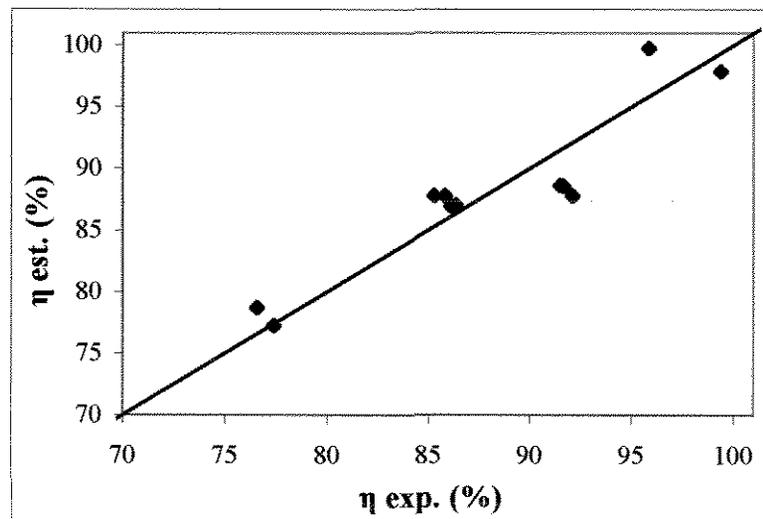


Figura 4.6- Eficiência do processo

A análise dos efeitos, dos valores de p e do teste da distribuição t para a eficiência do processo, dentro do limite de confiança de 95%, mostrada na Tabela 4.9, demonstrou que as variáveis temperatura do ar e vazão de suspensão são significativas; maiores vazões de suspensão aumentam a eficiência enquanto maiores temperaturas diminuem a eficiência

do processo. A variável pressão do ar de atomização tem pouca influência e portanto, pode ser considerada não significativa para a eficiência. Os efeitos são considerados estatisticamente significativos quando seu valor for superior ao desvio do efeito em relação à banda do limite de confiança ou quando os valores de p forem inferiores a 0,05. O Diagrama de “Pareto”, mostrado na Figura 4.7, permite uma melhor visualização dos efeitos significativos para a variável eficiência do processo.

Tabela 4.9- Efeitos para a eficiência do processo

<i>Variáveis</i>	<i>Efeitos</i>	<i>Probabilidade p</i>	<i>Teste t</i>	<i>Limites de confiança – 95%</i>	<i>Limites de confiança + 95%</i>
Intersecção	9,1622	$5,26 \cdot 10^{-6}$	12,3427	7,4069	10,9175
P_a	-0,0928	0,4759	-0,7531	-0,3846	0,1988
T_g	-0,8218	$2,01 \cdot 10^{-3}$	-4,7818	-1,2282	-0,4154
W_s	0,6368	$1,94 \cdot 10^{-3}$	4,8095	0,3238	0,9500

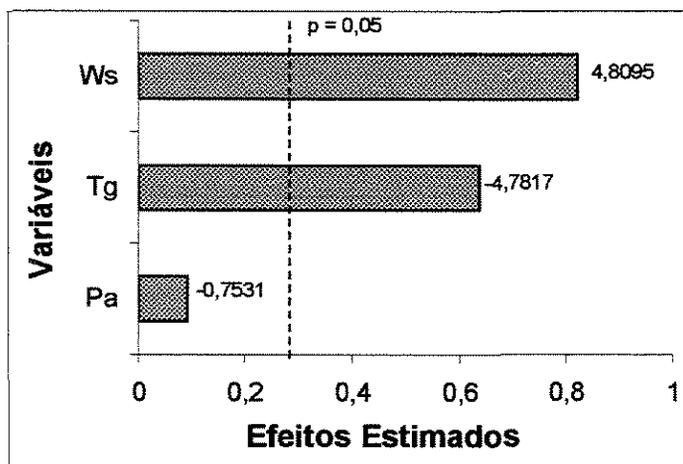


Figura 4.7- Diagrama de “Pareto” para a eficiência

A análise de variância (“Anova”) para a variável eficiência do processo está apresentada na Tabela 4.10. O valor dos resíduos foi de 13,09% do total da soma quadrática. O teste da distribuição “F”, ao nível de 95% de confiança, mostrou que o valor obtido $F = 15,4924$ foi de 3,56 vezes o valor tabelado dos pontos de percentagem ($F_{3,7} = 4,35$). Para que uma regressão seja estatisticamente significativa e também útil para fins

preditivos, o valor calculado de “F” deve ser no mínimo 4 vezes o valor tabelado (BRUNS et al., 1996). Apesar desta diferença obtida no teste da distribuição “F”, pode-se considerar que o ajuste foi razoavelmente satisfatório.

Tabela 4.10- Análise de variância para a eficiência

	<i>Graus de Liberdade</i>	<i>Soma Quadrática</i>	<i>Média Quadrática</i>	<i>F</i>
<i>Regressão</i>	3	0,0569	0,0189	15,4924
<i>Resíduo</i>	7	0,0086	0,0012	-
<i>Total</i>	10	0,0654	-	-

4.1.3.3- Variável crescimento relativo

Uma correlação empírica para o crescimento relativo das partículas foi obtida por regressão, dentro do limite de confiança de 95%, utilizando-se o software Microsoft Excel®. Foram utilizadas as variáveis do processo pressão do ar de atomização (kPa), temperatura do ar (°C) e vazão da suspensão de recobrimento (kg/s) e a variável de resposta crescimento relativo (%), conforme demonstrado na Equação (4.12).

$$\delta = 5,3370.10^5 P_a^{-0,0722} T_g^{-0,4118} W_s^{1,2821} \quad (4.12)$$

Obteve-se para este modelo estatístico o coeficiente de correlação $R^2 = 0,9728$ e erro padrão de 0,0441. Esses valores mostram que o modelo é satisfatório, conforme comparação entre os valores experimentais e estimados para o crescimento relativo, demonstrado na Figura 4.8.

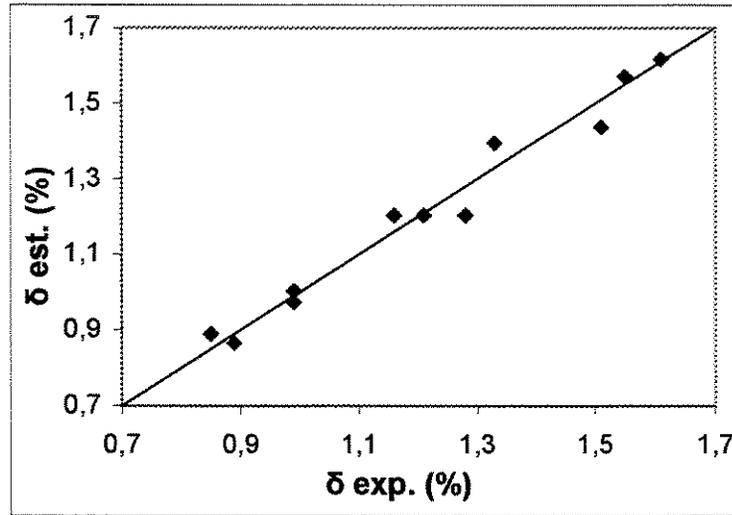


Figura 4.8- Crescimento relativo das partículas.

A análise dos efeitos, dos valores de p e do teste da distribuição t para o crescimento relativo, dentro do limite de confiança de 95%, mostrada na Tabela 4.11 e no Diagrama de “Pareto” da Figura 4.9, demonstrou também que as variáveis temperatura do ar e vazão de suspensão são significativas; maiores temperaturas diminuem o crescimento da partícula, enquanto maiores vazões de suspensão aumentam o crescimento relativo. A variável pressão do ar de atomização tem pouca influência e portanto, é considerada não significativa para o crescimento relativo das partículas, na faixa de valores utilizada.

Tabela 4.11- Efeitos para o crescimento relativo

<i>Variáveis</i>	<i>Efeitos</i>	<i>Probabilidade p</i>	<i>Teste t</i>	<i>Limites de confiança – 95%</i>	<i>Limites de confiança + 95%</i>
Intersecção	13,1876	$2,16 \cdot 10^{-6}$	14,0811	10,9730	15,4022
P_a	-0,1444	0,3842	-0,9283	-0,5124	0,2236
T_g	-0,8236	0,0667	-3,7982	-1,3362	-0,3108
W_s	2,5642	$1,20 \cdot 10^{-6}$	15,3483	2,1692	2,9592

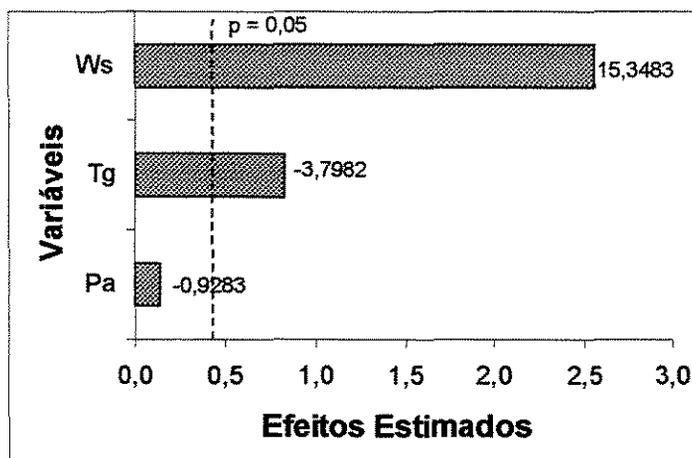


Figura 4.9- Diagrama de “Pareto” para o crescimento relativo.

A análise de variância (“Anova”) para a variável crescimento relativo das partículas está apresentada na Tabela 4.12 e confirma que o modelo também foi satisfatório. O valor dos resíduos foi de 2,71% do total da soma quadrática. O teste da distribuição “F”, ao nível de 95% de confiança, mostrou que o valor obtido $F = 83,5310$ foi de 19,20 vezes o valor tabelado dos pontos de percentagem ($F_{3,7} = 4,35$).

Tabela 4.12- Análise de variância para o crescimento relativo

	<i>Graus de Liberdade</i>	<i>Soma Quadrática</i>	<i>Média Quadrática</i>	<i>F</i>
<i>Regressão</i>	3	0,4882	0,1627	83,5310
<i>Resíduo</i>	7	0,0136	0,0019	-
<i>Total</i>	10	0,5018	-	-

4.1.3.4- Tamanho das partículas

A análise do recobrimento, levando-se em conta o tamanho das partículas, mostrou que as partículas maiores tendem a acumular uma massa maior de recobrimento devido a sua maior área superficial. Entretanto, as partículas menores apresentam um maior

crescimento relativo, provavelmente devido a terem maior taxa de circulação no leito de jorro. Supondo-se ainda que, independente do tamanho das partículas, estas recebam na região do “spray” uma película de recobrimento de mesma espessura, então as partículas menores apresentam maior incremento de massa em relação a sua massa inicial.

A comparação entre a massa de recobrimento depositada por partícula e a massa da partícula “in natura” para a variedade dos cinco tamanhos analisados no processo, demonstrou a influência das variáveis de processo.

Na Figura 4.10 verificou-se que no experimento número 1, devido à temperatura do ar ser inferior ($60\text{ }^{\circ}\text{C}$), a massa de recobrimento foi maior que no experimento 3 ($80\text{ }^{\circ}\text{C}$), sendo que a variável vazão de suspensão era a mesma nos dois casos (10 mL/min). O mesmo ocorreu entre os experimentos 2 e 4, embora de uma forma menos pronunciada, conforme demonstrado no gráfico da Figura 4.11. A comparação entre as massas de recobrimento nos experimentos 1 e 2 (Figura 4.12) apresentou uma pequena diferença, isto se deve a pouca influência da pressão do ar de atomização no processo, uma vez que a temperatura e a vazão de suspensão foram as mesmas nesse caso.

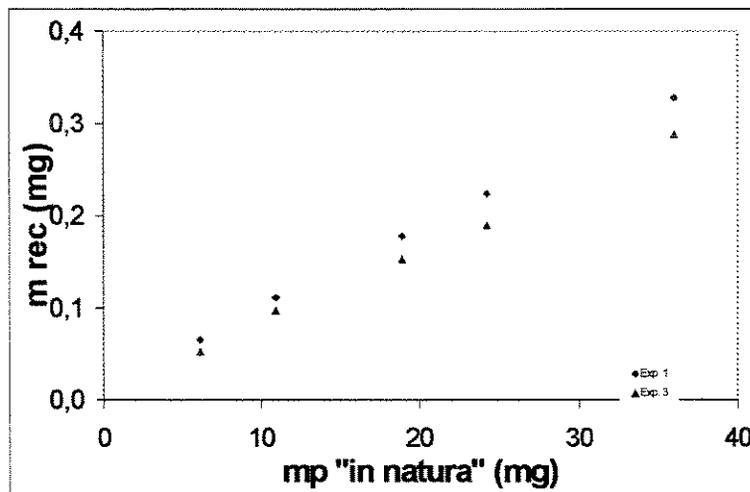


Figura 4.10- Massa de recobrimento depositada, experimentos 1 ($P_a=138\text{ kPa}$, $T_g=60\text{ }^{\circ}\text{C}$, $Q_s=10\text{ mL/min}$) e 3 ($P_a=138\text{ kPa}$, $T_g=80\text{ }^{\circ}\text{C}$, $Q_s=10\text{ mL/min}$)

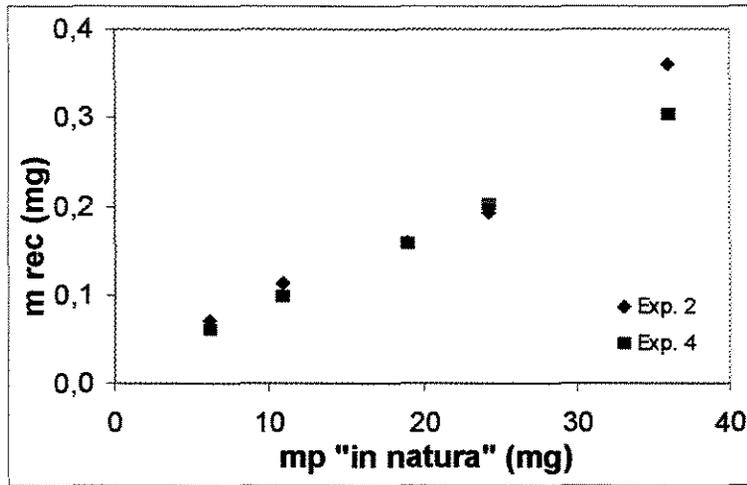


Figura 4.11- Massa de recobrimento depositada, experimentos 2($P_a=206$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$) e 4($P_a=206$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$)

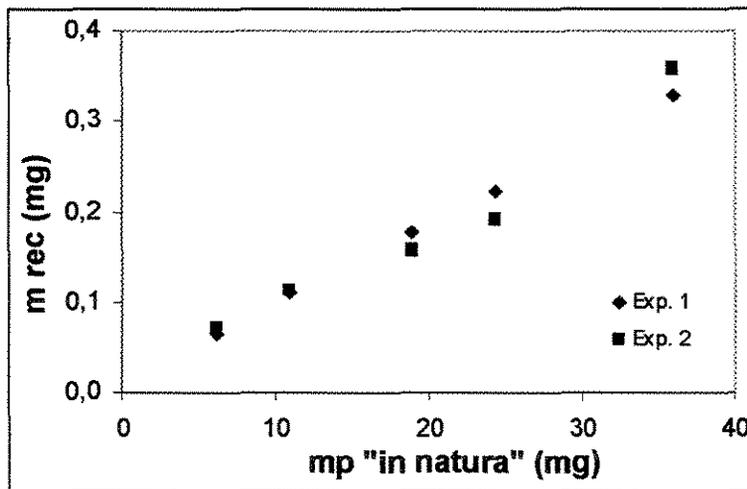


Figura 4.12- Massa de recobrimento depositada, experimentos 1($P_a=138$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$) e 2($P_a=206$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$).

Na Figura 4.13 estão os resultados para a massa de recobrimento dos experimentos 9, 10 e 11 que representam o ponto central das variáveis de processo. Como era de se esperar, os pontos estão praticamente sobrepostos, exceto para as partículas maiores onde o pequeno desvio se deve provavelmente a erros experimentais.

Na comparação entre os experimentos 5 e 7 (Figura 4.14), que operam com vazão de suspensão de 14 mL/min verifica-se que para a temperatura do ar de 60°C (experimento

5) houve maior deposição de massa de recobrimento porém, na partícula maior esse efeito não ocorreu. Situação semelhante verificou-se com os experimentos de números 6 e 8, conforme demonstrado no gráfico da Figura 4.15.

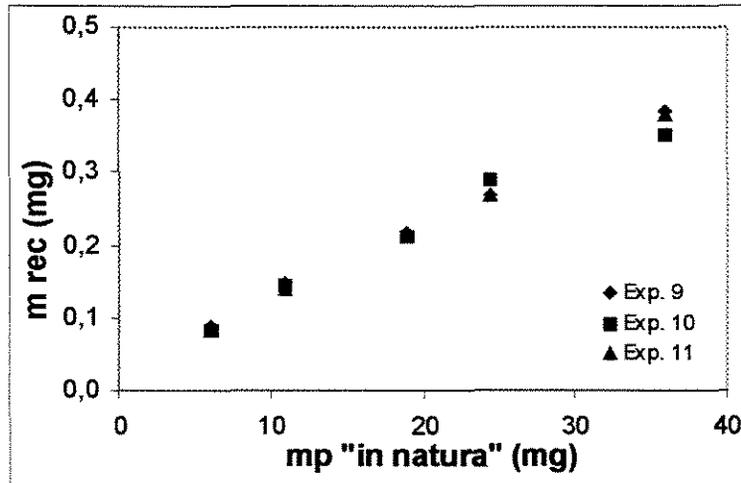


Figura 4.13- Massa de recobrimento depositada, experimentos 9, 10 e 11 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70^\circ\text{C}$, $Q_s=12\text{mL/min}$)

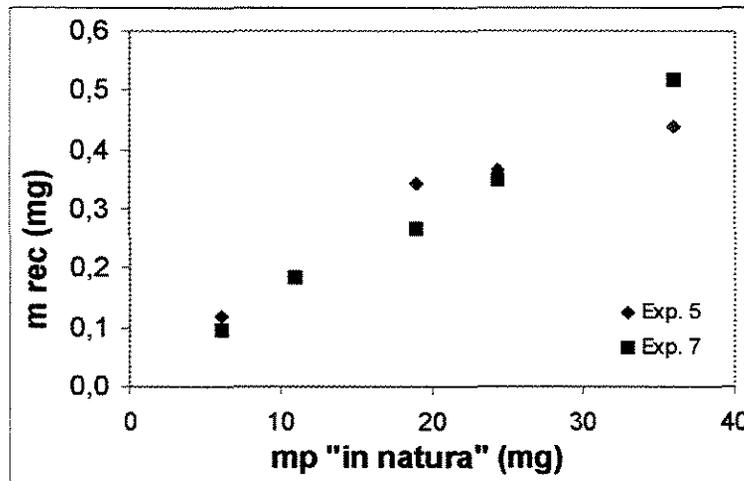


Figura 4.14- Massa de recobrimento depositada, experimentos 5 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$) e 7 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$)

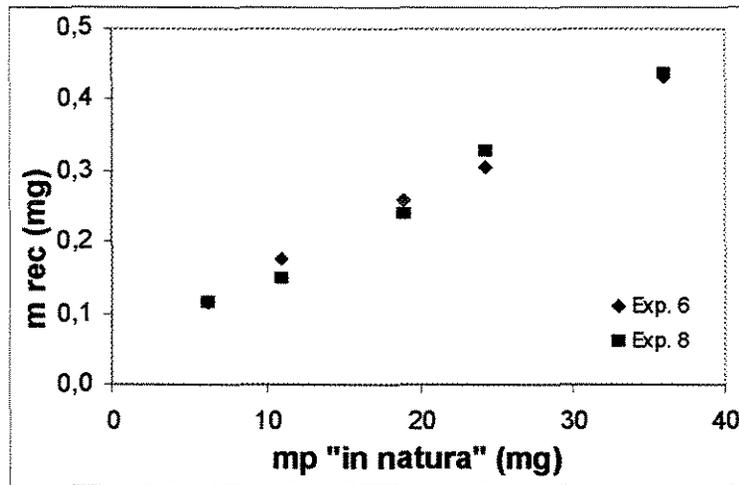


Figura 4.15- Massa de recobrimento depositada, experimentos 6 ($P_a=206$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$) e 8 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$)

A influência da variável vazão de suspensão na massa de recobrimento depositada, está bem demonstrada na Figura 4.16. Verifica-se que para todas as massas de partícula, o experimento 5, que apresenta maior vazão (14 mL/min), tem maior massa de recobrimento depositada. Na seqüência os experimentos 9 e 1, com as respectivas vazões de 12 e 10 mL/min, apresentando valores intermediário e menor para a massa de recobrimento. O mesmo efeito pode ser verificado para os experimentos de números 3, 7 e 10, conforme demonstrado pelo gráfico da Figura 4.17. O fato de se trabalhar com temperaturas diferentes em cada grupo de 3 experimentos não alteraram essa tendência.

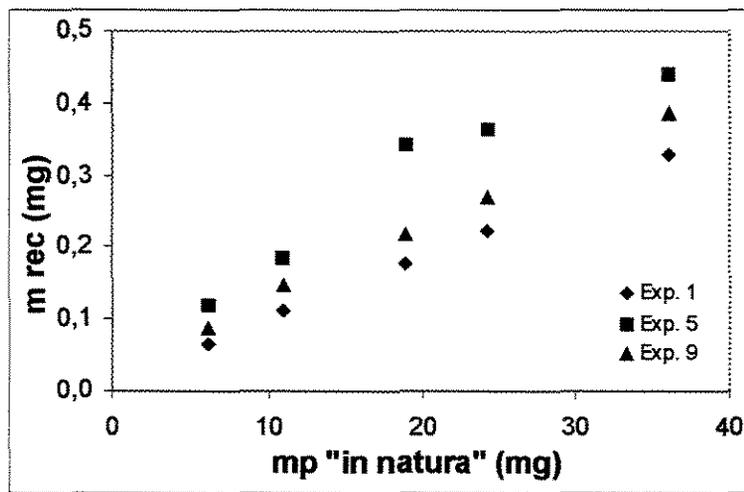


Figura 4.16- Massa de recobrimento depositada, experimentos 1 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$), 5 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$) e 9 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70^\circ\text{C}$, $Q_s=12\text{mL/min}$)

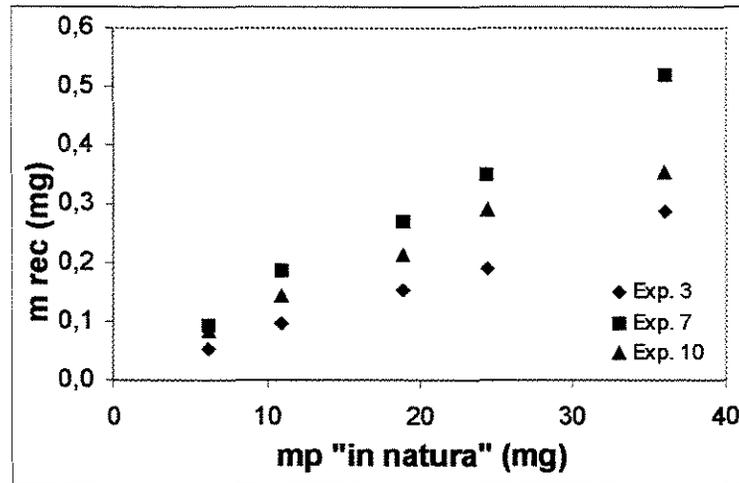


Figura 4.17- Massa de recobrimento depositada, experimentos 3 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$), 7 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$) e 10 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70^\circ\text{C}$, $Q_s=12\text{mL/min}$)

A análise para o crescimento relativo das partículas demonstrou que, em geral, as partículas com menor tamanho (menor massa) tendem a crescer proporcionalmente mais que as partículas maiores (maior massa). Este fato pode ser confirmado pelos gráficos massa da partícula “in natura” em função do crescimento relativo, demonstrado pelas Figuras 4.18 a 4.24.

A temperatura do ar de jorro de 60°C mostrou-se melhor que a temperatura de 80°C para o crescimento relativo das partículas, conforme a tendência verificada entre os experimentos de mesma vazão de suspensão (10 mL/min), de números 1 e 3, na Figura 4.18. O mesmo fato ocorreu para os experimentos de números 2 e 4 (Figura 4.19), entretanto, a tendência apresentou uma situação anômala para as partículas de massa intermediária.

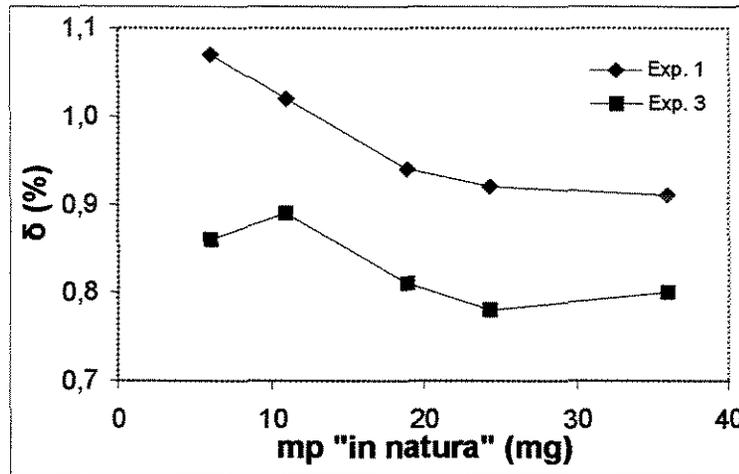


Figura 4.18- Crescimento relativo das partículas nos experimentos 1 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$) e 3 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$)

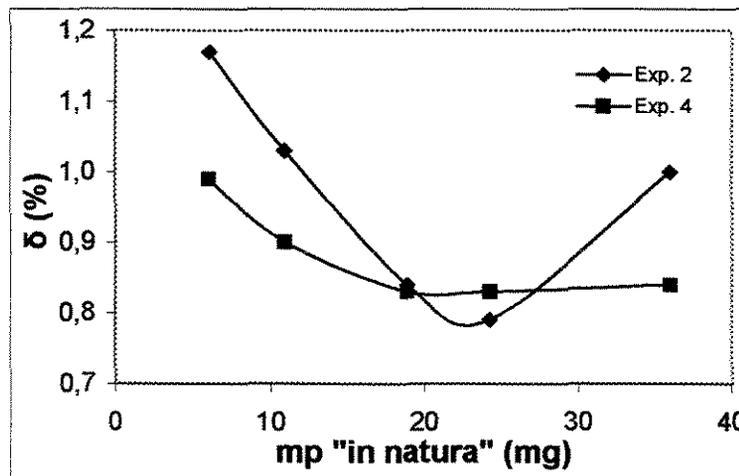


Figura 4.19- Crescimento relativo das partículas nos experimentos 2 ($P_a=206$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$) e 4 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$)

Operando-se com o valor maior da vazão de suspensão (14 mL/min), verificou-se novamente a tendência de crescimento relativo maior nas corridas onde a temperatura do ar foi de 60°C , conforme ocorrido com o experimento 5 da Figura 4.20 e com o experimento 6 da Figura 4.21. Os casos de anomalias são verificados com maior intensidade para as partículas de massa intermediária. As diferenças de comportamento verificadas para massa intermediária são provavelmente causadas pela segregação no leito, ou seja, diferenças na taxa de circulação para partículas de tamanhos diferentes.

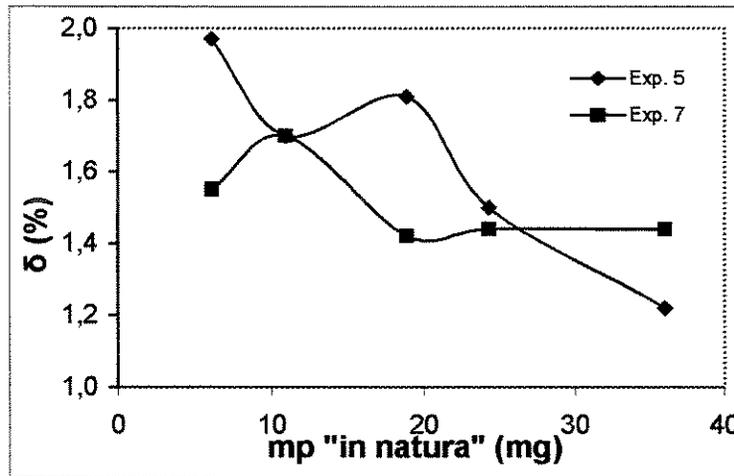


Figura 4.20- Crescimento relativo das partículas nos experimentos 5 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$) e 7 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$)

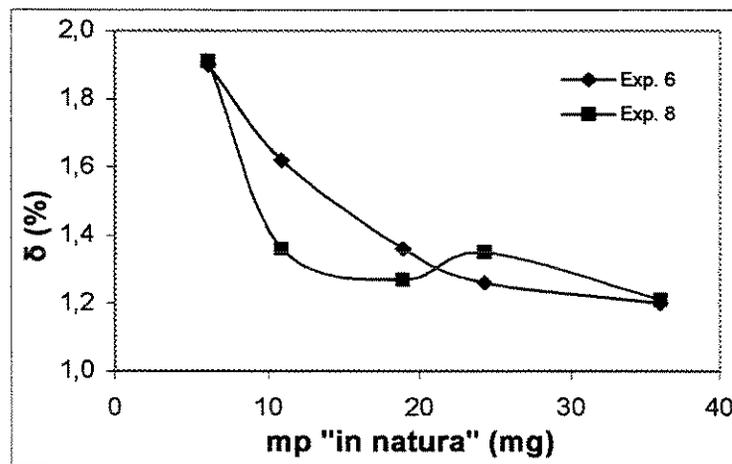


Figura 4.21- Crescimento relativo das partículas nos experimentos 6 ($P_a=206$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$) e 8 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$)

A Figura 4.22 mostra as tendências de crescimento relativo para os experimentos números 9, 10 e 11 que representam o ponto central para as variáveis independentes. A comparação entre as tendências, demonstrou que as linhas praticamente se sobrepõem, com exceção de um único ponto para o experimento 10. Consideramos, pela complexidade do processo, a reprodutibilidade adequada.

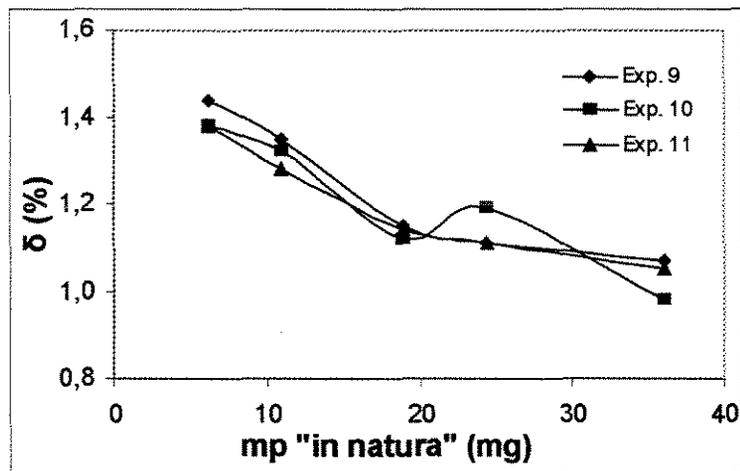


Figura 4.22- Crescimento relativo das partículas nos experimentos 9, 10 e 11 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70^\circ\text{C}$, $Q_s=12\text{mL/min}$)

Com relação à vazão da suspensão de recobrimento, pode-se afirmar que valores mais elevados produzem um crescimento relativo maior. Isto pode ser verificado na Figura 4.23 onde as corridas de números 1, 5 e 9 operam com as vazões de 10, 14 e 12 mL/min, respectivamente e com temperaturas menores.

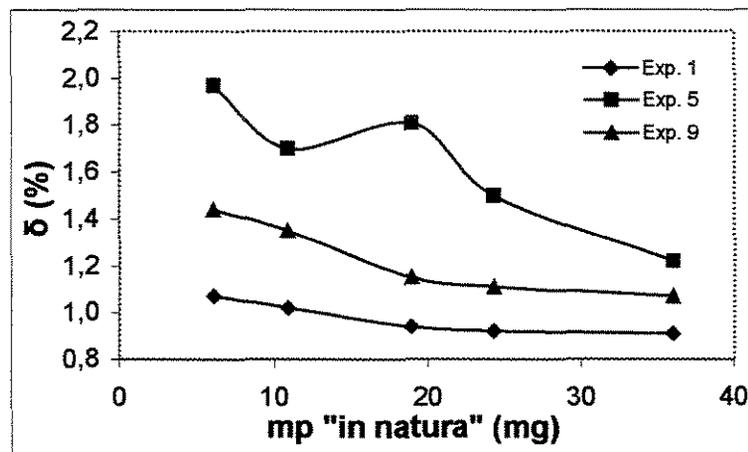


Figura 4.23- Crescimento relativo das partículas nos experimentos 1 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL/min}$), 5 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL/min}$) e 9 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70^\circ\text{C}$, $Q_s=12\text{mL/min}$)

Trabalhando-se com as temperaturas maiores, verificou-se também que o mesmo efeito foi verificado. Na Figura 4.24 o experimento de número 7, que opera com o valor superior da vazão de suspensão, apresentou maior tendência de crescimento relativo.

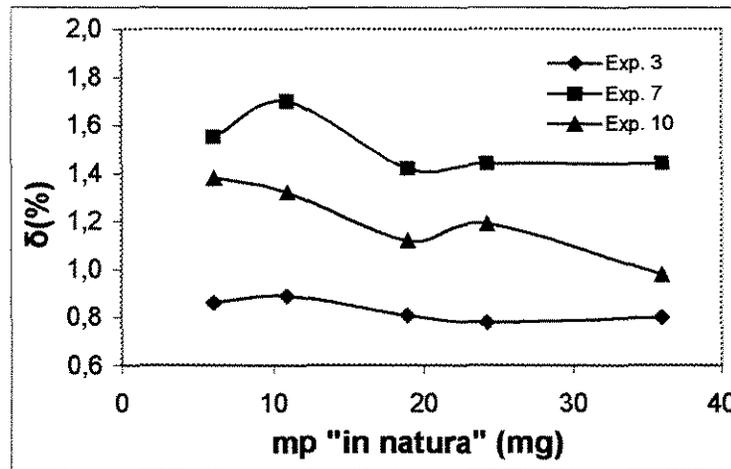


Figura 4.24- Crescimento relativo das partículas nos experimentos 3 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=10\text{mL}/\text{min}$), 7 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{mL}/\text{min}$) e 10 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70^\circ\text{C}$, $Q_s=12\text{mL}/\text{min}$)

4.2- Modelagem e Simulação

4.2.1- Resultados da Simulação e Comparação com os Resultados Experimentais

Para a modelagem matemática do processo foi necessária a criação de intervalos discretos a partir dos intervalos experimentais. Conforme relatado anteriormente, havia cinco intervalos experimentais, obtidos através de ensaio granulométrico com as esferas de vidro, incluindo os dados de massa da partícula e número de partículas em cada intervalo. Então, optou-se pela inclusão de onze intervalos na simulação ou seja, um intervalo antes e outro depois dos dados experimentais, desta forma procurou-se incluir toda a variedade de

tamanhos do lote de partículas. Além disso, a precisão na resolução das equações diferenciais discretizadas é elevada quando se trabalha com um número de intervalos maior. Os dados simulados massa da partícula e número de partículas em cada intervalo foram obtidos por estimativa. Para essa determinação foi utilizado um polinômio de 3º grau, onde se obteve por regressão o número acumulado de partículas até cada intervalo, conforme está demonstrado na Figura 4.25. A partir do número acumulado de partículas foi possível determinar o número efetivo de partículas em cada intervalo discreto de massa. O coeficiente de correlação obtido nesse caso foi $R^2 = 0,9573$ o que demonstra um ajuste bastante satisfatório. A Tabela 4.13 mostra a comparação das massas, número de partículas e função densidade populacional nos intervalos discretos experimental e simulado. A concentração de partículas acumuladas até um dado intervalo é determinada pela variável função densidade populacional $f(m)$. Essa função é calculada através da frequência relativa acumulada do número de partículas em cada intervalo discreto de massa.

Os dados referentes ao número e massa da partícula e sua densidade populacional, representado pela Tabela 4.13, são diferentes quando se comparam os dados experimentais com os simulados. Isso se deve ao fato dos dados simulados apresentarem 11 intervalos discretos ou seja, um intervalo anterior e outro posterior a cada um dos cinco intervalos experimentais. Entretanto, somando-se os números de partículas anteriores para os dados simulados, têm-se números aproximados dos dados experimentais.

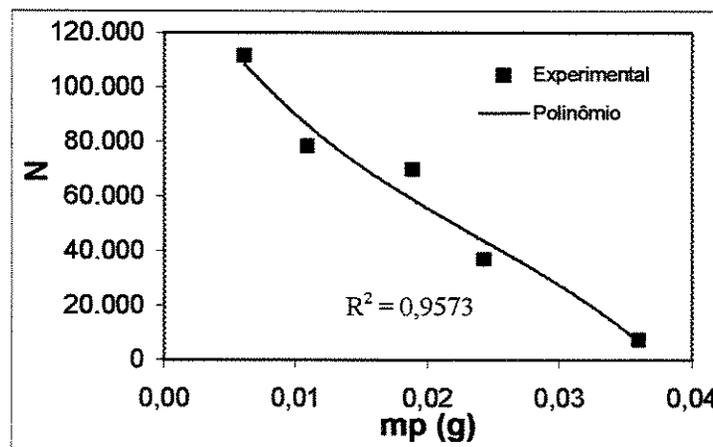


Figura 4.25- Estimativa do número de partículas

Tabela 4.13- Intervalos discretos das partículas

<i>i</i>	<i>Experimental</i>			<i>Simulado</i>		
	<i>m_p</i> (g)	<i>N</i>	<i>f</i> (m)	<i>m_p</i> (g)	<i>N</i>	<i>f</i> (m)
1				0,0050	43342	0,1430
2	0,0061	111492	0,3672	0,0061	41214	0,2791
3				0,0075	38794	0,4071
4	0,0109	78180	0,6247	0,0092	36084	0,5262
5				0,0113	33102	0,6354
6	0,0189	69676	0,8541	0,0138	29873	0,7340
7				0,0169	26403	0,8212
8	0,0243	36884	0,9756	0,0207	22602	0,8958
9				0,0254	18111	0,9555
10	0,0360	7411	1,0000	0,0311	11916	0,9949
11				0,0380	1559	1,0000
Total	-	303643	-	-	303000	-

A razão entre as massas de cada intervalo discreto foi determinada, através da Equação (3.25) com $r = 1,225$. Os parâmetros que representam os momentos, determinados através da Equação (3.24), foram $a = 2,1995$, $b = 0,9901$ e $c = -2,1995$.

A resolução do sistema formado pelas Equações diferenciais (3.22), Equações dos momentos (3.24) e Equações algébricas (3.26), nas condições de processo de cada experimento, fornece como resultado os números de partículas recobertas em cada intervalo discreto. Verifica-se que há uma variação, para cada intervalo, do número de partículas recobertas se comparado com o número original de partículas. Através do número final de partículas, pôde-se calcular a taxa de crescimento para cada intervalo e a taxa de crescimento média do processo, através da média aritmética ponderada das taxas dos intervalos (Anexo 2).

A comparação entre os valores experimentais e simulados da taxa de crescimento global G , para os onze experimentos e nas três situações de expoentes da Equação (3.18), 1, $2/3$ e $0,8$, está demonstrada na Figura 4.26. Verifica-se nos três casos que os valores simulados estão bastante próximos dos experimentais, entretanto, devido à diferença ser muito reduzida, os valores simulados ficaram sobrepostos no gráfico.

A Tabela 4.14 mostra a comparação entre as taxas de crescimento médias experimentais e simuladas G , G' e G'' , incluindo os desvios, respectivamente para os expoentes 1, $2/3$ e $0,8$. Os dados para a taxa de crescimento simulada das partículas foram obtidos a partir de valores médios dos intervalos discretos, tabulados no Anexo 3, multiplicado pelo número total de partículas do leito. Verificou-se que os desvios médios entre as taxas de crescimento experimental e simulada variam entre $0,8\%$ a no máximo $8,2\%$, confirmando um ajuste satisfatório para o modelo.

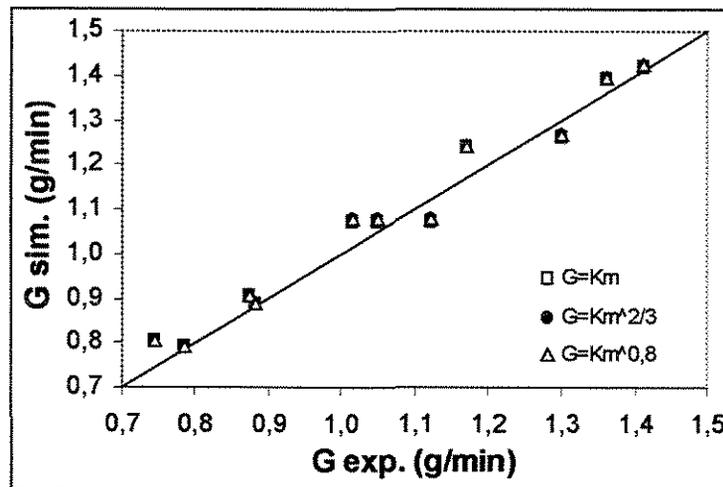


Figura 4.26 – Comparação entre as taxas experimental e simulada.

Tabela 4.14 – Comparação entre as taxas de crescimento.

<i>Experimento</i>	<i>G exp</i> g/min	<i>G sim</i> G/min	<i>Desvio</i> %	<i>G' sim</i> g/min	<i>Desvio</i> %	<i>G''sim</i> g/min	<i>Desvio</i> %
1	0,8749	0,9057	3,5204	0,9069	3,6576	0,9071	3,6804
2	0,8826	0,8892	0,7478	0,8902	0,8611	0,8900	0,8384
3	0,7446	0,8057	8,2057	0,8067	8,3400	0,8064	8,2998
4	0,7851	0,7910	0,7515	0,7919	0,8661	0,7917	0,8407
5	1,4108	1,4192	0,5954	1,4221	0,8010	1,4240	0,9356
6	1,3619	1,3934	2,3129	1,3963	2,5259	1,3954	2,4598
7	1,2999	1,2633	2,8156	1,2657	2,6310	1,2650	2,6848
8	1,1699	1,2404	6,0262	1,2427	6,2228	1,2420	6,1629
9	1,1218	1,0753	4,1451	1,0770	3,9936	1,0765	4,0382
10	1,0168	1,0753	5,7533	1,0770	5,9205	1,0765	5,8714
11	1,0512	1,0753	2,2926	1,0770	2,4543	1,0765	2,4068

De acordo com o modelo proposto, a constante de proporcionalidade K deve apresentar o mesmo valor em todos os intervalos para cada experimento simulado. Verificou-se que os valores obtidos apresentam pequeno desvio nos onze intervalos discretos, conforme está demonstrado nas tabelas do Anexo 4. Então, se determinou a média desses valores para cada experimento nas três condições de expoente 1 , $2/3$ e $0,8$, respectivamente K , K' e K'' , conforme demonstrado na Tabela 4.15.

A comparação entre os dados experimentais e simulados para a massa da partícula recoberta em relação à distribuição de massa, através da variável função densidade populacional, está demonstrada na Figura 4.27. Verificou-se que, apesar da boa concordância entre os dados experimentais e simulados, não foi possível visualizar uma diferença nos gráficos de cada experimento, provavelmente devido à pequena diferença de massa entre as partículas recobertas nos mesmos intervalos. Então, para possibilitar a visualização diferenciada para cada corrida e para os expoentes da massa, optou-se pela

utilização da massa da película de recobrimento, nos gráficos da função densidade populacional.

Tabela 4.15- Valores da constante de proporcionalidade

<i>Exp</i>	<i>K</i>	<i>K'</i>	<i>K''</i>
<i>N °</i>	<i>l/min</i>	<i>l/min</i>	<i>l/min</i>
1	$2,4623 \cdot 10^{-4}$	$5,8668 \cdot 10^{-4}$	$4,1661 \cdot 10^{-4}$
2	$2,4175 \cdot 10^{-4}$	$5,7592 \cdot 10^{-4}$	$4,0877 \cdot 10^{-4}$
3	$2,1906 \cdot 10^{-4}$	$5,2185 \cdot 10^{-4}$	$3,7037 \cdot 10^{-4}$
4	$2,1506 \cdot 10^{-4}$	$5,1232 \cdot 10^{-4}$	$3,6361 \cdot 10^{-4}$
5	$3,8583 \cdot 10^{-4}$	$9,1999 \cdot 10^{-4}$	$6,5402 \cdot 10^{-4}$
6	$3,7883 \cdot 10^{-4}$	$9,0326 \cdot 10^{-4}$	$6,4090 \cdot 10^{-4}$
7	$3,4347 \cdot 10^{-4}$	$8,1878 \cdot 10^{-4}$	$5,8099 \cdot 10^{-4}$
8	$3,3724 \cdot 10^{-4}$	$8,0391 \cdot 10^{-4}$	$5,7045 \cdot 10^{-4}$
9	$2,9234 \cdot 10^{-4}$	$6,9671 \cdot 10^{-4}$	$4,9442 \cdot 10^{-4}$

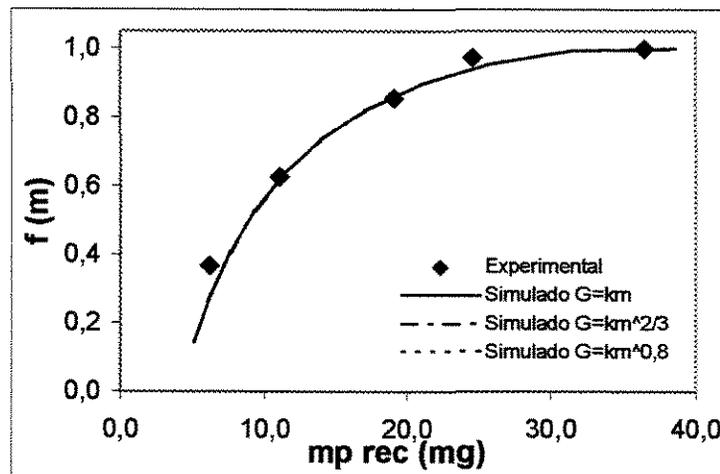


Figura 4.27- Distribuição de massa das partículas recobertas para o experimento 1.

Para uma simulação nas condições de processo dos experimentos, uma análise da distribuição de massas de recobrimento para os experimentos números 1, 2, 3 e 4, que operaram com menor vazão de suspensão de recobrimento, mostrou que as duas menores massas de recobrimento se ajustaram melhor pela curva representada pelo expoente unitário da taxa de crescimento, as duas massas intermediárias foram melhor ajustadas pela curva do expoente $2/3$ e a maior massa se ajustou pela curva do expoente $0,8$, conforme está demonstrado nas Figuras 4.28, 4.30, 4.32 e 4.34. Da mesma forma, ao se comparar as massas de recobrimento em função das massas das partículas “in natura”, o mesmo fato, em termos de ajuste, foi observado com relação aos expoentes da equação da taxa de crescimento, conforme está demonstrado nas Figuras 4.29, 4.31, 4.33 e 4.35, para os experimentos de números 1 a 4, respectivamente.

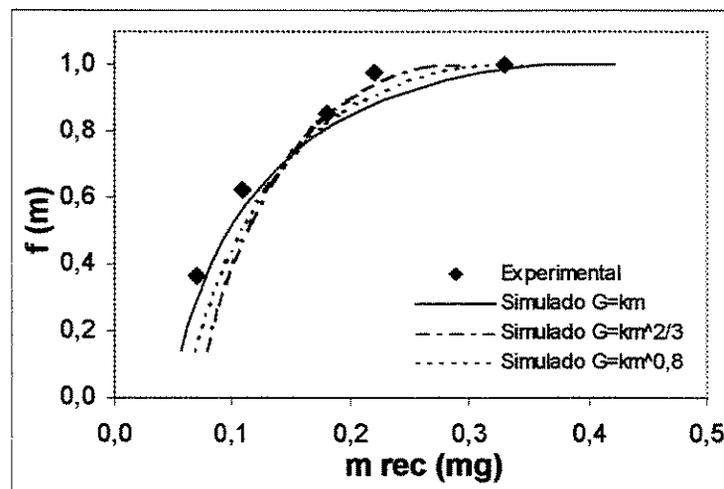


Figura 4.28- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 1 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

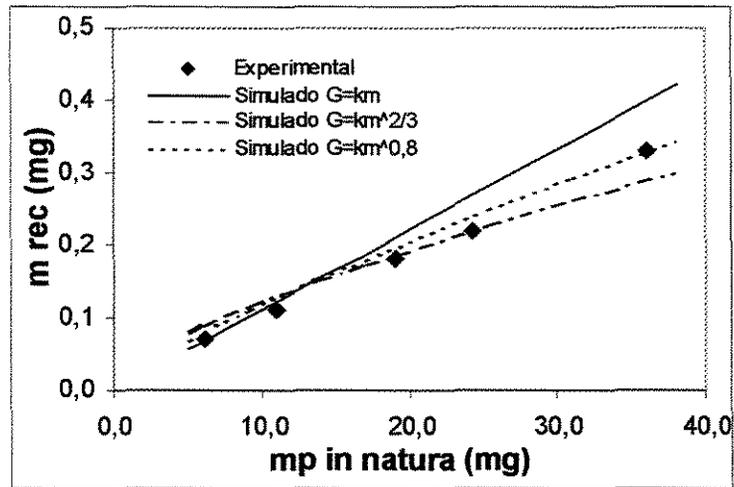


Figura 4.29- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 1 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

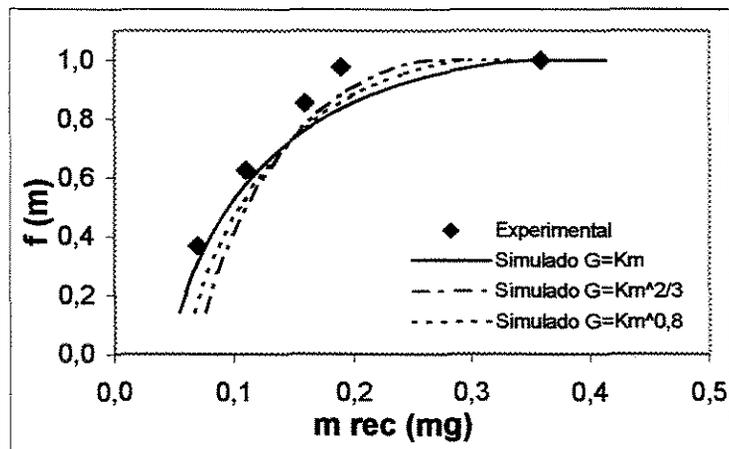


Figura 4.30- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 2 ($P_a=206$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

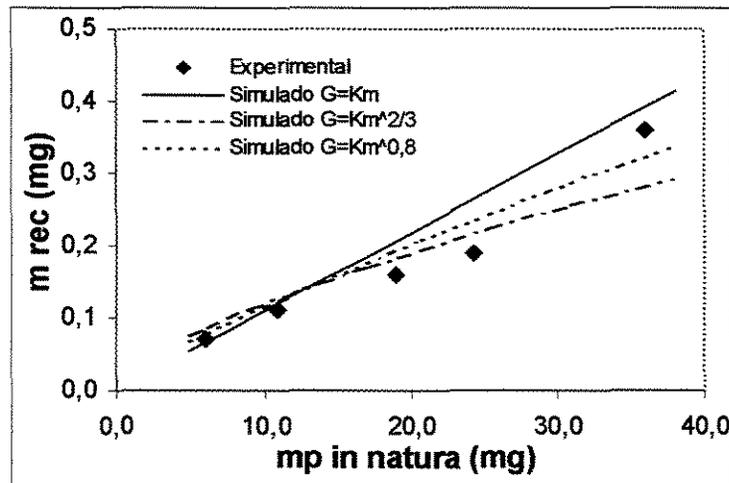


Figura 4.31- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 2 ($P_a=206$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

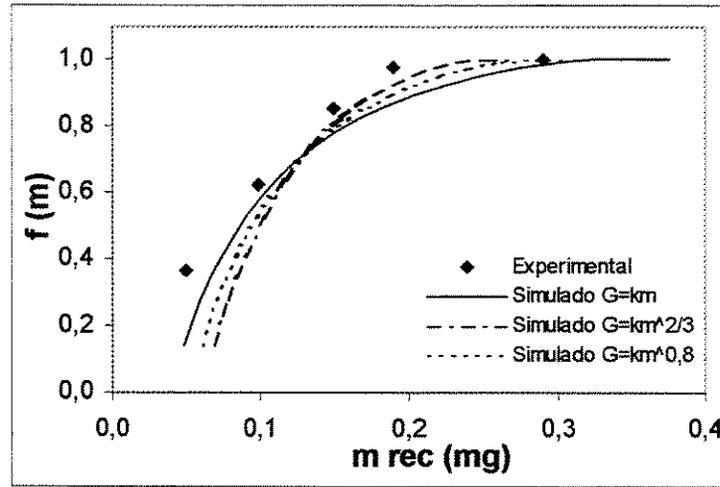


Figura 4.32- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 3 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

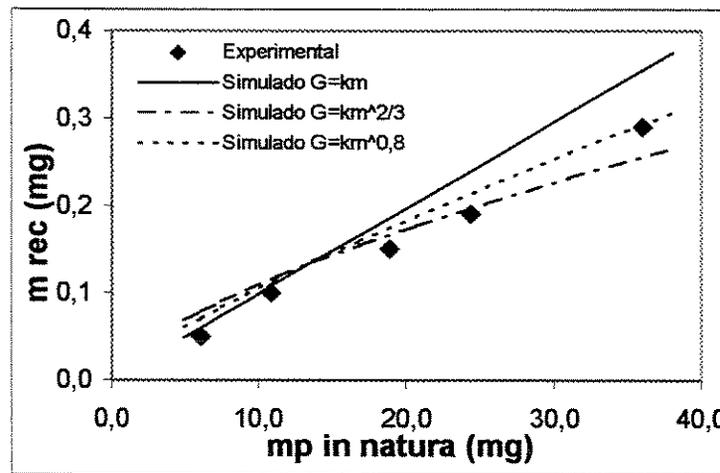


Figura 4.33- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 3 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

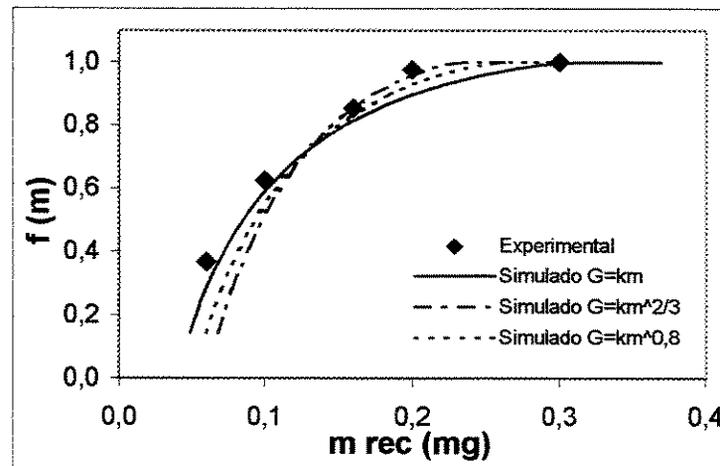


Figura 4.34- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 4 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

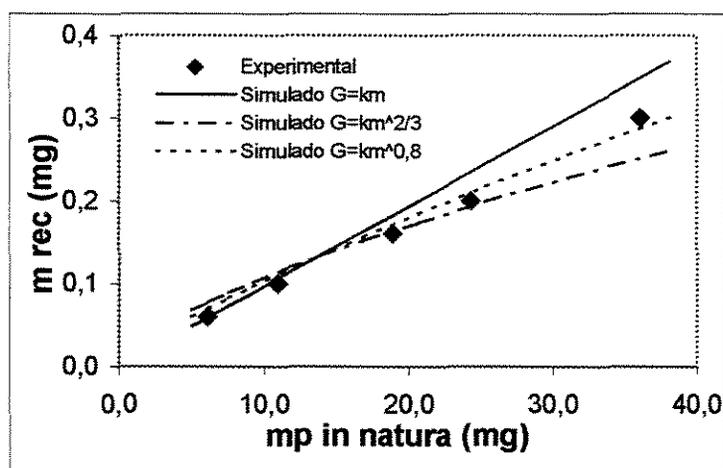


Figura 4.35- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 4 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

Uma análise entre os dados simulados e experimentais nas condições dos experimentos números 5, 6, 7 e 8, que operam com valores superiores da vazão da suspensão de recobrimento, mostrou um comportamento diferente dos quatro casos anteriores.

Para o experimento de número 5 as três massas menores de recobrimento tiveram melhor ajuste para o expoente unitário da taxa de crescimento, as duas massas maiores se ajustaram melhor pela taxa com expoente $2/3$, conforme se verifica na Figura 4.36. O fato se confirma quando se compara a massa da partícula “in natura” com a massa de recobrimento (Figura 4.37).

O experimento de número 6 apresentou um melhor ajuste para expoente unitário da taxa nas duas menores massas de recobrimento, para as demais massas o melhor ajuste ocorreu para o expoente $2/3$, conforme demonstrado na Figura 4.38 e também na Figura 4.39 para as massas da partícula “in natura”.

No caso do experimento número 7, os melhores ajustes ocorreram para a menor e maior massa de partícula utilizando expoente 1 da taxa de crescimento, para o expoente $2/3$ o melhor ajuste foi para a segunda massa de partícula e para o expoente $0,8$ as terceira e quarta massas de partícula obtiveram melhor ajuste (Figura 4.40). O mesmo se verificou quando da utilização das massas de partícula “in natura”, conforme demonstrado na Figura 4.41.

Já, para o experimento número 8, ajustou-se melhor para o expoente 1 da taxa de crescimento a segunda massa de recobrimento em ordem crescente, para o expoente 2/3 ajustou-se a terceira e quarta massas e, para expoente 0,8 as massas de recobrimento na ordem primeira e quinta, conforme Figura 4.42. A Figura 4.43 mostra a mesma tendência quando se utiliza a massa da partícula “in natura”.

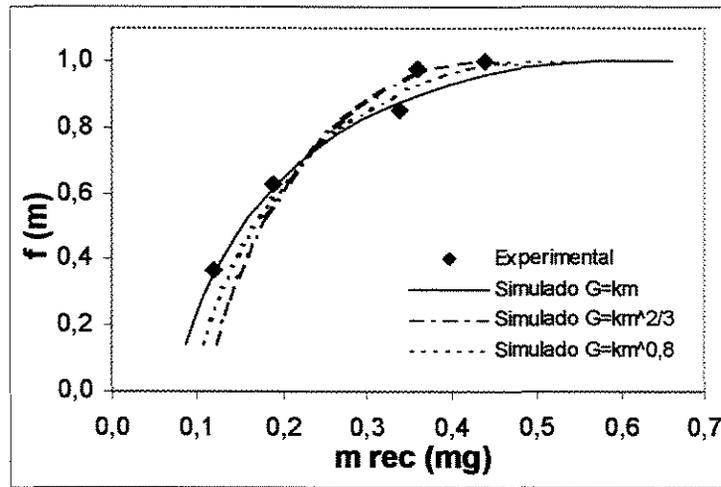


Figura 4.36- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 5 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

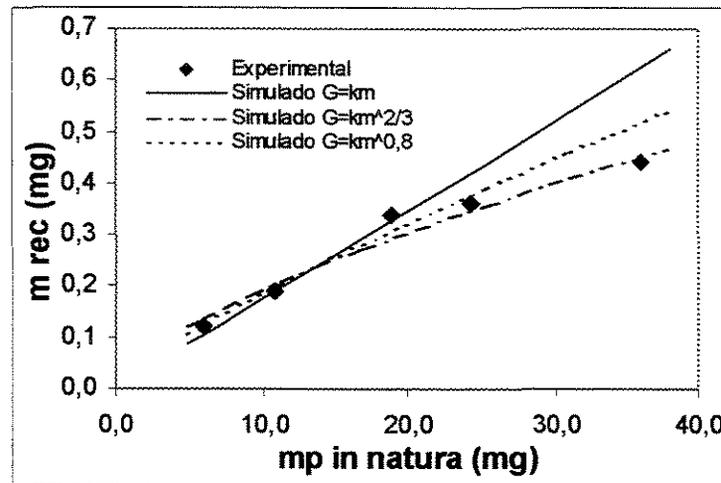


Figura 4.37- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 5 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

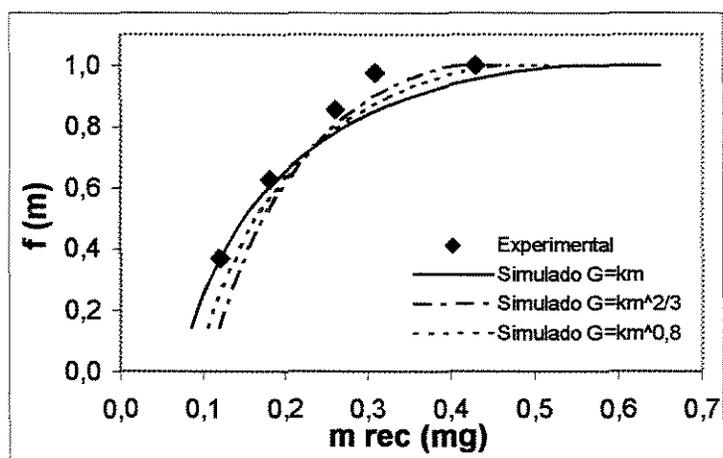


Figura 4.38- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 6 ($P_a=206$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

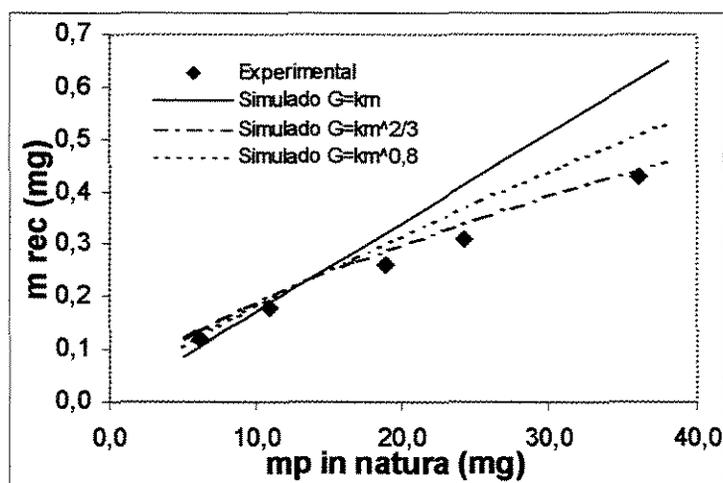


Figura 4.39- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 6 ($P_a=206$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

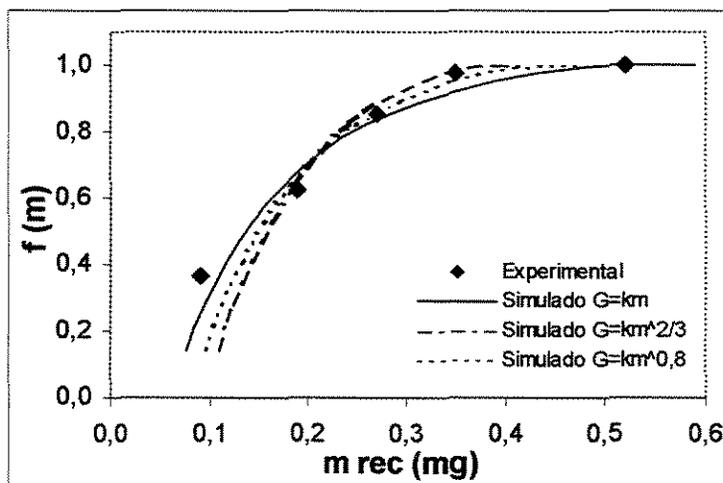


Figura 4.40- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 7 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

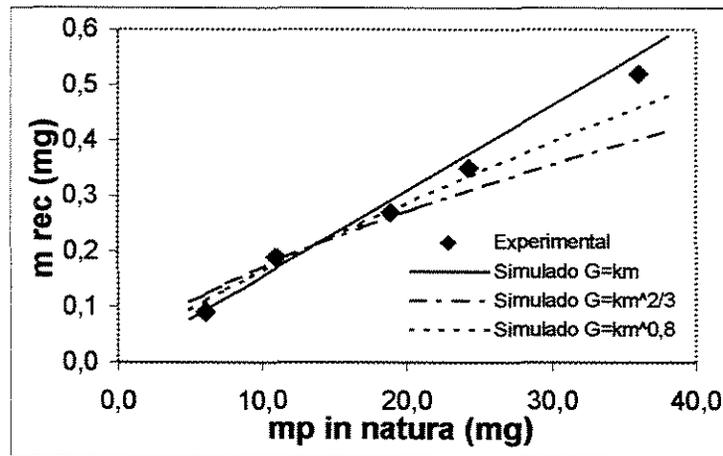


Figura 4.41- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 7 ($P_a=138\text{kPa}$, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{ mL/min}$).

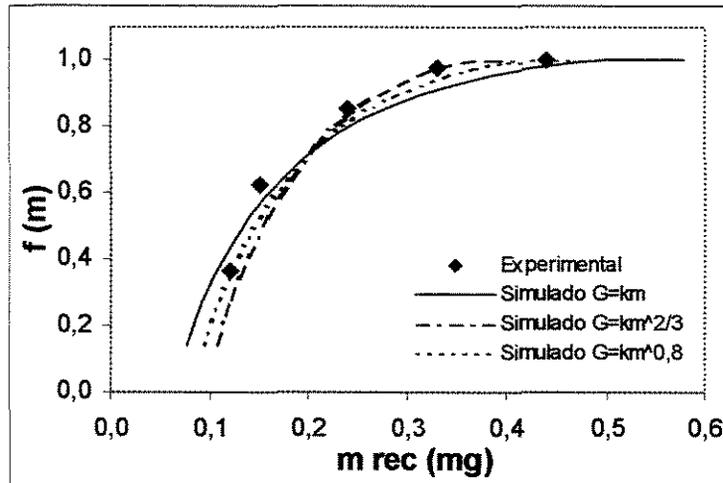


Figura 4.42- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 8 ($P_a=206\text{ kPa}$, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{ mL/min}$).

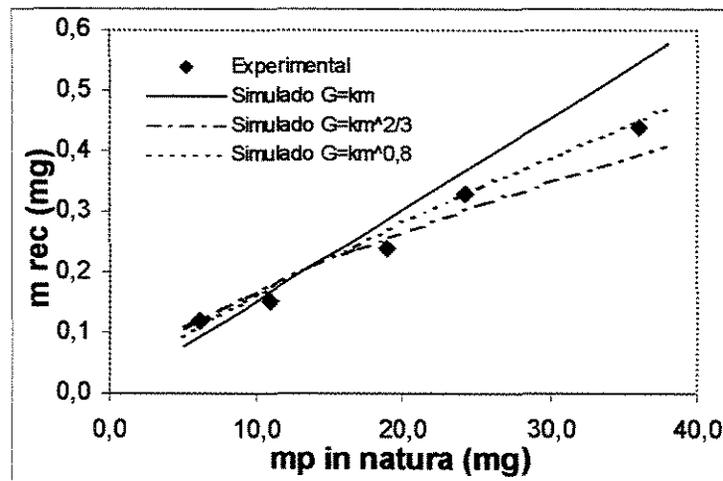


Figura 4.43- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 8 ($P_a=206\text{ kPa}$, $T_g=80^\circ\text{C}$, $Q_s=14\text{ mL/min}$).

A comparação entre os dados experimentais e os dados simulados para os experimentos de números 9, 10 e 11, que representam o ponto central para as variáveis independentes, mostrou uma tendência única, exceto uma pequena discrepância no experimento 10. A primeira e a segunda massa de recobrimento, pela ordem, obtiveram melhor ajuste pelo expoente unitário da taxa de crescimento, a terceira e quarta massa de recobrimento se ajustaram pelo expoente $2/3$ da taxa de crescimento e, a quinta massa pelo expoente $0,8$, conforme demonstrado nos gráficos das Figuras 4.44, 4.46 e 4.48. Analisando-se pela massa de partícula “in natura”, conforme as Figuras 4.45, 4.47 e 4.49, a mesma tendência se verificou.

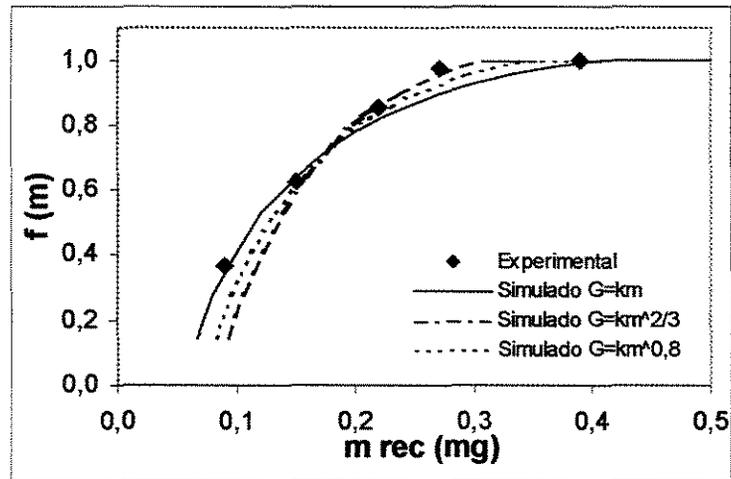


Figura 4.44- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 9 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70$ °C, $Q_s=12$ mL/min).

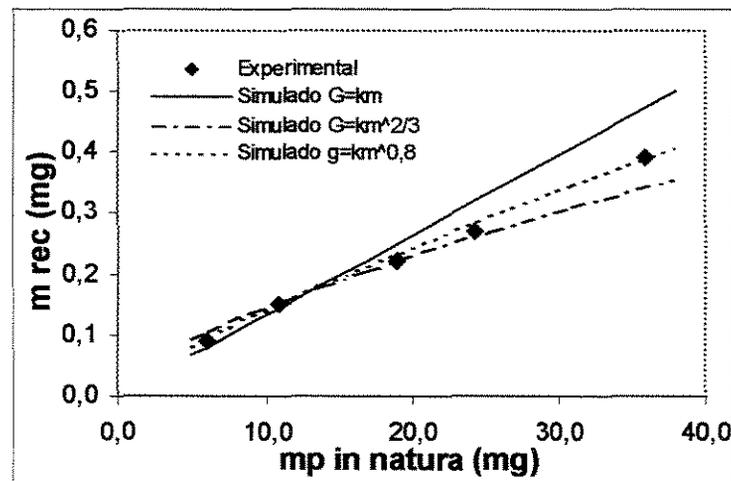


Figura 4.45- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 9 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70$ °C, $Q_s=12$ mL/min).

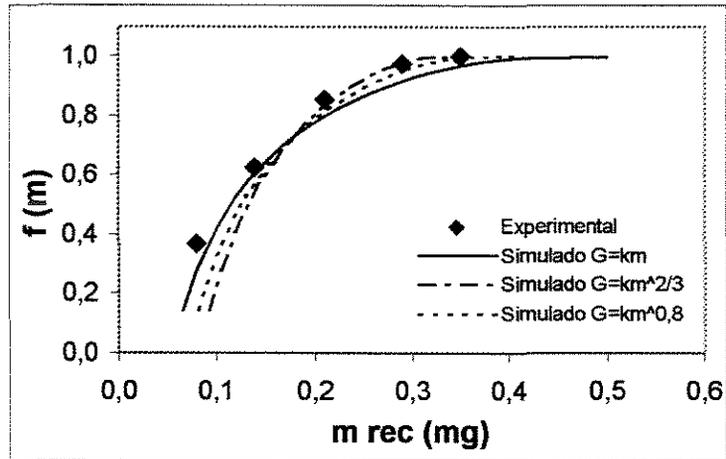


Figura 4.46- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 10 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70$ °C, $Q_s=12$ mL/min).

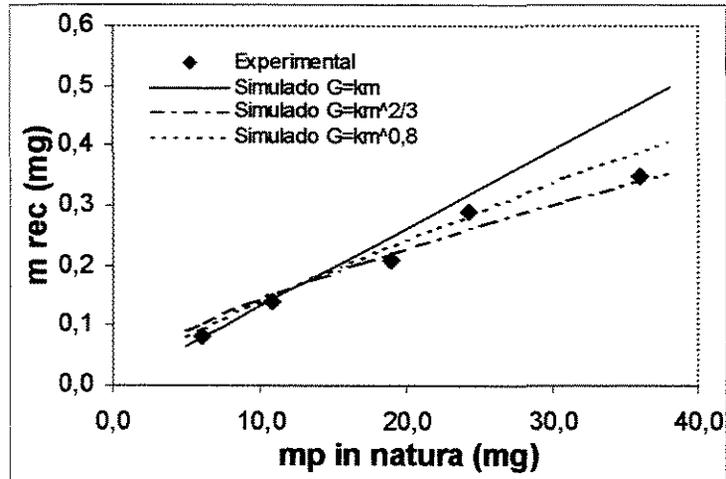


Figura 4.47- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 10 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70$ °C, $Q_s=12$ mL/min).

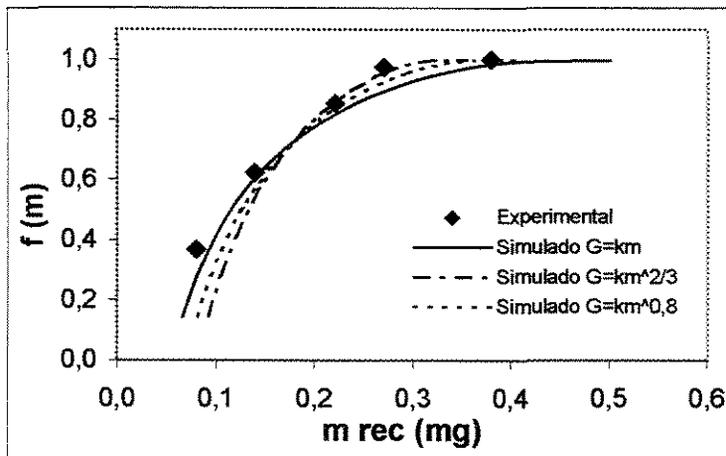


Figura 4.48- Distribuição da massa de recobrimento para o experimento 11 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70$ °C, $Q_s=12$ mL/min).

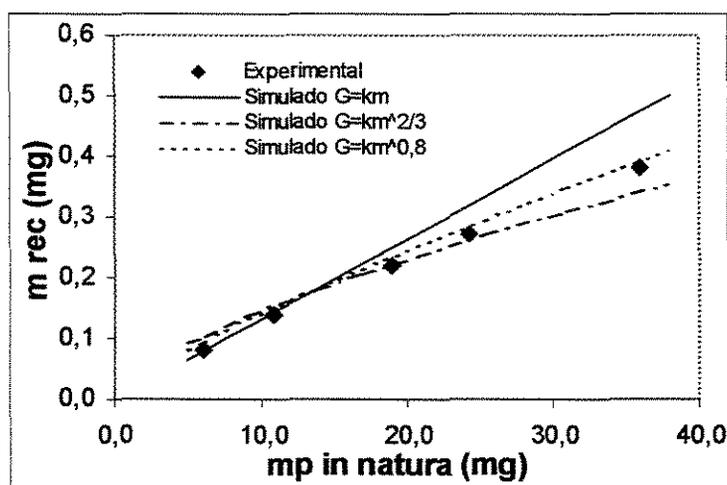


Figura 4.49- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 11 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70$ °C, $Q_s=12$ mL/min).

A análise do recobrimento, utilizando os expoentes de massa 1, 2/3 e 0,8 para a expressão da taxa de crescimento, apresentou resultados que se ajustaram melhor ora para o expoente unitário, ora para um dos expoentes fracionários. As partículas de maior massa, apresentam melhor ajuste para o crescimento quando o expoente é menor, nos processos de menor vazão e vazão intermediária. Para a maior vazão da suspensão de recobrimento utilizada, o melhor ajuste para o crescimento é obtido para as partículas de menor massa, no expoente 1, e para as partículas de maior massa, nos expoentes 1 ou 2/3. Desta forma, se torna difícil definir um único expoente que se ajuste para toda a distribuição de massa e em todas as condições de processo. Entretanto, como as diferenças de ajuste na massa das partículas são muito pequenas, inferiores a 0,1 mg, pode-se adotar o expoente unitário para todos os casos, com uma margem de erro bastante reduzida.

Verificou-se que os resultados simulados seguiram as mesmas tendências dos resultados experimentais. Com relação à massa de recobrimento, as partículas de maior massa inicial acumularam maior massa de recobrimento. A variável vazão de suspensão, por ser um dado inserido nas equações do modelo, demonstrou que quanto maior seu valor, maior o crescimento das partículas. A variável temperatura apresentou influência significativa na eficiência do processo, pois temperaturas mais altas provocavam a secagem prematura da suspensão atomizada, reduzindo assim a massa de recobrimento depositada nas partículas. Com relação à pressão do ar de atomização, pelo fato de não ser uma variável significativa, não se verificou nenhuma influência na eficiência do processo. Como a eficiência do processo faz parte das equações do modelo, as mesmas tendências obtidas

com a temperatura e a pressão do ar de atomização foram verificadas na massa da película de recobrimento simulada.

4.2.2- Análise de Sensibilidade Paramétrica

Para validação do modelo, uma análise de sensibilidade paramétrica foi feita individualmente para as seguintes variáveis de processo: vazão de suspensão, tempo de processo e concentração da suspensão de recobrimento. Nas simulações foram utilizados, para as variáveis, valores superiores aos determinados para os experimentos. As demais condições foram mantidas, inclusive a eficiência do processo, pois o ajuste definido pela Equação (4.11) não se mostrou satisfatório para valores operacionais fora da faixa estabelecida.

4.2.2.1- Vazão de suspensão

Foram utilizadas na simulação vazões de suspensão de recobrimento com valores diferentes daqueles utilizados nos experimentos. Os expoentes da massa na equação da taxa de crescimento 1, 2/3 e 0,8 foram utilizados em todos os casos, entretanto, somente alguns desses casos serão apresentados como exemplo.

Ao se utilizar dois valores de vazão de suspensão, 11 e 13 mL/min, portanto acima do valor 10 mL/min utilizado nas condições do experimento número 1 com o expoente de massa 0,8, verificou-se que a vazão maior promove o aumento da massa de recobrimento depositada nas partículas. O gráfico da Figura 4.50 demonstrou a formação de curvas que se afastam uma das outras à medida que se tem maior massa da partícula “in natura”. Da mesma forma a distribuição de massa para as mesmas condições citadas, conforme demonstrada pela Figura 4.51, apresenta curvas que indicam maior massa de recobrimento para uma mesma densidade populacional, quando se utilizam maiores vazões de suspensão.

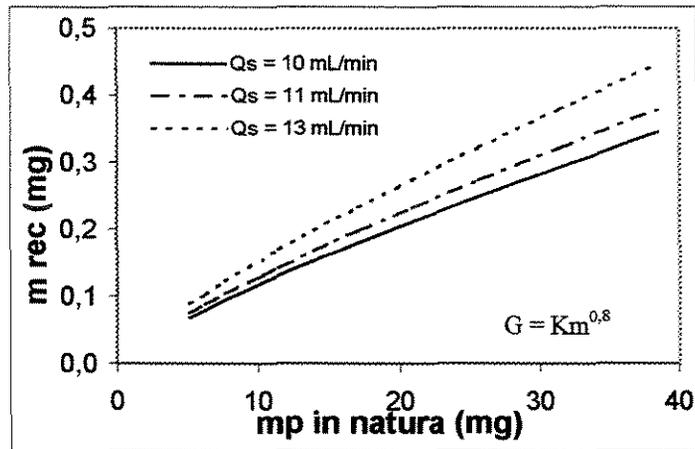


Figura 4.50- Recobrimento para 3 vazões de suspensão, condições experimentais 1 ($P_s=138$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

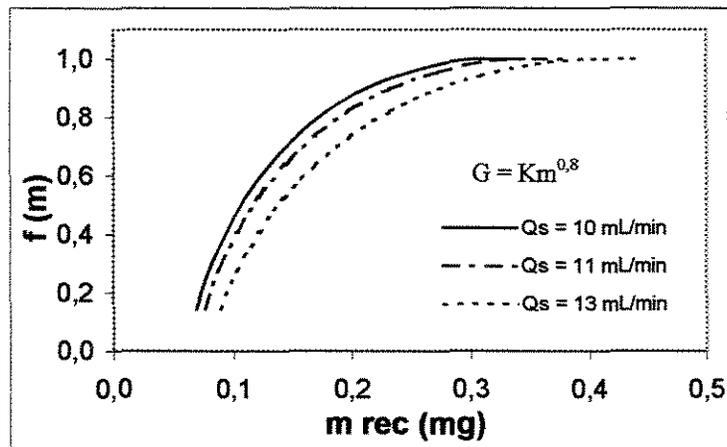


Figura 4.51- Distribuição de massa para 3 vazões de suspensão, condições experimentais 1 ($P_s=138$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

A simulação das vazões de suspensão 14, 16 e 18 mL/min com os dados experimentais número 6, também apresentou maior massa de recobrimento depositada para maiores vazões. Devido ao uso da massa com expoente 1, verifica-se a formação de retas que se afastam conforme maior for a massa da partícula “in natura” (Figura 4.52). A análise da distribuição de massa de recobrimento, conforme demonstrada na Figura 4.53, apresentou maior densidade populacional para menores vazões de suspensão.

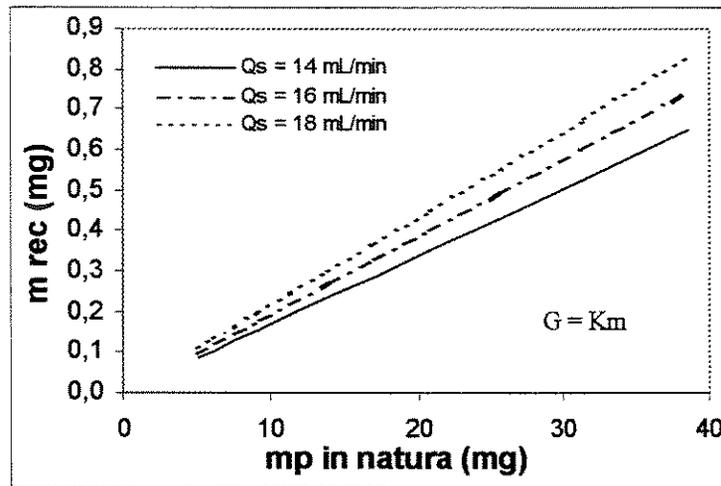


Figura 4.52- Recobrimento para 3 vazões de suspensão, condições experimentais 6 ($P_a=206$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

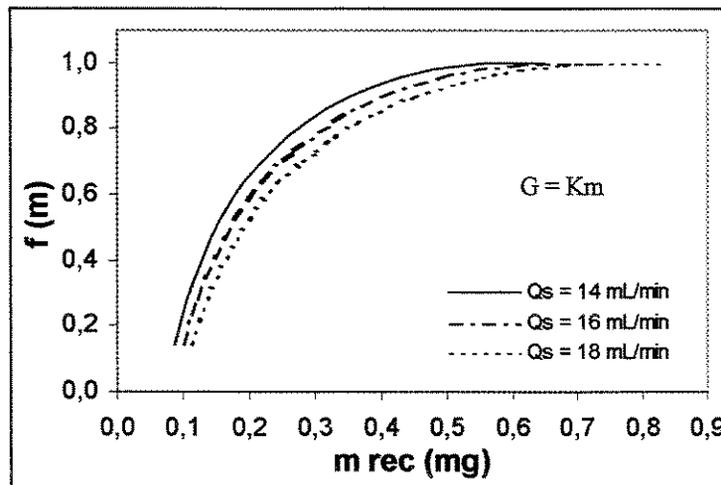


Figura 4.53- Distribuição de massa para 3 vazões de suspensão, condições experimentais 6 ($P_a=206$ kpa, $T_g=60$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

A simulação utilizando as vazões de suspensão com os dados experimentais número 7, apresentou comportamento semelhante ao exposto anteriormente. Neste caso trabalhou-se com os expoentes de massa 1 e $2/3$. O resultado do recobrimento, representado pela Figura 4.54, mostra a formação de retas que apresentam maior massa de recobrimento para uma mesma massa de partícula “in natura”, quando comparada com as curvas apresentadas na Figura 4.56. A comparação da influência dos expoentes 1 e $2/3$ na distribuição de massa segue a mesma tendência; as massas de recobrimento, representadas na Figura 4.55, são maiores do que aquelas apresentadas na Figura 4.57, para uma mesma densidade populacional.

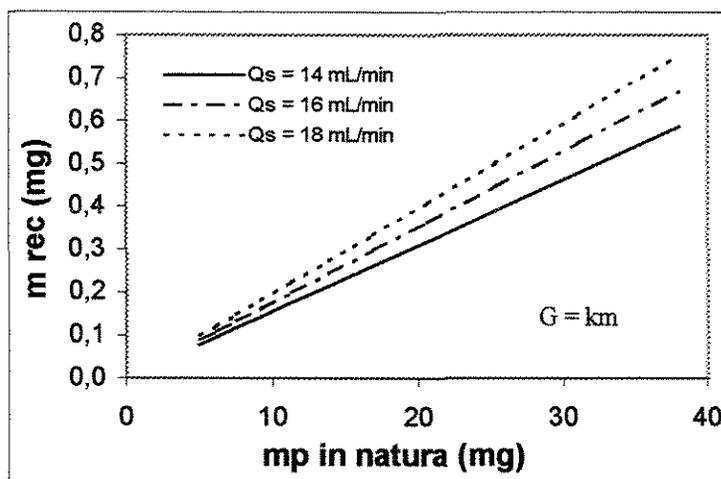


Figura 4.54- Recobrimento para 3 vazões de suspensão, condições experimentais 7 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

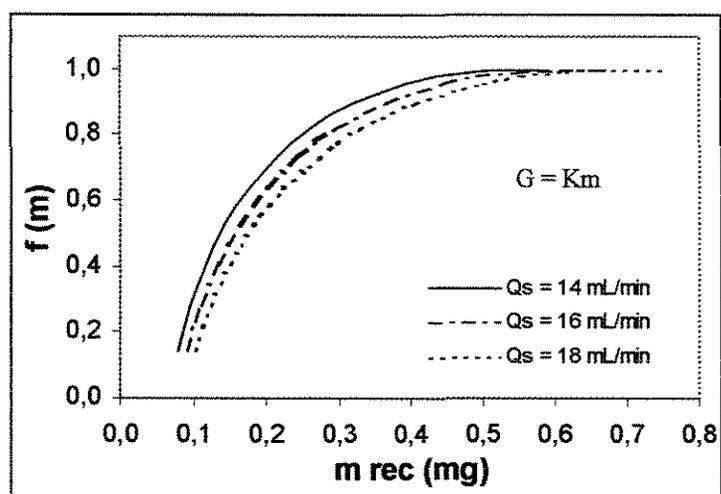


Figura 4.55- Distribuição de massa para 3 vazões de suspensão, condições experimentais 7 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

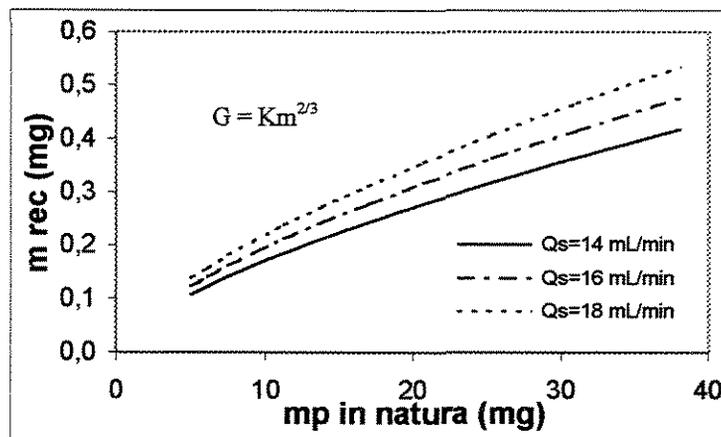


Figura 4.56- Recobrimento para 3 vazões de suspensão, condições experimentais 7 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

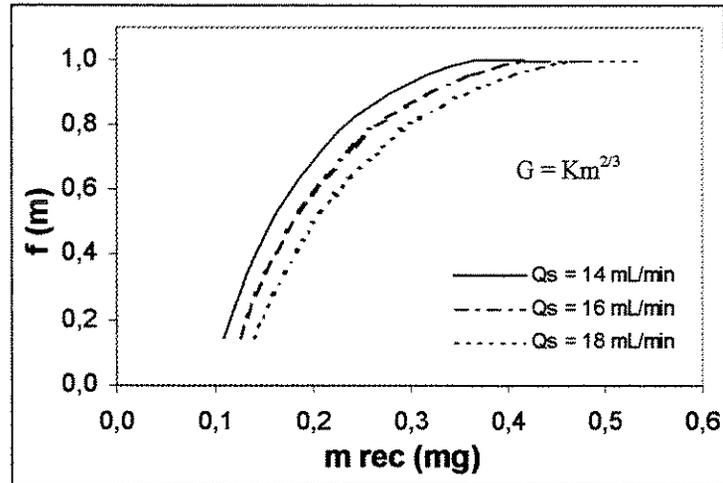


Figura 4.57- Distribuição de massa para 3 vazões de suspensão, condições experimentais 7 ($P_a=138 \text{ kPa}$, $T_g=80 \text{ }^\circ\text{C}$, $Q_s=14 \text{ mL/min}$).

A variável vazão de suspensão está inserida nas equações do modelo, então valores superiores desta variável promovem um incremento na massa de recobrimento. A tendência de maior massa de recobrimento depositada para as partículas de maior massa inicial, também foi verificada. Eventuais desvios se devem ao fato de se supor o mesmo valor de eficiência em todos os casos. Os expoentes da massa na expressão da taxa de crescimento não apresentaram variações significativas.

4.2.2.2- Tempo de processo

Na análise dos dados simulados foram utilizados os tempos de processo de 45, 60, 75 e 90 min, utilizando-se os expoentes 1, 2/3 e 0,8 da expressão da taxa de crescimento. Verificou-se nesta análise a tendência de aumento da massa de recobrimento depositada com um maior tempo de processo.

A Figura 4.58 representa a massa de recobrimento em função da massa de partícula “in natura” para quatro valores de tempo de processo utilizando-se os dados do experimento número 2. Nesta simulação foi utilizado expoente unitário para a massa, motivo pelo qual o gráfico apresenta retas. A função densidade populacional versus massa de recobrimento para os quatro tempos de processo, nas mesmas condições, está representada na Figura 4.59.

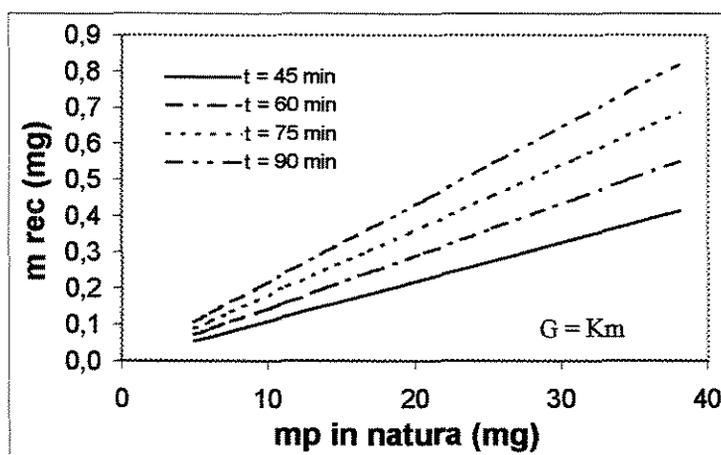


Figura 4.58- Recobrimento em diferentes tempos de processo, condições experimentais 2 ($P_a=206$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

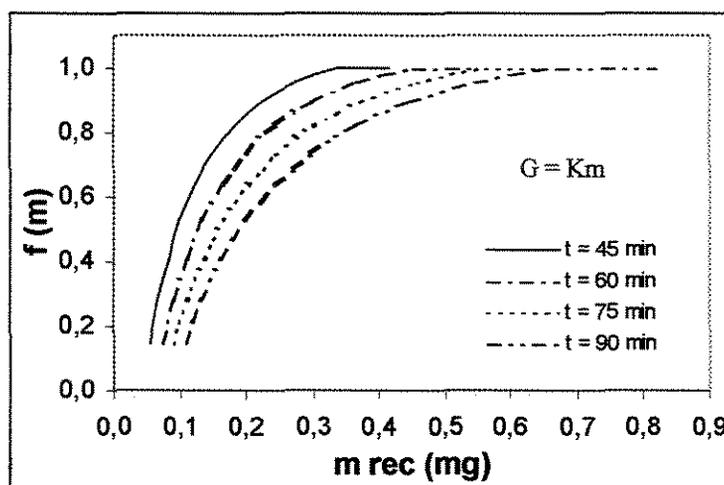


Figura 4.59- Distribuição de massa em diferentes tempos, condições experimentais 2 ($P_a=206$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

A simulação obtida com as variáveis de processo do experimento número 5 para quatro valores de tempo de processo, apresentou diferenças quando comparados dados obtidos com expoente unitário e expoente $2/3$ para a massa. O gráfico massa de recobrimento versus massa da partícula “in natura” para expoente unitário, representado pela Figura 4.60, apresenta retas e um limite maior para a massa de recobrimento se comparado com o gráfico da Figura 4.62 onde aparecem curvas devido ao expoente $2/3$. As Figuras 4.61 e 4.63 representam a função densidade populacional versus massa de recobrimento para os expoentes unitário e $2/3$, respectivamente. Uma comparação entre esses dois gráficos mostra um limite superior maior para a massa de recobrimento, quando se trata de expoente unitário para a massa.

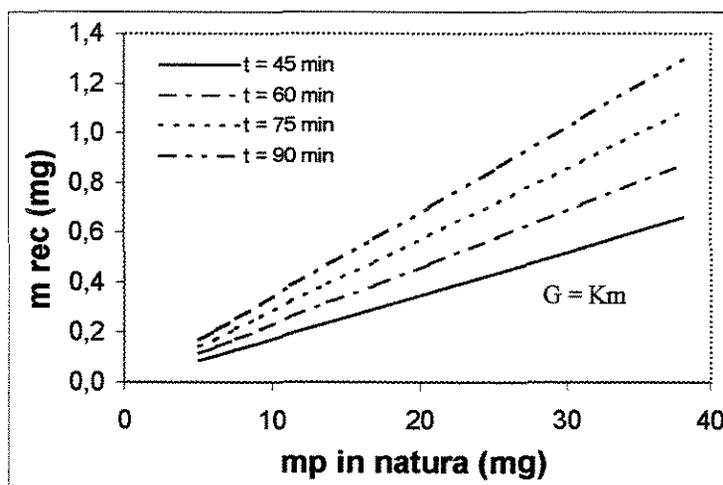


Figura 4.60- Recobrimento em diferentes tempos de processo, condições experimentais 5 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

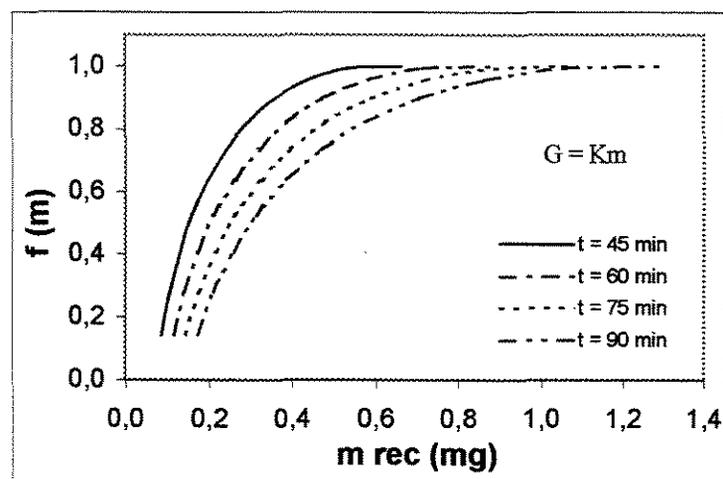


Figura 4.61- Distribuição de massa em diferentes tempos, condições experimentais 5 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

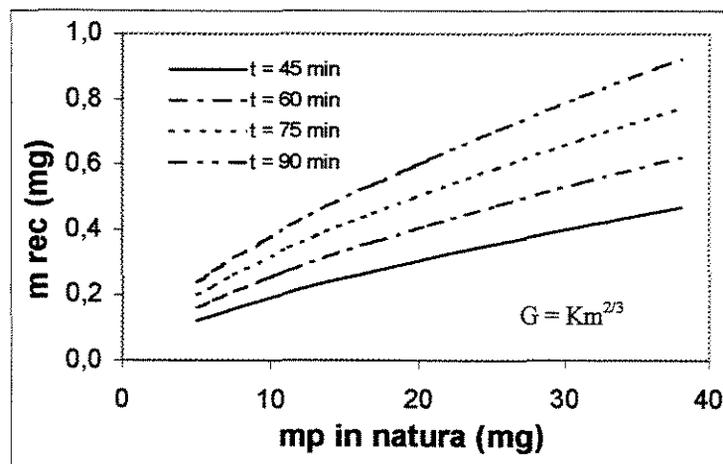


Figura 4.62- Recobrimento em diferentes tempos de processo, condições experimentais 5 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

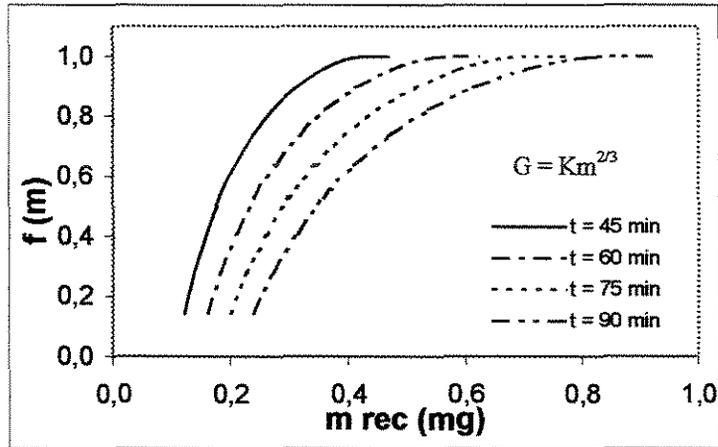


Figura 4.63- Distribuição de massa em diferentes tempos, condições experimentais 5 ($P_a=138$ kPa, $T_g=60$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

A simulação utilizando as variáveis de processo do experimento de ponto central, com o expoente $0,8$ para a massa em quatro diferentes tempos de processo, apresentou um comportamento semelhante aos descritos anteriormente. Isso pode ser observado através das curvas do gráfico massa de recobrimento em função da massa original da partícula, conforme a Figura 4.64. Da mesma forma, a Figura 4.65 apresenta o gráfico densidade populacional em função da massa de recobrimento.

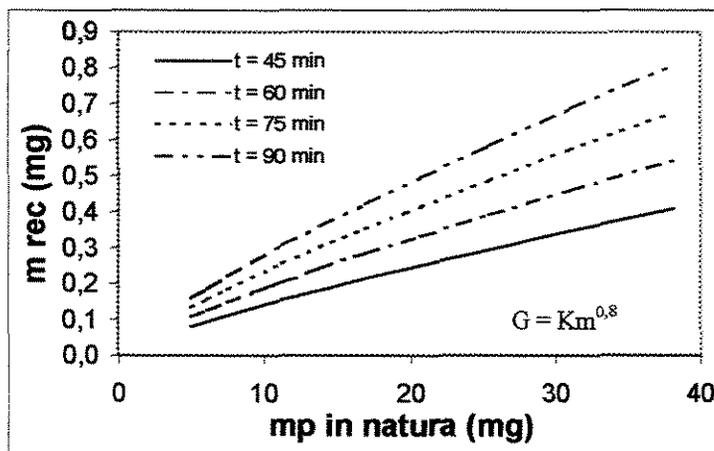


Figura 4.64- Recobrimento em diferentes tempos de processo, condições experimentais 9 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70$ °C, $Q_s=12$ mL/min).

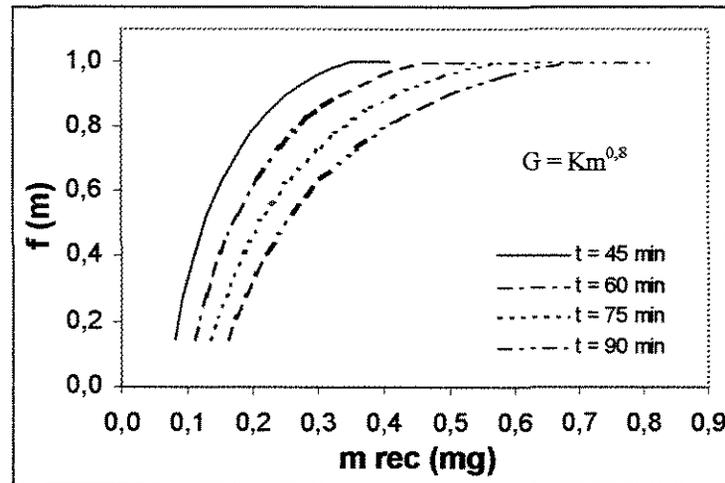


Figura 4.65- Distribuição de massa em diferentes tempos, condições experimentais 9 ($P_a=172$ kPa, $T_g=70$ °C, $Q_s=12$ mL/min).

A variável tempo de processo é um dado para resolução das equações diferenciais do modelo, então valores superiores desta variável promoveram uma maior massa de recobrimento, como já era esperado. A tendência de maior massa de recobrimento depositada para as partículas de maior massa inicial, também foi verificada. Os expoentes da massa na expressão da taxa de crescimento não apresentaram variações significativas.

4.2.2.3- Concentração da suspensão

A análise dos dados simulados utilizando-se os valores de concentração da suspensão de 10, 12 e 15 %, mostrou uma tendência única da massa de recobrimento depositada na partícula ser maior quando a concentração for maior. Entretanto, pode-se verificar que para uma mesma densidade populacional, apresenta maior massa de recobrimento a maior concentração de suspensão.

A Figura 4.66 representa o gráfico massa de recobrimento em função da massa original da partícula para os três valores de concentração, utilizando as variáveis de processo do experimento número 3. As retas apresentadas se devem à utilização do expoente unitário para a massa na expressão da taxa. Nessas mesmas condições, o gráfico densidade populacional em função da massa de recobrimento, está representado pela Figura 4.67.

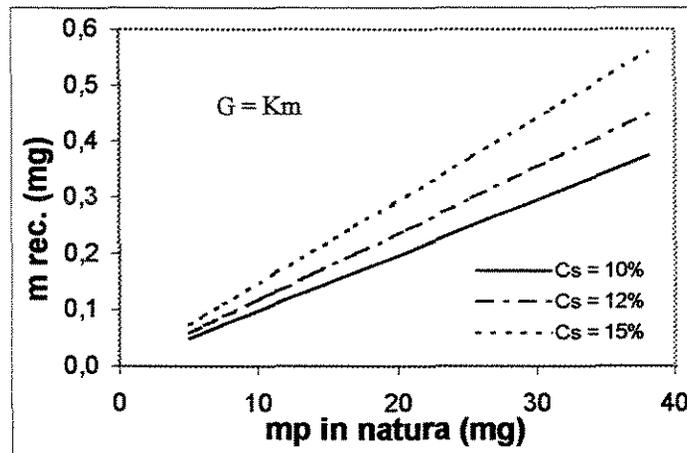


Figura 4.66- Recobrimento em diferentes concentrações, condições experimentais 3 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

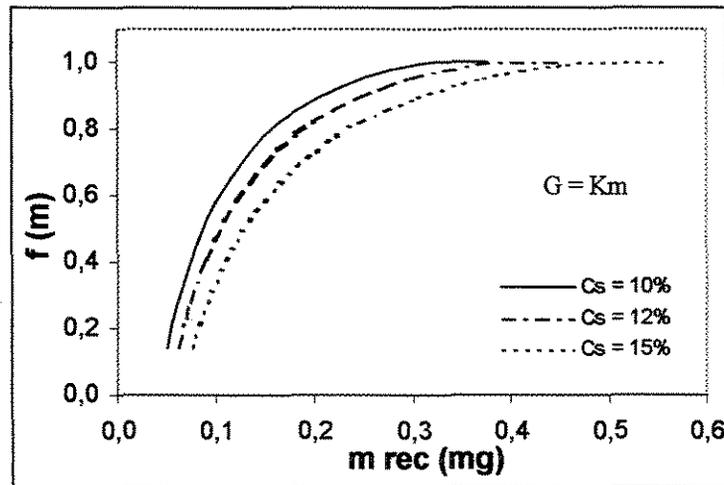


Figura 4.67- Distribuição de massa em diferentes concentrações, condições experimentais 3 ($P_a=138$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

Com as variáveis de processo do experimento número quatro, utilizando-se o coeficiente 0,8 para a massa em três condições de concentração da suspensão, verificou-se a formação de curvas, conforme o gráfico massa de recobrimento versus massa original da partícula, representado pela Figura 4.68. A densidade populacional em função da massa de recobrimento, nestas mesmas condições, está representada pela Figura 4.69.

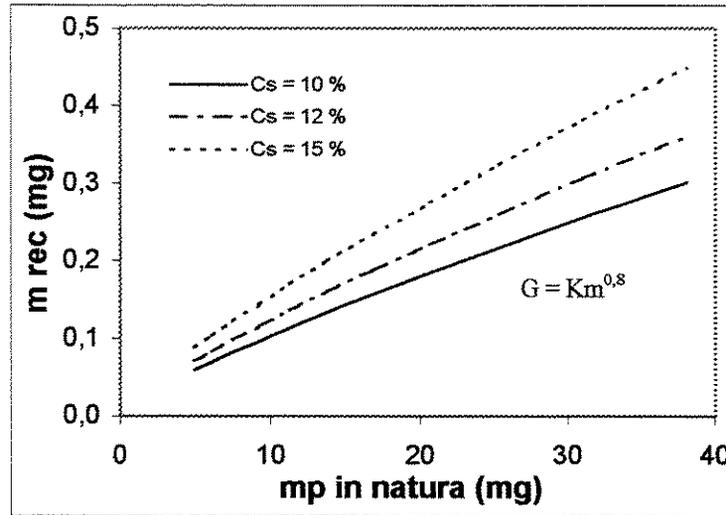


Figura 4.68- Recobrimento em diferentes concentrações, condições experimentais 4 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

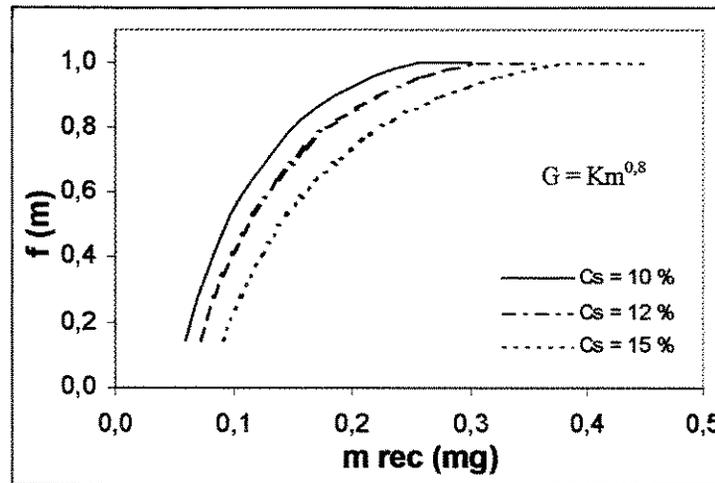


Figura 4.69- Distribuição de massa em diferentes concentrações, condições experimentais 4 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=10$ mL/min).

Os dados simulados obtidos com as variáveis de processo do experimento número 8 para os três valores de concentração da suspensão, apresentaram diferenças quando comparados dados obtidos com expoente unitário e expoente $2/3$ para a massa, na expressão da taxa. O gráfico massa de recobrimento em função da massa da partícula “in natura” para expoente unitário, representado pela Figura 4.70, apresenta retas e um limite maior para a massa de recobrimento se comparado com o gráfico da Figura 4.72 onde aparecem curvas devido ao expoente $2/3$ da massa. As Figuras 4.71 e 4.73 representam a função densidade populacional versus massa de recobrimento para os expoentes unitário e

2/3, respectivamente. Uma comparação entre esses dois gráficos mostra um limite superior maior para a massa de recobrimento, quando se trata de expoente unitário para a massa.

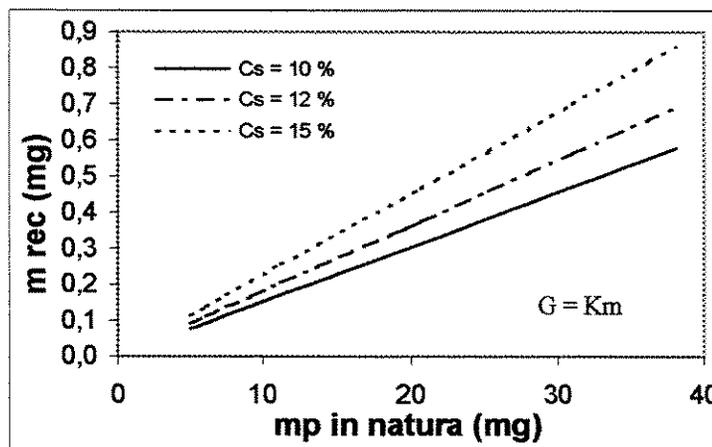


Figura 4.70- Recobrimento em diferentes concentrações, condições experimentais 8 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

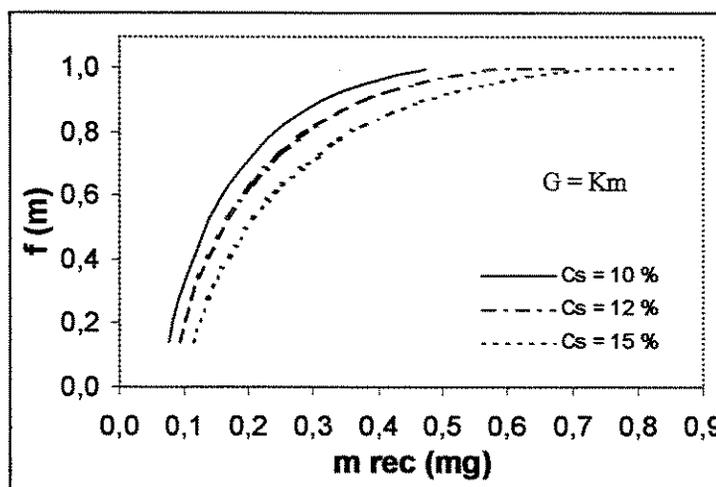


Figura 4.71- Distribuição de massa em diferentes concentrações, condições experimentais 8 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

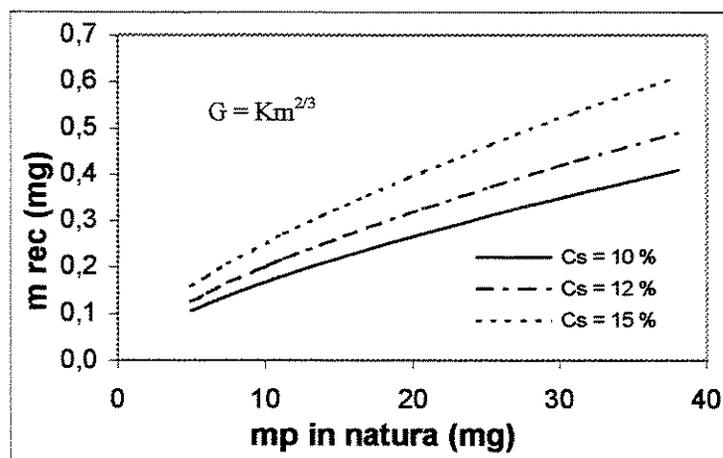


Figura 4.72- Recobrimento em diferentes concentrações, condições experimentais 8 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

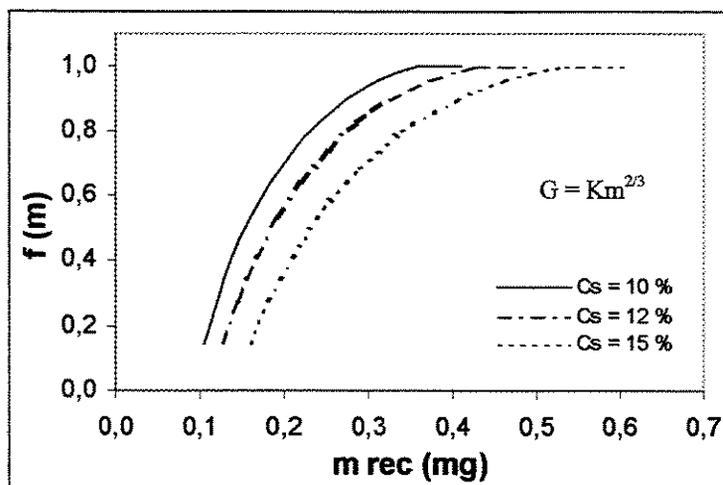


Figura 4.73- Distribuição de massa em diferentes concentrações, condições experimentais 8 ($P_a=206$ kPa, $T_g=80$ °C, $Q_s=14$ mL/min).

O valor da concentração de suspensão está inserido nas equações do modelo, então valores superiores desta variável, também promovem um incremento na massa de recobrimento, conforme verificado. Uma tendência de maior massa de recobrimento depositada para as partículas de maior massa inicial, também foi verificada. Eventuais desvios se devem ao fato de se supor o mesmo valor de eficiência em todos os casos. Os expoentes da massa na expressão da taxa de crescimento não apresentaram variações significativas, como nos demais casos.

A análise de sensibilidade paramétrica para as variáveis vazão de suspensão, tempo de processo e concentração da suspensão mostrou uma tendência de aumento no valor simulado da massa de recobrimento depositada, quando se aumentou os valores de

qualquer uma dessas variáveis. Todas as tendências verificadas na análise paramétrica estão de acordo com o esperado pela teoria, demonstrando que o modelo responde satisfatoriamente às variações analisadas.

4.2.3- Comparação da Simulação com Resultados Experimentais da Literatura

Para validação do modelo desenvolvido neste trabalho foi feita uma comparação dos dados experimentais obtidos por DONIDA (2000) com dados simulados através do modelo matemático desenvolvido pelo método do balanço populacional.

Neste estudo de recobrimento utilizaram-se grãos de uréia com suspensão polimérica de Eudragit[®], em leito de jorro. As variáveis independentes foram vazão do ar de jorro, temperatura do ar, pressão do ar de atomização e vazão da suspensão de recobrimento, em um total de 20 experimentos. O tempo de processo foi de 70 min, a concentração da suspensão de 0,12 kg/kg e a massa total de partículas utilizada foi de 1,2 kg. As variáveis de resposta obtidas foram crescimento relativo das partículas (δ) e eficiência do processo (η). Para efeito de simulação, foi determinada por correlação empírica (Equação 3.31), no limite de confiança de 95%, a eficiência (η_{est}) para cada experimento.

A Tabela 4.16 apresenta as variáveis independentes, para as quais foram verificados os efeitos sobre as variáveis de resposta, incluindo ainda a eficiência, estimada para os 20 experimentos. Resultou em efeito significativo as variáveis temperatura do gás, vazão da suspensão e a interação entre a pressão de atomização com a temperatura e com a vazão de suspensão.

Uma distribuição de massa foi proposta arbitrando-se 11 intervalos discretos entre as massas mínima e máxima das partículas de uréia utilizadas. Foi arbitrado, também um número de partículas para cada intervalo, de tal forma que totalizasse um número médio de partículas calculado para a carga total. A razão entre as massas de cada intervalo foi estimada em $r = 1,02$, os momentos do balanço populacional de ordem zero, um e dois, calculados pela Equação (3.24) foram respectivamente $a = 24,9975$, $b = 0,9901$ e

$c = -24,9975$. A Tabela 4.17 mostra as massas de cada partícula, as massas médias da partícula, o número de partículas para cada intervalo discreto e a função densidade populacional.

Tabela 4.16 – Variáveis independentes e de respostas no processo de recobrimento

<i>Exp.</i>	W_g (kg/s)	T_g (°C)	P_a (kPa)	W_s (kg/s)	δ (%)	η (%)	η_{est} (%)
01	0,0133	50	138	$1,08 \cdot 10^{-4}$	3,29	72,74	75,18
02	0,0167	50	138	$1,08 \cdot 10^{-4}$	4,00	88,39	85,10
03	0,0133	70	138	$1,08 \cdot 10^{-4}$	2,50	55,39	54,00
04	0,0167	70	138	$1,08 \cdot 10^{-4}$	2,48	54,87	55,44
05	0,0133	50	206	$1,08 \cdot 10^{-4}$	2,85	63,16	56,48
06	0,0167	50	206	$1,08 \cdot 10^{-4}$	2,35	52,06	57,92
07	0,0133	70	206	$1,08 \cdot 10^{-4}$	2,77	61,32	68,74
08	0,0167	70	206	$1,08 \cdot 10^{-4}$	3,44	76,05	78,66
09	0,0133	50	138	$1,42 \cdot 10^{-4}$	4,82	79,80	75,70
10	0,0167	50	138	$1,42 \cdot 10^{-4}$	4,25	71,01	74,26
11	0,0133	70	138	$1,42 \cdot 10^{-4}$	3,24	54,16	57,44
12	0,0167	70	138	$1,42 \cdot 10^{-4}$	3,09	51,66	47,52
13	0,0133	50	206	$1,42 \cdot 10^{-4}$	5,22	87,30	88,44
14	0,0167	50	206	$1,42 \cdot 10^{-4}$	4,81	80,47	78,52
15	0,0133	70	206	$1,42 \cdot 10^{-4}$	4,54	75,88	69,14
16	0,0167	70	206	$1,42 \cdot 10^{-4}$	4,03	67,25	67,70
17	0,0150	60	172	$1,25 \cdot 10^{-4}$	3,38	64,38	67,80
18	0,0150	60	172	$1,25 \cdot 10^{-4}$	3,37	64,06	67,80
19	0,0150	60	172	$1,25 \cdot 10^{-4}$	3,49	66,44	67,80
20	0,0150	60	172	$1,25 \cdot 10^{-4}$	3,66	69,61	67,80

Tabela 4.17 – Massa e número de partículas em cada intervalo.

i	m_p (g)	\bar{m}_p (g)	N_i	$f(m)$
1	0,0516	0,0521	700	0,0307
2	0,0526	0,0531	1300	0,0878
3	0,0537	0,0542	2000	0,1757
4	0,0547	0,0552	2500	0,2855
5	0,0558	0,0564	3000	0,4172
6	0,0570	0,0575	3770	0,5828
7	0,0581	0,0587	3000	0,7145
8	0,0593	0,0598	2500	0,8243
9	0,0604	0,0610	2000	0,9122
10	0,0617	0,0623	1300	0,9693
11	0,0629	0,0636	700	1,0000
Total	-	-	22770	-

Os valores experimentais das taxas de crescimento médio das partículas foram calculados para cada experimento a partir do crescimento relativo. Os valores simulados da taxa, obtidos pelo modelo do balanço populacional, foram determinados para expoente unitário da massa, conforme a Equação (3.18a). Os valores das taxas de crescimento G experimental e simulada, o desvio médio entre as taxas e a constante de proporcionalidade K média de cada experimento estão exibidos na Tabela 4.18. Uma comparação entre as taxas de crescimento obtidas experimentalmente e os valores obtidos pela simulação, apresentou muita variação, com desvios que ficaram entre 0,43 até 17,12%. A Figura 4.74 mostra a comparação dos valores experimentais e simulados da taxa de crescimento para cada experimento. Apesar de em alguns casos os desvios estarem elevados, pode-se considerar que houve um bom ajuste para a taxa de crescimento.

Tabela 4.18 – Valores das taxas, do desvio médio e da constante de proporcionalidade.

<i>Exp.</i> <i>N.º</i>	<i>G exp.</i> <i>(g/min)</i>	<i>G sim.</i> <i>(g/min)</i>	<i>Desvio</i> <i>(%)</i>	<i>K sim.</i> <i>(min⁻¹)</i>
01	0,6103	0,5888	3,5229	4,5349.10 ⁻⁴
02	0,7420	0,6713	9,5283	5,1700.10 ⁻⁴
03	0,4638	0,4186	9,7456	3,2238.10 ⁻⁴
04	0,4601	0,4299	6,5638	3,3113.10 ⁻⁴
05	0,5287	0,4382	17,1175	3,3748.10 ⁻⁴
06	0,4359	0,4496	3,1429	3,4631.10 ⁻⁴
07	0,5138	0,5363	4,3791	4,1305.10 ⁻⁴
08	0,6381	0,6175	3,2283	4,7556.10 ⁻⁴
09	0,8960	0,8010	10,6027	6,1690.10 ⁻⁴
10	0,7884	0,7842	0,5327	6,0396.10 ⁻⁴
11	0,6010	0,5955	0,9151	4,5867.10 ⁻⁴
12	0,5732	0,4891	14,6720	3,7668.10 ⁻⁴
13	0,9683	0,9546	1,4149	7,3522.10 ⁻⁴
14	0,8923	0,8340	6,5337	6,4235.10 ⁻⁴
15	0,8422	0,7254	13,8684	5,5871.10 ⁻⁴
16	0,7476	0,7091	5,1498	5,4613.10 ⁻⁴
17	0,6270	0,6502	3,7002	5,0075.10 ⁻⁴
18	0,6251	0,6502	4,0154	5,0075.10 ⁻⁴
19	0,6474	0,6502	0,4325	5,0075.10 ⁻⁴
20	0,6789	0,6502	4,2274	5,0075.10 ⁻⁴

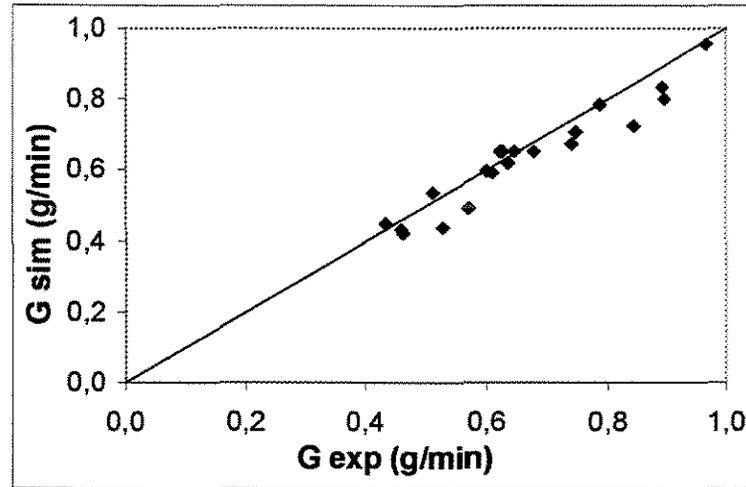


Figura 4.74- Comparação entre as taxas experimental e simulada

A comparação, entre os dados experimentais e os dados obtidos por simulação para a massa de recobrimento em relação à massa da partícula “in natura”, foi determinada para os 20 experimentos desenvolvidos por DONIDA (2000). Da mesma forma, foi feita a comparação entre dados experimentais e simulados para a função densidade populacional em relação à massa de recobrimento depositada.

Para as condições dos experimentos números 10, 11, 13 e 19 verificou-se uma excelente concordância entre os dados experimentais e os dados simulados tanto da massa de recobrimento em função da massa inicial das partículas (Figuras 4.75, 4.77, 4.79 e 4.81) como no caso da função densidade populacional versus massa de recobrimento depositada, conforme as Figuras 4.76, 4.78, 4.79 e 4.82. Os desvios médios entre as massas de recobrimento experimental e simulada ficaram abaixo de 2%. Com relação a esses experimentos, as corridas 13 e 19 apresentaram excelente ajuste para as eficiências experimental e estimada, portanto conclui-se que a qualidade do ajuste para a eficiência não é a única razão para a excelente concordância do modelo tanto para a cinética de crescimento como para a função densidade populacional. Com relação à influência das variáveis do processo na concordância do modelo, somente a vazão do ar de jorro foi a mesma nos experimentos 10, 11 e 13.

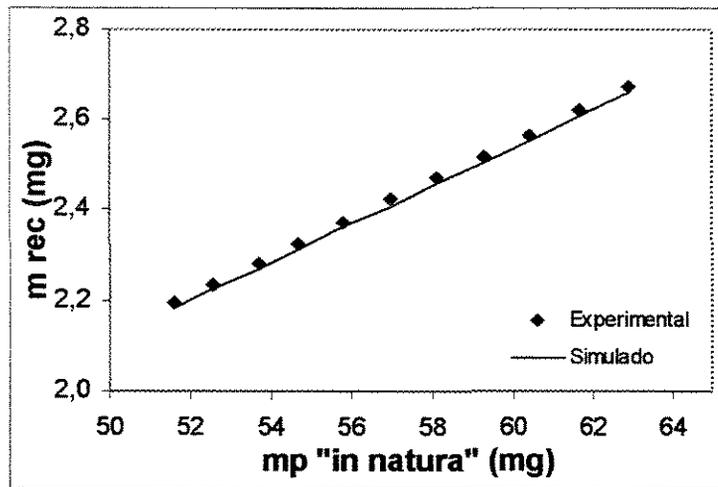


Figura 4.75- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 10 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$)

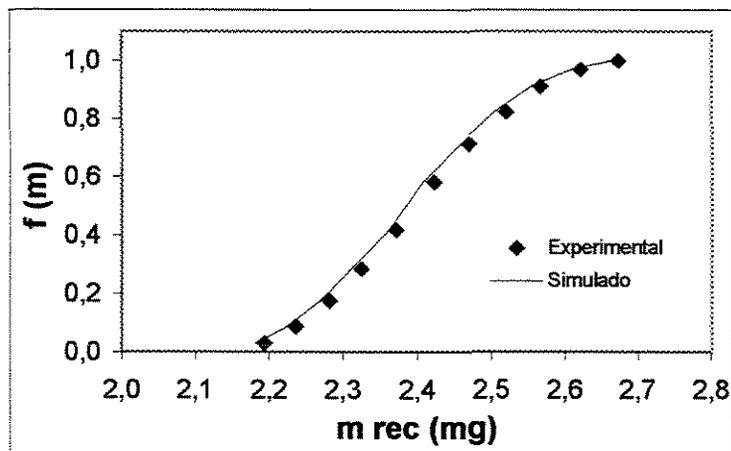


Figura 4.76- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 10 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$)

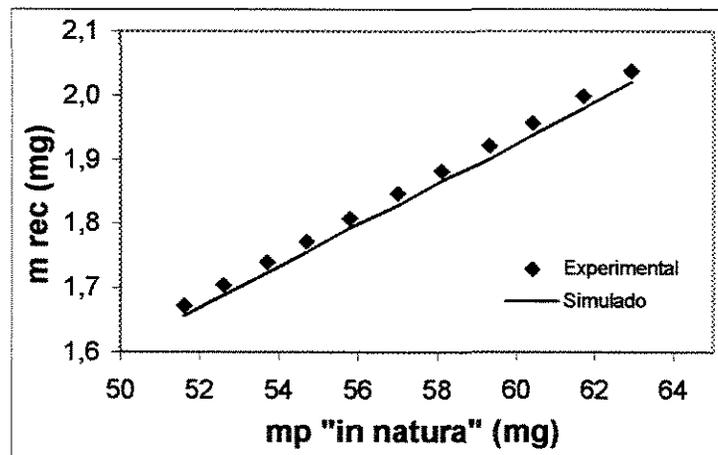


Figura 4.77- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 11 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$)

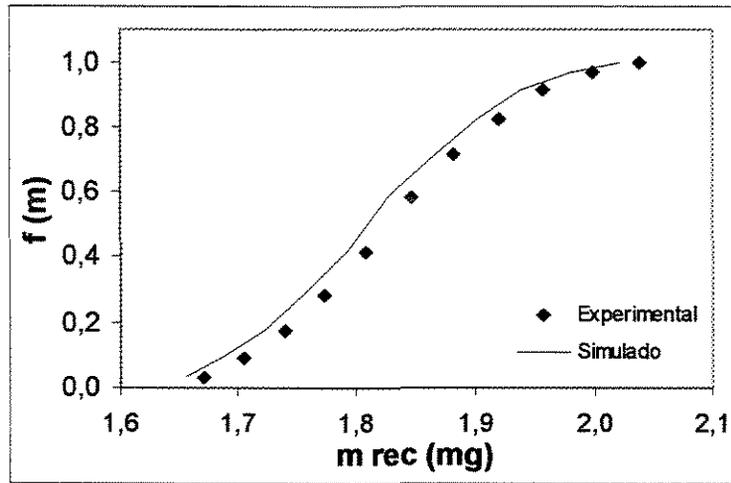


Figura 4.78- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 11 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$)

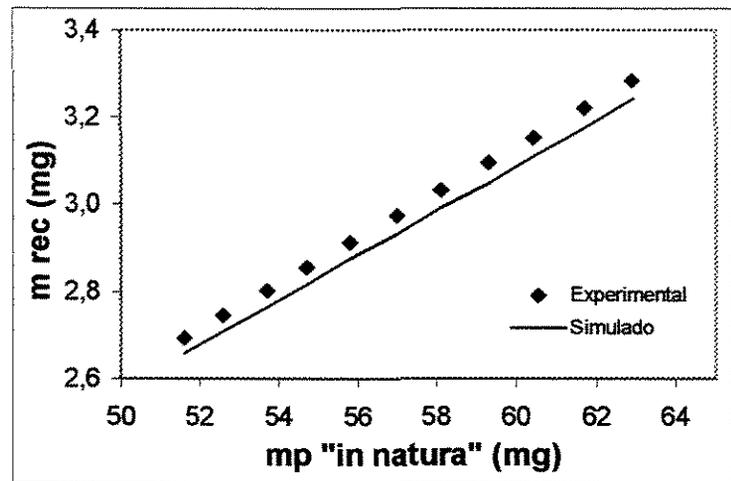


Figura 4.79- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 13 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$)

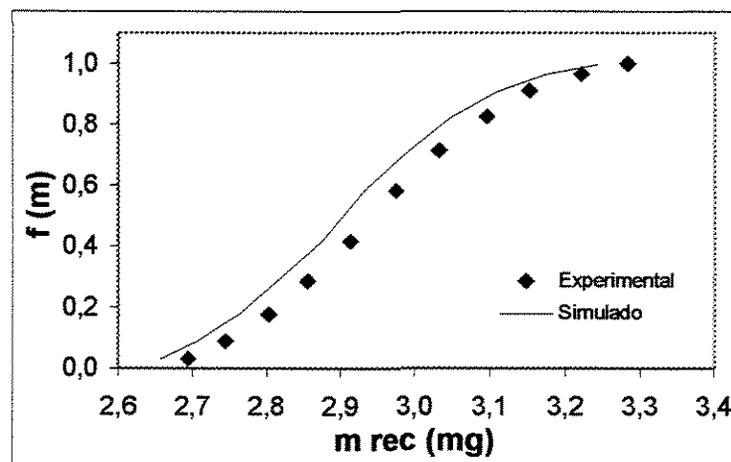


Figura 4.80- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 13 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$)

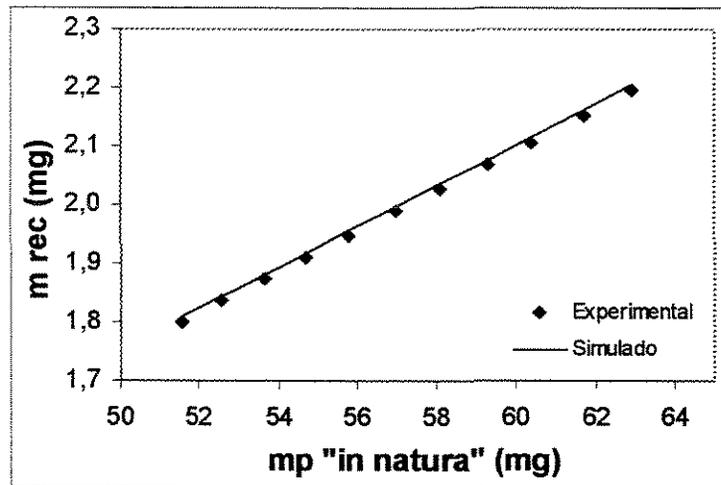


Figura 4.81- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 19 ($W_g=0,0150\text{kg/s}$, $T_g=60\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=172\text{kPa}$, $W_s=7,506\text{g/min}$)

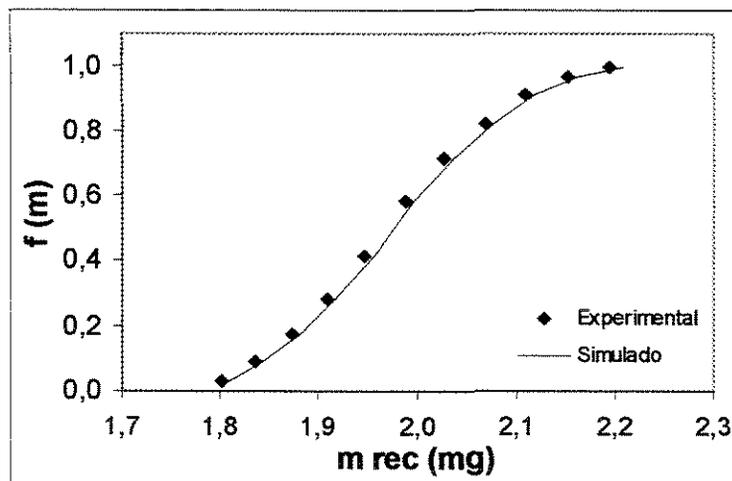


Figura 4.82- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 19 ($W_g=0,0150\text{kg/s}$, $T_g=60\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=172\text{kPa}$, $W_s=7,506\text{g/min}$)

Apresentou uma boa concordância, com desvios entre as massas de recobrimento experimental e simulada variando entre 2 e 5%, os experimentos números 1, 6, 7, 8, 17, 18 e 20. As Figuras 4.83, 4.85, 4.87, 4.89, 4.91, 4.93 e 4.95 mostram a comparação entre os dados experimentais e simulados para a massa de recobrimento em função da massa inicial das partículas. As Figuras 4.84, 4.86, 4.88, 4.90, 4.92, 4.94 e 4.96 apresentam a distribuição da massa de recobrimento para dados experimentais e simulados. Em nenhuma dessas corridas foi observado os melhores ajustes entre as eficiências de processo experimental e estimada. Não foi verificado também, o efeito comum de alguma variável de processo.

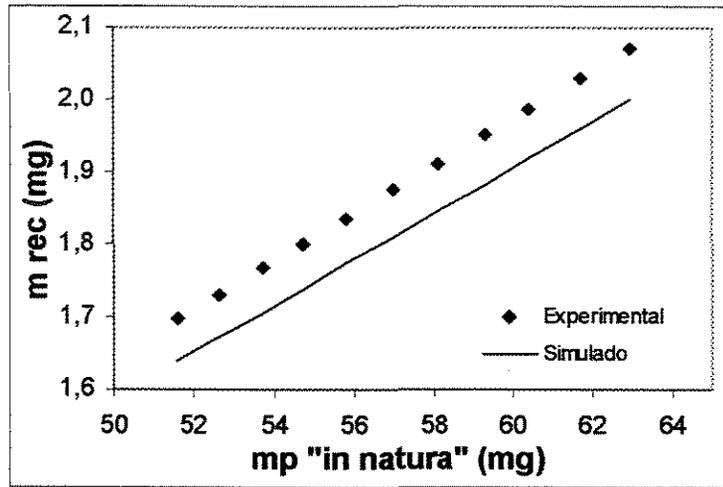


Figura 4.83- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 1 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

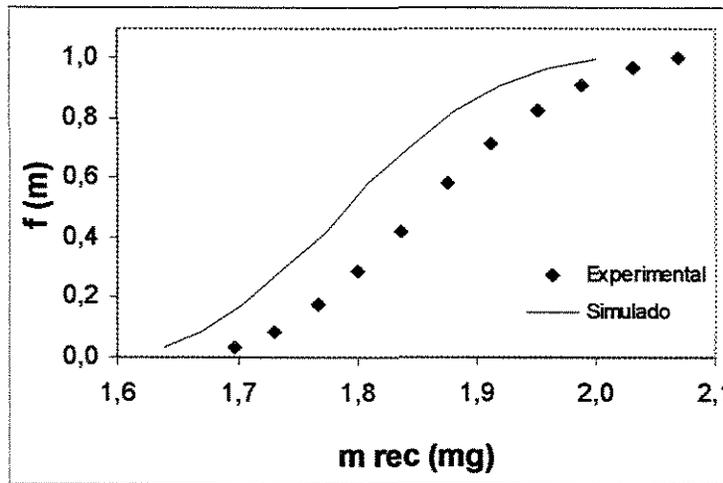


Figura 4.84- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 1 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

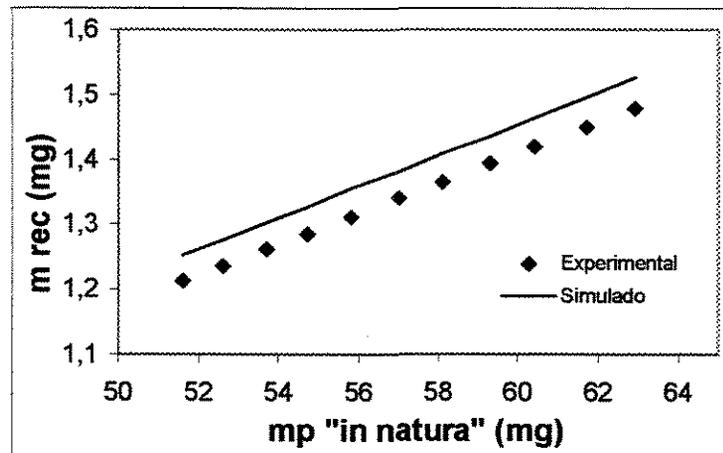


Figura 4.85- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 6 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

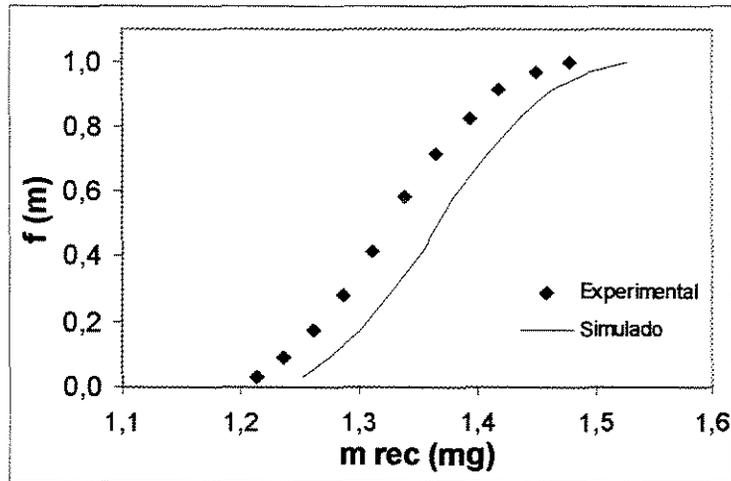


Figura 4.86- experimento Distribuição da massa de recobrimento, experimento 6 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

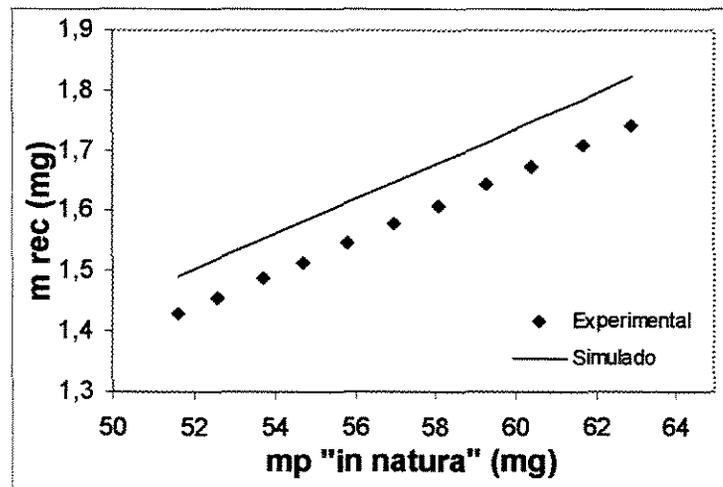


Figura 4.87- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 7 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

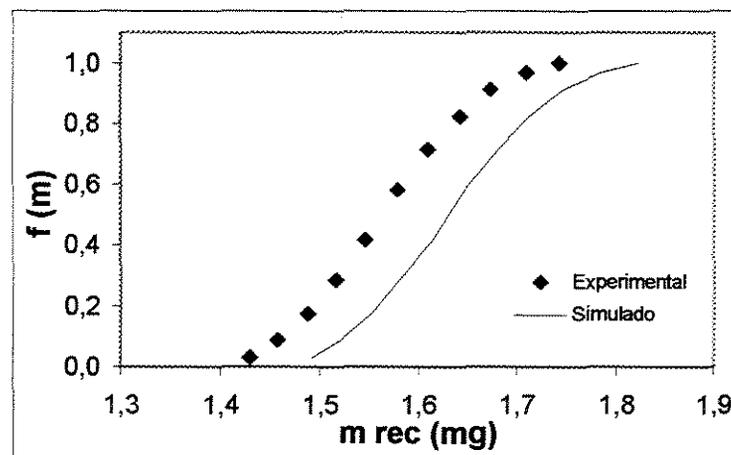


Figura 4.88- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 7 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

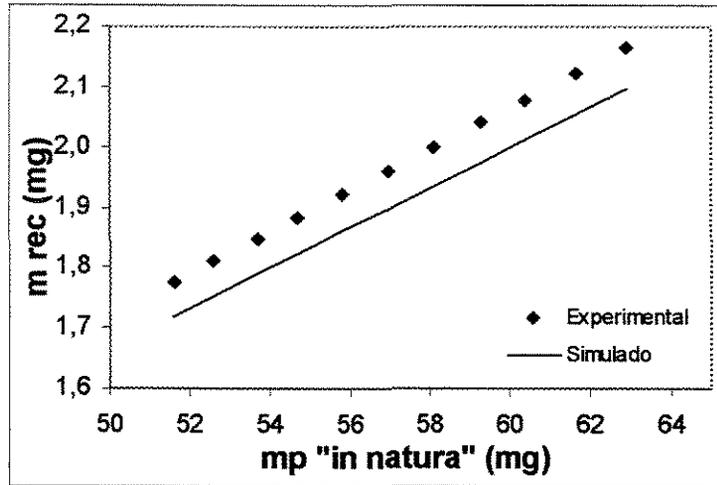


Figura 4.89- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 8 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

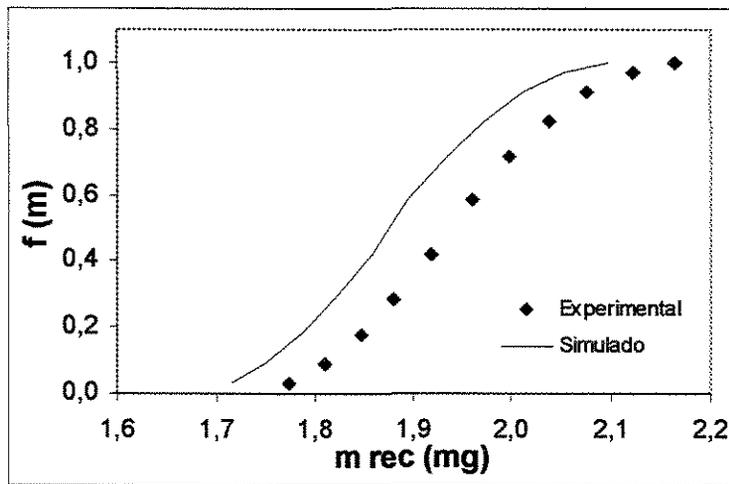


Figura 4.90- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 8 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

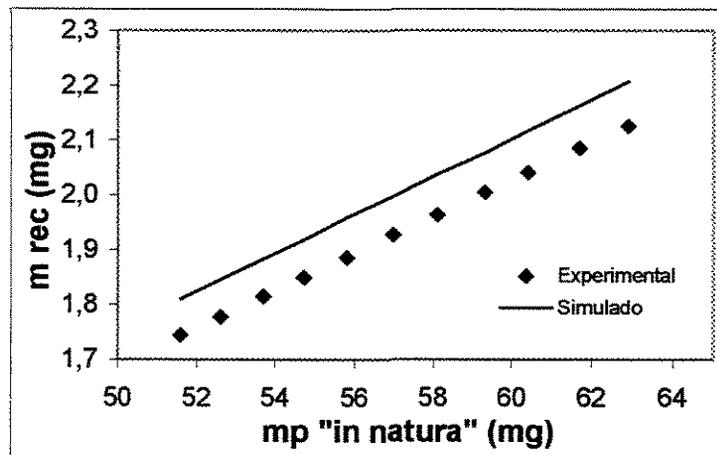


Figura 4.91- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 17 ($W_g=0,0150\text{kg/s}$, $T_g=60\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=172\text{kPa}$, $W_s=7,506\text{g/min}$)

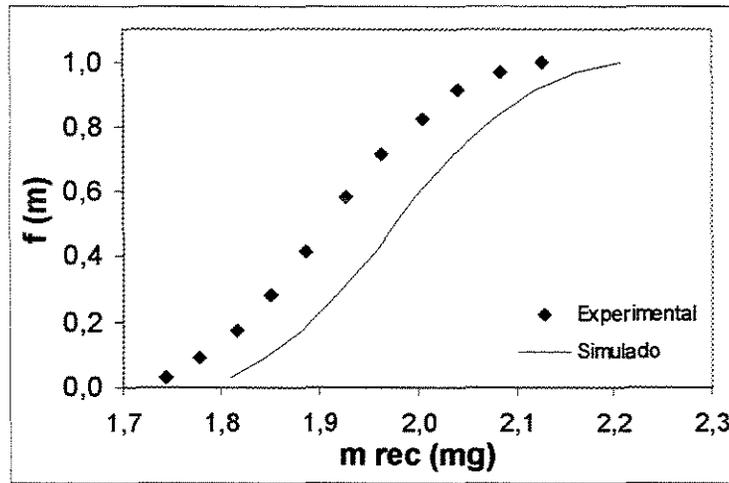


Figura 4.92- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 17 ($W_g=0,0150\text{kg/s}$, $T_g=60\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=172\text{kPa}$, $W_s=7,506\text{g/min}$)

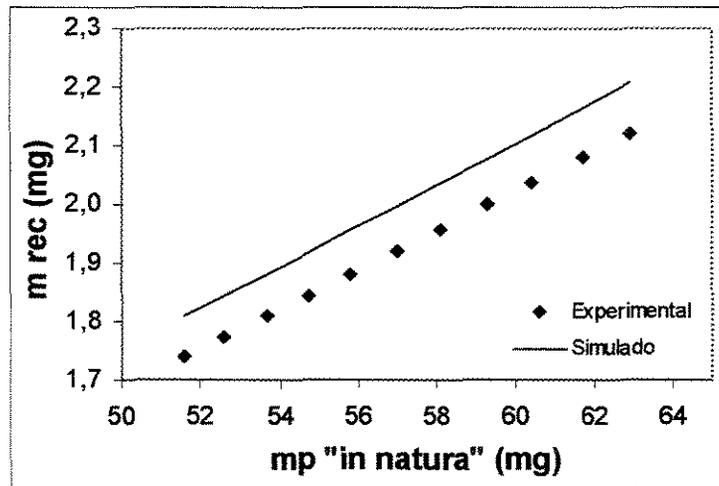


Figura 4.93- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 18 ($W_g=0,0150\text{kg/s}$, $T_g=60\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=172\text{kPa}$, $W_s=7,506\text{g/min}$)

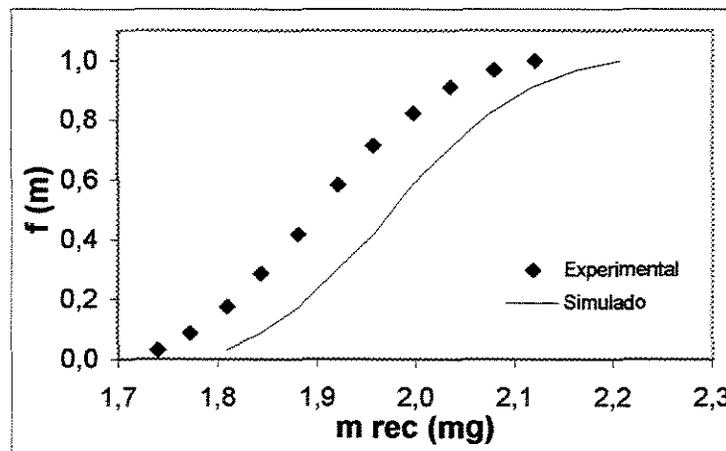


Figura 4.94- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 18 ($W_g=0,0150\text{kg/s}$, $T_g=60\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=172\text{kPa}$, $W_s=7,506\text{g/min}$)

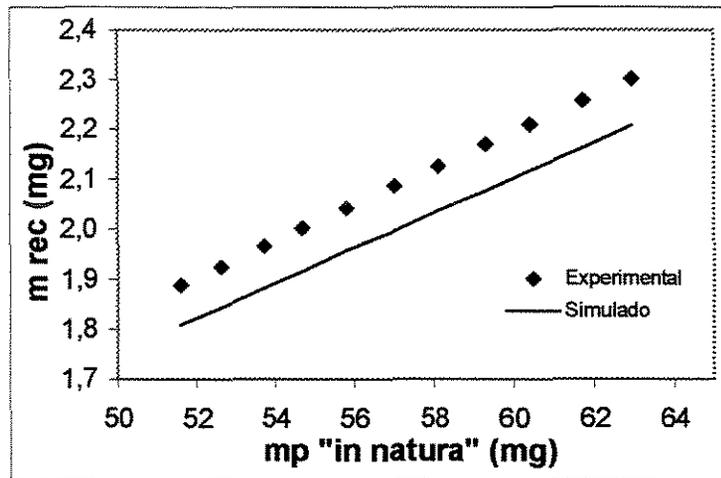


Figura 4.95- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 20 ($W_g=0,0150\text{kg/s}$, $T_g=60^\circ\text{C}$, $P_a=172\text{kPa}$, $W_s=7,506\text{g/min}$)

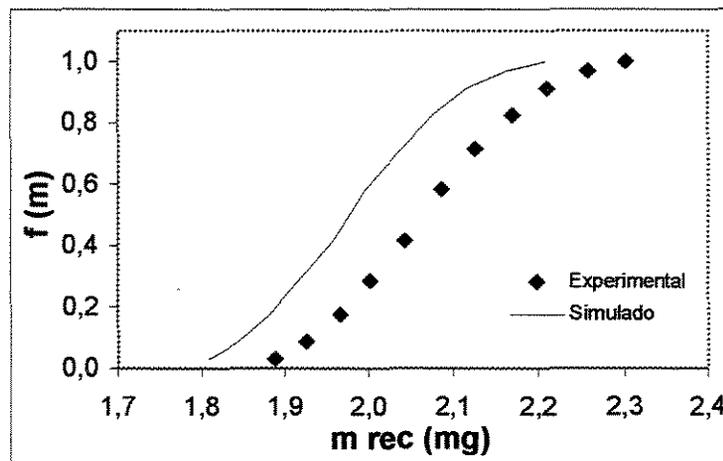


Figura 4.96- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 20 ($W_g=0,0150\text{kg/s}$, $T_g=60^\circ\text{C}$, $P_a=172\text{kPa}$, $W_s=7,506\text{g/min}$)

Pode-se considerar que houve ainda uma concordância satisfatória entre os dados experimentais e simulados nas condições dos experimentos números 2, 3, 4, 9, 14 e 16. Neste caso o desvio médio entre as massas de recobrimento experimentais e simuladas ficou entre 5 e 11%. A comparação entre as massas de recobrimento em função da massa inicial da partícula para dados experimentais e simulados está representada nas Figuras 4.97, 4.99, 4.101, 4.103, 4.105 e 4.107. A distribuição da massa de recobrimento experimental e simulada está representada pelas Figuras 4.98, 4.100, 4.102, 4.104, 4.106 e 4.105. As eficiências de processo experimental e estimada ficaram mais próximas nos experimentos 3, 4 e 16. Nenhuma relação entre as variáveis de processo foi verificada para explicar o ajuste nesses casos.

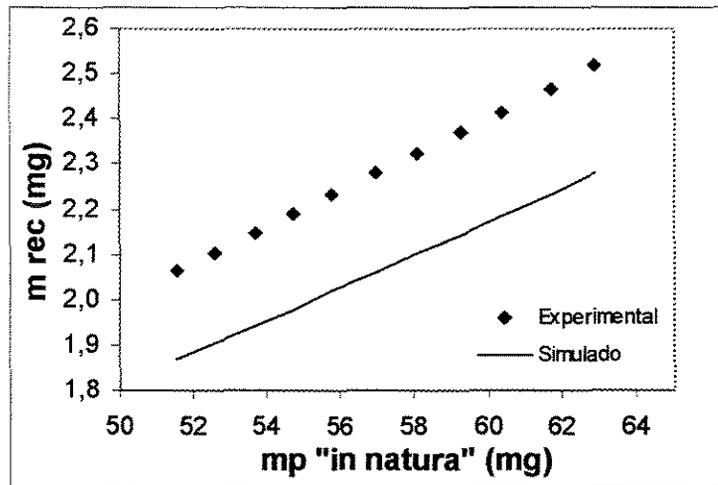


Figura 4.97- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 2 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

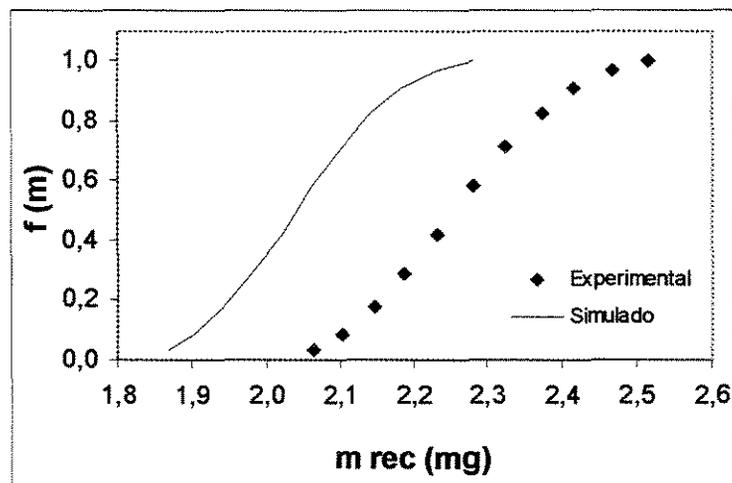


Figura 4.98- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 2 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

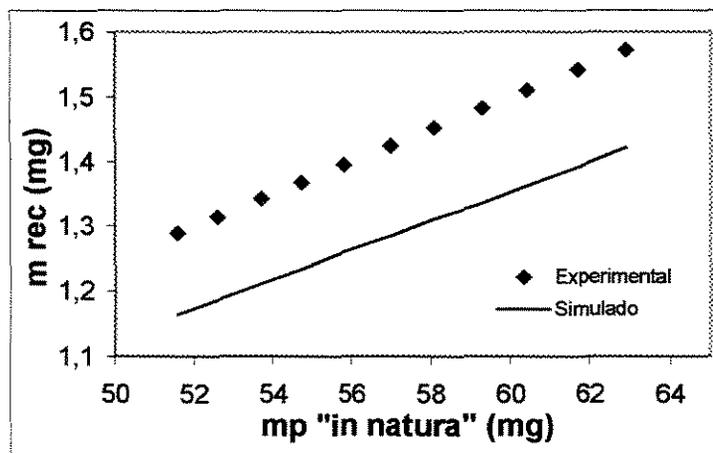


Figura 4.99- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 3 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

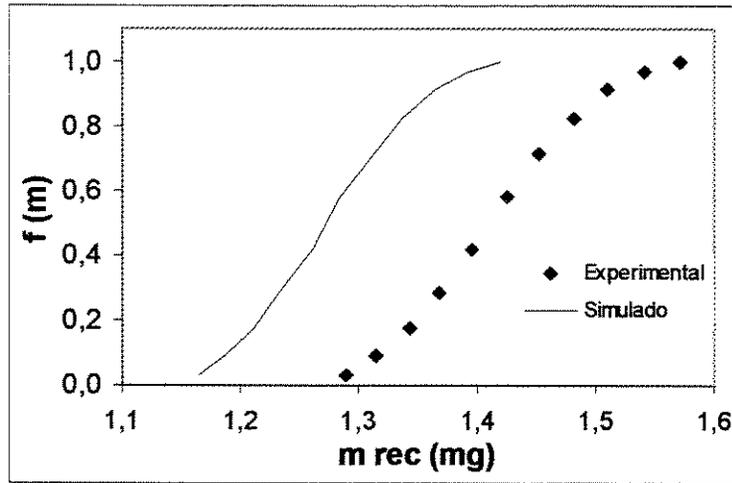


Figura 4.100- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 3 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

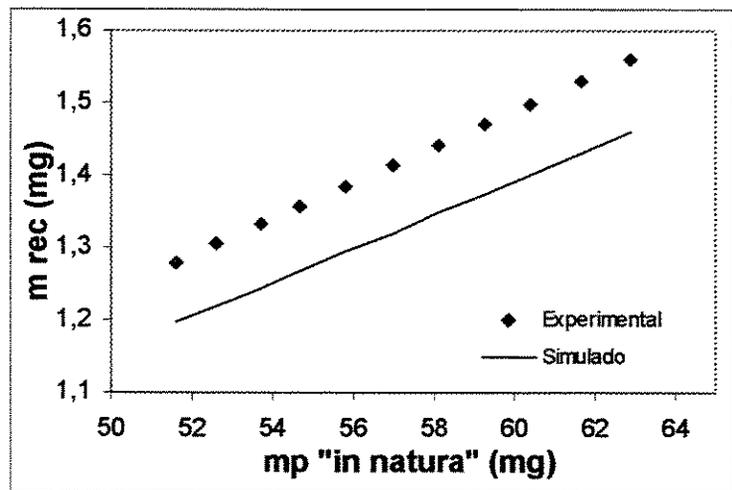


Figura 4.101- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 4 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

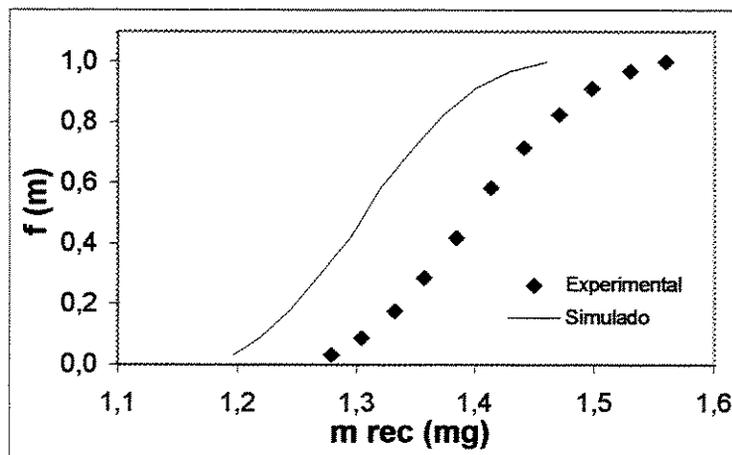


Figura 4.102- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 4 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

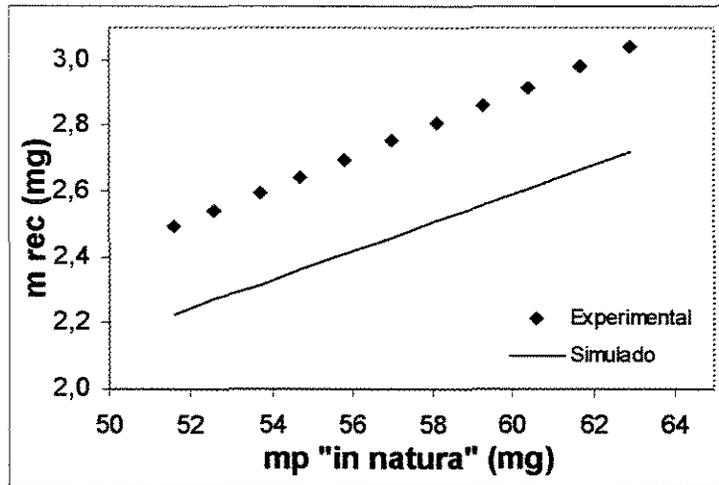


Figura 4.103- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 9 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{/min}$)

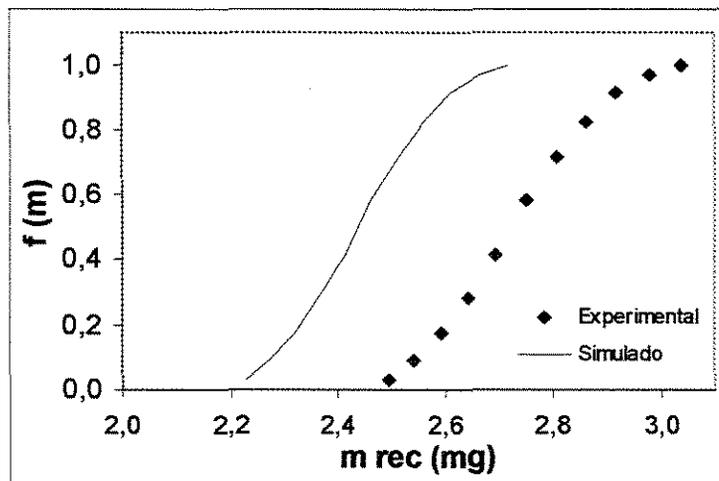


Figura 4.104- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 9 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{/min}$)

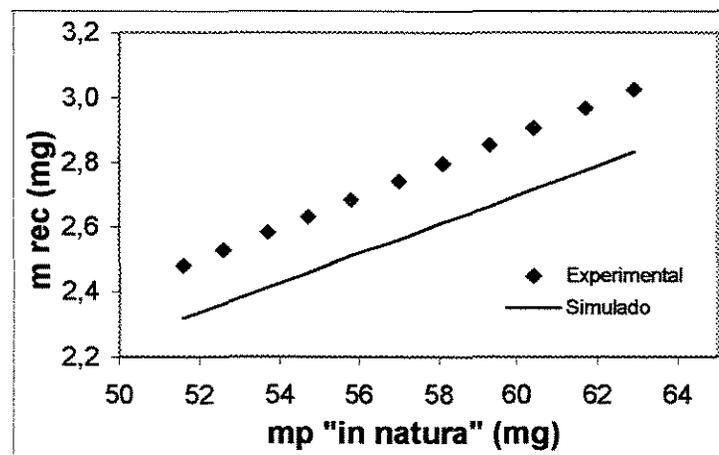


Figura 4.105- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 14 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{/min}$).

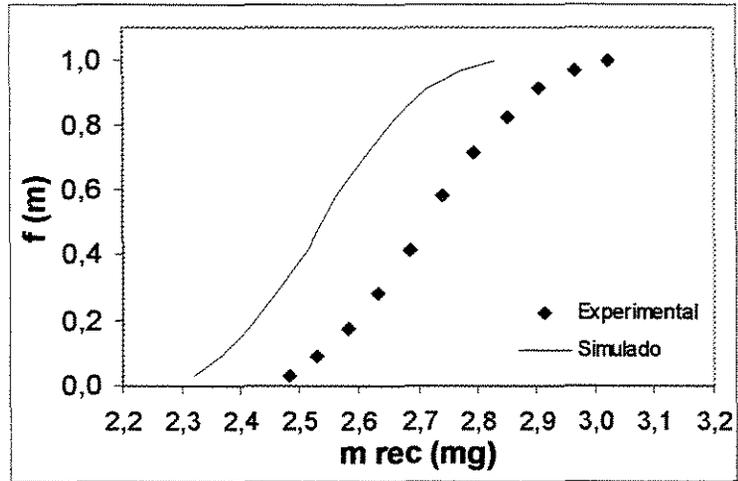


Figura 4.106- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 14 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$).

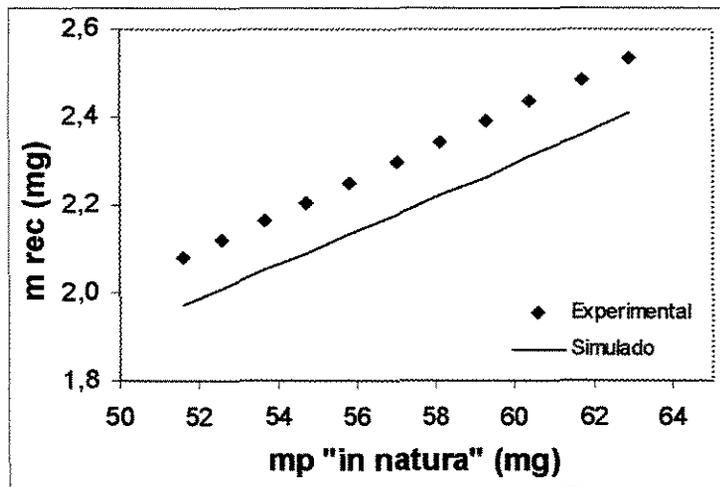


Figura 4.107- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 16 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$).

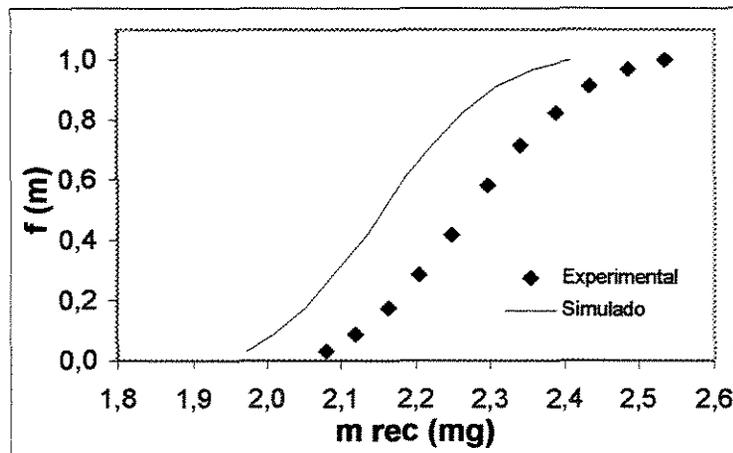


Figura 4.108- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 16 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$).

Para os experimentos de números 5, 12 e 15 não foi possível estabelecer uma concordância satisfatória entre os dados experimentais e simulados, embora ainda esteja dentro de um limite razoável de tolerância considerado. Os desvios médios entre as massas de recobrimento experimental e simulada ficaram entre 13% até o máximo 17%. As Figuras 4.109, 4.111 e 4.113 mostram a comparação entre dados experimentais e simulados para a massa de recobrimento versus massa da partícula "in natura". A distribuição de massa de recobrimento para dados experimentais e simulados estão representadas pelas Figuras 4.110, 4.112 e 4.114. Provavelmente o fator que mais influenciou nesse resultado foi o mau ajuste obtido entre as eficiências de processo experimental e estimada.

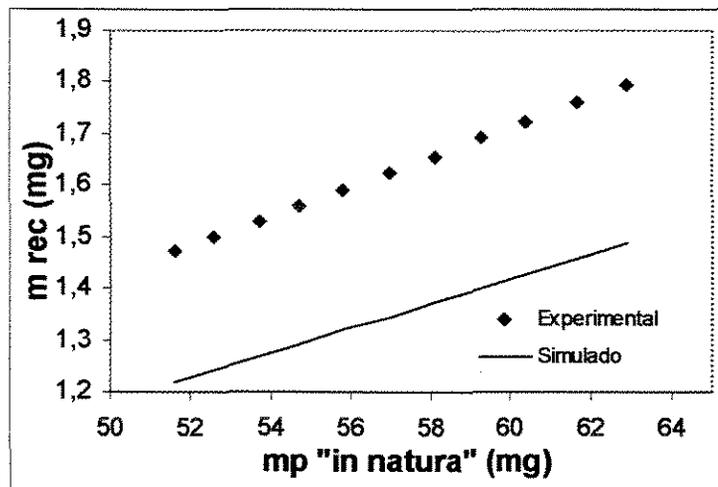


Figura 4.109- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 5 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

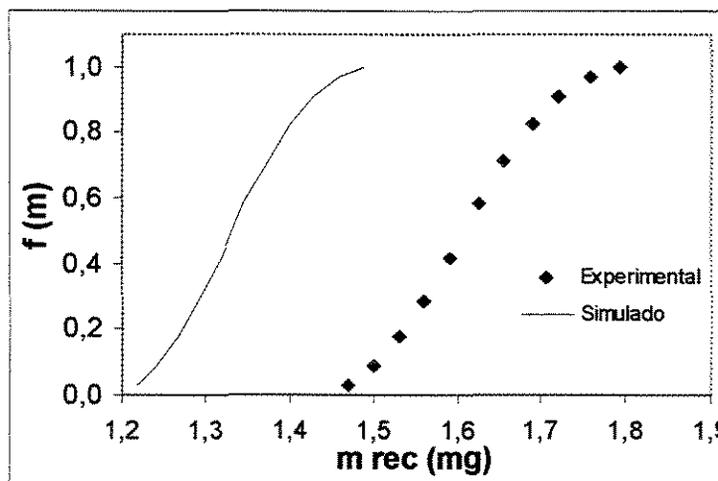


Figura 4.110- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 5 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=50\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=6,462\text{g/min}$)

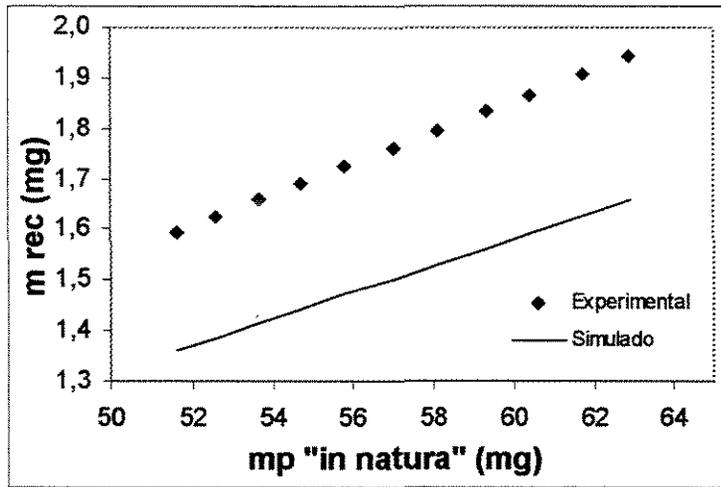


Figura 4.111- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 12 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$)

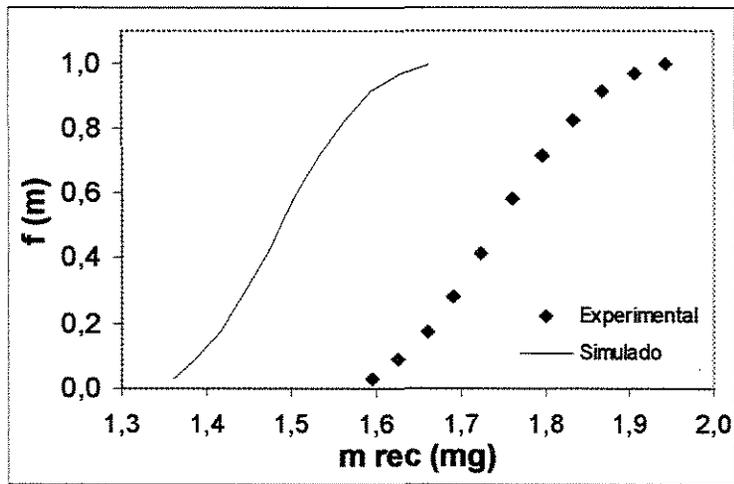


Figura 4.112- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 12 ($W_g=0,0166\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=138\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$)

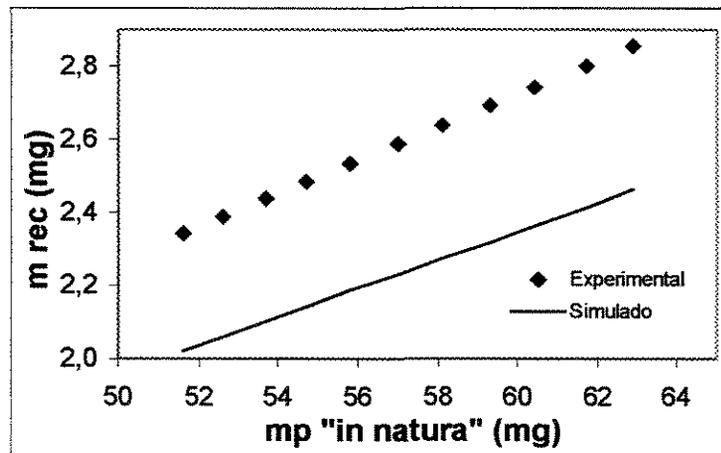


Figura 4.113- Massa de recobrimento em função da massa da partícula, experimento 15 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$)

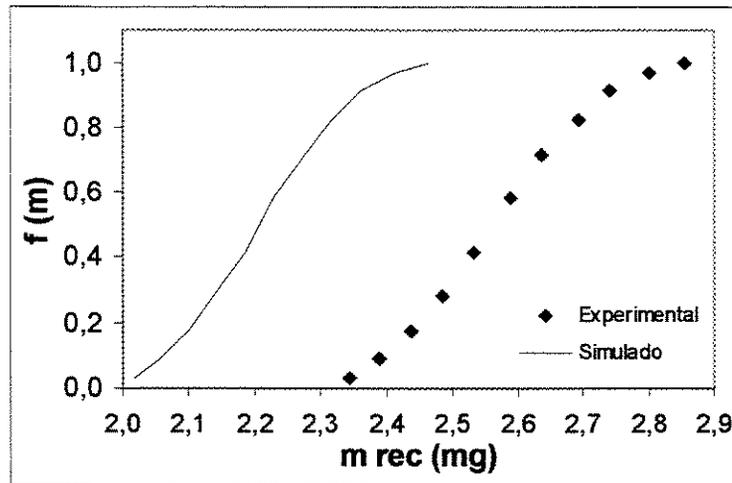


Figura 4.114- Distribuição da massa de recobrimento, experimento 15 ($W_g=0,0133\text{kg/s}$, $T_g=70\text{ }^\circ\text{C}$, $P_a=206\text{kPa}$, $W_s=8,550\text{g/min}$)

A comparação dos resultados obtidos por simulação com os resultados da massa de recobrimento obtidos experimentalmente por DONIDA (2000), apresentou resultados bastante diversos. Em dois casos, como os dos experimentos 10 e 19, a concordância foi praticamente perfeita. Na maioria dos casos os ajustes puderam ser classificados como satisfatórios. Já para o experimento de número 5, o desvio entre os dados experimentais e simulados foi elevado. Verificou-se, também, que na maioria dos casos a massa de recobrimento experimental era maior que a simulada, fato que não ocorreu apenas nos experimentos de números 6, 7, 17 e 18.

Provavelmente, um dos fatores que mais influenciaram nas diferenças de resultados foi a eficiência do processo estimada, uma vez que esta faz parte das equações do modelo. Os valores estimados pela correlação empírica e, conseqüentemente, utilizados na simulação, apresentaram, em alguns casos, desvios mais elevados em relação aos valores experimentais, conforme pode ser verificado na Tabela 4.16. Outro fator, que pode ter contribuído nas diferenças de resultados, foi a distribuição arbitrada das massas iniciais das partículas, devido à falta de uma distribuição real no estudo original de DONIDA (2000).

4.2.4- Simulação do Recobrimento Utilizando Correlação para o Crescimento Relativo

A equação do modelo do balanço populacional para o recobrimento utilizando a correlação para o crescimento relativo das partículas (Equação 3.27), resultando na Equação (3.30) para a taxa de crescimento das partículas, foi utilizada nesta etapa do trabalho.

A referida correlação foi definida para a mesma formulação da suspensão de recobrimento utilizada nos experimentos realizados neste trabalho, embora para um tempo de processo de *30 min* e temperatura do ar de jorro de *60 °C*. Neste trabalho utilizou-se o tempo de *45 min*, carga das partículas de *4,0 kg* e temperatura do ar de *60 °C* e *80 °C*. As variáveis utilizadas na correlação estão demonstradas na Tabela 4.19.

Tabela 4.19- Características da suspensão de recobrimento

C_s (kg/kg)	0,10
W_{ad} (N/m)	0,1117
ρ_s (kg/m ³)	1034
μ_{ap} (kg/m.s)	0,03973
Q_s (m ³ /s)	$1,667 \cdot 10^{-7}$

Os resultados obtidos pela simulação só foram compatíveis com os dados experimentais para as condições dos experimentos números 1, 2, 3 e 4, onde se utilizou uma vazão de suspensão de *10 mL/min* ($1,667 \cdot 10^{-7}$ m³/s). Para os outros valores de vazão, *12 e 14 mL/min*, não foi possível uma concordância de dados. A correlação apresentou uma variação muito pequena e sensivelmente menor para o crescimento relativo quando se utilizaram as vazões maiores, fato explicado pelo expoente negativo dessa variável.

A comparação entre as taxas de crescimento simulada das partículas, em cada um dos 11 intervalos de massa, utilizando a correlação para a eficiência do processo e utilizando a correlação do crescimento relativo das partículas, está demonstrado na Figura 4.115. Verificou-se que as diferenças entre as taxas são pequenas para os intervalos de menor massa das partículas, para o caso dos intervalos de maior massa à medida que as

taxas aumentam, os valores determinados pelo método da correlação da eficiência são sensivelmente maiores que os determinados pela correlação do crescimento relativo.

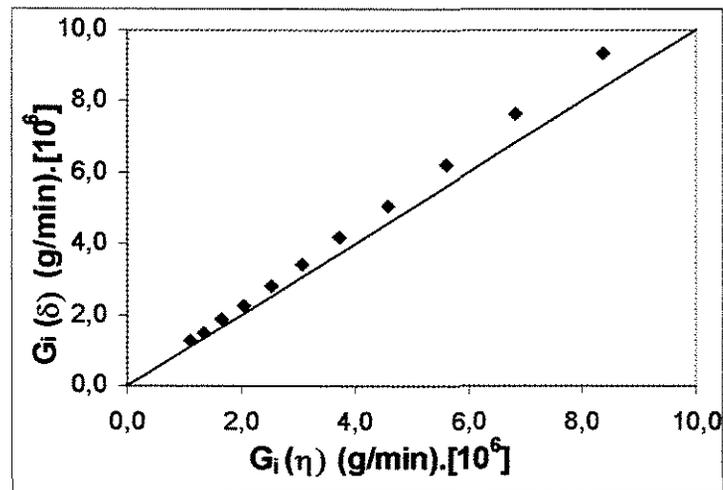


Figura 4.115- Comparação entre as taxas de crescimento.

A massa de recobrimento depositada em função da massa original das partículas, para os experimentos de números 1 a 4 e para a simulação através da correlação empírica, está demonstrada na Figura 4.116. Verificou-se um pequeno desvio entre os valores experimentais e simulados, principalmente para as massas menores. À medida que a massa inicial da partícula aumenta os desvios também aumentam, na maioria dos casos.

Os experimentos de números 1 e 2, que operaram com a temperatura do ar de 60 °C, apresentaram um melhor ajuste que os experimentos 3 e 4, cuja temperatura do ar de jorro foi de 80 °C.

A Figura 4.117 relaciona a função densidade populacional com a massa de recobrimento depositada nas partículas, para valores obtidos da simulação com a correlação e valores obtidos dos experimentos de números 1 a 4. A mesma tendência foi verificada, a concordância foi melhor para os experimentos que trabalham com a menor temperatura do ar.

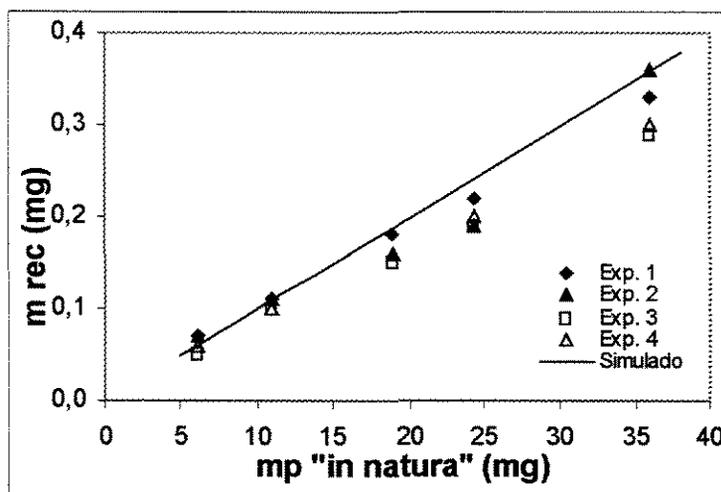


Figura 4.116- Massa de recobrimento em função da massa da partícula

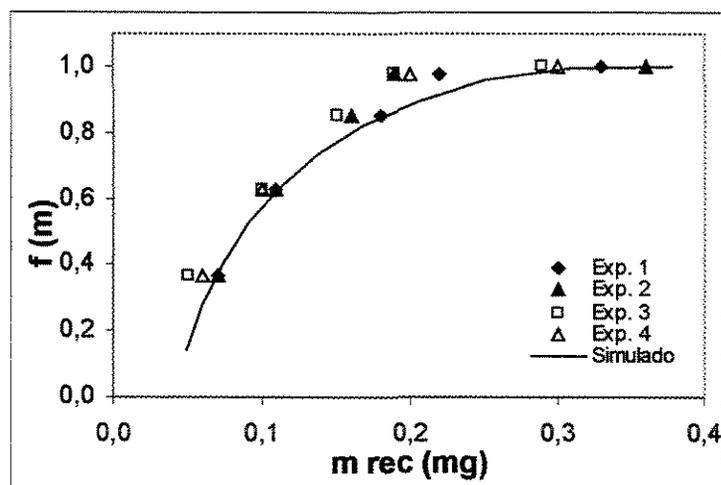


Figura 4.117- Distribuição da massa de recobrimento

O uso da correlação empírica para o crescimento relativo das partículas, desenvolvida por DONIDA et al. (2004), se mostrou bastante útil na simulação da taxa de crescimento e da massa de recobrimento depositada na partícula. Os resultados da simulação apresentaram uma concordância satisfatória com pequeno desvio se comparados com os resultados experimentais.

A limitação de uso da referida correlação está relacionada com variáveis como o tempo de processo, temperatura do ar e, principalmente, a vazão da suspensão de recobrimento. Apesar da correlação ter sido desenvolvida para um tempo de processo de 30

min, a resolução das equações diferenciais do balanço populacional utilizando o tempo de processo de *45 min* apresentou resultados satisfatórios. A temperatura do ar é uma variável que influi na massa de recobrimento depositada, o fato desta não ser prevista na correlação é um dos fatores que gera desvio na concordância dos dados. Com relação à vazão da suspensão de recobrimento, sua variação é insignificante na estimativa do crescimento relativo das partículas pela correlação, entretanto na prática sua influência é significativa.

O uso de correlação empírica para determinar a eficiência fica muito restrito ao processo, sendo que em cada caso é necessário desenvolver uma correlação diferente. Entretanto, uma correlação empírica desenvolvida em função da adesão suspensão-partícula, como a de DONIDA et al. (2004), pode ser utilizada em diversos processos que utilize a mesma suspensão e partículas do mesmo material. Assim, com o modelo do balanço populacional, pode-se simular diversas situações de recobrimento sem a necessidade da realização de um número excessivo de experimentos.

4.2.5- Comparação dos Resultados da Literatura e deste Trabalho

A técnica do balanço populacional também proporcionou bons resultados em outros trabalhos da literatura sobre recobrimento de partículas. Pode-se citar os trabalhos desenvolvidos por LIU e LITSTER (1993b) e por DUARTE et al. (2004) onde os resultados experimentais foram comparados com os resultados simulados em processos de recobrimento por batelada em leito de jorro cone-cilíndrico. LIU e LITSTER (1993b) utilizaram três tipos de sementes recobertas com suspensão aquosa de metil celulose e o fertilizante fosfato de cálcio; DUARTE et al. (2004) utilizaram sementes de soja recobertas com micronutrientes e inoculante, enquanto no presente trabalho foram utilizadas esferas de vidro polidispersas recobertas com suspensão aquosa de hidroxietilcelulose. Os efeitos das variáveis vazão do ar de jorro e fluxo da suspensão de recobrimento foram avaliados por LIU e LITSTER (1993b). DUARTE et al. (2004) estudaram os efeitos das vazões do ar de jorro, ar de atomização e suspensão de recobrimento. Neste trabalho as variáveis analisadas foram pressão do ar de atomização, temperatura do ar e vazão da suspensão de recobrimento. O bico atomizador foi colocado na base do leito por LIU e LITSTER

(1993b) e acima da fonte no trabalho de DUARTE et al. (2004) e neste trabalho. A razão entre as massas das partículas, conforme Equação (3.25), foi de $2^{1/3}$ para o trabalho de LIU e LITSTER (1993b) e de 1,225 neste trabalho. LIU e LITSTER utilizaram os expoentes 1 e 2/3 para a massa na expressão da taxa, neste trabalho acrescentou-se também o expoente 0,8 e DUARTE et al. trabalharam apenas com o expoente unitário. No numerador da expressão da taxa de crescimento (Equação 3.26) foi colocada a diferença entre a taxa de material de recobrimento seco e taxa média de elutriação, não necessitando portanto da eficiência do processo (LIU E LITSTER, 1993b); no estudo de DUARTE et al. (2004) e neste trabalho foi utilizada na equação a eficiência do processo e desenvolvida uma correlação empírica para estimar essa eficiência. O modelo, relacionado com a dependência de tamanho no crescimento da partícula, desenvolvido por LIU e LITSTER (1993b), apresentou boa concordância com os resultados experimentais para todo o conjunto de dados, entretanto, houve maior desvio para as sementes grandes. No estudo de DUARTE et al. (2004) a comparação dos resultados experimentais com os resultados simulados apresentou boa concordância, o desvio médio obtido foi de 0,35% para a massa das sementes recobertas e de 16,1% para a massa de recobrimento depositada. Neste trabalho, o desvio máximo obtido entre os dados experimentais e simulados para a massa de recobrimento depositada nas partículas foi de 8%. No presente estudo foi utilizada uma inovação, a inclusão da correlação do crescimento relativo em função da adesão suspensão-partícula (DONIDA et al., 2004) na equação da taxa de crescimento, em substituição à correlação da eficiência.

5 – CONCLUSÕES E SUGESTÕES

5.1- Conclusões

A análise fluidodinâmica do leito de partículas mostrou que os gráficos de vazão de ar versus queda de pressão obtidos com partículas polidispersas apresentaram um comportamento diferente do caso de partículas de tamanho único. Verificou-se nesses gráficos a tendência de formação de um platô, antes que o jorro se estabeleça, e a formação de vários picos de queda de pressão. Observou-se também, nos experimentos, uma circulação de partículas no leito antes do estabelecimento do jorro.

A comparação dos resultados experimentais com os resultados obtidos por correlações, utilizando o diâmetro médio de Sauter, mostrou que as correlações utilizadas tanto para a queda de pressão de jorro estável quanto para a queda de pressão máxima não tiveram o mesmo desempenho para todas as cargas. Os valores preditos pelas correlações testadas apresentaram desvios bastante diferentes para cada carga. Para a velocidade de mínimo jorro, a equação de Mathur e Gishler (1955) apresentou as melhores estimativas, com desvios pequenos para todas as cargas. As correlações empíricas utilizadas foram escolhidas dentro das condições do processo. Entretanto, a maioria apresentou desvios elevados entre os valores estimados e experimentais, indicando a necessidade do desenvolvimento de novas correlações para determinação de parâmetros fluidodinâmicos em lotes de partículas polidispersas em leito de jorro.

O recobrimento de esferas de vidro polidispersas, com a formulação utilizada para a suspensão polimérica em leito de jorro, mostrou ser um processo eficiente, seja pela qualidade do filme depositado na partícula como pela não formação de aglomerados. A suspensão de recobrimento, do tipo pseudoplástico com baixo ângulo de contato com a superfície do vidro, permitiu uma boa aderência no processo de recobrimento, evitando que o filme se soltasse das partículas.

As variáveis temperatura do ar e vazão da suspensão foram significativas na determinação da eficiência do processo. O ajuste obtido pela correlação empírica para a

eficiência apresentou coeficiente de correlação 0,8691 e erro padrão de 0,0350. O teste da distribuição “F”, ao nível de 95% de confiança, apresentou um valor obtido de 3,56 vezes o valor tabelado, o que confirmou que o modelo é satisfatório.

Verificou-se, também, uma maior deposição de massa de recobrimento nas partículas maiores, porém, as partículas de menor tamanho apresentaram um crescimento relativo maior, provavelmente por terem uma maior taxa de circulação no leito de jorro.

A técnica do balanço populacional se mostrou bastante útil na modelagem matemática do processo. Os valores simulados para a taxa média de crescimento das partículas apresentaram pequeno desvio em relação aos valores experimentais. Através deste modelo, foi possível prever a massa de recobrimento depositada na partícula com desvio médio para a taxa de crescimento que, em condições extremas atingiu 8% .

Não foi possível determinar qual dos expoentes da massa utilizados na expressão da taxa de crescimento forneceu melhor concordância com os dados experimentais. Dependendo das variáveis de processo e da massa da partícula “in natura”, conseguiu-se melhores concordâncias ora para o expoente unitário ora para os expoentes fracionários $2/3$ ou $0,8$.

Uma análise de sensibilidade paramétrica com as variáveis vazão de suspensão, tempo de processo e concentração da suspensão, mostrou uma tendência de aumento no valor simulado da massa de recobrimento depositada, quando se aumentam os valores de qualquer uma dessas variáveis. Verificou-se, também, uma maior massa de recobrimento depositada para partículas com maior massa original. Entretanto, para uma mesma densidade populacional, apresentou maior massa de recobrimento depositada os resultados obtidos com variáveis de maior valor. Todas as tendências verificadas na análise paramétrica estão de acordo com o esperado pela teoria, demonstrando que o modelo responde satisfatoriamente às variações analisadas.

A comparação dos dados experimentais, obtidos no trabalho desenvolvido por DONIDA (2000), com dados obtidos por simulação através do método do balanço populacional apresentou resultados satisfatórios nas diversas condições operacionais. Na maioria dos experimentos, os desvios foram mínimos ao se comparar os dados experimentais com aqueles obtidos por simulação, entretanto, em alguns casos os desvios foram maiores, chegando no máximo a 17%.

A correlação empírica para o crescimento relativo das partículas, desenvolvida por DONIDA et al. (2004), foi utilizada na equação da taxa de crescimento das partículas para simular os resultados do recobrimento, modificando-se a técnica original. Os dados obtidos pela simulação apresentaram pequeno desvio somente com os dados experimentais obtidos com a menor vazão da suspensão de recobrimento (10 mL/min). Nos demais casos, não foi possível conseguir uma concordância razoável, usando a citada correlação.

5.2- Sugestões para Trabalhos Futuros

A análise da fluidodinâmica do leite, com partículas polidispersas, poderá ser feita com outras variedades de tipos e tamanhos de partículas, com a conseqüente obtenção de correlações empíricas para a queda de pressão de jorro estável, queda de pressão máxima e velocidade de jorro mínimo para partículas polidispersas.

Para uma melhor validação do modelo do balanço populacional para recobrimento de partículas, outros dados experimentais poderiam ser utilizados. Neste caso, usar-se-iam outros tipos e tamanhos de partículas, outros tipos de suspensões para recobrimento, em leite de jorro ou leite fluidizado. Uma correlação empírica para a eficiência do processo poderá ser desenvolvida para abranger um maior número possível de casos de recobrimento, ao invés de ser restrita a um único processo.

A correlação para o crescimento relativo das partículas, desenvolvida por DONIDA et al. (2004), poderia ser modificada para atender uma faixa experimental mais ampla. A incorporação da temperatura do ar de jorro e do tempo de processo poderia tornar a correlação mais abrangente. Com relação à vazão da suspensão de recobrimento, esta deveria ter uma significância maior no crescimento da partícula.

As diferenças de comportamento das partículas, causada pela segregação no leite, poderiam ser estudadas através da análise das diferenças na taxa de circulação para partículas de tamanhos diferentes.

A utilização de um software onde fosse possível, durante a resolução das equações do modelo, acompanhar a variação do número de partículas com o tempo.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ABDELRAZEK, I. D.. An analysis of thermo-chemical deposition in spouted beds, Ph.D. thesis, Univ. of Tennessee, Knoxville, 1969.
- ABE, E., YAMADA, N., HIROSUE, H., NAKAMURA, H.. Coating mass distributions of seed particles in a tumbling fluidized bed. *Powder Technology*, v. 97, p. 85-90, 1998.
- ADEODATO, MELISSA GURGEL. *Análise da fluidodinâmica de leito de jorro durante o recobrimento de partículas*. Campinas: Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, 2003. Dissertação (Mestrado).
- ALMEIDA, CELINA. *Recobrimento de sementes de brócolis em leito de jorro e leito fluidizado*. Campinas: Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, 2002. 162 p. Tese (Doutorado).
- ATAÍDE, CARLOS HENRIQUE. *Estudo do recobrimento de comprimidos em leitos de jorro e jorro fluidizado*. Campinas: Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, 1996. 188 p. Tese (Doutorado), no prelo.
- AYUB, GAMEL E. S., *Desenvolvimento de processo de recobrimento de uréia como enxofre utilizando leito de jorro bidimensional*. Campinas: Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, 1997. 173 p. Tese (Doutorado).
- BRUNS, R.E., BARROS NETO, B., SCARMINIO, I.S., Planejamento e otimização de experimentos, Editora da Unicamp, Campinas, 1996, 299 p.
- CHOI, M. E.; MEISEN, A. "Hydrodynamics of shallow, conical spouted beds", *Canadian Journal of Chemical Engineering*. v. 70, n.5, p. 916-924, 1992.

- CHOI, M. M. S., MEISEN, A. Sulfur coating of urea in shallow spouted beds. *Chemical Engineering Science*, v. 52, n. 7, p. 1073-1086, 1997.
- CUNHA, ROBERTO L.G., *Caracterização fluidodinâmica no recobrimento de celulose microcristalina em leito fluidizado*, Campinas: Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, 2004. 102 p. Dissertação (Mestrado).
- DONIDA, MARTA WILK. *Recobrimento polimérico de uréia em leito de jorro bidimensional*. Campinas: Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas. 2000, 101 p. Dissertação (Mestrado).
- DONIDA, M.W., ROCHA, S.C.S.. Coating of urea with an aqueous polymeric suspension in a two-dimensional spouted bed. *Drying Technology*, v. 20, n. 3, p. 685-704, 2002.
- DONIDA, M.W., ROCHA, S.C.S, BARTHOLOMEU, F.. Influence of aqueous polymeric coating suspension characteristics on the particle coating in a spouted bed. *Proceedings of the XIV International Drying Symposium*, 2004, p. 217-224.
- DONIDA, MARTA WILK. *Análise das influências das características do sólido e da suspensão no processo de recobrimento e leito de jorro*. Campinas: Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, 2004. 133 p. Tese (Doutorado).
- DUARTE, C.R., NETO, J.L.V., LISBOA, M.H., SANTANA, R.C., BARROZO, M.A.S., MURATA, V.V.. Experimental study and simulation of mass distribution of the covering layer of soybean seeds coated in a spouted bed. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*. v. 21, n. 1, p. 59-67, 2004.
- FREIRE, J. T., OLIVEIRA, W. P., Aspectos tecnológicos dos processos de recobrimento de partículas, em FREIRE, J.T., SARTORI, D.J.M. *Tópicos Especiais em Secagem*, São Carlos: UFSC, p. 253-293, 1992.

- GUIGNON, B., DUQUENOY, A., DUMOULIN, E.. Modelling of coating of solid particles in a fluid bed process. *Proceedings of the XII International Drying Symposium*, 2000, p. 46.
- HEINRICH, S., PEGLOW, M., HENNEBERG, M., DRECHSLER, J., MÖRL, L.. Fluidized bed spray granulation: analysis of dynamic particle populations and heat and mass transfers. *Proceedings of the XIV International Drying Symposium*, 2004, p. 121-128.
- HIMMELBLAU, D. M., BISCHOFF, K. B.. *Análisis y simulación de procesos*, Barcelona: Editorial Reverté, 1976, 757 p.
- HOUNSLOW, M.J., RYALL, R.L., MARSHALL, V.R.. A discretized population balance for nucleation, growth and aggregation. *AIChE Journal*, v. 34 (11), p. 1821-1832, 1988.
- HULBURT, H. M., KATZ, S.. Some problems in particle technology. *Chemical Engineering Science*, v. 19, p. 555-574, 1964.
- ILEY, W.J.. Effect of particle size and porosity on particle film coatings. *Powder Technology*, v. 65, p. 441-445, 1991.
- KAGE, H., TAKAHASHI, T., YOSHIDA, T., OGURA, H., MATSUNO, Y.. Coating efficiency of seed particles in a fluidized bed by atomization of a powder suspension. *Powder Technology*, v. 86, p. 243-250, 1996.
- KMIEĆ, A., AL JABARIN, N.. Hydrodynamics, heat and mass transfer during coating of rings in a spouted bed. *Proceedings of the XII International Drying Symposium*, 2000, p. 19.
- KUCHARSKI, J., KMIEĆ, A.. Hydrodynamics, heat and mass transfer during coating of tablets in a spouted bed. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, v. 61, n. 3, p. 435-439, 1983.

- KUCHARSKI, J., KMIEĆ, A. Analysis of simultaneous drying and coating of tablets in a spouted bed. *Proceedings of the V International Drying Symposium*, 1986, p. 2 204-217.
- KUCHARSKI, J., KMIEĆ, A. Kinetics of granulation process during coating of tablets in a spouted bed. *Chemical Engineering Science*, v. 44, n. 8, p. 1627-1636, 1989.
- LIU, L. X., LITSTER, J. D.. Spouted bed seed coating: the effect of process variables on maximum coating rate and elutriation. *Powder Technology*, v. 74, p. 215-230, 1993a.
- LIU, L. X., LITSTER, J. D.. Coating mass distribution from a spouted bed seed coater: experimental and modelling studies. *Powder Technology*, v. 74, p. 259-270, 1993b.
- MARONGA, S. J., WNUKOWSKI, P.. Modelling of the three-domain fluidized-bed particulate coating process. *Chemical Engineering Science*, v. 52, n. 17, p. 2915-2925, 1997.
- MASSARANI, G.. Secagem de produtos agrícolas, Rio de Janeiro: Edgard Bücher, 1987.
- MATHUR, K.B., EPSTEIN, N.. Spouted Beds, New York: Academic Press, 1974, 304 p.
- NAKAMURA, H., ABE, E., YAMADA, N.. Coating mass distributions of seed particles in a tumbling fluidized bed coater, Part II: A Monte Carlo simulation of particle coating. *Powder Technology*, v. 99, p. 140-146, 1998.
- OGINO, F., ZHANG, L., MAEHASHI, Y.. Minimum rate of spouting and peak pressure drop in a spouted bed, *International Chemical Engineering Japan*, v. 33 (2), p. 265-272, 1993.
- OLIVEIRA, W. P., FREIRE, J. T., COURY, J. R.. Analysis of particle coating by spouted bed process. *International Journal of Pharmaceutics*, v. 158, p. 1-9, 1997.

- OWER, E., PANKHURST, R.C.. The Measurement of air flow. *Pergamon Press*, p. 148-183, 1977.
- PALLAI, I., NEMETH, J.. Analysis of flow forms in a spouted bed apparatus by the so-called phase diagram, *International C. of Chemical Engineering*, v.3, 1969.
- PEÇANHA, R.P., MASSARANI, G.. Característica e forma de partículas, *Anais do XIV Encontro sobre Escoamento em Meios Porosos*, p. 302 – 312, 1986.
- QUEIROZ FILHO, A. V.. *Análise do recobrimento de comprimidos em leito de jorro bidimensional para três posições de atomização de suspensão*. Campinas: Faculdade de Engenharia Química, Universidade Estadual de Campinas, 1997. 107 p. Dissertação (Mestrado).
- RANDOLPH, A. D., LARSON, M. A. *Theory of particulate processes*. New York: Academic Press, 1971, 251 p.
- SAN JOSE, M. J., OLAZAR, M., AGUADO, R. E., BILBAO, J.. Influence of the conical section geometry on the hydrodynamics of shallow spouted beds. *Chemical Engineering Journal*, v.62 (2), p. 113-120, 1995.
- 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 (2), p. 325-333, 2004.
- SUDSAKORN, K., TURTON, R. Nonuniformity of particle coating on a size distribution of particles in a fluidized bed coater. *Powder Technology*, v. 110, p. 37-43, 2000.
- UEMAKI, O., YAMADA, R., KUGO, M.. Particle segregation in a spouted bed of binary mixtures. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, v. 61, p. 303-307, 1983.

VIEIRA, M.G.A., ROCHA, S.C.S.. Influence of the liquid saturation degree on the fluid dynamics of a spouted bed coater. *Chemical Engineering and Processing*, v. 43, p. 1275-1280, 2004.

VIEIRA, M.G.A., DONIDA, M.W., ROCHA, S.C.S, Adhesion of a polymeric suspension to inert particles in a spouted bed. *Drying Technology*, v. 22, n. 5, p. 1069-1085, 2004.

WNUKOWSKI, P., SETTERWALL, F.. The coating of particles in a fluidized bed (residence time distribution in a system of two coupled perfect mixers). *Chemical Engineering Science*, v. 44, n. 3, p. 493-505, 1989.

ANEXO 1

"Programa para a simulação do recobrimento de sólidos"

Experimento n. 1, Pa=20 psig, Tg=60oC, Qs=10 mL/min, Cs= 0.1 g/g, ds=1.0340 g/mL, ef=88.56%,
G=k.m^d, d=1.

>dsys:=

$$\text{diff}(N[1](t), t) = (a \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[0]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[0](t) + b \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[1]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[1](t) + c \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[2]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[2](t) / m[1],$$

$$\text{diff}(N[2](t), t) = (a \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[1]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[1](t) + b \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[2]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[2](t) + c \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[3]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[3](t) / m[2],$$

$$\text{diff}(N[3](t), t) = (a \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[2]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[2](t) + b \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[3]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[3](t) + c \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[4]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[4](t) / m[3],$$

$$\text{diff}(N[4](t), t) = (a \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[3]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[3](t) + b \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[4]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[4](t) + c \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[5]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[5](t) / m[4],$$

$$\text{diff}(N[5](t), t) = (a \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[4]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[4](t) + b \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[5]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[5](t) + c \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[6]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[6](t) / m[5],$$

$$\text{diff}(N[6](t), t) = (a \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[5]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[5](t) + b \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[6]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[j]^d)), j=1..11) \cdot N[6](t) + c \cdot ef \cdot cs \cdot qs \cdot ds \cdot (mm[7]^d) / \sum(N[j](t) \cdot (mm[$$

```

j]^d),j=1..11)*N[7](t))/m[6],
diff(N[7](t),t)=(a*ef*cs*qs*ds*(mm[6]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[6](t)+b*ef*cs*qs*ds*(mm[7]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[7](t)+c*ef*cs*qs*ds*(mm[8]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[8](t))/m[7],
diff(N[8](t),t)=(a*ef*cs*qs*ds*(mm[7]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[7](t)+b*ef*cs*qs*ds*(mm[8]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[8](t)+c*ef*cs*qs*ds*(mm[9]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[9](t))/m[8],
diff(N[9](t),t)=(a*ef*cs*qs*ds*(mm[8]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[8](t)+b*ef*cs*qs*ds*(mm[9]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[9](t)+c*ef*cs*qs*ds*(mm[10]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[10](t))/m[9],
diff(N[10](t),t)=(a*ef*cs*qs*ds*(mm[9]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[9](t)+b*ef*cs*qs*ds*(mm[10]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[10](t)+c*ef*cs*qs*ds*(mm[11]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[11](t))/m[10],
diff(N[11](t),t)=(a*ef*cs*qs*ds*(mm[10]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[10](t)+b*ef*cs*qs*ds*(mm[11]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[11](t)+c*ef*cs*qs*ds*(mm[12]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)*N[12](t))/m[11],N[1](0)=43342,N[2](0)=41214,
N[3](0)=38794, N[4](0)=36084, N[5](0)=33102,
N[6](0)=29873, N[7](0)=26403, N[8](0)=22602, N[9](0)=18111,
N[10](0)=11916, N[11](0)=1559);

> dsyst:= subs ({ef=0.8856, cs=0.1, qs=10, ds=1.0340,
a=2.1995, b=0.8989, c=-2.1995, d=1, m[1]=0.0050, m[2]=0.0061,
m[3]=0.0075, m[4]=0.0092, m[5]=0.0113, m[6]=0.0138,
m[7]=0.0169, m[8]=0.0207, m[9]=0.0254, m[10]=0.0311,
m[11]=0.0380, mm[0]=0, mm[1]=0.0056, mm[2]=0.0068,
mm[3]=0.0084, mm[4]=0.0102, mm[5]=0.0126, mm[6]=0.0154,
mm[7]=0.0188, mm[8]=0.0230, mm[9]=0.0282, mm[10]=0.0346,
mm[11]=0.0424, mm[12]=0}, dsyst);

```

```

> dsol:= dsolve (dsyst, numeric, method=rkf45,
output=listprocedure):

> dsolN[1]:= subs (dsol, N[1](t)): dsolN[2]:= subs (dsol,
N[2](t)):dsolN[3]:= subs (dsol, N[3](t)):dsolN[4]:= subs
(dsol, N[4](t)):dsolN[5]:= subs (dsol, N[5](t)):dsolN[6]:=
subs (dsol, N[6](t)):dsolN[7]:= subs (dsol,
N[7](t)):dsolN[8]:= subs (dsol, N[8](t)):dsolN[9]:= subs
(dsol, N[9](t)):dsolN[10]:= subs (dsol, N[10](t)):dsolN[11]:=
subs (dsol, N[11](t)):

> dsolN[1](45), dsolN[2](45), dsolN[3](45), dsolN[4](45),
dsolN[5](45), dsolN[6](45), dsolN[7](45), dsolN[8](45),
dsolN[9](45), dsolN[10](45), dsolN[11](45);

>taxas:=
({G[1]=ef*cs*qs*ds*(mm[1]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11),
G[2]=ef*cs*qs*ds*(mm[2]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11),
G[3]=ef*cs*qs*ds*(mm[3]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11),
G[4]=ef*cs*qs*ds*(mm[4]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11),
G[5]=ef*cs*qs*ds*(mm[5]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11),
G[6]=ef*cs*qs*ds*(mm[6]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11),
G[7]=ef*cs*qs*ds*(mm[7]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11),
G[8]=ef*cs*qs*ds*(mm[8]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11),
G[9]=ef*cs*qs*ds*(mm[9]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11),
G[10]=ef*cs*qs*ds*(mm[10]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11),
G[11]=ef*cs*qs*ds*(mm[11]^d)/sum(N[j](t)*(mm[j]^d),j=1..11)});

> eval (taxas, {ef=0.8856, cs=0.1, qs=10, ds=1.0340, d=1,
mm[1]=0.0056, mm[2]=0.0068, mm[3]=0.0084, mm[4]=0.0102,
mm[5]=0.0126, mm[6]=0.0154, mm[7]=0.0188, mm[8]=0.0230,
mm[9]=0.0282, mm[10]=0.0346, mm[11]=0.0424, N[1]=42540,
N[2]=41317, N[3]=38927, N[4]=36225, N[5]=33254, N[6]=30045,
N[7]=26589, N[8]=22811, N[9]=18382, N[10]=12350,
N[11]=1819});

> "end";

```

ANEXO 2

Tabela com o número de partículas recobertas nos intervalos, expoente 1.

<i>Experimento</i>	<i>1</i>	<i>2</i>	<i>3</i>	<i>4</i>	<i>5</i>	<i>6</i>	<i>7</i>	<i>8</i>	<i>9</i>
<i>Intervalo i</i>	<i>N</i>								
<i>1</i>	42540	42555	42630	42643	42077	42100	42218	42239	42388
<i>2</i>	41318	41316	41307	41305	41368	41366	41353	41351	41335
<i>3</i>	38927	38924	38912	38910	39002	38998	38979	38976	38952
<i>4</i>	36225	36223	36210	36207	36306	36302	36281	36278	36252
<i>5</i>	33254	33251	33237	33235	33341	33336	33315	33311	33283
<i>6</i>	30046	30042	30027	30024	30144	30139	30114	30110	30078
<i>7</i>	26589	26585	26568	26565	26694	26689	26662	26658	26624
<i>8</i>	22811	22807	22788	22785	22930	22924	22894	22888	22850
<i>9</i>	18382	18377	18352	18348	18534	18526	18488	18481	18432
<i>10</i>	12350	12342	12302	12295	12600	12587	12524	12513	12432
<i>11</i>	1819	1814	1789	1785	1972	1965	1925	1918	1869
<i>Total</i>	304261	304236	304122	304102	304968	304932	304753	304723	304495

Tabela com o número de partículas recobertas nos intervalos, expoente 2/3.

<i>Experimento</i>	<i>1</i>	<i>2</i>	<i>3</i>	<i>4</i>	<i>5</i>	<i>6</i>	<i>7</i>	<i>8</i>	<i>9</i>
<i>Intervalo i</i>	<i>N'</i>								
<i>1</i>	43329	42348	42443	42460	41738	41768	41919	41945	42135
<i>2</i>	41524	41518	41491	41486	41685	41677	41637	41630	41578
<i>3</i>	39111	39106	39076	39071	39294	39285	39238	39230	39172
<i>4</i>	36383	36377	36349	36344	36554	36546	36502	36494	36439
<i>5</i>	33382	33377	33351	33346	33543	33534	33494	33486	33435
<i>6</i>	30142	30137	30112	30108	30296	30289	30249	30242	30193
<i>7</i>	26655	26651	26627	26623	26801	26793	26756	26750	26703
<i>8</i>	22848	22843	22820	22816	22988	22981	22946	22939	22894
<i>9</i>	18377	18372	18348	18343	18528	18521	18482	18476	18427
<i>10</i>	12267	12261	12228	12222	12470	12460	12408	12399	12334
<i>11</i>	1754	1750	1732	1729	1869	1863	1834	1829	1792
<i>Total</i>	305772	304740	304577	304548	305766	305717	305465	305420	305102

Tabela com o número de partículas recobertas nos intervalos, expoente 0,8.

Experimento	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Intervalo <i>i</i>	N''								
1	42415	42432	42519	42534	41877	41904	42041	42065	42239
2	41431	41427	41408	41405	41542	41537	41509	41504	41469
3	39031	39026	39004	39000	39166	39159	39125	39119	39075
4	36316	36312	36290	36287	36449	36443	36409	36403	36360
5	33330	33326	33305	33301	33460	33454	33421	33415	33373
6	30104	30100	30079	30075	30237	30230	30197	30191	30148
7	26631	26627	26606	26602	26762	26755	26722	26716	26674
8	22836	22832	22810	22806	22969	22963	22929	22923	22880
9	18381	18376	18351	18347	18534	18527	18488	18481	18432
10	12300	12293	12258	12251	12521	12510	12454	12444	12373
11	1779	1775	1754	1750	1908	1902	1868	1863	1821
Total	304554	304526	304384	304358	305425	305384	305163	305124	304844

ANEXO 3

Tabela taxas de crescimento da partícula nos intervalos, expoente 1.

<i>Experimento</i>	<i>1</i>	<i>2</i>	<i>3</i>	<i>4</i>	<i>5</i>	<i>6</i>	<i>7</i>	<i>8</i>	<i>9</i>
<i>Intervalo i</i>	$G \cdot 10^0$ (g/min)								
<i>1</i>	1,2372	1,2147	1,1007	1,0806	1,9387	1,9035	1,7258	1,6945	1,4689
<i>2</i>	1,5024	1,4750	1,3365	1,3121	2,3541	2,3114	2,0956	2,0576	1,7837
<i>3</i>	1,8559	1,8221	1,6510	1,6209	2,9080	2,8552	2,5887	2,5418	2,2034
<i>4</i>	2,2535	2,2125	2,0048	1,9682	3,5311	3,4671	3,1434	3,0864	2,6755
<i>5</i>	2,7838	2,7331	2,4765	2,4313	4,3620	4,2828	3,8830	3,8126	3,3051
<i>6</i>	3,4024	3,3405	3,0269	2,9716	5,3313	5,2346	4,7459	4,6599	4,0395
<i>7</i>	4,1536	4,0780	3,6952	3,6277	6,5084	6,3903	5,7937	5,6887	4,9314
<i>8</i>	5,0815	4,9890	4,5207	4,4381	7,9624	7,8179	7,0880	6,9596	6,0331
<i>9</i>	6,2304	6,1170	5,5428	5,4415	9,7625	9,5854	8,6906	8,5331	7,3970
<i>10</i>	7,6444	7,5052	6,8007	6,6765	1,1978	1,1761	1,0663	1,0470	9,0758
<i>11</i>	9,3677	9,1971	8,3338	8,1816	1,4678	1,4412	1,3067	1,2830	1,1122
<i>Média</i>	2,9891	2,9347	2,6592	2,6106	4,6837	4,5987	4,1694	4,0938	3,5488
<i>Desvio</i>	1,7676	1,7354	1,5725	1,5438	2,3655	2,3226	2,1057	2,0676	2,0345

Tabela taxas de crescimento da partícula nos intervalos, expoente 2/3.

<i>Experimento</i>	<i>1</i>	<i>2</i>	<i>3</i>	<i>4</i>	<i>5</i>	<i>6</i>	<i>7</i>	<i>8</i>	<i>9</i>
<i>Intervalo i</i>	$G \cdot 10^0$ (g/min)								
<i>1</i>	1,7212	1,6898	1,5310	1,5030	2,6990	2,6500	2,4021	2,3585	2,0440
<i>2</i>	1,9590	1,9233	1,7426	1,7107	3,0720	3,0162	2,7341	2,6844	2,3264
<i>3</i>	2,2554	2,2114	2,0062	1,9696	3,5368	3,4725	3,1477	3,0906	2,6784
<i>4</i>	2,5671	2,5203	2,2834	2,2417	4,0256	3,9524	3,5827	3,5177	3,0486
<i>5</i>	2,9555	2,9016	2,6289	2,5809	4,6346	4,5503	4,1247	4,0498	3,5098
<i>6</i>	3,3786	3,3170	3,0052	2,9503	5,2980	5,2017	4,7152	4,6296	4,0122
<i>7</i>	3,8592	3,7889	3,4327	3,3700	6,0516	5,9416	5,3859	5,2881	4,5829
<i>8</i>	4,4144	4,3340	3,9266	3,8549	6,9224	6,7965	6,1608	6,0490	5,2423
<i>9</i>	5,0570	4,9648	4,4982	4,4160	7,9300	7,7858	7,0576	6,9295	6,0054
<i>10</i>	5,7958	5,6901	5,1554	5,0612	9,0885	8,9233	8,0887	7,9419	6,8828
<i>11</i>	6,6371	6,5161	5,9037	5,7958	10,4080	10,2180	9,2628	9,0946	7,8818
<i>Média</i>	2,9930	2,9381	2,6623	2,6137	4,6935	4,6082	4,1771	4,1013	3,5544
<i>Desvio</i>	1,1536	1,1328	1,0261	1,0074	1,8090	1,7761	1,6100	1,5808	1,3700

Tabela taxas de crescimento da partícula nos intervalos, expoente 0,8.

Experimento	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Intervalo i	$G'' \cdot 10^6$ (g/min)								
1	1,5157	1,4872	1,3475	1,3229	2,3794	2,3317	2,1138	2,0754	1,7988
2	1,7704	1,7371	1,5739	1,5452	2,7792	2,7235	2,4689	2,4241	2,1010
3	2,0964	2,0570	1,8638	1,8297	3,2911	3,2251	2,9237	2,8706	2,4880
4	2,4487	2,4027	2,1770	2,1372	3,8442	3,7671	3,4149	3,3530	2,9061
5	2,8997	2,8452	2,5779	2,5308	4,5522	4,4609	4,0439	3,9705	3,4413
6	3,4047	3,3407	3,0268	2,9716	5,3449	5,2377	4,7481	4,6619	4,0406
7	3,9938	3,9187	3,5506	3,4857	6,2697	6,1440	5,5697	5,4686	4,7397
8	4,6929	4,6047	4,1721	4,0959	7,3672	7,2195	6,5446	6,4259	5,5694
9	5,5241	5,4202	4,9110	4,8213	8,6720	8,4981	7,7038	7,5640	6,5558
10	6,5061	6,3838	5,7840	5,6784	10,2140	10,0090	9,0733	8,9086	7,7212
11	7,6551	7,5112	6,8056	6,6813	12,0180	11,7760	10,6760	10,4820	9,0849
Média	2,9936	2,9373	2,6614	2,6128	4,6996	4,6053	4,1748	4,0991	3,5527
Desvio	1,3980	1,3717	1,2428	1,2201	2,1947	2,1506	1,9496	1,9142	1,6591

ANEXO 4

Tabela das constantes K nos intervalos, expoente 1.

<i>Experimento</i>	1	2	3	4	5	6	7	8	9
<i>Intervalo i</i>	$K \cdot 10^4$ (min^{-1})								
1	2,4744	2,4294	2,2014	2,1612	3,8774	3,8070	3,4516	3,3890	2,9378
2	2,4529	2,4082	2,1820	2,1422	3,8434	3,7737	3,4214	3,3593	2,9122
3	2,4735	2,4285	2,2004	2,1603	3,8757	3,8053	3,4502	3,3877	2,9366
4	2,4518	2,4072	2,1812	2,1414	3,8418	3,7721	3,4200	3,3579	2,9109
5	2,4724	2,4274	2,1995	2,1594	3,8741	3,8038	3,4487	3,3862	2,9354
6	2,4668	2,4219	2,1946	2,1545	3,8653	3,7952	3,4409	3,3785	2,9287
7	2,4583	2,4136	2,1870	2,1471	3,8520	3,7821	3,4290	3,3669	2,9187
8	2,4551	2,4104	2,1842	2,1442	3,8470	3,7772	3,4245	3,3625	2,9149
9	2,4573	2,4126	2,1861	2,1461	3,8504	3,7805	3,4276	3,3655	2,9174
10	2,4612	2,4164	2,1896	2,1496	3,8565	3,7866	3,4331	3,3709	2,9221
11	2,4621	2,4172	2,1903	2,1503	3,8578	3,7879	3,4344	3,3721	2,9232
Média	2,4623	2,4175	2,1906	2,1506	3,8583	3,7883	3,4347	3,3724	2,9234
Desvio	0,0083	0,0082	0,0074	0,0073	0,0130	0,0128	0,0116	0,0114	0,0098

Tabela das constantes K nos intervalos, expoente 2/3.

<i>Experimento</i>	1	2	3	4	5	6	7	8	9
<i>Intervalo i</i>	$K' \cdot 10^4$ (min^{-1})								
1	5,8861	5,7787	5,2357	5,1399	9,2300	9,0624	8,2146	8,0655	6,9900
2	5,8515	5,7449	5,2052	5,1099	9,1761	9,0094	8,1668	8,0183	6,9490
3	5,8844	5,7696	5,2342	5,1387	9,2276	9,0598	8,2124	8,0634	6,9880
4	5,8500	5,7434	5,2035	5,1085	9,1737	9,0069	8,1644	8,0163	6,9473
5	5,8828	5,7755	5,2327	5,1372	9,2250	9,0572	8,2101	8,0610	6,9861
6	5,8740	5,7669	5,2248	5,1293	9,2110	9,0436	8,1978	8,0489	6,9755
7	5,8605	5,7537	5,2128	5,1176	9,1898	9,0227	8,1789	8,0303	6,9595
8	5,8553	5,7486	5,2082	5,1131	9,1819	9,0149	8,1717	8,0234	6,9534
9	5,8588	5,7520	5,2114	5,1161	9,1873	9,0202	8,1766	8,0282	6,9575
10	5,8650	5,7580	5,2169	5,1216	9,1970	9,0298	8,1853	8,0367	6,9650
11	5,8664	5,7595	5,2182	5,1228	9,1994	9,0315	8,1872	8,0385	6,9666
Média	5,8668	5,7592	5,2185	5,1232	9,1999	9,0326	8,1878	8,0391	6,9671
Desvio	0,0132	0,0121	0,0117	0,0115	0,0207	0,0203	0,0184	0,0181	0,0157

Tabela das constantes K nos intervalos, expoente 0,8.

Experimento	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Intervalo i	$K'' \cdot 10^4$ (min^{-1})								
1	4,1825	4,1039	3,7184	3,6505	6,5659	6,4342	5,8329	5,7270	4,9637
2	4,1532	4,0751	3,6923	3,6249	6,5198	6,3891	5,7919	5,6868	4,9288
3	4,1810	4,1024	3,7171	3,6491	6,5637	6,4321	5,8309	5,7250	4,9620
4	4,1518	4,0738	3,6911	3,6236	6,5178	6,3871	5,7900	5,6850	4,9273
5	4,1797	4,1011	3,7158	3,6479	6,5616	6,4300	5,8289	5,7231	4,9603
6	4,1721	4,0937	3,7091	3,6414	6,5497	6,4183	5,8183	5,7127	4,9514
7	4,1606	4,0824	3,6989	3,6313	6,5316	6,4006	5,8023	5,6970	4,9377
8	4,1563	4,0782	3,6950	3,6275	6,5248	6,3939	5,7962	5,6911	4,9325
9	4,1592	4,0810	3,6976	3,6301	6,5294	6,3985	5,8004	5,6951	4,9360
10	4,1645	4,0862	3,7023	3,6347	6,5379	6,4067	5,8078	5,7023	4,9423
11	4,1657	4,0874	3,7034	3,6358	6,5398	6,4082	5,8096	5,7040	4,9437
Média	4,1661	4,0877	3,7037	3,6361	6,5402	6,4090	5,8099	5,7045	4,9442
Desvio	0,0112	0,0110	0,0100	0,0098	0,0176	0,0173	0,0157	0,0154	0,0133